

## 激光烧蚀低密度等离子体产生高次谐波的研究进展

高健<sup>1,2\*</sup>, 吴健<sup>1,2</sup><sup>1</sup>华东师范大学精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200241;<sup>2</sup>华东师范大学重庆研究院精密光学重庆市重点实验室, 重庆 401121

**摘要** 超短强激光脉冲与物质相互作用产生的高次谐波辐射是一种相干的极紫外或软 X 射线光源, 并且在时间上还是阿秒脉冲串。在不同介质中探寻更有效的高次谐波产生方案一直是研究热点。利用飞秒激光烧蚀低密度等离子体可将高次谐波扩展到几乎任何固体材料, 极大地丰富了媒介的选择性。由于某些材料的等离子体内低电离态离子共振跃迁频率与谐波波长存在匹配, 使得在极紫外波段特定阶次谐波表现出明显的共振增强效应, 从而能够获得强单色的高次谐波辐射。结合纳米颗粒的近场增强效应和较大的电子回撞截面, 极紫外波段的高次谐波转换效率可以进一步得到提高。激光等离子体高次谐波有望产生高脉冲能量、增强阶次可调和高重复频率的相干极紫外辐射。综述单阶谐波共振增强效应的产生原理和研究进展, 分析各种优化方法和光场调控手段, 并对未来的发展趋势进行展望。

**关键词** 非线性光学; 高次谐波; 低密度等离子体; 共振增强; 极紫外波段

中图分类号 O437 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL231546

## 1 引言

获得持续时间更短的脉冲光源作为时间标尺用于微观世界超快物理过程的诊断与操控一直是科学工作者努力的目标。在化学反应过程中, 原子分子通过转动、振动和解离等运动方式发生反应, 这些动力学过程持续时间在皮秒 ( $10^{-12}$  s) 到飞秒 ( $10^{-15}$  s) 量级<sup>[1-3]</sup>。激光锁模<sup>[4-5]</sup>技术可以将脉冲持续时间缩短到飞秒量级, 让我们在原子层面上观测并且控制化学键的断裂与形成过程。1999 年, Zewail<sup>[6-7]</sup>因成功利用飞秒脉冲这一“闪光灯”对化学反应过程进行观测获得了诺贝尔化学奖。如果我们想进一步捕捉电子在原子内部的超快运动过程, 就需要时间尺度比飞秒更短的阿秒 ( $10^{-18}$  s) 脉冲。啁啾脉冲放大 (CPA) 技术<sup>[8-9]</sup>的出现, 突破了脉冲峰值功率近 20 年的限制, 使其可以达到拍瓦 ( $10^{15}$  W) 量级。Strickland 和 Mourou 因发展了 CPA 技术获得了 2018 年的诺贝尔物理学奖。得益于 CPA 技术产生的超短强激光脉冲, 我们可以利用该脉冲驱动原子、分子中电子运动产生高次谐波辐射 (HHG) 而获得阿秒辐射光源。此外, HHG 还是波长覆盖极紫外 (EUV) 到软 X 射线范围的宽带相干辐射光源<sup>[10-12]</sup>。HHG 已被广泛应用于超快动力学过程诊断<sup>[13-14]</sup>、高分辨相干衍射成像<sup>[15-16]</sup>以及手性分子探测<sup>[17]</sup>等重要领域。2023 年诺贝尔奖物理学奖被授予超快领域的三位物理学家

Agostini<sup>[18-20]</sup>、Krausz<sup>[21-23]</sup>和 L’Huillier<sup>[24-26]</sup>, 以表彰他们在实验中利用高次谐波产生阿秒脉冲并用于电子超快动力学探测方面的研究。

原子、分子作为媒介产生 HHG 辐射研究最为成熟, 其物理机制可以借助 Corkum<sup>[11]</sup>提出的半经典“三步模型”来解释。该模型可分为隧穿电离过程、电子脱离母核的加速过程以及电子与母核再复合的过程, 原理如图 1 所示。当激光峰值功率密度大于  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> 时, 激光场所产生的电场与原子内部的库仑势可相比拟, 原子势能曲线在瞬时强电场的影响下开始形变, 某一侧的势能曲线被压制, 电子就能够以隧穿电离的形式摆脱库仑场束缚。通过隧穿电离而进入连续态的电子会在激光场的作用下被加速而获得能量。由于激光

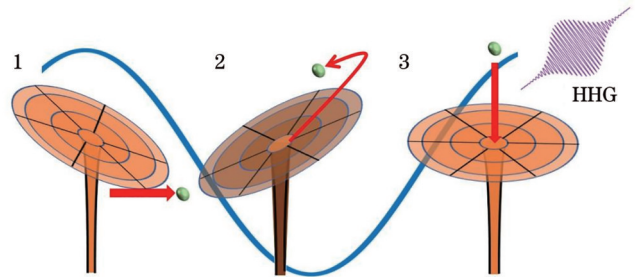


图 1 原子、分子高次谐波产生的半经典“三步模型”原理示意图  
Fig. 1 Schematic illustration of semi-classical “three-step” model for HHG from atoms or molecules

收稿日期: 2023-12-19; 修回日期: 2024-01-16; 录用日期: 2024-02-02; 网络首发日期: 2024-02-20

基金项目: 国家自然科学基金 (12104160, 12227807)

通信作者: \*jgao@jps.ecnu.edu.cn

电场是往复振荡的,当激光电场改变方向时,被电离之后再加速的准自由电子会被重新拉回到母核,与母核复合以产生 HHG 辐射的形式释放这部分能量。在数个光周期的激光脉冲驱动下每半个周期会产生一次 HHG,这些谐波彼此相干叠加,在时间上就会形成阿秒脉冲串,并且脉冲串之间的间隔为半个驱动光周期。利用振幅门<sup>[27-28]</sup>、偏振门<sup>[29-30]</sup>、双色光驱动<sup>[31-32]</sup>以及基于波前旋转的“灯塔”<sup>[33-34]</sup>等技术方案,我们可以获得孤立的阿秒脉冲。实验中 HHG 辐射波长可以拓展到水窗波段以下。2012 年,Popmintchev 等<sup>[35]</sup>利用 3.9  $\mu\text{m}$  波长的驱动激光与氦气作用获得了大于 5000 阶、波长对应光子能量为 1.6 keV 的 HHG 辐射。在脉冲持续时间上,2017 年,瑞士苏黎世联邦理工学院的 Gaumnitz 等<sup>[36]</sup>利用两个光周期的中红外激光脉冲将 HHG 脉冲宽度缩短至目前最短的 43 as。

在不同介质中探寻转换效率更高、实验方法更简单并且装置更紧凑的 HHG 产生方案一直是研究热点。HHG 产生的媒介不仅可以是气体,还可以是液体<sup>[37-39]</sup>、晶体<sup>[40-41]</sup>、低密度等离子体<sup>[42-43]</sup>以及相对论致密等离子体<sup>[44-46]</sup>。利用这 5 种媒介的 HHG 产生方式有各自的优缺点。气体 HHG 方案有诸多优势,其劣势则在于当激光强度大于  $10^{15} \text{ W/cm}^2$  时,原子中的电子又会因过垒电离而极大地降低与母核复合的概率,同时驱动激光与 HHG 传播的群速度不一致会导致相位失配,这样限制了阿秒光源的脉冲能量。此外,由于高重复频率驱动激光的脉冲能量往往很低,利用气体获得高重复频率的 HHG 变得很困难。将产生介质从气体替换成具有周期性结构的晶体材料,由于晶体材料的电离能为禁带宽度,因此我们可以通过选择不同的晶体材料来降低对激光强度的要求。驱动晶体产生 HHG 的光强可以比气体低两个数量级,在  $10^{12} \text{ W/cm}^2$  量级。驱动激光强度的降低使得晶体材料有望采用高重复频率的激光驱动产生高重复频率的 HHG,并可用于产生极紫外光频梳<sup>[47]</sup>。利用纳米结构的场增强效应,固体 HHG 的转换效率可以被明显提高<sup>[48-50]</sup>。固体 HHG 还有着可用于探测晶体材料的能带结构和能带内超快动力学过程的优势<sup>[51-52]</sup>。但受材料损伤阈值的影响,HHG 的脉冲能量以及最高阶次都难以得到突破。液体 HHG 近些年越来越受人们的关注,它相较于固体可以承受更高的光强,并且液滴靶可以快速更新,做到与高重复频率激光相匹配。但由于液体体系本身的复杂性和实现稳定超薄厚度的液体膜技术的限制,液体 HHG 在实验上和理论上进展相对缓慢。相对论激光驱动致密等离子体表面产生 HHG 的优势在于可以突破驱动激光功率密度的限制,产生能量更高、持续时间更短的阿秒辐射光源。聚焦后的相对论等离子体 HHG 有望达到前所未有的光强来研究非线性量子动力学现象<sup>[53]</sup>。但由于驱动激光光强需要达到相对论量级即  $10^{18} \text{ W/cm}^2$  以上,激光系统就变得十分复杂、

造价昂贵并且体积较大。这使得相对论致密等离子体 HHG 产生系统相比气体和固体 HHG 不再紧凑和小型化。受限于高功率飞秒激光系统的重复频率,相对论 HHG 光源的重复频率同样受到限制。此外,这种产生方式对于等离子体密度梯度有严格的要求,实验中还需要借助等离子体镜系统提高激光对比度<sup>[54-55]</sup>。最后一种产生 HHG 的方式是利用激光烧蚀低密度等离子体羽,其优势在于 HHG 产生可适用于几乎任何固体材料,并且由于某些材料产生的等离子体中离子共振跃迁能级与 HHG 阶次相互匹配,从而可以强烈地共振增强单阶谐波,显著地提高极紫外波段辐射的转换效率。通过选择不同材料以及利用各种技术手段,HHG 的共振波长以及产生过程可以调控。我们还可以借助纳米颗粒的表面近场增强效应以及纳米颗粒中电子比原子、分子 HHG 中电子有更大的复合截面,进一步提高 HHG 的转换效率。这种 HHG 产生方式的缺点是激光作用材料后不可避免地造成靶表面损伤,破坏了 HHG 的持续产生,并且获得可应用的阿秒光源还需要科研人员的不懈努力。

本文将基于飞秒强激光等离子体 HHG 的产生原理与单阶谐波共振增强的特点,综述采用不同靶材料,改变驱动激光色散、波长,采用双色场、结构光场以及使用纳米颗粒等各种手段调控 HHG 产生过程和提高 HHG 转换效率的研究进展。

## 2 强单色的极紫外高次谐波辐射

在极紫外光刻领域,锡(Sn)是理想的光刻光源靶材<sup>[56-58]</sup>。这是因为激光 Sn 等离子体在 13.5 nm 处的非相干极紫外辐射来源非常丰富,主要来自高价态 Sn 离子( $\text{Sn}^{8+} \sim \text{Sn}^{14+}$ )产生的类连续跃迁阵列,其转换效率在 13.5 nm 处 2% 带宽内可以达到 6%。激光烧蚀低密度 Sn 等离子体羽也可以在极紫外波段产生相干的 HHG 辐射,并且光谱在 17 阶(对于驱动激光中心波长  $\lambda=800 \text{ nm}$ ,  $\lambda_{\text{H17}}=47.06 \text{ nm}$ )会产生明显的共振增强效应。2006 年,Suzuki 等<sup>[59]</sup>第一次在实验中获得了 Sn 等离子体 HHG 光谱,并发现了谐波存在共振增强现象。同时他们还发现 HHG 受激光波长和椭圆度影响。在华东师范大学精密光谱科学与技术国家重点实验室,我们也同样对 Sn 靶的 HHG 辐射进行了实验研究,典型的实验光路如图 2 所示。

采用一台重复频率为 1 kHz 的 CPA 钛宝石飞秒激光器作为驱动光源(商用 Astrella, Coherent 公司),其中心波长为 800 nm,脉冲宽度为 35 fs,最大单脉冲能量为 5 mJ。因为需要利用一束脉冲预先作用 Sn 靶产生包含一价和二价的低密度、低电离的预等离子体,然后再用另一束脉冲与其相互作用产生 HHG,所以我们将激光器输出的飞秒激光脉冲用 2:8 的分束镜分为两束,一束作为预脉冲(HP),另一束作为主脉冲(DP)。能量为 5  $\mu\text{J}$  的 HP 脉冲通过一个焦距为  $f=175 \text{ mm}$  的



