arXiv:2601.16562v1 [physics.atom-ph] 23 Jan 2026

内壳层X射线激光器的共振X射线差频种子注入

Carles Serrat[1], *[1] Department of Physics,
Universitat Politècnica de Catalunya,
Ronda de Sant Nebridi 22, 08222 Terrassa, Spain

我们分析了一类内壳层X射线激光系统，其发射的初始条件由共振X射线差频驱动设定。利用微观密度矩阵框架，我们表明，频率为 ω_1 和 ω_2、满足 $\omega_1 - \omega_2 = \omega_0$ 的两个相干X射线场，无需该频率处的外场或非线性极化率，即可在 ω_0 处的芯能级跃迁上诱导锁相相干性。在粒子数反转存在时，这种受驱相干性决定放大场的相位和时间起始，而增益仍由传统的内壳层激光机制决定。我们将这种运行模式称为共振X射线差频激光（re-XDFL）。分析表明，差频驱动的相干性为实现可控的内壳层X射线激光发射提供了一条物理上自洽的途径，使其不再局限于纯粹由放大自发辐射起始的运行模式。

I. 引言

基于芯能级粒子数反转的内壳层X射线激光器，已在原子气体中通过强X射线泵浦实现，其中最具代表性的是先发生K壳层光电离，随后发生辐射衰变 [1]。在这些演示之前，理论上已提出基于光电离驱动的内壳层增益的相关概念 [2]。近来，内壳层X射线激光也已扩展至固体密度介质中的硬X射线能区，实现了波长短至1.5 Å的受激发射 [3]。

在所有这些实现中，激光发射均由放大自发辐射（ASE）启动，随后沿着延展的增益介质得到放大。尽管这种方法能够产生具有方向性且谱线窄的X射线激光脉冲，但它本质上无法对发射场的纵向相位、时间起始以及不同次实验之间的稳定性进行外部控制，因为这些性质由随机噪声而非确定性驱动机制决定 [4]。在内壳层激光的半经典模型框架下，这类系统的增益动力学和饱和行为已得到充分理解，但发射的初始条件从根本上仍由噪声驱动。

在光学和红外波长范围内，这些限制可通过使用光学谐振腔或外部种子注入来克服，从而为激光场施加定义明确的初始条件。然而，在芯能级X射线能量范围内，不存在可行的基于谐振腔的解决方案，并且通常无法在激射频率下进行外部种子注入。因此，尽管先进的X射线自由电子激光器能力已经具备，包括双色运行和精确定时控制[5, 6]，内壳层X射线激光器几乎无一例外地工作在ASE主导的工作状态。这一限制源于缺乏能够直接在内壳层跃迁频率下施加确定性初始条件的机制，而不是因为缺乏适用的泵浦技术。

近期关于共振X射线差频产生（re-XDFG）的研究表明，两个相干X射线场可通过微观密度矩阵动力学，在其差频处驱动共振原子相干，而无需假设预先存在非线性极化率 [7, 8]。这些研究证明，芯能级共振附近的差频过程能够产生由外加场而非自发涨落主导的锁相响应。类似的共振参数范围内的非线性X射线波混频过程也已有分析 [9]。由此自然引出一个问题：在存在增益的情况下，能否利用这种受驱相干性来控制内壳层X射线激光发射的初始条件。

在本工作中，我们通过分析共振差频驱动下的内壳层X射线激射来探讨这一问题。我们证明，双色X射线激发能够在芯能级跃迁上诱导确定性的锁相相干性，为粒子数反转引发的后续放大提供内禀种子。我们将这种工作模式称为共振X射线差频激光（re-XDFL）；它保留了传统内壳层X射线激光器的增益机制，同时以外部可控的种子注入取代噪声驱动的起振。以下各节将阐述这一机制所依据的微观理论，分析其与宏观传播和增益的耦合，并确定实现该机制时实验上可实现的参数范围。

