时空动力学驱动全正常色散波导中的深紫外切伦科夫辐射

Tiandao Chen[1], Zhiyuan Huang[1,2,3,*], Jinyu Pan[1], Donghan Liu[1,2,3], Ruochen Yin[2,3], Xinglin Zeng[2,3],Jinxin Zhan[2,3], Jiapeng Huang[2,3], Wenbin He[2,3], Xin Jiang[2,3], Hao Hong[4], Kaihui Liu[4], Yuxin Leng[1,5,*],Ruxin Li[1,6] 和 Meng Pang[1,2,3,5,*]

[1]超强激光科学与技术国家重点实验室，上海光学精密机械研究所（SIOM），中国科学院（CAS），中国上海 201800

[2]Russell先进光波科学中心，上海光学精密机械研究所（SIOM）和杭州光学精密机械研究所（HIOM），中国杭州 311400

[3]浙江省微结构特种光纤重点实验室，杭州光学精密机械研究所（HIOM），杭州 311400，中国

[4]介观物理国家重点实验室与纳光电子前沿科学中心，北京大学物理学院，北京，中国

[5]杭州高等研究院，中国科学院大学，杭州 310024，中国

[6]张江实验室，上海 201210，中国

*通讯作者：huangzhiyuan@siom.ac.cn；lengyuxin@siom.ac.cn；pangmeng@siom.ac.cn

具有复杂时空动力学特征的超短脉冲在多模波导中的非线性传输，为非线性光学和超快激光领域提供了新的自由度。在此，我们展示了一种由时空动力学驱动的紫外切伦科夫辐射（色散波）新方案，该方案在充气毛细管中实现了前所未有的高脉冲能量。我们发现，兆焦耳级、40 飞秒的脉冲耦合进入填充高压惰性气体的大芯径毛细管后，会在这一正常色散波导中经历自相位调制和自陡峭效应，从而产生高强度冲击波并导致非对称频谱展宽。源于强非线性模间耦合的时空动力学会使脉冲发生空间收缩和时间减速，从而显著改变毛细管的色散景观。因此，可以在紫外波段形成一个相位匹配点，进而产生脉冲能量达 100-μJ 量级、脉冲宽度仅为数飞秒的多模色散波。我们的研究为多模非线性光学带来了新的认识；所展示的高能量紫外光源具有宽带可调谐性和紧凑的装置结构，有望应用于时间分辨光谱学、超快电子学和飞秒化学等领域。

对物质瞬态动力学的探索与调控取得的进展，很大程度上取决于超快光源的发展[1-9]，尤其关注其光子能量和时间宽度性能。过去几十年来，深紫外和真空紫外（100-300 nm）超快光源凭借高光子能量和短光学波长的独特优势，在非线性光学和超快科学领域受到了广泛关注[10-29]。尽管强烈的材料吸收导致晶体寿命缩短和激光损伤，仍是深紫外和真空紫外波长下晶体基超快光源面临的主要挑战[10-12]，但采用

这些波长下的气体喷流进行谐波产生，通常具有相对较低的转换效率和有限的可调谐性[15,16]。

色散波发射，也称为切伦科夫辐射[30,31]，，一直被视为将超快激光脉冲高效转换为短波长的重要策略。在以往的文献中[17-29]，色散波发射始终被认为是一种与孤子动力学密切相关的伴随现象。一般而言，高阶孤子在反常色散条件下进入光波导后，首先会经历孤子自压缩和显著的光谱展宽。在存在高阶色散时，泵浦光（位于反常色散侧）向色散波波长（位于正常色散侧）的相位匹配能量转移，会通过级联四波混频过程[30,31]产生自种子光学切伦科夫辐射。尽管这一经典物理过程在多种非线性光学平台中均有体现，包括实芯或空芯微结构光纤[17,18]，、充气毛细管波导[19-29] 以及光子芯片级器件[32,33]，，孤子动力学的功率缩放定律[19,34]严格规定了辐射脉冲能量与系统几何尺寸（波导的直径和长度）之间的关系。