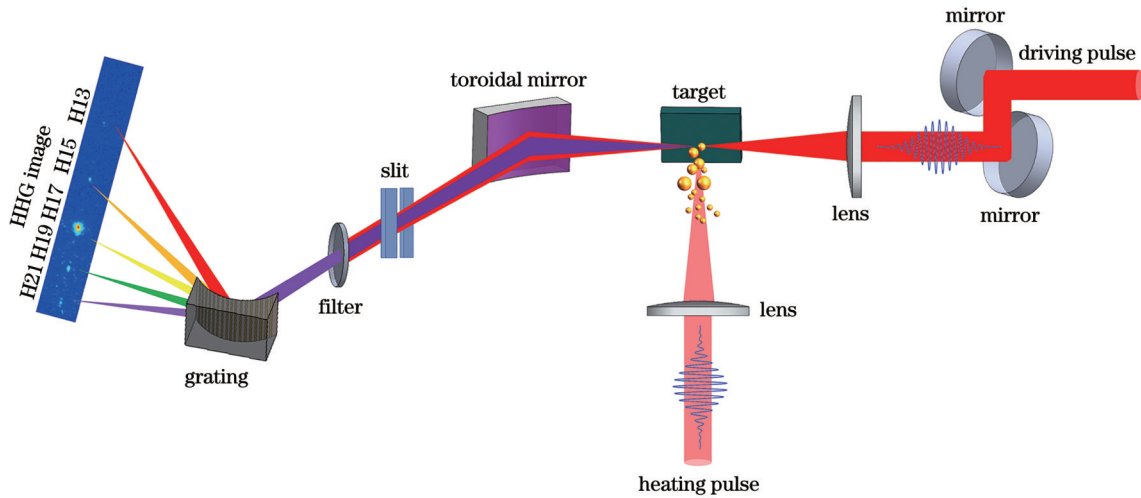


图 2 激光等离子体高次谐波产生装置示意图

Fig. 2 Experimental setup for HHG from laser-produced plasmas

透镜垂直聚焦到靶面上。为了能够使 HP 脉冲作用产生的等离子体羽尺寸更大并且不致过电离产生高价态的离子,调整聚焦透镜的焦距使 HP 脉冲聚焦到合适的光斑尺寸,最终的聚焦峰值功率密度在  $10^9 \sim 10^{10} \text{ W/cm}^2$  之间。经过分束镜分束的 DP 脉冲随后通过由多个高反射镜组成的光学延时系统,在平行靶表面方向作用于 HP 脉冲激发的预等离子体上而产生 HHG。HP 与 DP 脉冲的延时大约为 42 ns。DP 脉冲采用焦距为  $f = 150 \text{ mm}$  的透镜聚焦,其脉冲能量为 0.4 mJ,计算的峰值功率密度大约为  $6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ,DP 脉冲与靶面的垂直距离大约为 300  $\mu\text{m}$ 。

用于极紫外波段 HHG 辐射收集与表征的平场光谱仪由 3 部分组成,分别为聚焦系统、光栅系统以及成像系统。聚焦系统由一块  $50 \text{ mm} \times 30 \text{ mm} \times 25 \text{ mm}$  的超环面聚焦镜以及滤膜组成。超环面聚焦镜的子午面曲率半径为  $R = 1578.69 \text{ mm}$ ,弧矢面曲率半径为  $r = 33.6 \text{ mm}$ ,其掠入射角为  $85^\circ$ ,表面镀金。滤膜可以根据实验探测波段进行更换,如铝膜和锆膜。光栅系统由宽度可变的狭缝以及 1200 line/mm 的球面光栅组成,光栅大小为  $50 \text{ mm} \times 30 \text{ mm} \times 15 \text{ mm}$ ,曲率半径为  $\rho = 5649 \text{ mm}$ 。根据实验中氩气 HHG 标定,该光栅可以测量 5~80 nm 波段范围内的极紫外辐射。成像系统由带有荧光屏的双层微通道板(MCP)及电荷耦合器件(CCD)相机组成。为了方便在真空下调整所探测波段,MCP 和 CCD 被安装在一条滑轨上,另外通过调节 MCP 所加电压还可以对实验探测信号实现不同增益。

图 3 分别展示了飞秒强激光烧蚀 Sn 固体靶和纳米颗粒靶产生 HHG 辐射的 CCD 原始图和光谱图。纳米颗粒产生 HHG 的光谱特性将在后文着重介绍,这一部分先介绍固体靶产生等离子体 HHG 的特性。从图 3(a)和图 3(c)可以看到,实验中利用激光 Sn 等离子体,在光谱探测范围 37~65 nm 内获得了 H13~H21 阶

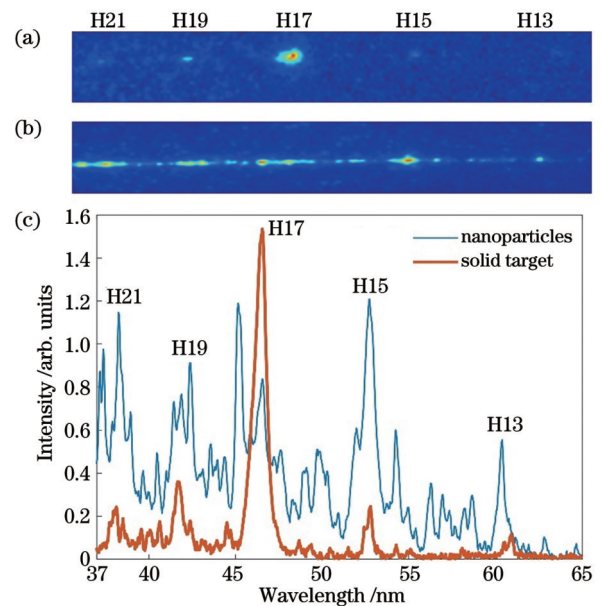


图 3 实验中飞秒强激光烧蚀 Sn 固体靶和纳米颗粒靶产生 HHG 辐射。(a),(b)纯 Sn 固体靶和 Sn 纳米颗粒靶 HHG 原始图;(c)光谱图

Fig. 3 HHG obtained in experiment with femtosecond intense laser-produced plasmas from Sn solid target and nanoparticles. (a), (b) HHG raw images obtained from Sn solid target and Sn nanoparticles; (c) spectra

HHG 辐射。虽然 H13、H15、H19 以及 H21 阶 HHG 强度相对较弱,但特殊的是 H17 阶辐射(波长  $\lambda = 47.06 \text{ nm}$ ,  $26.35 \text{ eV}$ )的强度明显强于其他阶次,是相邻的 H15 阶次的 6.14 倍。在 Suzuki 等<sup>[59]</sup>的研究中,H17 的转换效率大约为  $1.1 \times 10^{-4}$ ,对于 10 mJ 的驱动激光其能量为 1.1  $\mu\text{J}$ 。Sn 等离子体 HHG 在 H17 共振增强的实验结果也被很多其他文章报道过<sup>[60-63]</sup>。为了解释 Sn 在 47 nm 附近辐射比其他阶次更强的原因,首先需要验证该辐射是否来源于 HHG。在气体 HHG 中,线偏振激光脉冲驱动的 HHG 的转换效率最高,当驱动激光

脉冲从线偏振逐渐变为圆偏振时,根据“三步模型”理论,电子与母核复合概率下降会导致 HHG 强度降低。这也是可以利用偏振门获得孤立阿秒脉冲的原理。Suzuki 等<sup>[59]</sup>利用 1/4 波片改变激光偏振态,研究了 Sn 的 H17 强度随波片旋转角度的变化趋势。当波片角度为 0° 时激光为线偏振,HHG 强度最强;当波片角度为 10° 时谐波强度开始下降;当波片角度达到 50° 时不再产生 HHG 辐射。实验结果证明,同气体 HHG 强度对于激光脉冲偏振态的依赖关系一样,激光等离子体 HHG 随着激光偏振从线偏振变为圆偏振,其强度也逐渐降低。这证明了 Sn 靶共振增强的 H17 谐波是相干的 HHG 辐射。2021 年, Khokhlova 等<sup>[64]</sup>对 Sn 共振阶次和非共振阶次强度与激光偏振态的依赖关系进行了理论研究。他们求解了三维含时薛定谔方程并建立了分析模型,研究结果表明随着激光偏振态逐渐从线偏振变为圆偏振,处于非共振阶次的谐波强度快速下降,而处于共振态的谐波强度下降缓慢。处于非共振阶次的 H29 谐波,椭圆度从 0 增大到 0.3 时,其强度已经降低了 2 个数量级。而处于共振阶次的 H17 阶谐波,不但线偏振强度要比非共振阶次的强很多,而且当椭圆度为 0.3 时,其强度仍与线偏振时同一量级。共振阶次在激光椭圆偏振驱动下还可产生强的 HHG 辐射,此为激光等离子体 HHG 产生准单色圆偏振极紫外相干辐射提供了思路。Ganeev 等<sup>[63]</sup>的研究中除了发现 Sn 等离子体 HHG 与激光偏振度的依赖关系外,还发现共振的 H17 阶谐波与其他非共振谐波的发散角是相同的,再次证明共振增强阶次同样来源于电子与母核的复合。

从激光等离子体 HHG 产生过程我们知道,首先是一束 HP 脉冲电离靶表面产生低密度(等离子体粒子密度不超过  $5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 、弱电离(自由电子密度不超过  $8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ )的等离子体羽,随后 DP 脉冲再与等离子体羽相互作用产生 HHG 辐射。前面已经证实增强的阶次是源于 HHG,那么增强效应可能来源于等离子体内离子跃迁过程参与了 HHG 的产生。Ganeev 等<sup>[63]</sup>利用多组态 Hartree-Fock 方法计算了 Sn II 离子和两种跃迁方式 Sn III 离子的光吸收截面光谱,如图 4 所示。从图 4 上图可以看出 Sn II 离子(电离势为  $I_p = 14.6 \text{ eV}$ )的  $4d^{10}5s^25p-4d^95s^25p^2$  跃迁过程,在 24.9~27.3 eV 区间具有较大的振子强度。对于  $4d^{10}5s^25p^2P_{3/2}$  到  $4d^95s^25p^2(^1D)^2D_{5/2}$  的跃迁过程(辐射波长 47.20 nm, 26.27 eV),它的加权振子强度  $gf$  值为 1.52。这正好和  $\lambda = 800 \text{ nm}$  的驱动激光脉冲激发的 H17 阶谐波处于相同波长,两者之间的共振导致 H17 辐射强度远远高于其他阶次。Strelkov<sup>[65]</sup>在气体 HHG“三步模型”的基础上发展了适用于等离子体 HHG 的“四步模型”。该模型将气体 HHG 最后一个过程拆分成两步,即:被激光加速到连续态的电子不是直接与母核复合,而是先通过无辐射跃迁被离子的自电离态所捕获,然后电子再

从自电离态跃迁到基态而辐射 HHG 光子。“四步模型”如图 5 所示。在共振增强 HHG 辐射的过程中,单电荷离子的独立响应被证明是谐波产生的原因,所以等离子体中存在高价态离子会使其产生效率极大降低。另外,过多数量的自由电子也会使 HHG 相位失配。实验中,通过增加 HP 脉冲光强,我们证实过电离会降低 HHG 的产生效率,甚至不再产生高次谐波,最终只能收集到 Sn 等离子体非相干辐射。

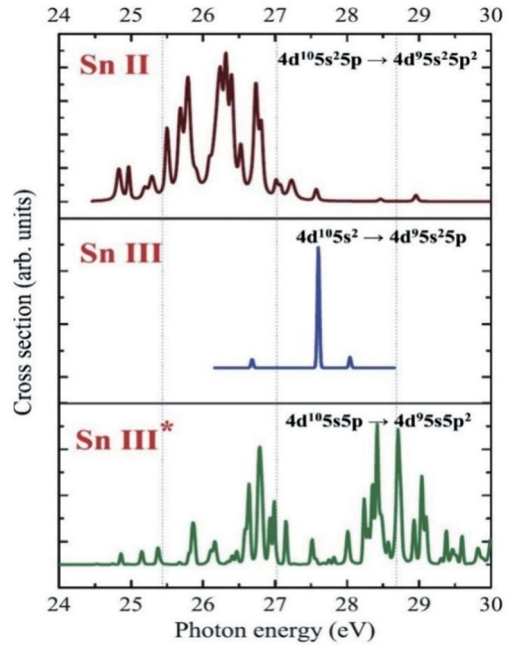


图 4 Sn II (上)、Sn III (中)以及 Sn III\* (下)离子的光吸收光谱<sup>[63]</sup>  
Fig. 4 Photoabsorption cross-section spectra of Sn II (top), Sn III (middle), and Sn III\* (bottom)<sup>[63]</sup>

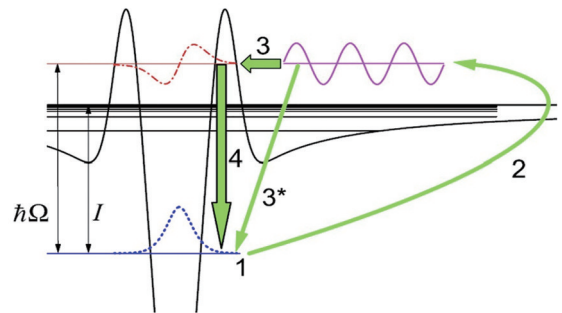


图 5 “四步模型”过程示意图。1) 电离; 2) 电场中自由电子运动; 3') 电子与母核复合过程,在等离子体 HHG 中被分成 3) 无辐射跃迁到自电离态和 4) 到基态释放 EUV 辐射两步<sup>[65]</sup>  
Fig. 5 “Four-step” model of plasma HHG includes 1) ionization, 2) free-electronic motion in electric field, 3') recombination in gas HHG being replaced by 3) radiationless transition to autoionizing state, and 4) relaxation with EUV emission<sup>[65]</sup>