II. 共振差频驱动的微观起源

A. 最简能级结构与相互作用哈密顿量

我们考虑一种具有可支持X射线激光增益的内层辐射跃迁的原子或离子。描述共振差频机制所需的最简能级结构包含三类

* carles.serrat-jurado@加泰罗尼亚理工大学.edu

态：具有芯空穴的芯激发态 $|c\rangle$ 、辐射衰变后对应于价层空穴组态的较低能态 $|v\rangle$ ，以及一组与 $|c\rangle$ 和 $|v\rangle$ 均为偶极耦合的中间态 $|m\rangle$ 。芯跃迁态之间的能量间隔为 $E_c - E_v = \hbar\omega_0$。

未受扰动的原子哈密顿量为

$$H_0 = \sum_j E_j |j\rangle\langle j|, \tag{1}$$

并假设与电磁场的相互作用本质上纯粹为电偶极相互作用，

$$H_{\rm int}(t) = -\boldsymbol{d}\cdot\boldsymbol{E}(t), \tag{2}$$

其中 $\boldsymbol{d}$为偶极算符。施加的电场由两个相干X射线分量组成，

$$\boldsymbol{E}(t) = \boldsymbol{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \boldsymbol{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.}, \tag{3}$$

且不含以 ω_0 振荡的分量。

B. 密度矩阵动力学与共振驱动的出现

原子动力学由密度矩阵 ρ描述，其满足

$$\dot\rho = -\frac{i}{\hbar}[H_0 + H_{\rm int}(t), \rho] - \mathcal{L}[\rho], \tag{4}$$

其中 $\mathcal{L}$ 在现象学上描述了俄歇衰变等不可逆过程。我们关注与内层跃迁相关的相干性 ρ_{cv} ，

$$\dot\rho_{cv} = -(i\omega_0+\Gamma)\rho_{cv} + \frac{i}{\hbar}\sum_m \left(\boldsymbol{d}_{cm}\cdot\boldsymbol{E}\,\rho_{mv} - \rho_{cm}\,\boldsymbol{d}_{mv}\cdot\boldsymbol{E}\right). \tag{5}$$

假设中间态 $|m\rangle$ 与共振充分失谐，能够绝热地跟随驱动场，则相干性 ρ_{cm} 和 ρ_{mv} 可在最低阶近似下消去，从而得到一个有效运动方程，

$$\dot\rho_{cv} = -(i\omega_0 + \Gamma)\rho_{cv} + i\Omega_{cv}(t)(\rho_{cc} - \rho_{vv}), \tag{6}$$

with

$$\Omega_{cv}(t) = \sum_m \frac{(\boldsymbol{d}_{cm}\cdot\boldsymbol{E}_1)(\boldsymbol{d}_{mv}\cdot\boldsymbol{E}_2^*)}{\hbar^2\Delta_m} e^{-i(\omega_1-\omega_2)t}. \tag{7}$$

当 $\omega_1 - \omega_2 = \omega_0$时，有效驱动场与内层跃迁发生共振。该项源自动力学上的密度矩阵演化，而非来自 ω_0处任何显式的场或极化率。由此产生的相干性与所施加的场锁相，并在存在粒子数反转时，为后续放大提供确定性的微观种子。

这一最简处理旨在确立共振驱动的存在及其锁相特性。它并不试图描述详细的电子结构或连续态动力学；这些因素可能会改变数值前因子，但不会改变其基本机制。

III. 与宏观传播和增益的耦合

A. 内层跃迁处的极化与场演化

共振差频驱动诱导的相干性 ρ_{cv} 会在芯层跃迁频率 ω_0处产生宏观极化。对于数密度为 N 的系综，极化密度为

$$\boldsymbol{P}_{cv}(\boldsymbol{r},t) = N\boldsymbol{d}_{cv}\rho_{cv}(\boldsymbol{r},t) + \text{c.c.}, \tag{8}$$

它在 ω_0 处充当辐射X射线场的源项。

在慢变包络近似下，沿增益方向传播的场包络 $E_0(z,t)$ z 满足

$$\left(\partial_z + \frac{1}{c}\partial_t\right) E_0(z,t) = i\frac{\omega_0}{2\varepsilon_0 c} P_{cv}(z,t), \tag{9}$$

其中， P_{cv} 表示以 ω_0 振荡的极化分量。该方程的形式与传统内壳层X射线激光理论中使用的方程完全相同，但此处的极化还包含由外部驱动相干性产生的确定性贡献。