近年来，多模波导中的时空动力学为研究和控制光传播提供了额外的自由度，因而在光学界引起了广泛关注[35-45]。这一概念的引入也开启了一个丰富多彩的多模非线性光学系统领域，其多样性和复杂性令人瞩目[42]，，为非线性光学实验带来了前所未有的可能性[43-45]。在这篇快报中，我们揭示了一种由强非线性模间耦合引发的新型光学切伦科夫辐射相位匹配的形成过程。我们证明，毫焦耳级超快脉冲在充有高压惰性气体的正常色散毛细管中传播时，其光谱会因自相位调制（SPM）和自陡峭（SST）效应而发生非对称展宽，并在时域产生一个冲击波包，其峰值强度高、脉冲宽度仅为数飞秒。增强的非线性会导致毛细管光学模式之间发生强烈的非线性耦合，从而有效减缓冲击波脉冲沿纵向的传播速度。脉冲群速度的大幅降低，使其与深紫外准线性光分量形成新的相位匹配。因此，可在毛细管输出端获得多模紫外切伦科夫（色散波）辐射，脉冲能量最高达100-μJ，且具有优异的光谱相干性，支持压缩脉冲持续时间达到<2 fs。

多模切伦科夫辐射（MMCR）过程的概念示意图如图 1a 所示。当大芯径（直径 500-μm）的毛细管光纤中充入高压（实验中为 9.3 bar）氖气时，气体材料色散主要决定毛细管波导的色散特性，在 200 nm 至 1000 nm 的波长范围内，其二阶项始终为正常色散（$\beta_2 > 0$）。注入毛细管波导基模的泵浦脉冲波长为 ~800nm，脉冲宽度为 ~40 fs，脉冲能量达到 mJ 级。传播过程中，超快泵浦脉冲首先经历强烈的 SPM 和 SST 效应[40,41,46,47]；这是由于气体压力相对较高，因而波导非线性较强，导致频域中的光谱不对称展宽[40,46,47]，并在时域中产生一串超短冲击波[40,46,47]。这一数飞秒冲击波的出现进一步增强了光学峰值强度和非线性，从而促使能量从基模强烈耦合至若干高阶模式。