除了激光 Sn 等离子体产生的 HHG 在 H17 阶有明显的共振增强效应外,铟(In)等离子体产生的 HHG 同样可以获得共振增强的单阶谐波。2006 年, Ganeev



等<sup>[66]</sup>利用 $\lambda=796\text{ nm}$ ,脉宽 $150\text{ fs}$ ,重复频率 $10\text{ Hz}$ 的激光脉冲激发 In 等离子体获得共振 HHG 辐射。HHG 光谱阶次最大获得了 H39 阶( $\lambda=20.4\text{ nm}$ ),并且在 H11 阶到 H39 阶极紫外区间光谱整体呈现平台区,平台区转换效率在 $8\times 10^{-7}$ 。值得特别注意的是 In 等离子体 HHG 在 H13 阶( $\lambda=61.2\text{ nm}$ )出现明显共振增强,其强度比邻近阶次强度高两个数量级。对于能量为 $10\text{ mJ}$ 的 DP 激光驱动产生的 H13 阶,HHG 转换效率提高了 2 个数量级,大约为 $8\times 10^{-5}$ ,对应 $0.8\text{ }\mu\text{J}$ 的单脉冲能量。In 等离子体 HHG 在 H13 阶的共振增强源于 In II 离子从 $4d^{10}5s^2\ ^1S_0$ 到 $4d^95s^25p\ (^2D)\ ^1P_1$ 的跃迁,该跃迁波长在 $62.2\text{ nm}$ ( $19.92\text{ eV}$ )的加权振子强度 $gf$ 值为 $1.11$ ,是其他 In II 以 $4d^{10}5s^2\ ^1S_0$ 为基态跃迁的 12 倍。由于交流斯塔克频移使得该跃迁与 H13 阶发生共振增强效应。改变驱动激光波长可以调控共振效应产生与否,当 DP 激光脉冲的中心波长远离 $796\text{ nm}$ 时,H13 阶的波长因不再与 In II 离子共振,强度也会被减弱。2015 年,Rosenthal 等<sup>[67]</sup>根据铬(Cr)在 H29 阶的共振增强特点,研究了共振与非共振阶次的相位匹配关系,发现共振与非共振阶次强度随等离子体长度的变化趋势相同,并且各阶次的相干长度不会有明显突变。这一研究结果否定了自由电子导致的相位失配得到补偿是共振增强原因的假定<sup>[68-69]</sup>,并且支持了“四步模型”的理论解释。2023 年,Singh 等<sup>[70]</sup>对 In 和镓(Ga)等离子体 HHG 进行了研究。对于 In, $\lambda=1780\text{ nm}$ 和 $\lambda=860\text{ nm}$ 驱动激光分别在 H27 阶和 H13 阶产生共振增强的单阶 HHG,这两阶谐波光子能量都接近并在 $\text{In}^+$ 的电离能 $18.87\text{ eV}$ 以下。通过改变驱动激光波长,实验中发现当波长远离 $1780\text{ nm}$ 和 $860\text{ nm}$ 时,谐波强度都会降低。对于 Ga 等离子体 HHG 辐射, $\lambda=800\text{ nm}$ 驱动激光产生的 HHG 在 H13 阶会产生明显共振增强,并且谐波波长对应的光子能量也小于 $\text{Ga}^+$ 的电离能 $20.52\text{ eV}$ 。通过实验和理论分析,他们提出了耦合自电离暗态和里德堡态的理论解释,证明在多光子电离领域“四步模型”同样适用。2020 年,Kim 等<sup>[71]</sup>对于钼(Mo)等离子体共振增强 HHG 辐射进行了研究。实验中发现,在中心波长 $\lambda=806\text{ nm}$ 的激光脉冲驱动下,由于 $4p-4d$ 跃迁,HHG 在 H25 阶( $32\text{ nm}$ )会产生共振增强效应。研究还发现共振过程受 HP 脉冲与 DP 脉冲延时、两束脉冲能量以及激光双色场等参数影响。锌(Zn)、锑(Sb)、锰(Mn)、砷化镓(GaAs)和锑化铟(InSb)等<sup>[42,72]</sup>激光等离子体 HHG 同样存在满足“四步模型”的共振增强阶次,共振阶次分别为 H9、H21、H31、H27 和 H21,这里不再具体分析。

只有少数材料的 HHG 光谱在某一阶谐波表现出共振增强效应,还有很多材料诸如铝(Al)、铜(Cu)、银(Ag)、金(Au)、镁(Mg)、碳(石墨,C)和硼(B)等<sup>[42,72-77]</sup>,它们产生的 HHG 并没有特殊的单阶增强效应。图 6(a)~图 6(c)分别呈现了 Ag、Au、Mg 和 C 的

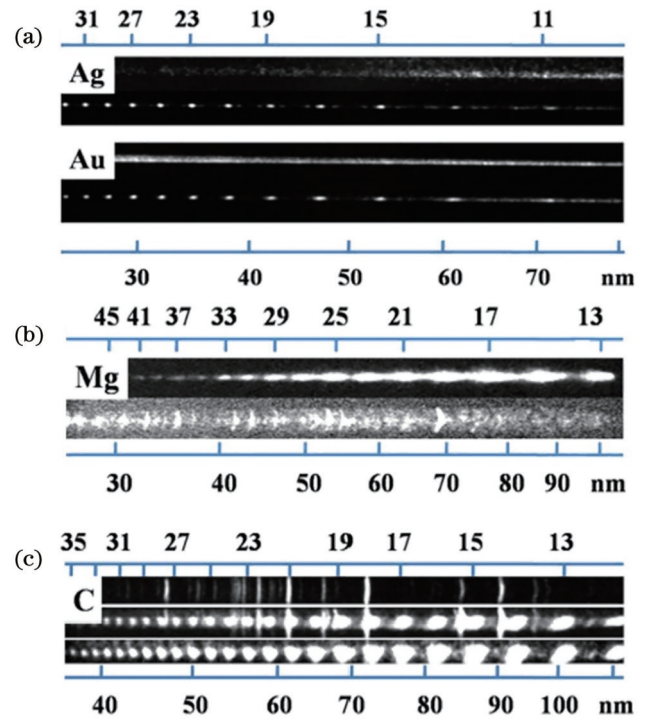


图 6 等离子体和非共振 HHG 光谱。(a) Ag 和 Au 在 $810\text{ nm}$ 激光驱动下的等离子体(上)和 HHG 光谱(下);(b) Mg 在 $1340\text{ nm}$ 激光驱动下的 HHG(上)和等离子体光谱(下);(c) C 在 $1340\text{ nm}+670\text{ nm}$ 双色场脉冲驱动下的等离子体(上)、等离子体+HHG(中)和 HHG 光谱(下)<sup>[72]</sup>

Fig. 6 Plasma and nonresonant harmonic spectra. (a) Raw images of plasma (upper panels) and HHG (bottom panels) spectra obtained from Ag and Au targets with  $810\text{ nm}$  femtosecond pulses; (b) raw images of HHG (upper panel) and plasma (bottom panel) spectra obtained from Mg target with  $1340\text{ nm}$  femtosecond pulses; (c) raw images of plasma (upper panel), plasma+HHG (middle panel), and HHG (bottom panel) spectra obtained from C target with  $1340\text{ nm}+670\text{ nm}$  femtosecond pulses<sup>[72]</sup>

等离子体光谱和 HHG 光谱。图 6(a)中,虽然 Ag 和 Au 各自产生的 HHG 辐射的某些阶次也有对应波长的离子跃迁光谱,但是在 HHG 光谱上并没有表现出某一阶的共振增强次效应。它们在极紫外区间 HHG 光谱仅仅展现平台区,即谐波强度彼此几乎相同。激光等离子体 HHG 的截止阶次 $H_{\text{max}}$ 同气体 HHG 一样,满足 $H_{\text{max}}=I_p+3.17U_p$ ,其中 $I_p$ 为电离势, $U_p$ 为激光有质动力势。根据此公式我们可以知道,采用电离势较大的材料可以拓展 HHG 的截止频率。由于 $\text{Ag}^+$ ( $I_p=21.48\text{ eV}$ )、 $\text{Au}^+$ ( $I_p=20.2\text{ eV}$ )<sup>[72]</sup>和 $\text{B}^+$ ( $I_p=25.1\text{ eV}$ )<sup>[74,77]</sup>的一阶离子电离势较大,实验中它们分别可以产生最高 H63( $12.86\text{ nm}$ )、H57( $14.21\text{ nm}$ )和 H63( $12.63\text{ nm}$ )阶的截止 HHG 辐射。采用更高价态的离子作为产生 HHG 的介质源也是拓展截止频率的方法,2007 年,Ganeev 等<sup>[78]</sup>利用 $\text{Mn}^{2+}$ 电离产生了目前最高截止阶 H101( $7.9\text{ nm}$ )阶的 HHG 辐射。无共振增强

阶次的现象也出现在 Mg 和 C 等离子体 HHG 中<sup>[72]</sup>, 如图 6(b) 和图 6(c) 所示。其中 H19、H27 和 H37 等谐波阶次均有等离子体特征谱线对应, 但是并没有发生共振增强。通过比较共振与非共振 HHG, 可以总结出只有加权振子强度  $gf$  值很高的那些离子跃迁才能与 HHG 阶次发生共振增强。

### 3 纳米颗粒增强高次谐波辐射

纳米颗粒是介于微观原子、分子和宏观固体物质之间的一种过渡态物质, 它为探索微观粒子到宏观物质物理性质的转变提供了桥梁。纳米颗粒具有传统材料所不具备的小尺寸效应、表面效应, 还可以激发强烈的局域电磁场增强效应。纳米微结构/纳米颗粒在被损伤阈值以下的激光强度驱动下, 表面近场增强效应已被证实可以提高二阶、三阶<sup>[79-80]</sup>以及固体 HHG 的产生效率<sup>[48-50, 81]</sup>。当纳米颗粒与损伤阈值以上的飞秒强激光脉冲相互作用时, 纳米颗粒表面会在增强的近场作用下电离形成纳米等离子体。利用速度成像谱仪 (VMI), 二氧化硅和金等纳米颗粒以及表面分子在近场增强效应作用下电子、离子的超快电离过程可以得到诊断<sup>[82-84]</sup>。纳米体系与强激光脉冲相互作用的研究已经应用到了光催化、肿瘤靶向治疗以及激光加工<sup>[85-90]</sup>等领域中。

纳米颗粒材料同样适用于激光等离子体 HHG 研究领域, 它可以极大地增强极紫外波段 HHG 辐射<sup>[60, 91-96]</sup>。2009 年, Elouga Bom 等<sup>[60]</sup>采用  $\text{In}_2\text{O}_3$  和 Sn 纳米颗粒分别研究了它们产生极紫外波段 HHG 的光谱特性, 并与固体靶结果进行对比。实验中, 同样采用 HP 和 DP 双脉冲方案激发纳米等离子体 HHG 辐射, 光路图可参考图 2。通常采用氰基丙烯酸酯基环氧胶

将纳米颗粒粉以一定厚度粘在玻璃基片上。这种制备纳米颗粒靶的方式中, 胶水和玻璃基片仅产生非相干等离子体辐射而不会产生相干的 HHG 辐射, 所以不会对实验结果产生影响<sup>[91]</sup>。在我们的研究中, 制备 Sn 纳米颗粒靶的另一种方式是先将纳米颗粒粉溶于一定浓度的酒精, 然后将纳米颗粒溶液滴于基片上, 待溶液挥发后基片上就会聚集一定厚度的纳米颗粒。这两种制靶方式都要求纳米颗粒表面的平整度, 以保证每次激光作用在纳米颗粒上产生状态相同的预等离子体羽。

从图 7(a) 中  $\text{In}_2\text{O}_3$  纳米颗粒和固体靶的 HHG 光谱对比我们可以看出: 1)  $\text{In}_2\text{O}_3$  纳米颗粒 HHG 在 H9、H11、H15、H17 等阶次强度明显高于固体 HHG; 2) 固体  $\text{In}_2\text{O}_3$  靶中由于 In II 离子的共振增强效应使 H13 阶强度明显高于其他阶次, 而  $\text{In}_2\text{O}_3$  纳米颗粒靶在 H13 阶并没有共振增强效应; 3)  $\text{In}_2\text{O}_3$  纳米颗粒 HHG 的截止阶次 (H23) 比固体靶 HHG 的截止频率 (H27) 要低。图 7(a) 的插图展示了  $\text{In}_2\text{O}_3$  纳米颗粒靶的非共振 H11 阶和  $\text{In}_2\text{O}_3$  固体靶的共振 H13 阶强度随 HP 脉冲与 DP 脉冲的延时变化趋势。从图中我们可以看出,  $\text{In}_2\text{O}_3$  纳米颗粒的 HHG 辐射在延时 24 ns 之前比  $\text{In}_2\text{O}_3$  固体靶的强度强, 延时 24 ns 之后  $\text{In}_2\text{O}_3$  纳米颗粒 HHG 强度迅速下降。这说明纳米颗粒靶 HHG 比固体靶 HHG 先产生了最优的等离子体状态。图 7(b) 展示了 Sn 固体靶和纳米颗粒靶产生的 HHG 光谱, 有着与  $\text{In}_2\text{O}_3$  靶类似的光谱结构, 即: 1) Sn II 离子可以令固体靶的 H17 阶谐波产生共振增强效应; 2) Sn 纳米颗粒靶中除了 H17 阶, 其他阶次均比固体 HHG 辐射有明显的增强效应; 3) Sn 纳米颗粒靶的 HHG 截止阶次小于固体靶。2015 年, Ganeev 等<sup>[91]</sup>对  $\text{In}_2\text{O}_3$ 、Sn 和  $\text{Mn}_2\text{O}_3$  纳米颗粒靶