存在粒子数反转时，ω_0 处的场通过受激发射得到放大。取最低阶近似，强度演化可写为

$$\frac{dI_0}{dz} = gI_0, \tag{10}$$

其中， g 是由反转粒子数密度和内层跃迁的辐射性质决定的小信号增益系数。重要的是，差频驱动的存在并不会改变增益机制本身。

B. 种子引发与噪声启动的放大

在没有外部驱动的情况下，ω_0 处的初始场源于耦合进入放大模式的自发辐射，随后通过放大自发辐射得到放大。当施加共振差频驱动时，极化中会出现额外的相干贡献，从而在ω_0处产生确定性种子场。

相关的物理问题并非放大自发辐射是否受到抑制，而是在显著放大发生之前，驱动种子是否主导早期场振幅。由于种子场和噪声初始场在放大开始后经历相同的增益，种子主导取决于它们在增益介质入口处的相对振幅，

$$|E_{\rm seed}(0)| \gtrsim |E_{\rm ASE}(0)|. \tag{11}$$

耦合到单个放大模式中的噪声初始场的数量级估算为

$$|E_{\mathrm{ASE}}(0)|^2 \sim \frac{\hbar\omega_0}{\varepsilon_0 A c \tau_c}, \tag{12}$$

其中， A 为有效模面积， $\tau_c \sim \Gamma^{-1}$ 为内层跃迁的相干时间。该估算遵循激光介质中自发辐射种子注入的标准半经典处理：在没有外部种子 [10]时，放大自发辐射提供初始场。该估算具体针对单个有效放大模式，旨在给出数量级判据。

由驱动极化在长度为 L 的相互作用长度上产生的种子场可估算为

$$|E_{\mathrm{seed}}(0)| \sim \frac{\omega_0 L}{\varepsilon_0 c}\left|P_{cv}^{(\mathrm{drive})}\right|, \tag{13}$$

with

$$P_{cv}^{(\mathrm{drive})} = N d_{cv}\rho_{cv}^{(\mathrm{drive})}. \tag{14}$$

对于在内层能级退相干时间内建立的共振驱动,

$$\left|\rho_{cv}^{(\mathrm{drive})}\right| \sim \frac{|\Omega_{cv}|}{\Gamma}, \tag{15}$$

其中，有效差频拉比频率与公式（7）一致，定义为

$$|\Omega_{cv}| \sim \frac{|d_{cm}d_{mv}|}{\hbar^2\Delta_m}|E_1E_2|, \tag{16}$$

中间态之和被隐含地吸收到有效耦合中。

结合这些表达式可得到种子主导的闭合判据,

$$\begin{aligned}\frac{|E_{\mathrm{seed}}(0)|}{|E_{\mathrm{ASE}}(0)|} &\sim \frac{\omega_0 L N d_{cv}}{\varepsilon_0 c}\frac{|d_{cm}d_{mv}|}{\hbar^2\Delta_m} \\ &\times \frac{|E_1E_2|}{\Gamma}\left(\frac{\varepsilon_0 A c\tau_c}{\hbar\omega_0}\right)^{1/2} \gtrsim 1.\end{aligned} \tag{17}$$

满足这一条件时，放大场会继承共振差频驱动所施加的相位和时间起始，而非自发涨落所决定的相位和起始时间。在此范围之外，系统会平滑地回归到以放大自发辐射为主导的传统内壳层X射线激光运行状态。

IV. 泵浦几何构型与吸收约束

在内壳层X射线激光器中实现共振差频种子注入，根本上受到增益介质中X射线吸收的限制。由于产生粒子数反转并驱动芯能级相干的同一泵浦场，在传播过程中也会衰减，因此可实现的相互作用体积主要由几何结构而非单独由泵浦强度决定。

根据上一节推导的种子主导判据，几何结构的作用是确定一个空间区域，使受驱相干性和粒子数反转能够以足够的均匀性共存，从而产生强于噪声起始贡献的种子场。因此，我们区分两种极限激发几何构型：纵向泵浦和横向泵浦。