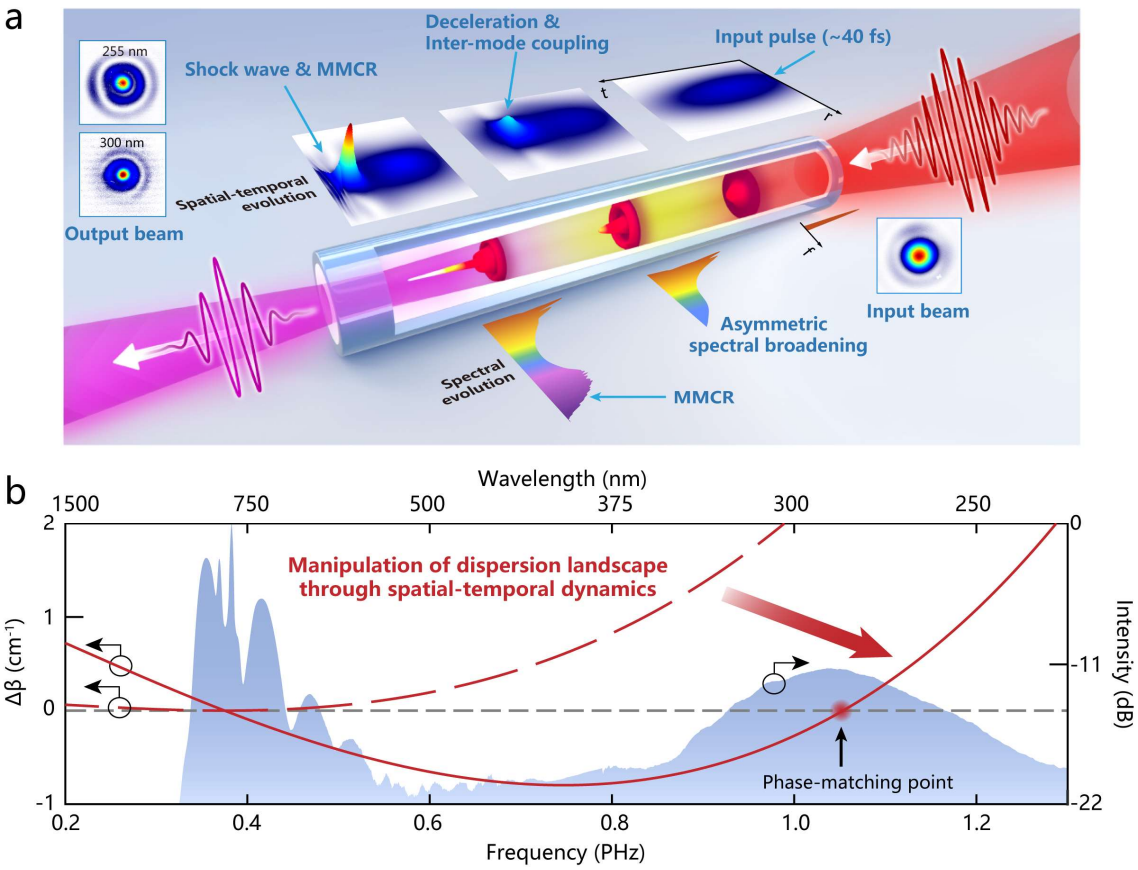


图 1 | MMCR 产生机制及实验结果的概念示意图。a，氖气填充空芯光纤中的 MMCR 产生机制示意图。上图展示了模式间耦合、脉冲减速、冲击波形成和 MMCR 的动态过程，下方则描绘了相应的光谱演化。图中分别显示了聚焦后的输入泵浦光光束轮廓，以及使用 CCD 相机测得的不同输出波长下 UV MMCR 脉冲的近场图像，分别位于输入端和输出端。**b**，根据方程 (1) 计算的 9.3 巴氖气填充空芯光纤中 800 nm 泵浦光与 MMCR 之间的失相率 $\Delta\beta$，计算时未考虑（红色虚线）和考虑（红线）β_{STD} 为 0.6 fs/cm 的情况。在失相率为零处（红点）实现相位匹配。蓝色阴影区域表示在脉冲能量为 565-μJ、脉冲持续时间为 ~40-fs 的泵浦条件下测得的光谱。实验中使用的空芯光纤长度为 40 cm，芯径为 500 μm，内部填充 9.3 巴氖气。

如图 1a 所示，泵浦脉冲的这种时空演化会导致其空间轮廓收缩（类似于自聚焦效应），进而使脉冲沿毛细管纵向传播方向的群速度降低。这种由时空动力学引起的脉冲减速会改变波导的色散景观（见图 1b），其机制是引入一个额外的群速度相关项（β_{STD}），并改变泵浦脉冲与光学切伦科夫辐射之间的相位失配

（某些准线性波）作为光频率（ω ）的函数，可表示为 :

$$\Delta\beta = \frac{\beta_2}{2}(\omega-\omega_0)^2 + o[(\omega-\omega_0)^2] - \beta_{STD}(\omega-\omega_0) \qquad (1)$$

其中 $\Delta\beta$ 表示两波之间的失相率，β_2 为泵浦波长 ω_0 处的二阶色散，o 所有高阶（≥3）色散项。β_{STD} 在式(1)中表示由非线性时空动力学引起的冲击波传播常数变化，该变化

可表示为^{2} STD 1(/ 2)β = β θ，其中 β_1 为传播常数的一阶项，θ 为脉冲空间收缩引起的有效发散角，详见补充说明1。

如图 1b 所示，引入STD β 项可以强烈调制波导原本呈抛物线形的色散曲线（见图 1b 中的红色虚线），从而在高频（较短波长）一侧产生一个相位匹配（Δβ = 0）点。当注入毛细管的40飞秒泵浦脉冲能量为565 μJ时，STD β 可估计为~0.6 fs/cm（见补充说明1和2），从而在~290 nm处产生相位匹配波长，见图 1b。实验中，从40 cm长的毛细管中观测到了~290 nm处的强切伦科夫辐射（见图 1b 中的蓝色浅色区域），与理论预测吻合良好。需要指出的是，在这根充有高压氖气的大芯径毛细管中，气体材料的贡献主导了波导色散，而模式相关贡献可以忽略。因此，毛细管波导若干低阶光学模式中的光分量几乎经历相同的色散景观（见图 1b 中的红线）。