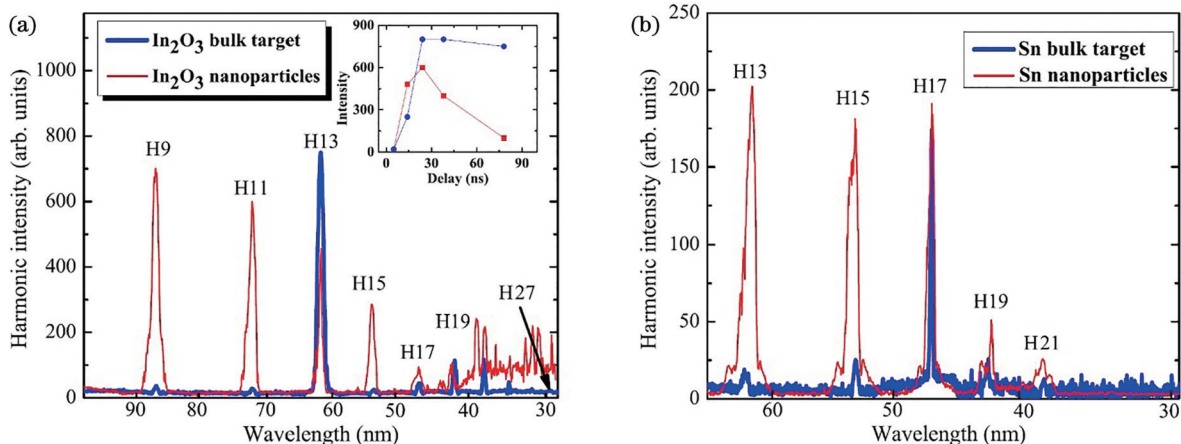


图 7 纳米颗粒和固体靶的 HHG 光谱对比。(a)  $\text{In}_2\text{O}_3$  固体 (蓝色) 和  $\text{In}_2\text{O}_3$  纳米颗粒 (红色) 的 HHG 光谱, 插图展示了  $\text{In}_2\text{O}_3$  纳米颗粒靶 (红色) 的非共振 H11 阶和  $\text{In}_2\text{O}_3$  固体靶 (蓝色) 的共振 H13 阶强度随 HP 脉冲与 DP 脉冲的延时变化趋势; (b) Sn 固体 (蓝色) 和纳米颗粒 (红色) 的 HHG 光谱<sup>[60]</sup>

Fig. 7 Harmonic spectra comparison between solid target and nanoparticles. (a) Harmonic spectra obtained using  $\text{In}_2\text{O}_3$  solid target (blue) and  $\text{In}_2\text{O}_3$  nanoparticles (red), where inset shows intensities of nonresonant H11 harmonic of  $\text{In}_2\text{O}_3$  nanoparticles (red) and resonant H13 harmonic of  $\text{In}_2\text{O}_3$  solid target (blue) varying with delay between HP and DP pulses; (b) harmonic spectra obtained using Sn solid target (blue) and Sn nanoparticles (red)<sup>[60]</sup>



产生的 HHG 光谱进行了研究。他们对纳米颗粒经 HP 激光脉冲烧蚀之后的碎屑进行收集,并利用透射扫描电镜对烧蚀前后的纳米颗粒形貌进行对比。扫描结果表明,在 HP 脉冲烧蚀产生的等离子体羽中仍有大部分纳米颗粒保持形貌不变。

通过以上对纳米颗粒产生 HHG 光谱特性的研究可以对其产生过程做解释如下:两种靶产生 HHG 辐射的粒子种类是不同的,参与产生固体 HHG 辐射的粒子主要是等离子体中一价或二阶的低价态离子,而参与产生纳米颗粒 HHG 辐射的粒子主要是中性原子。这一解释可以通过以下几点得到证实:1)固体靶 HHG 由于等离子体中的低价态离子跃迁与某一谐波阶次波长匹配激发了共振增强效应,而纳米颗粒靶 HHG 没有发现单阶共振增强效应是由于纳米颗粒靶的中性原子参与产生过程。2)HP 脉冲烧蚀纳米颗粒产生的碎屑主要成分还是纳米颗粒,说明纳米颗粒大部分并没有被 HP 脉冲电离。3)HHG 辐射的截止阶次在 DP 激光强度相同的情况下与介质的电离势有关,纳米颗粒靶的 HHG 中因为中性原子的电离势比固体靶中低价态离子电离势低,所以其截止频率也要小于固体 HHG。4)延时的对比表明固体靶需要更长的时间产生足够多的离子,而纳米颗粒靶由于中性原子与近场增强效应的参与,等离子体很快膨胀到最优状态。如果我们想要提高纳米颗粒的截止频率,那么需要增大 HP 脉冲的光强,使纳米颗粒产生更多的离子,但这样同时也破坏了纳米颗粒的结构,降低了 HHG 的强度。5)纳米颗粒 HHG 其他阶次强度比固体 HHG 高的原因是纳米颗粒依然保持大量的中性纳米颗粒没有被电离。一方面由于纳米颗粒有较大的比表面积,电子与母核复合截面更大,纳米颗粒中电子可以与任意原子复合,这样就增大了 HHG 电子回到母核的概率;另一方面纳米颗粒表面的近场增强效应使得驱动 HHG 产生的光强更强。两方面原因共同作用提高了 HHG 的产生效率。

图 3(c)展示了我们在实验中所获得的 Sn 纳米颗粒与固体靶的 HHG 光谱对比图。从图中可以看到除了 H17 阶之外,纳米颗粒其他阶次强度均强于固体 Sn 靶。此外,我们还发现 Sn 纳米颗粒靶的 HHG 光谱比纯固体 HHG 光谱宽,并有一些光谱峰值劈裂。这同 Ganeev 等<sup>[91]</sup>和 Singhal 等<sup>[93]</sup>获得的纳米颗粒光谱特性是相同的。纳米颗粒 HHG 光谱存在展宽是由于激光在等离子体传输过程中的自相位调制效应。在宽谱飞秒激光的驱动下,激光的上升沿首先产生 HHG 辐射,在激光峰值强度处纳米颗粒会比固体靶电离更多自由电子,这使得整个激光脉冲产生负色散,从而导致产生的 HHG 光谱变宽。

2015 年, Wöstmann 等<sup>[96]</sup>研究了 Al 纳米颗粒靶和纯固体靶 HHG 光谱的差异。首先,他们发现在相同激光条件下, H11~H19 纳米颗粒 HHG 强度明显高于

纯 Al 固体靶,对于 H11 和 H13 两个阶次,强度比  $I_{\text{nano}}/I_{\text{bulk}}$  分别为 30 和 15,即纳米颗粒 HHG 强度比固体高了一个数量级。但到了更高阶次 H23 时,纳米颗粒 HHG 强度只有其 H11 的 1.5%,并且强度也仅为固体 HHG 强度的 1/3。其次,他们发现纳米颗粒 H13 阶谐波的发散角为  $680 \mu\text{rad}$ ,比纯固体相同阶次的  $410 \mu\text{rad}$  要大。以上两个实验结果也证实了之前的解释,并且由于纳米颗粒 HHG 产生过程中中性原子占主导作用,其复合横截面积大,使 HHG 发散角变大。

## 4 高次谐波调控手段

### 4.1 不同激光啁啾驱动下的 HHG 辐射

激光等离子体高次谐波辐射强度与共振波长受预等离子体状态以及与 DP 脉冲的匹配所影响,可以调控产生过程的参数有很多<sup>[97-107]</sup>,例如:1)HP 脉冲强度和脉宽;2)DP 脉冲波长、色散和光场构型;3)HP 脉冲与 DP 脉冲之间延时;4)DP 脉冲作用在等离子体的位置;5)靶结构等。下面再介绍 5 种调控手段。图 8 展示了 Sn 激光等离子体 HHG 在 780 nm 激光驱动下 H15 和 H17 阶在不同激光啁啾状态下的强度对比。通过改变激光压缩室内光栅对的相对距离,激光啁啾可以被有效调控。从图 8 可以看出, H15 阶中心波长位置以及强度随激光啁啾的不同而改变。在激光正啁啾情况下, H15 阶谐波几乎不产生。随着激光啁啾从正变为负, H15 阶谐波中心波长会蓝移并且强度会被增强。对于 H17 阶次,其强度也随激光啁啾变化,并且其中心波长位置也会移动。首先,之所以 H15 和 H17 阶的

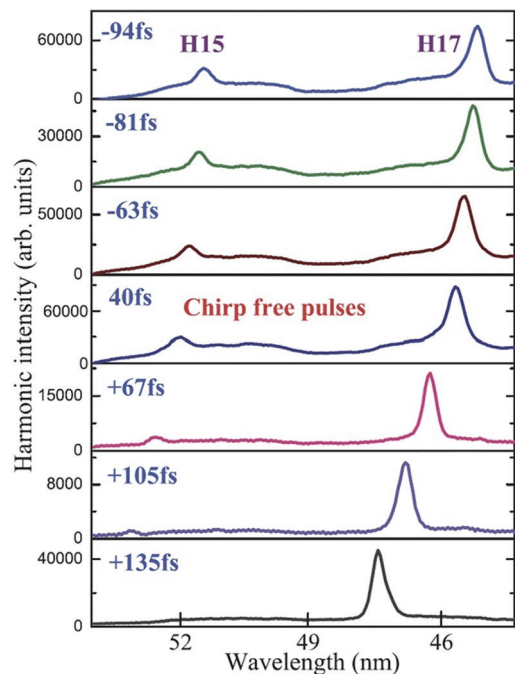


图 8 不同激光啁啾下 Sn 等离子体高次谐波 H15 阶和 H17 阶强度<sup>[63]</sup>

Fig. 8 Tuning of H15 and H17 of Sn plasma harmonics by different laser chirps<sup>[63]</sup>

中心波长会有移动,是因为当正啁啾存在时,激光光谱的长波长(红端)成分主导产生过程导致 HHG 红移。当负啁啾存在时,激光短波长(蓝端)成分主导产生过程导致 HHG 蓝移。需要特别说明的是,啁啾影响光谱红蓝移,只有在激光光谱相对较宽时出现。其次,根据图 4 可知, H15 阶在啁啾为负时波长更接近拥有振子强度大的 Sn II 离子跃迁波长,从而导致其强度增强。处于共振态的 H17 阶谐波强度随啁啾变化是因为在不同啁啾下它会分别与 Sn 离子的一价或者二价产生共振。当 H17 阶随啁啾变化远离 Sn II 离子跃迁频率时,它会与 Sn III 的  $4d^{10}5s^2$  到  $4d^95s^25p$  跃迁频率 ( $E=27.6$  eV,  $\lambda=44.92$  nm) 产生共振增强效应。研究人员在研究 Cr、Sb 和 In 激光等离子体 HHG 共振现象时也发现,改变激光啁啾同样会影响这 3 种等离子体 HHG 共振阶次 H29、H21 和 H13 的强度<sup>[61]</sup>。

#### 4.2 激光双色场调控 HHG 共振增强阶次

众所周知,在一束单色基频光的驱动下,由于激光脉冲电场呈现对称结构,使得每半个激光周期电子与母核复合一次,因此产生的 HHG 光谱只有奇数阶次。如果我们在单色基频光的基础上加入一束弱的倍频光,激光场的对称结构将会被打破,电子在每半个周期表现出不同的动力学过程,这样就会既产生奇数阶次又产生偶数阶次的 HHG 辐射。气体 HHG 中的双色场方案还可以用来提高其转换效率,并且有利于产生孤立阿秒脉冲<sup>[31-32,108]</sup>。双色场驱动方案在激光等离子体 HHG 领域依然适用,它不仅产生偶