A. 沿增益轴的纵向泵浦

在纵向泵浦中，频率为 ω_1 和 ω_2 的两个X射线场与频率为 ω_0的放大场近似共线传播。泵浦强度沿增益方向按指数规律衰减:

$$I_{1,2}(z) = I_{1,2}(0)\, e^{-\mu_{1,2}z}, \tag{18}$$

其中，$\mu_{1,\ 2}$ 为相应光子能量下的线性吸收系数。

在这种几何结构中，纳入种子振幅估算的有效相互作用长度 L受吸收限制,

$$\mu_{1,2}L \lesssim 1. \tag{19}$$

因此，受驱相干性和布居数反转主要在介质入口附近一个衰减长度范围内产生。提高气体压力以增强增益系数的同时，也会缩短可用的相互作用长度，从而导致增益与种子振幅之间的权衡。

因此，纵向泵浦最适用于中等密度和相对较短的相互作用长度足以满足种子主导判据的情形。它提供了一种简单的几何结构，可自然确保受驱极化与放大模式之间的空间重叠，但其本身并不能保证种子贡献超过放大自发辐射。

B. 横向泵浦与延长增益长度

在横向泵浦中，泵浦场主要沿垂直于增益轴的方向传播，与一个细长的增益区相交，该增益区的轴向长度为 L ，横向厚度为 D。在这种配置下，吸收约束仅适用于横向尺寸,

$$\mu_{1,2}D \lesssim 1, \tag{20}$$

而在 ω_0 处，放大场可沿整个轴向长度 L积累。

这种几何结构将可实现的相互作用长度与泵浦衰减长度解耦，并可通过延长有效 L，在不过度消耗泵浦的情况下满足种子振幅判据。只要将泵浦光束整形成沿增益轴均匀激发，横向泵浦就能在相当压力下于纵向构型无法达到的体积范围内建立受驱相干性和粒子数反转。

需要强调的是，几何条件$\mu_{1,\ 2}D \lesssim 1$ 是实现种子主导运行的必要条件，但并非充分条件。还必须确保两个泵浦场均匀地时间重叠、空间走离最小，并在相互作用体积内保持稳定的相位关系，才能确保驱动极化沿着 L 相干叠加。这些条件对光束几何结构和对准提出了实际约束，而非对材料的基本性质提出约束。

在这些限制范围内，横向泵浦通过增加有效相互作用长度，为相对于噪声增强种子场提供了自然途径，使其成为高密度实现共振X射线差频激光（re-XDFL）工作区间的自然构型。

V. 可行性估算与代表性参数

本节旨在评估在现实条件下是否能够满足上述推导的种子主导判据，而无需引入极端的材料性质或泵浦强度。此处给出的估算旨在进行数量级筛选，而非用于优化设计。

A. 内层空穴分数、增益长度积与退相干

令 N 表示原子数密度， f 表示携带芯空穴的原子所占的分数。粒子数反转密度可估算为

$$\Delta N \simeq fN, \tag{21}$$

假设在放大阶段初期，激光下能级的耗尽仍然较小，则谱线中心处的小信号增益系数可写为

$$g \simeq \sigma_{\mathrm{stim}} \Delta N, \tag{22}$$

其中， σ_{stim} 为内层跃迁的受激发射截面。

对于波长为 λ_0、辐射衰减率为 A_{cv}、均匀线宽为 Γ 的辐射跃迁，其受激发射截面可表示为

$$\sigma_{\mathrm{stim}} \simeq \frac{\lambda_0^2}{8\pi} \frac{A_{cv}}{\Gamma}. \tag{23}$$

对于软X射线芯能级跃迁，当俄歇衰变主导线宽时，该表达式给出的典型值为 $\sigma_{\mathrm{stim}} \sim 10^{-16}\mathrm{cm}^2$，这与内壳层X射线激光增益的标准建模结果一致 [4]。

在室温下，压力为 p 的气体原子密度约为

$$N \simeq 2.5 \times 10^{19}\,\mathrm{cm}^{-3} \left(\frac{p}{1\,\mathrm{atm}} \right). \tag{24}$$