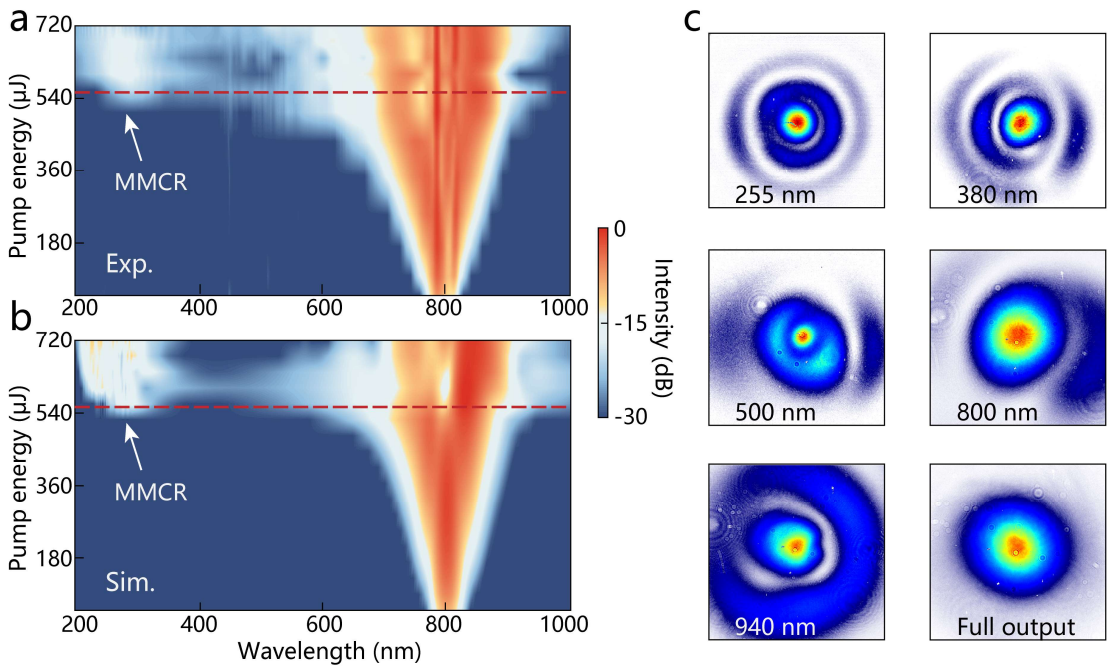
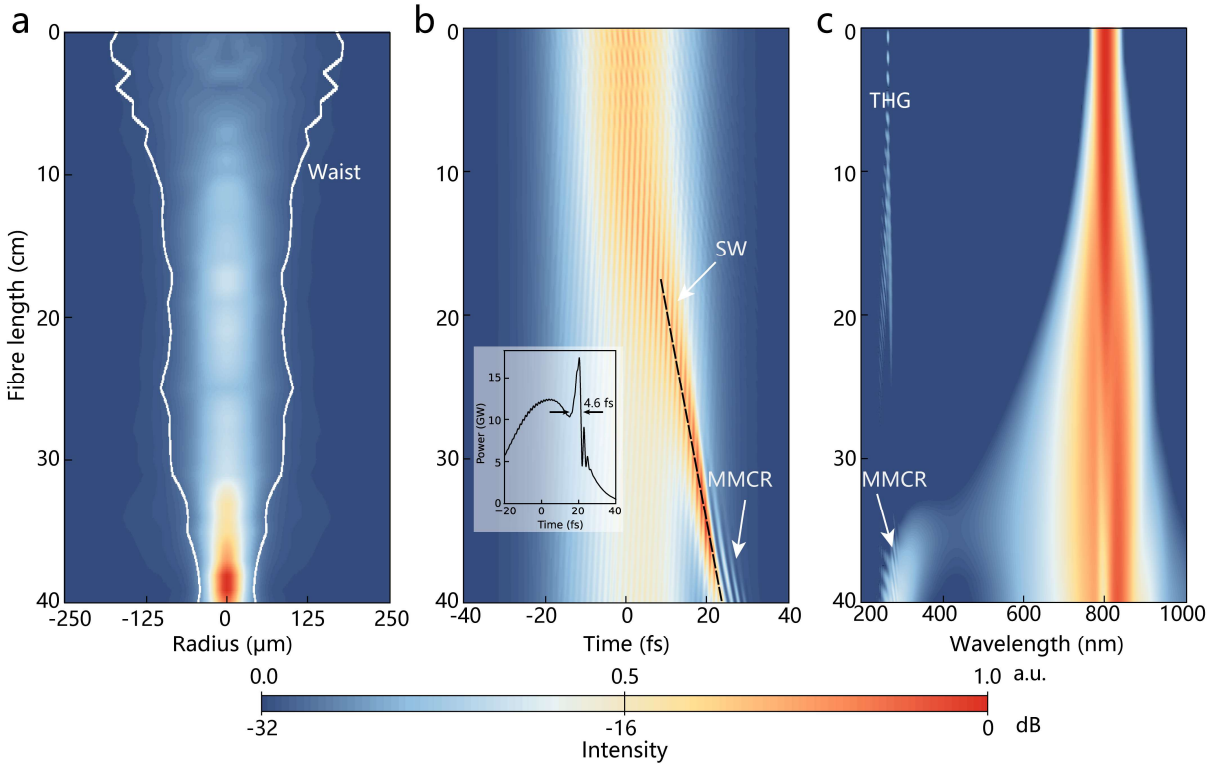