数阶次谐波,还可以调控共振增强效应出现的阶次<sup>[63,95,103]</sup>。我们依然以具有共振增强阶次的 Sn 等离子体 HHG 光谱为例,其在单色和双色激光场驱动下的光谱如图 9 所示。Ganeev 等<sup>[63]</sup>利用 780 nm 激光作为基频光,通过 0.5 mm 厚的非线性 BBO 晶体产生倍频光,对比了在仅基频光和基频光+倍频光共同作用时 Sn 的 HHG 光谱,其中双色场方案中基频光与倍频光的强度比为 25:1。从图 9 可以看出,当只有基频光时,HHG 光谱只有奇数阶,并且共振阶次为 H17 阶(45.88 nm)。当基频光与倍频光共同作用时,产生了 H16(48.75 nm)和 H18(43.33 nm)的偶数阶次谐波,并且除了 Sn II 离子产生共振增强的 H17 阶外, H16 阶的强度也同样得到增强。H16 阶出现共振增强的原因我们同样可以从图 4 的 Sn II 离子吸收光谱得知: H16 阶波长距 Sn II 离子的  $4d^{10}5s^25p^2P_{3/2}$  到  $4d^95s^25p^2(^1D)^2D_{5/2}$  跃迁波长(26.22 eV)很近,所以其谐波同样会产生共振增强。H18 阶没有出现共振增强是因为它的波长离 Sn II 和 Sn III 离子跃迁波长很远。如果我们将驱动激光中心波长变为 800 nm,同样利用基频光加倍频光对 Sn 的 HHG 光谱进行研究就会发现 H16 阶的波长由于远离了 Sn II 离子跃迁频率,因此不会出现共振增强现象。值得注意的是,如果将激光强度进一步提高,由于更高光强激发了 Sn III\* 离子从激发态  $4d^{10}5s5p$  到  $4d^95s5p^2$  的跃迁(跃迁频率 28.48 eV), H18 阶谐波就会与其产生共振增强效应。

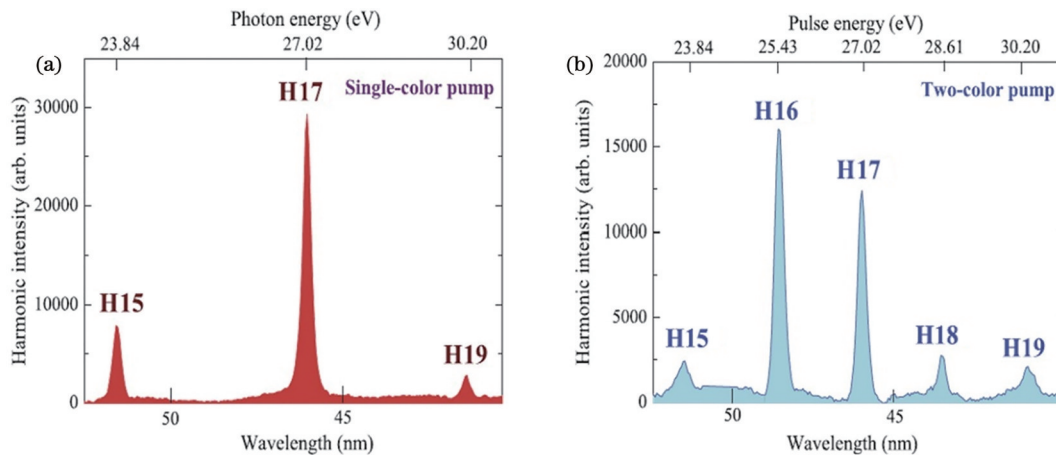


图 9 单色场和双色场驱动下 Sn 等离子体高次谐波光谱对比。(a)单色场;(b)双色场<sup>[63]</sup>

Fig. 9 Harmonic spectra from Sn plasma in cases of single-color and two-color pump schemes. (a) Single-color pump scheme; (b) two-color pump scheme<sup>[63]</sup>

#### 4.3 拓展激光 Sn 等离子体 HHG 的截止频率

在 HHG 产生过程中,可以提高驱动激光光强、调控驱动激光波长或者采用电离势更高的材料来提高 HHG 的截止频率。2023 年, Fu 等<sup>[109]</sup>提出利用中心波长 400 nm 的飞秒激光提高激光 Sn 等离子体 HHG 的截止阶次。在实验中,他们成功地将谐波截止阶次从 800 nm 驱动激光的 H33 阶(51 eV)提高到倍频光驱动

的 H27 阶(84 eV),并且极大地提高了 HHG 的转换效率,如图 10 所示。对于非共振增强阶次,400 nm 激光脉冲产生的 H15 阶转换效率比 800 nm 驱动激光脉冲产生的 H29 阶谐波高 70 倍以上。气体 HHG 中已经证实 HHG 的转换效率与驱动激光波长成  $\lambda^{-5} \sim \lambda^{-6}$  递减关系<sup>[110]</sup>,所以采用波长更短的二倍频激光驱动可以有效提高 HHG 转换效率。他们结合 Perelomov-Popov-



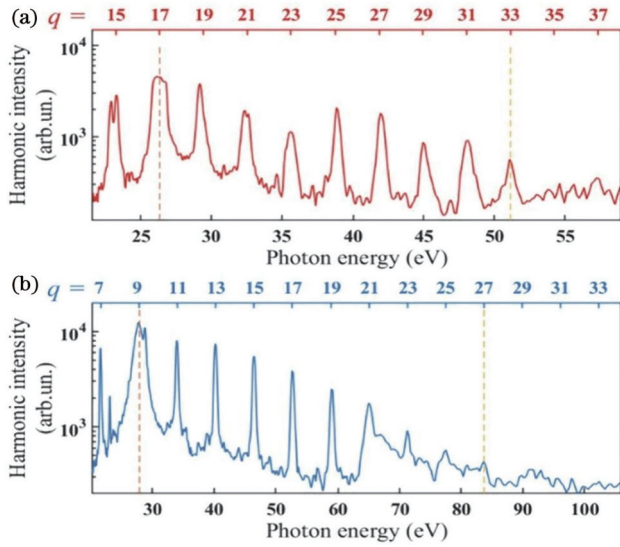


图 10 800 nm 和 400 nm 激光驱动下的激光 Sn 等离子体高次谐波光谱。(a) 800 nm 激光驱动; (b) 400 nm 激光驱动<sup>[109]</sup>

Fig. 10 Harmonic spectra from Sn plasma in cases of 800 nm and 400 nm pump schemes. (a) 800 nm pump scheme; (b) 400 nm pump scheme<sup>[109]</sup>

Terent'ev 电离模型和一维含时薛定谔方程, 发现利用 400 nm 波长驱动激光能够拓展 HHG 截止频率的原因是其比 800 nm 激光更有效地产生了  $\text{Sn}^{3+}$  离子。 $\text{Sn}^{3+}$  有着更高的电离势 40.74 eV, 所以能够极大地拓展 HHG 的截止频率。通过对相位失配效应的定性分析, 揭示了相对于 800 nm 激光场,  $\text{Sn}^{3+}$  离子的存在会使由自由电子色散导致的相位失配在 400 nm 激光场中得到极大的抑制, 这优化了 HHG 产生过程。

#### 4.4 利用结构光场产生 HHG 辐射

激光的光场可以通过改变频率、振幅、相位和偏振等参数进行调控。传统的光场调控通常仅局限于光场某一个特定的自由度, 而可以在时间与空间上协同调整多个自由度的新型调控手段已经成为研究热点, 并且产生了很多新奇复杂的结构光。携带轨道角动量 (OAM) 的涡旋光场和在横截面上偏振态非均匀的矢量光束 (VB) 已被成功应用到超分辨成像、探测磁性材料、量子通信、细胞捕获和激光加工等重要领域<sup>[111-115]</sup>。这两种具有特殊相位和偏振结构的光场同样可以用来驱动激光等离子体高次谐波的产生。2019 年, Singh 等<sup>[102]</sup> 利用涡旋飞秒激光场激发 Sn 等离子体产生了极紫外波段的涡旋 HHG 辐射, 光谱如图 11 所示。与之前的研究结果相同的是当驱动激光为高斯光束时, 产生的 Sn 等离子体 HHG 在 H17 阶 (26.3 eV) 产生共振增强, 比相邻的 HHG 强度强 25 倍。当驱动激光变为涡旋光束时, Sn 的共振阶次 H17 强度下降了大约 50%, 但非共振阶次强度保持不变。共振阶次 HHG 强度降低的原因是涡旋光影响了跃迁选择定则, 从而使共振阶次离子跃迁的加权振子强度降低。对比两种驱动激光产生的 HHG 光谱图, 我们还可以清楚地看

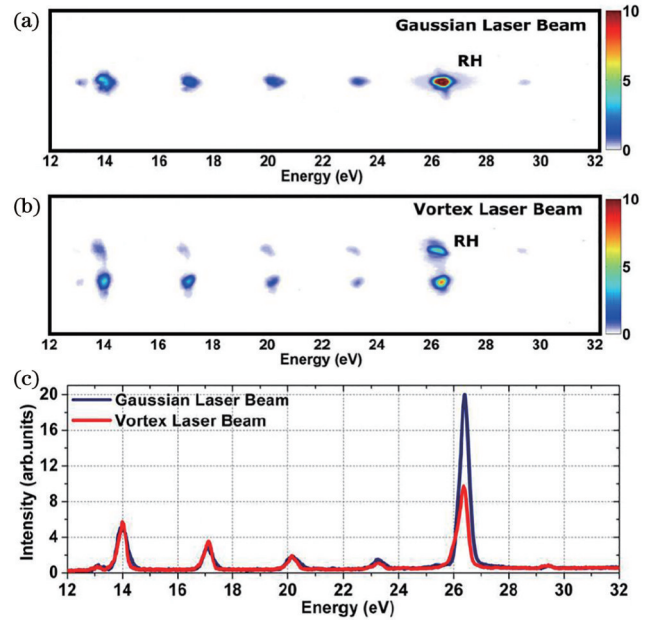


图 11 高斯光束与涡旋光束驱动 Sn 等离子体 HHG 对比。(a) 高斯光束驱动 Sn 等离子体 HHG 光谱; (b) 涡旋光束驱动 Sn 等离子体 HHG 光谱; (c) 两种光场纵向积分的光谱图<sup>[102]</sup>

Fig. 11 Comparison of HHG generated using Gaussian driving field and vortex driving field. (a) HHG spectrum generated using Gaussian driving field; (b) HHG spectrum generated using vortex driving field; (c) vertically integrated spectra of two driving fields<sup>[102]</sup>

出涡旋光驱动的 HHG 光谱在垂直方向被分裂成两部分, 这是由于 HHG 继承了涡旋驱动激光相位奇点的特性。2022 年, Venkatesh 等<sup>[101]</sup> 利用径向偏振 (RP) 和角向偏振 (AP) 矢量光束对 In、C、硫化镉 (CdS)、硫化锌 (ZnS) 和硫化银 ( $\text{Ag}_2\text{S}$ ) 产生的 HHG 进行研究。对比结果发现, 对于低阶次的非共振 HHG 辐射, 在 RP 和 AP 矢量光束驱动下的 HHG 强度比线偏振激光驱动的 HHG 强度强 1.5~2 倍。这是由于矢量光场可以产生更好的横向、纵向相位匹配以及更有效的光源体积。与之相反的是 In 共振阶次的 HHG 强度在两种光场下都降低了 50%, 下降的原因同样是矢量光场改变了共振跃迁的选择定则, 使离子的共振跃迁振子强度降低。以上两个研究证明了可以利用结构光场调控 HHG 产生过程, 并驱动产生极紫外波段的相干结构光源。

#### 4.5 特殊的靶构型调控 HHG 辐射

在介绍了 4 种激光调控 HHG 辐射的方法后, 我们将目光转向产生等离子体的靶构型。不同的靶构型同样也可以调控 HHG 的共振阶次和转换效率。第一种方式是将两种都存在某一阶次共振增强的靶材放在一起, 它们共同作用产生的 HHG 辐射将会在两个阶次都产生共振增强效应, 靶的摆放位置如图 12(a) 所示。实验中采用 3 种存在共振增强阶次的靶材料: 第一种

为 Zn, 共振阶次为 H9 阶; 第二种为 In, 共振阶次为 H13 阶; 第三种为 Sn, 共振阶次为 H17 阶。Boltaev 等<sup>[104]</sup>分别将 In 靶与 Zn、Sn 靶相邻摆放共同产生 HHG 辐射。在两种靶共同产生 HHG 的光谱中, 它们各自的共振波长都得到了保留。在 Zn+In 方案中, H9 和 H13 阶同时产生了共振增强效果。而在 Sn+In 方案中, H13 和 H17 阶同时产生了共振增强效应。这一方法使我们同时获得多阶次的极紫外波段强 HHG 辐射。另外我们也可以将等离子体 HHG 与气体 HHG 相结合, 通过调整气体喷流与等离子体的相对位置, 提高极紫外波段 HHG 的转换效率和截止阶次。在利用 Ag+Ar 的组合中<sup>[105]</sup>, 在单色光驱动下, 相比纯气体, 组合产生的 HHG 强度增大了 3 倍左右, 截止频率也从 H23 阶扩展到了 H55 阶。