当内层空穴分数为 $f \sim 10^{-2}$（远低于内层跃迁的饱和水平），且压力为数个大气压时，所得增益系数范围为

$$g \sim 0.1\text{–}1\,\mathrm{cm}^{-1}. \tag{25}$$

因此，对于毫米至厘米量级的相互作用长度，可以实现增益长度积 $gL \gtrsim 0.1$ ，具体取决于几何结构。

内层相干性的退相干速率 Γ由俄歇衰变主导；对于轻元素，这对应于数飞秒的寿命。这个时间尺度决定了建立共振差频相干性、使其能够充当有效种子的时间窗口。

B. 压力、长度与双色脉冲要求

内层空穴分数 f 由泵浦光子通量 F_γ 和 K壳层光电离截面 σ_K决定，

$$f \simeq 1 - \exp\left(-\sigma_K F_\gamma\right) \simeq \sigma_K F_\gamma \tag{26}$$

在弱激发极限下。对于略高于 K边的软X射线光子能量，代表性数值 $\sigma_K \sim 10^{-20}$–$10^{-19}\mathrm{cm}^2$ 表明，数量级为 10^{17}–$10^{18}\mathrm{photons/cm}^2$ 的光子通量足以达到 $f \sim 10^{-2}$，这与列表中的K壳层光电离截面 [11]一致。

第 III 节推导的种子主导判据明确取决于两个泵浦场振幅、原子密度和有效相互作用长度的乘积。在纵向泵浦中，吸收会通过 L 限制可用的 $\mu L \lesssim 1$，从而限制高压力下可达到的种子振幅。在横向泵浦中，轴向相互作用长度可以在不受吸收影响的情况下增加，因此无需提高泵浦强度，而是通过几何延伸即可满足该判据。

满足 $\omega_1 - \omega_2 = \omega_0$ 的双色X射线脉冲是驱动共振相干性所必需的。两个脉冲的时间重叠决定了种子发射的开始。脉冲持续时间与芯空穴寿命相当或更长即可，

因为相干性建立的相关时间尺度由 Γ^{-1} 决定，而不是由完整的脉冲持续时间决定。不需要腔或ω_0 处的外场。

综合来看，这些估算表明，在现有双色X射线脉冲能力、中等压力的气体靶以及与X射线吸收相容的相互作用长度所构成的参数空间内，可以实现共振X射线差频激光（re-XDFL）工作区间。因此，该方案的可行性主要取决于几何结构和定时控制，而非极端的泵浦或材料参数。

VI. 共振X射线差频激光（re-XDFL）工作区间的讨论与适用性

本文分析的共振X射线差频激光并未引入新的增益机制，也没有消除放大自发辐射。相反，它改变了内壳层X射线激光发射发展所依赖初始条件的物理来源。区分这一点，对于评估共振X射线差频激光（re-XDFL）工作区间的范围及其局限性至关重要。

在传统的基于放大自发辐射的内壳层X射线激光器中，宏观场源于沿增益介质分布的随机微观涨落。因此，发射脉冲的时间起始、纵向相位和逐发稳定性由噪声驱动动力学决定，无法从外部控制。共振X射线差频激光（re-XDFL）工作区间以双色激发驱动的确定性锁相相干性，取代了这种由噪声主导的起始过程。虽然放大自发辐射依然存在，并继续对放大后的场有所贡献，但当受驱相干性主导早期动力学时，它不再决定相位基准或发射时序。

因此，re-XDFL工作区间的主要优势在于相干性控制，而非效率提升。发射光子的总数、饱和行为和最终线宽，仍由与传统内壳层X射线激光器相同的增益和退相干机制所决定。因此，re-XDFL方案并非旨在输出能量方面超越基于放大自发辐射的工作方式，而是为了实现可重复、外部同步的X射线激光脉冲。

这一区别界定了 re-XDFL 工作真正具有优势的特定实验区间。仅以总光子产额或时间积分观测量为基础的实验，预计不会从差频种子注入中受益。相比之下，需要确定性控制芯能级能量处的发射起始、相位可重复性或相干性的实验，则能直接利用共振X射线差频激光（re-XDFL）工作区间。尤其是，通过两个入射X射线脉冲之间的时间重叠或不重叠来开启和关闭种子注入，同时保持其他所有条件不变，可提供一种可靠且明确无歧义的实验判别方法。这种时间门控在现代XFEL设施中很容易实现，并能在非线性X射线光谱、时间抖动较小的泵浦-探测测量以及相干性敏感型探测方案中，清晰识别由种子注入引起的效应。