图 2 | 光谱演化的实验与数值结果 及输出光谱的空间分布随泵浦能量的变化。a，空芯光纤输出光谱随泵浦脉冲能

如式(1)所述，MMCR的相位匹配波长可通过改变STD β 的值来调谐；在实际中，只需调节泵浦脉冲能量即可实现。这一波长可调谐性已在实验中实现，更多实验细节见图2a、方法及补充说明4。如图2a所示，当我们逐渐将~40-fs泵浦脉冲的能量从50 μJ增加到720 μJ时，我们记录了毛细管在不同泵浦

能量。可以发现，当泵浦能量低于450 μJ时，对称的光谱展宽主要可归因于自相位调制效应；而当泵浦能量高于450 μJ时，则可观察到由自陡峭效应[47] 引起的展宽光谱明显不对称，从而导致更多光分量在较短波长处产生。这些较短波长分量只有在与高强度驱动脉冲满足相位匹配时，才能作为切伦科夫辐射的种子光。

在泵浦脉冲能量为 >520 μJ 的实验中，实现了这种相位匹配，从而获得了高效率的切伦科夫辐射。如图2a所示，当泵浦能量为 520 μJ 时，辐射开始在 ~300 nm 处出现；随着泵浦能量逐渐增加至 720 μJ，其波长也逐渐移动至 ~250 nm。使用多模单向脉冲传播方程（MM-UPPE）进行的数值模拟[19,48,49], 能够完美重现这些实验观测结果，见图2b，更多详情请参见补充说明 3。在泵浦脉冲能量为 565 μJ 时，我们在实验中仔细测量了输出光谱（图2a中的红色虚线所示）；图2c展示了五个不同波长处测得的近场光束分布以及完整输出的光束分布，进一步证实这一MMCR过程涉及毛细管的多个光学模式，因此本质上具有时空动力学特征。在这一泵浦水平下，测得深紫外辐射的脉冲能量为 ~18 μJ，对应的转换效率为 ~3.2%。



图。3 | 图2b所标示情形下，多模切伦科夫辐射过程沿光纤长度的模拟演化动力学。565-μJ泵浦脉冲随光纤长度变化的空间（**a**）、时间（**b**）和光谱（**c**）演化模拟。**a**中的白线表示时间峰值处的束腰。**b**中的插图显示了35 cm处的脉冲轮廓。SW，冲击波。

为了更好地说明脉冲在毛细管中传播的时空动力学，我们利用模拟数据展示了 565 μJ 脉冲在 40 cm 毛细管中的三维非线性演化（见图3），

如图3a所示，泵浦脉冲在毛细管中传播时，光束腰逐渐减小；另一方面，与非线性模式间耦合相对应的光束空间分布收缩，会因时域中高强度冲击波的产生而增强（见图3b）。而这种光束空间收缩又会导致冲击波脉冲减速，这一点可在图3b中清晰观察到。在频谱域（见图3c），自陡峭效应导致冲击波产生，进而直接引起非对称频谱展宽（偏向短波长），最终在相位匹配波长（~290 nm）处产生强烈的光学切伦科夫辐射。

三维脉冲演化可通过时空图和频谱-时间图直观地展示，见图4和补充视频1。如图4a–4c所示，在~30 cm处产生的冲击波增强了光束的空间收缩（非线性模耦合）效应，使光学峰值强度进一步从148 TW/cm^2 提高到362 TW/cm^2。如频谱-时间图所示（见图4d–4f），非对称频谱展宽主要源于冲击波的产生，为MMCR提供了种子光。紫外波长处强烈的MMCR源于时间减速的光学冲击波，见图4f。