在 HHG 产生过程中, 需要保持驱动激光相位和 HHG 相位之间的匹配关系。但由于等离子体中自由电子的存在, 会导致激光传输一定距离  $L$  后其相位与 HHG 相位之间相差  $\pi$ 。此时它们之间的相位失配导致产生的 HHG 彼此干涉相消, 降低了 HHG 的转换效率。我们定义: 对于阶次  $q$  由等离子体色散引起的相位失配关系为

$$\Delta k_{\text{disp}} = qN_e e^2 \lambda / 4\pi m_e \epsilon_0 c^2, \quad (1)$$

式中:  $\lambda$  为激光波长;  $N_e$ 、 $m_e$  和  $e$  分别为电子密度、质量和电量;  $c$  为光速;  $\epsilon_0$  为真空介电常数。

HHG 的相干长度为

$$L_{\text{coh}} = \frac{\pi}{\Delta k} \approx 4\pi^2 m_e \epsilon_0 c^2 / q N_e e^2 \lambda. \quad (2)$$

对于 800 nm 驱动激光, 式(2)可以改写为

$$L_{\text{coh}} \approx 1.4 \times 10^{18} / (N_e q_{\text{qpm}}), \quad (3)$$

式中:  $q_{\text{qpm}}$  为在准相位匹配(QPM)时, 增强强度最大的 HHG 阶次。

有研究发现可以通过让 HP 脉冲经多狭缝掩模板(MSM), 在长 5 mm 的靶材上产生多个预等离子体羽的方式获得 QPM 的 HHG 辐射<sup>[106-107]</sup>。通过式(3)我们可以知道, 当等离子体电子密度一定时, 增大最强的阶次  $q$  和等离子体羽的长度乘积是一个常数。因此, 可以通过控制狭缝大小、间距以及倾斜角等方式调控 HHG 的产生效率以及增强的谐波阶次。利用 MSM 产生 HHG 的示意图如图 12(b) 所示。

图 13 展示了利用柱透镜聚焦到 Ag 靶在没有 MSM 和在 MSM 不同倾斜角时产生 HHG 的光谱对比。从中可以清楚地看到: 当没有 MSM 时, Ag 等离子体的 HHG 光谱从平台区到截止区整体强度都很低; 当采用 MSM 时, HHG 的产生效率明显得到增强, 并且出现了强度增强的谐波阶次; 通过调控 MSM 的倾斜角(改变等离子体数量以及尺寸), HHG 的增强阶次发生改变; 随着 MSM 倾斜角的增大, 增强阶次从 H37 变为 H41、H43 以及 H51 阶。从图中还可以发现, 采用 MSM 时, HHG 的截止阶次也会被拓展。由于

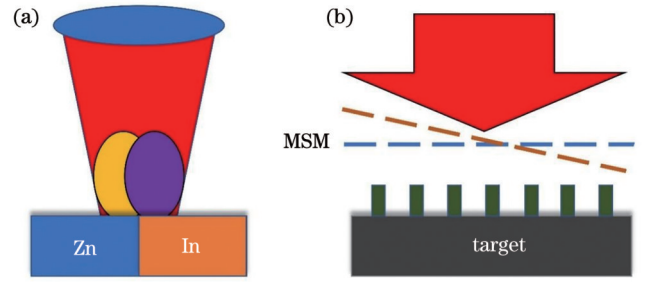


图 12 利用特殊的靶构型调控 HHG 辐射。(a) 两种靶相邻产生 HHG 方案; (b) 多狭缝掩模板产生 HHG 方案

Fig. 12 Regulating HHG radiation by using special target configurations. (a) Scheme for HHG in plasmas produced from mixed targets; (b) scheme for HHG in plasmas using multi-slit mask

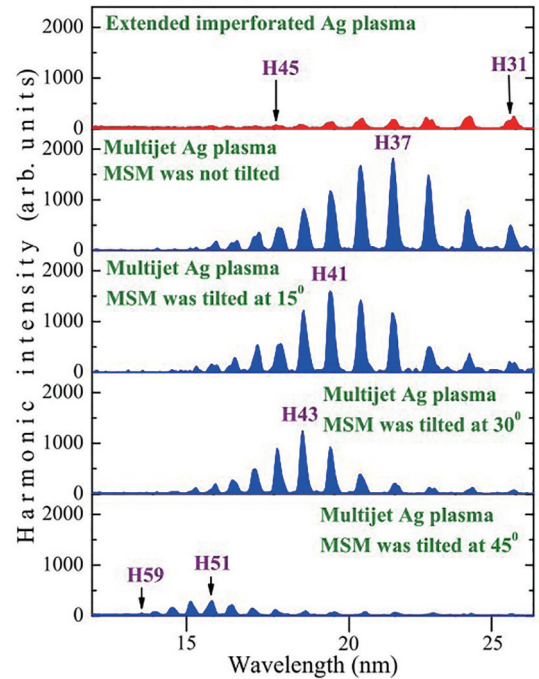


图 13 在不同 MSM 倾斜角下的激光等离子体 Ag 高次谐波的光谱图<sup>[107]</sup>

Fig. 13 Harmonic spectra generated in Ag plasmas produced by tilting MSM<sup>[107]</sup>

MSM 需要借助于激光加工, 实验中还可采用两束 HP 脉冲干涉产生瞬态等离子体光栅的方式代替 MSM, 达到同样的调控目的。

## 5 未来发展方向

任何光源想要走向应用, 一方面是提高其转换效率, 另一方面就是获得高重复频率。高重复频率的 HHG 也是阿秒脉冲走向应用的必要条件。一种提高 HHG 重复频率的方法是将 HHG 产生所用的平面靶材料替换为可以旋转的柱型靶材料, 如图 14(a) 所示。在平面靶方案中, 每一发激光脉冲都不可避免地会对靶表面造成烧蚀, 破坏 HHG 的稳定输出。以一定速度旋转的柱形靶, 可以在激光破坏 HHG 产生效率前移



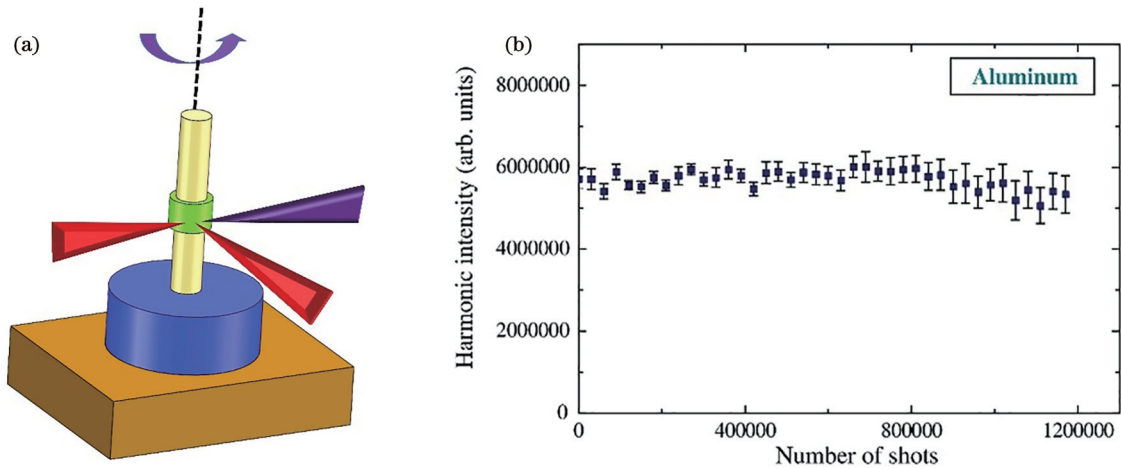


图 14 利用旋转柱型靶提高 HHG 重复频率。(a) 旋转靶示意图；(b) 采用旋转靶后激光 Al 等离子体 HHG 的强度稳定性<sup>[116]</sup>  
Fig. 14 Improving repetition rate of HHG using rotating cylindrical target. (a) Schematic diagram of rotating target; (b) stability of HHG from Al plasmas using rotating target<sup>[116]</sup>

动到下一个崭新的靶面,从而改善 HHG 强度的稳定输出。2012年,Hutchison等<sup>[116]</sup>利用 1 kHz 重复频率飞秒激光驱动 Al 旋转柱形靶产生了稳定输出的 HHG 辐射,如图 14(b)所示。在没有旋转靶情况下,当激光脉冲发次接近  $10^3$  时,HHG 的强度就会下降一个数量级。而利用旋转靶方案,在旋转靶转速为 30 r/min 时,HHG 强度维持的激光脉冲发次大于  $10^6$ 。另一种提高 HHG 重复频率的方式是将驱动激光重复频率从 1 kHz 提高到 100 kHz。2020年,Boltaev等<sup>[117]</sup>结合旋转柱形靶方案对比了 1 kHz 和 100 kHz 两种激光重复频率产生 Ag 等离子体 HHG 的稳定性。在 1 kHz 激光驱动下,HHG 强度变化不超过 5%。在 100 kHz 激光脉冲驱动下,H27 阶谐波随着激光发次的增加,其强度逐渐下降,并且在  $3.5 \times 10^6$  发激光脉冲后强度下降了 50%。虽然在稳定性上 100 kHz 激光脉冲不如 1 kHz 激光脉冲,但是在实验上已经证明高重复频率激光驱动的高重复频率 HHG 辐射的可行性。下一步,我们可以对旋转柱形靶的旋转参数做进一步优化,例如在旋转的同时利用程序控制靶上下移动。

纳米颗粒由于近场增强效应和拥有更大的复合截面,使得其对于极紫外波段 HHG 辐射有增强效果。在利用单帧速度成像谱仪(VMI)研究单个纳米颗粒在超快强激光作用下,纳米颗粒以及表面分子电离的超快动力学过程的实验中,经过高压雾化的纳米颗粒气溶胶已经被证明可以与 1 kHz 激光或更高重复频率的激光匹配提高纳米颗粒电离动力学的探测效率<sup>[82-84]</sup>。但这种纳米颗粒运输方式的缺点就是由于系统中许多狭缝的存在,使得纳米颗粒都是以单体或者二聚体的形式与激光相互作用,不能保证激光等离子体 HHG 对于预等离子体密度的要求。未来如果能够在保证纳米颗粒浓度的同时,以高重复频率将纳米颗粒运输到激光相互作用区域,将极大地提高 HHG 的重复频率。

激光等离子体 HHG 辐射同样也可以用来产生孤立亚飞秒脉冲,甚至是孤立阿秒脉冲。2012年,Ganeev等<sup>[118]</sup>采用少周期 3.5 fs 激光驱动 Mn 等离子体产生 HHG 辐射。实验结果表明在少周期激光驱动下,HHG 在 H31 阶( $\lambda=780$  nm, 大约 50 eV)展现出共振增强效应,并且谐波强度对激光的载波包络相位(CEP)有弱依赖效应。通过发展的理论模型表明该 HHG 辐射在不用滤波的条件下时间上是一个孤立的亚飞秒脉冲。实验和理论研究结果表明利用少周期脉冲驱动具有共振增强效应的 HHG,产生的孤立亚飞秒脉冲可以减少对能量的损耗和降低对激光 CEP 稳定的要求。2010年,Strelkov<sup>[65]</sup>通过理论计算发现激光 In 等离子体 HHG 在 H13 阶共振增强的同时也会使周围阶次的强度得到增强,在时间上这些阶次可以获得 240 as 的阿秒脉冲串。单阶谐波的共振增强使得阿秒脉冲持续时间相对较长并且脉冲之间存在平台区,如果可以采用存在多种共振增强阶次的混合靶材,将有望产生能量更高、脉冲持续时间更短的阿秒脉冲光源。2011年,Elouga Bom等<sup>[119]</sup>利用双光子干涉的阿秒拍频重构技术(RABITT)<sup>[19]</sup>,测量了 Cr 靶材低密度等离子体产生的阿秒脉冲辐射。测量结果表明 Cr 的 H11~H19 次谐波在时间上是阿秒脉冲串,每个脉冲持续 300 as,对应 1.05 倍的傅里叶变换极限。未来希望有方法可以证明等离子体 HHG 同样可以产生孤立阿秒脉冲。

## 6 结 语

随着人们对于极紫外波段相干辐射以及阿秒光源日益增长的需求,获得产生装置简单、紧凑、价格低廉并且转换效率高的高次谐波辐射一直是追求的目标。飞秒强激光驱动低密度等离子体产生高次谐波技术的核心优势就在于能够共振产生强的单阶极紫外高次谐波辐射,并且可以通过选择不同的靶材料调谐共振

波长。纳米颗粒由于近场增强效应和拥有更大的复合截面,可以显著提高不同阶次高次谐波强度。利用各种光场调控手段与靶构型,激光等离子体高次谐波的光谱特性可以被调控。虽然可以利用旋转柱型靶与 100 kHz 重复频率激光匹配,提高极紫外光源的重复频率,但是靶表面的损伤不可避免地降低了高次谐波的产生效率。未来如果可以将纳米颗粒在保证浓度的条件下不断输运到与激光作用区域,将可以极大地提高高次谐波的重复频率,这样有利于产生可应用的极紫外相干辐射和阿秒脉冲光源。