还需强调，re-XDFL工作区间本质上具有条件性。要实现这一工作区间，必须在芯能级退相干时间内建立受驱相干性，且其振幅必须超过初始放大阶段有效的噪声驱动增长。在这一参数窗口之外，系统会平滑地恢复为传统的放大自发辐射主导行为。因此，re-XDFL不应被视为现有内壳层X射线激光器的替代方案，而应被视为一种可在适当激发条件下实现的附加工作区间。

七、结论

我们对共振X射线差频驱动下的内壳层X射线激射进行了微观分析，并发现了一种独特的工作机制，称为共振X射线差频激光器（re-XDFL）。在这种机制中，两个相干X射线场会诱导产生锁相的芯能级相干性，从而确定性地设定放大辐射的初始条件；与此同时，粒子数反转和增益仍由传统内壳层激光物理所决定。

本工作的核心结果是，共振差频驱动可作为内壳层X射线激光器的一种内禀、时间门控种子，无需在激射频率处使用外场或非线性极化率。该机制以外部控制的种子注入取代噪声驱动的起振，从而能够控制发射X射线脉冲的相位、时序和逐发稳定性，同时不改变总增益和饱和动力学。

我们已证明，该工作区间与气相靶的现实参数、双色X射线激发以及受X射线吸收限制的相互作用几何构型相兼容。纵向和横向泵浦构型均可在由退相干、吸收和增益长度要求所限定的明确参数窗口内支持 re-XDFL 运作。超出这些窗口后，系统会平稳地恢复为传统的自发辐射放大主导行为。

共振X射线差频激光（re-XDFL）工作区间并不以最大化输出能量为目标，而是旨在为内壳层X射线激光器提供新层次的相干性控制。因此，它尤其适用于需要确定性定时、相位稳定性或在芯能级能量下进行相干性敏感探测的实验。更广泛而言，共振差频种子注入为在某个光谱区域实现外部控制的X射线激光发射开辟了一条新的概念路径，在该区域中，谐振腔和直接种子注入均无法实现，

从而为由外部控制而非噪声决定的X射线激光源打开了大门。

致谢

感谢西班牙科学、创新与大学部通过项目 PID2023-152154NB-C21 提供资助。

[1] N. Rohringer, D. Ryan, R. A. London, M. Purvis, F. Albert, J. Dunn, J. D. Bozek, C. Bostedt, A. Graf, R. J. Hill, S. P. Hau-Riege 和 J. J. Rocca, 《自然》**481**, 488 (2012). [2] N. Rohringer 和 R. A. London, 《物理评论A》**80**, 013809 2009( ). [3] H. Yoneda, Y. Inubushi, K. Nagamine, Y. Michine, H. Ohashi, H. Yumoto, K. Yamauchi, H. Mimura, T. Sato, T. Ishikawa 和 T. Katayama, 《自然》**524**, 446 2015( ). [4] J. Nilsen, 《极端条件下的物质与辐射》**1**, 30 (2016). [5] A. Marinelli *et al.*, 载于 *Proceedings of IPAC2016* (2016) p. WEPMR043.[6] C. J. Milne *et al.*, 《皇家学会哲学汇刊A辑》**377**, 20180384 (2019).

[7] C. Serrat, 《物理化学杂志A辑》**125**, 10706 (2021). [8] C. Serrat, 《物理学杂志B辑：原子、分子与光物理》**56**, 245601 (2023). [9] A. V. Mohan 和 C. Serrat, 《物理化学杂志A辑》10.1021/acs.jpca.5c07630 (2025). [10] A. E. Siegman, *Lasers*（University Science Books，加利福尼亚州米尔谷，1986）。[11]美国国家标准与技术研究院，X射线质量衰减系数和光电离截面，https://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/，美国国家标准与技术研究院，访问于2026年。