### 参 考 文 献

- [1] Zhou L R, Ni H C, Jiang Z J, et al. Ultrafast formation dynamics of  $D_3^+$  from the light-driven bimolecular reaction of the  $D_2-D_2$  dimer[J]. *Nature Chemistry*, 2023, 15(9): 1229-1235.
- [2] Li H, Gong X C, Ni H C, et al. Light-induced ultrafast molecular dynamics: from photochemistry to optochemistry[J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2022, 13(25): 5881-5893.
- [3] Pan S Z, Zhang W B, Li H, et al. Clocking dissociative above-threshold double ionization of  $H_2$  in a multicycle laser pulse[J]. *Physical Review Letters*, 2021, 126(6): 063201.
- [4] Hargrove L E, Fork R L, Pollack M A. Locking of He-Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation[J]. *Applied Physics Letters*, 1964, 5(1): 4-5.
- [5] Mocker H W, Collins R J. Mode competition and self-locking effects in a Q-switched ruby laser[J]. *Applied Physics Letters*, 1965, 7(10): 270-273.
- [6] Zewail A H. Laser femtochemistry[J]. *Science*, 1988, 242(4886): 1645-1653.
- [7] Zewail A H. Femtochemistry: atomic-scale dynamics of the chemical bond[J]. *The Journal of Physical Chemistry A*, 2000, 104(24): 5660-5694.
- [8] Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses[J]. *Optics Communications*, 1985, 56(3): 219-221.
- [9] Pessot M, Maine P, Mourou G. 1000 times expansion/compression of optical pulses for chirped pulse amplification[J]. *Optics Communications*, 1987, 62(6): 419-421.
- [10] McPherson A, Gibson G, Jara H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1987, 4(4): 595-601.
- [11] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [12] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology[J]. *Nature*, 2001, 414(6863): 509-513.
- [13] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy[J]. *Nature*, 2002, 419(6909): 803-807.
- [14] Uiberacker M, Uphues T, Schultze M, et al. Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms[J]. *Nature*, 2007, 446(7136): 627-632.
- [15] Sandberg R L, Paul A, Raymondson D A, et al. Lensless diffractive imaging using tabletop coherent high-harmonic soft-X-ray beams[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(9): 098103.
- [16] Ravasio A, Gauthier D, Maia F R N C, et al. Single-shot diffractive imaging with a table-top femtosecond soft X-ray laser-harmonics source[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(2): 028104.
- [17] Ferré A, Handschin C, Dumergue M, et al. A table-top ultrashort light source in the extreme ultraviolet for circular dichroism experiments[J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(2): 93-98.
- [18] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, et al. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms[J]. *Physical Review Letters*, 1979, 42(17): 1127-1130.
- [19] Paul P M, Toma E S, Breger P, et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation[J]. *Science*, 2001, 292(5522): 1689-1692.
- [20] Mairesse Y, de Bohan A, Frasninski L J, et al. Attosecond synchronization of high-harmonic soft X-rays[J]. *Science*, 2003, 302(5650): 1540-1543.
- [21] Brabec T, Krausz F. Intense few-cycle laser fields: frontiers of nonlinear optics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2000, 72(2): 545-591.
- [22] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163-234.
- [23] Baltuška A, Udem T, Uiberacker M, et al. Attosecond control of electronic processes by intense light fields[J]. *Nature*, 2003, 421(6923): 611-615.
- [24] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, et al. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases[J]. *Journal of Physics B: Atomic Molecular Physics*, 1988, 21(3): L31-L35.
- [25] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields[J]. *Physical Review A*, 1994, 49(3): 2117-2132.
- [26] Isinger M, Squibb R J, Busto D, et al. Photoionization in the time and frequency domain[J]. *Science*, 2017, 358(6365): 893-896.
- [27] Christov I P, Murnane M M, Kapteyn H C. High-harmonic generation of attosecond pulses in the "single-cycle" regime[J]. *Physical Review Letters*, 1997, 78(7): 1251-1254.
- [28] Kienberger R, Goulielmakis E, Uiberacker M, et al. Atomic transient recorder[J]. *Nature*, 2004, 427(6977): 817-821.
- [29] Kim I J, Kim C M, Kim H T, et al. Highly efficient high-harmonic generation in an orthogonally polarized two-color laser field[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(24): 243901.
- [30] Rykovanov S G, Geissler M, Meyer-ter-Vehn J, et al. Intense single attosecond pulses from surface harmonics using the polarization gating technique[J]. *New Journal of Physics*, 2008, 10(2): 025025.
- [31] Takahashi E J, Lan P F, Mücke O D, et al. Infrared two-color multicycle laser field synthesis for generating an intense attosecond pulse[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 104(23): 233901.
- [32] Chang Z H. Single attosecond pulse and XUV supercontinuum in the high-order harmonic plateau[J]. *Physical Review A*, 2004, 70(4): 043802.
- [33] Hammond T J, Brown G G, Kim K T, et al. Attosecond pulses measured from the attosecond lighthouse[J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(3): 171-175.
- [34] Zhang C M, Vampa G, Villeneuve D M, et al. Attosecond lighthouse driven by sub-two-cycle, 1.8  $\mu\text{m}$  laser pulses[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2015, 48(6): 061001.
- [35] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers[J]. *Science*, 2012, 336(6086): 1287-1291.
- [36] Gaumnitz T, Jain A, Pertot Y, et al. Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver[J]. *Optics Express*, 2017, 25(22): 27506-27518.
- [37] Zeng A W, Bian X B. Impact of statistical fluctuations on high harmonic generation in liquids[J]. *Physical Review Letters*, 2020, 124(20): 203901.
- [38] Chen J X, Bian X B. Theoretical analysis of high-order harmonic generation in liquids by a semiclassical method[J]. *Physical Review A*, 2023, 107(4): 043111.
- [39] 赵旭琳, 白丽华, 白亚, 等. 双色激光场作用下水的高次谐波光谱移动[J]. *光学学报*, 2023, 43(13): 1326002.
- [40] Zhao X L, Bai L H, Bai Y, et al. High-harmonic spectral shift of water under two-color laser fields[J]. *Acta Optica Sinica*, 2023, 43(13): 1326002.
- [40] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, et al. Observation of high-



- order harmonic generation in a bulk crystal[J]. *Nature Physics*, 2011, 7(2): 138-141.
- [41] Ghimire S, Reis D A. High-harmonic generation from solids[J]. *Nature Physics*, 2019, 15(1): 10-16.
- [42] Ganeev R A. High-order harmonic generation in a laser plasma: a review of recent achievements[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2007, 40(22): R213-R253.
- [43] Ganeev R A. High-order harmonic generation in laser plasma plumes[M]. London: Imperial College Press, 2013.
- [44] Gao J, Li B Y, Liu F, et al. Double optimal density gradients for harmonic generation from relativistically oscillating plasma surfaces [J]. *Physics of Plasmas*, 2019, 26(10): 103102.
- [45] Gao J, Li B Y, Liu F, et al. Divergence control of relativistic harmonics by an optically shaped plasma surface[J]. *Physical Review E*, 2020, 101(3): 033202.
- [46] Gao J, Liu F, Ge X L, et al. Influence of laser contrast on high-order harmonic generation from solid-density plasma surfaces[J]. *Chinese Optics Letters*, 2017, 15(8): 081902.
- [47] Luu T T, Scagnoli V, Saha S, et al. Generation of coherent extreme ultraviolet radiation from  $\alpha$ -quartz using 50 fs laser pulses at a 1030 nm wavelength and high repetition rates[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(8): 1790-1793.
- [48] Han S, Kim H, Kim Y W, et al. High-harmonic generation by field enhanced femtosecond pulses in metal-sapphire nanostructure [J]. *Nature Communications*, 2016, 7(1): 13105.
- [49] Imasaka K, Kaji T, Shimura T, et al. Antenna-enhanced high harmonic generation in a wide-bandgap semiconductor ZnO[J]. *Optics Express*, 2018, 26(16): 21364-21374.
- [50] Vampa G, Ghamsari B G, Siadat Mousavi S, et al. Plasmon-enhanced high-harmonic generation from silicon[J]. *Nature Physics*, 2017, 13(7): 659-662.
- [51] Vampa G, Hammond T J, Thiré N, et al. All-optical reconstruction of crystal band structure[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(19): 193603.
- [52] Luu T T, Garg M, Kruchinin S Y, et al. Extreme ultraviolet high-harmonic spectroscopy of solids[J]. *Nature*, 2015, 521(7553): 498-502.
- [53] Gordienko S, Pukhov A, Shorokhov O, et al. Coherent focusing of high harmonics: a new way towards the extreme intensities[J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(10): 103903.
- [54] Gold D M. Direct measurement of prepulse suppression by use of a plasma shutter[J]. *Optics Letters*, 1994, 19(23): 2006-2008.
- [55] Ge X L, Yuan X H, Fang Y, et al. Pulse shape of ultrashort intense laser reflected from a plasma mirror[J]. *Chinese Optics Letters*, 2018, 16(10): 103202.
- [56] Schupp R, Torretti F, Meijer R A, et al. Efficient generation of extreme ultraviolet light from Nd:YAG-driven microdroplet-tin plasma[J]. *Physical Review Applied*, 2019, 12(1): 014010.
- [57] Torretti F, Sheil J, Schupp R, et al. Prominent radiative contributions from multiply-excited states in laser-produced tin plasma for nanolithography[J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 2334.
- [58] 林楠, 杨文河, 陈韞懿, 等. 极紫外光刻光源的研究进展及发展趋势[J]. *激光与光电子学进展*, 2022, 59(9): 0922002.
- Lin N, Yang W H, Chen Y Y, et al. Research progress and development trend of extreme ultraviolet lithography source[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2022, 59(9): 0922002.
- [59] Suzuki M, Baba M, Ganeev R, et al. Anomalous enhancement of a single high-order harmonic by using a laser-ablated tin plume at 47 nm[J]. *Optics Letters*, 2006, 31(22): 3306-3308.
- [60] Elouga Bom L B, Ganeev R A, Abdul-Hadi J, et al. Intense multimicrojoule high-order harmonics generated from neutral atoms of  $\text{In}_2\text{O}_3$  nanoparticles[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 94(11): 111108.
- [61] Ganeev R A, Bom L B E, Kieffer J C, et al. Systematic investigation of resonance-induced single-harmonic enhancement in the extreme-ultraviolet range[J]. *Physical Review A*, 2007, 75(6): 063806.
- [62] Liang J G, Lai Y H, Fu W F, et al. Observation of resonance-enhanced high-order harmonics from direct excitation of metal nanoparticles with femtosecond pulses[J]. *Physical Review A*, 2020, 102(5): 053117.
- [63] Ganeev R A, Strelkov V V, Hutchison C, et al. Experimental and theoretical studies of two-color-pump resonance-induced enhancement of odd and even harmonics from a tin plasma[J]. *Physical Review A*, 2012, 85(2): 023832.
- [64] Khokhlova M A, Emelin M Y, Ryabikin M Y, et al. Polarization control of quasimonochromatic XUV light produced via resonant high-order harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 2021, 103(4): 043114.
- [65] Strelkov V. Role of autoionizing state in resonant high-order harmonic generation and attosecond pulse production[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 104(12): 123901.
- [66] Ganeev R A, Suzuki M, Baba M, et al. Strong resonance enhancement of a single harmonic generated in the extreme ultraviolet range[J]. *Optics Letters*, 2006, 31(11): 1699-1701.
- [67] Rosenthal N, Marcus G. Discriminating between the role of phase matching and that of the single-atom response in resonance plasma-plume high-order harmonic generation[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(13): 133901.
- [68] Ganeev R A, Witting T, Hutchison C, et al. Comparative studies of resonance enhancement of harmonic radiation in indium plasma using multicycle and few-cycle pulses[J]. *Physical Review A*, 2013, 88(3): 033838.
- [69] Kulagin I A, Kim V V, Usmanov T. Compensation for phase mismatch of high harmonics by the group-velocity mismatch[J]. *Quantum Electronics*, 2011, 41(9): 801-803.
- [70] Singh M, Fareed M A, Birulia V, et al. Ultrafast resonant state formation by the coupling of Rydberg and dark autoionizing states [J]. *Physical Review Letters*, 2023, 130(7): 073201.
- [71] Kim V V, Boltaev G S, Iqbal M, et al. Resonance enhancement of harmonics in the vicinity of 32 nm spectral range during propagation of femtosecond pulses through the molybdenum plasma [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2020, 53(19): 195401.
- [72] Ganeev R A. Controlling single harmonic enhancement in laser-produced plasmas[J]. *Journal of Applied Physics*, 2017, 121(13): 133108.
- [73] Konda S R, Lai Y H, Li W. Investigation of high harmonic generation from laser ablated plumes of silver[J]. *Journal of Applied Physics*, 2021, 130(1): 013101.
- [74] Ganeev R A, Baba M, Suzuki M, et al. Optimization of harmonic generation from boron plasma[J]. *Journal of Applied Physics*, 2006, 99(10): 113303.
- [75] Kim V V, Ivanov D S, Ganeev R A, et al. Aluminum nanoparticle plasma formation for high-order harmonic generation [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2019, 52(24): 245601.
- [76] Mathijssen J, Mazzotta Z, Heinzlerling A M, et al. Material-specific high-order harmonic generation in laser-produced plasmas for varying plasma dynamics[J]. *Applied Physics B*, 2023, 129(6): 91.
- [77] Ganeev R, Suzuki M, Baba M, et al. High-order harmonic generation from boron plasma in the extreme-ultraviolet range[J]. *Optics Letters*, 2005, 30(7): 768-770.
- [78] Ganeev R A, Bom L B E, Kieffer J C, et al. Demonstration of the 101st harmonic generated from a laser-produced manganese plasma [J]. *Physical Review A*, 2007, 76(2): 023831.
- [79] Ishifuji M, Mitsuishi M, Miyashita T. Enhanced optical second harmonic generation in hybrid polymer nanoassemblies based on coupled surface plasmon resonance of a gold nanoparticle array[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 89(1): 011903.
- [80] Liu T M, Tai S P, Yu C H, et al. Measuring plasmon-resonance enhanced third-harmonic  $\chi^{(3)}$  of Ag nanoparticles[J]. *Applied*

- Physics Letters, 2006, 89(4): 043122.
- [81] Park I Y, Kim S, Choi J, et al. Plasmonic generation of ultrashort extreme-ultraviolet light pulses[J]. Nature Photonics, 2011, 5(11): 677-681.
- [82] Sun F H, Li H, Song S S, et al. Single-shot imaging of surface molecular ionization in nanosystems[J]. Nanophotonics, 2021, 10(10): 2651-2660.
- [83] Wang J W, Qu Q W, Sun F H, et al. Surface molecular ionization imaging of gold nanocubes[J]. Optics Express, 2023, 31(6): 9678-9687.
- [84] Zherebtsov S, Fennel T, Plenge J, et al. Controlled near-field enhanced electron acceleration from dielectric nanospheres with intense few-cycle laser fields[J]. Nature Physics, 2011, 7(8): 656-662.
- [85] Astruc D. Introduction: nanoparticles in catalysis[J]. Chemical Reviews, 2020, 120(2): 461-463.
- [86] Yatsui T, Yamaguchi M, Nobusada K. Nano-scale chemical reactions based on non-uniform optical near-fields and their applications[J]. Progress in Quantum Electronics, 2017, 55: 166-194.
- [87] Lukianova-Hleb E Y, Ren X Y, Zasadzinski J A, et al. Plasmonic nanobubbles enhance efficacy and selectivity of chemotherapy against drug-resistant cancer cells[J]. Advanced Materials, 2012, 24(28): 3831-3837.
- [88] Liu Y N, Ye H H, Huynh H D, et al. Digital plasmonic nanobubble detection for rapid and ultrasensitive virus diagnostics [J]. Nature Communications, 2022, 13(1): 1687.
- [89] Englert L, Wollenhaupt M, Haag L, et al. Material processing of dielectrics with temporally asymmetric shaped femtosecond laser pulses on the nanometer scale[J]. Applied Physics A, 2008, 92(4): 749-753.
- [90] Ahmmed K M T, Grambow C, Kietzig A M. Fabrication of micro/nano structures on metals by femtosecond laser micromachining[J]. Micromachines, 2014, 5(4): 1219-1253.
- [91] Ganeev R A, Suzuki M, Yoneya S, et al. Resonance-enhanced harmonic generation in nanoparticle-containing plasmas[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2015, 48(16): 165401.
- [92] Ganeev R A, Bom L B E, Ozaki T. Application of nanoparticle-containing laser plasmas for optical harmonic generation[J]. Journal of Applied Physics, 2009, 106(2): 023104.
- [93] Singhal H, Ganeev R A, Naik P A, et al. Study of high-order harmonic generation from nanoparticles[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2010, 43(2): 025603.
- [94] Venkatesh M, Ganeev R A, Ivanov D S, et al. High-order harmonic generation in Au nanoparticle-contained plasmas[J]. Nanomaterials, 2020, 10(2): 234.
- [95] Ganeev R A, Suzuki M, Kuroda H. High-order harmonic generation in Ag, Sn, fullerene, and graphene nanoparticle-contained plasmas using two-color mid-infrared pulses[J]. The European Physical Journal D, 2016, 70(1): 21.
- [96] Wöstmann M, Redkin P V, Zheng J A, et al. High-order harmonic generation in plasmas from nanoparticle and mixed metal targets at 1-kHz repetition rate[J]. Applied Physics B, 2015, 120(1): 17-24.
- [97] Ganeev R A, Boltaev G S, Satlikov N K, et al. Harmonic generation of picosecond Nd: YAG laser radiation in ablation-produced plasmas[J]. Journal of Optics, 2012, 14(9): 095202.
- [98] Ganeev R A, Suzuki M, Baba M, et al. High-order harmonic generation from laser plasma produced by pulses of different duration[J]. Physical Review A, 2007, 76(2): 023805.
- [99] Ganeev R A. Resonance enhancement in laser-produced plasmas: concepts and applications[M]. New Jersey: John Wiley & Sons, 2018.
- [100] Liang J G, Lai Y H, Fu W F, et al. Distinguishing monomer and nanoparticle contributions to high-harmonic emission from laser-ablated plumes[J]. Optics Express, 2021, 29(15): 23421-23429.
- [101] Venkatesh M, Ganeev R A, Kim V V, et al. Application of vector beams for enhanced high-order harmonics generation in laser-induced plasmas[J]. Optics Express, 2022, 30(10): 17080-17093.
- [102] Singh M, Fareed M A, Laramée A, et al. Intense vortex high-order harmonics generated from laser-ablated plume[J]. Applied Physics Letters, 2019, 115(23): 231105.
- [103] Ganeev R A, Chakera J A, Naik P A, et al. Resonance enhancement of single even harmonic of laser radiation in tin-containing plasma using intensity variation of two-color pump[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2011, 28(5): 1055-1061.
- [104] Boltaev G S, Ganeev R A, Strelkov V V, et al. Resonance-enhanced harmonics in mixed laser-produced plasmas[J]. Plasma Research Express, 2019, 1(3): 035002.
- [105] Ganeev R A, Boltaev G S, Kim V V, et al. Comparison studies of high-order harmonic generation in argon gas and different laser-produced plasmas[J]. OSA Continuum, 2019, 2(8): 2381-2390.
- [106] Wöstmann M, Splithoff L, Zacharias H. Control of quasi-phase-matching of high-harmonics in a spatially structured plasma[J]. Optics Express, 2018, 26(11): 14524-14537.
- [107] Ganeev R A, Toşa V, Kovács K, et al. Influence of ablated and tunneled electrons on quasi-phase-matched high-order-harmonic generation in laser-produced plasma[J]. Physical Review A, 2015, 91(4): 043823.
- [108] Cao W, Lu P X, Lan P F, et al. Control of the launch of attosecond pulses[J]. Physical Review A, 2007, 75(6): 063423.
- [109] Fu W F, Wang J, Yu J Q, et al. Extension of high-order harmonic generation cutoff from laser-ablated tin plasma plumes[J]. Optics Express, 2023, 31(10): 15553-15563.
- [110] Frolov M V, Manakov N L, Starace A F. Wavelength scaling of high-harmonic yield: threshold phenomena and bound state symmetry dependence[J]. Physical Review Letters, 2008, 100(17): 173001.
- [111] Huang B, Babcock H, Zhuang X W. Breaking the diffraction barrier: super-resolution imaging of cells[J]. Cell, 2010, 143(7): 1047-1058.
- [112] Padgett M, Bowman R. Tweezers with a twist[J]. Nature Photonics, 2011, 5(6): 343-348.
- [113] Willner A E, Huang H, Yan Y, et al. Optical communications using orbital angular momentum beams[J]. Advances in Optics and Photonics, 2015, 7(1): 66-106.
- [114] Guclu C, Veysi M, Capolino F. Photoinduced magnetic nanoprobe excited by an azimuthally polarized vector beam[J]. ACS Photonics, 2016, 3(11): 2049-2058.
- [115] Kraus M, Ahmed M A, Michalowski A, et al. Microdrilling in steel using ultrashort pulsed laser beams with radial and azimuthal polarization[J]. Optics Express, 2010, 18(21): 22305-22313.
- [116] Hutchison C, Ganeev R A, Witting T, et al. Stable generation of high-order harmonics of femtosecond laser radiation from laser produced plasma plumes at 1 kHz pulse repetition rate[J]. Optics Letters, 2012, 37(11): 2064-2066.
- [117] Boltaev G S, Ganeev R A, Kim V V, et al. High-order harmonics generation in the plasmas produced on different rotating targets during ablation using 1 kHz and 100 kHz lasers[J]. Optics Express, 2020, 28(13): 18859-18875.
- [118] Ganeev R A, Witting T, Hutchison C, et al. Isolated sub-fs XUV pulse generation in Mn plasma ablation[J]. Optics Express, 2012, 20(23): 25239-25248.
- [119] Elouga Bom L B, Haessler S, Gobert O, et al. Attosecond emission from chromium plasma[J]. Optics Express, 2011, 19(4): 3677-3685.



# Advances in High-Order Harmonic Generation from Laser-Produced Low-Density Plasmas

Gao Jian<sup>1,2\*</sup>, Wu Jian<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 200241, China;

<sup>2</sup>Chongqing Key Laboratory of Precision Optics, Chongqing Institute of East China Normal University, Chongqing 401121, China

## Abstract

**Significance** High-order harmonics generated by ultrashort intense laser pulses interacting with matter represent a significant advance in the production of coherent extreme ultraviolet (EUV) or soft X-ray sources, and they also lead to the generation of attosecond pulse trains in the time domain. A single isolated attosecond burst could be obtained by various gating techniques. Such a promising source can be widely used in applications such as diagnosis of ultrafast dynamical processes, coherent diffractive imaging (CDI) with high resolution, probing of magnetic materials, and mask defect inspection. The exploration of more efficient harmonic generation schemes in different media has been a fascinating research topic. The employment of low-density plasma plumes subject to intense femtosecond laser pulses has allowed the extension of high-order harmonics to arbitrary solids, greatly enriching the selectivity of the materials. Due to the resonance of a specific harmonic with the ionic transition possessing strong oscillator strength, intensely monochromatic high-order harmonics can be produced in the EUV region. In addition, the resonance-enhanced harmonic can be tuned by laser wavelength, chirp, two-color field and target structure. By taking advantage of the near-field enhancement and the large recombination cross section of the nanoparticles, the conversion efficiency of the EUV harmonics can be further improved.

**Progress** The first observation of resonance-induced enhancement of the single harmonic generated in the plasma was made in 2006, in which a very strong intensity of the H13 harmonic from the In plasmas was two orders of magnitude higher than neighboring orders. In the same year, the enhancement of the H17 harmonic in Sn plasmas was also demonstrated. The typical resonance-enhanced harmonic spectra are shown in Figs. 3, 7 and 9. The other plasmas produced by Mn, Cr, Sb and Zn are enhanced at H31, H29, H21 and H9, respectively. The “four-step” model can be used to interpret the peculiarly resonant harmonic, as illustrated in Fig. 5. The last step of the electrons in the “three-step” model of gas harmonics is replaced by the radiationless transition to the autoionizing state and relaxation to the ground state with EUV emission. The highest cut-off order H101 harmonic (7.9 nm) was obtained in the Mn plasmas. The conversion efficiency of the resonance-induced enhancement of the monochromatic harmonic has approached  $10^{-4}$ . In order to improve the conversion efficiency of the harmonics in the EUV region, the nanoparticle-containing plasmas are utilized, as shown in Figs. 3 and 7. Since the generation process is dominated by neutral atoms, it is difficult to enhance the higher harmonic orders. By adopting different laser chirps, two-color field, mixed targets and multi-jet plasmas, the resonant wavelength, harmonic cut-off order and harmonic intensity can be tuned. In addition, high-order harmonics can be controlled using structured vortex and vector beams, as presented in Figs. 8–13. The calculated attosecond pulse trains with a duration of 240 as in the laser-produced In plasmas and the experimentally measured attosecond pulse trains with a duration of 300 as in the Cr plasma plume were obtained. The metallic cylindrical rod was mounted on a rotating holder, which can achieve stable harmonic radiation in more than  $10^6$  shots under 1 kHz laser pulses (Fig. 14).

**Conclusions and Prospects** In this article, we review the mechanism and research progress in the resonance-induced enhancement of the single harmonic from a laser-produced plasma. Many efforts have been made to tune the resonance wavelength, extend the cut-off order, increase the conversion efficiency and improve the harmonic stability. To be an applicable EUV source, the plasma harmonics must be generated with high photon flux and high repetition rate. This should be greatly improved if the nanoparticles interact with the laser pulses at high repetition rate through some techniques. We also expect that the gating techniques can be applied to produce isolated single attosecond pulse.

**Key words** nonlinear optics; high-order harmonics; low-density plasma; resonance-induced enhancement; extreme ultraviolet band