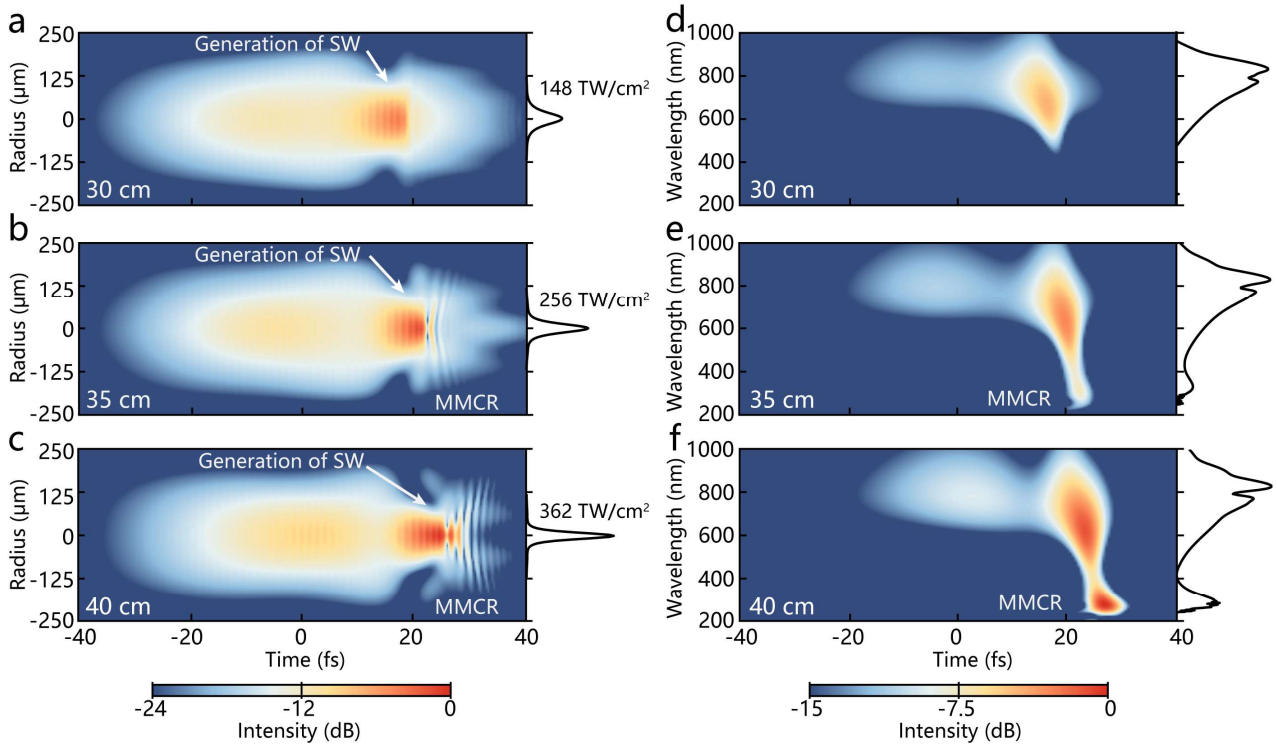


图 4 | 图3所示情况下，不同光纤位置处的时空分布和轴上频谱-时间图（光谱图）。a–c, 时空分布。黑线表示脉冲峰值处的径向强度分布。 **d–f,** 轴上光谱图分析。黑线表示脉冲光谱。

我们进一步研究了MMCR 脉冲[17,50], 的模式组成、相干性和相位特性，发现所辐射的紫外脉冲主要由四个低阶毛细管光学模式组成（占总能量的 >95%）。由于系统具有完美的径向对称性，所研究的全部四个（HE$_{11}$, HE$_{12}$, HE$_{13}$ 和 HE$_{14}$）毛细管模式也表现出径向对称性，见图5。仿真结果（见图5a）表明，尽管不同光学

模式具有不同的光谱形状，但它们在整个光谱范围内均表现出良好的相干性。在时域中，如图5b所示，不同模式的MMCR脉冲由于大芯径毛细管中较弱的模式相关色散而仅有可忽略的模间走离。毛细管输出端的脉冲啁啾也被发现较为平滑，仅通过补偿二阶项即可在可接受的程度上予以消除。如图5c所示，通过引入–1.8 fs^2, 的群延迟色散值，MMCR 脉冲可从4.4 fs压缩至1.9 fs，已非常接近其1.5 fs的傅里叶变换极限值。

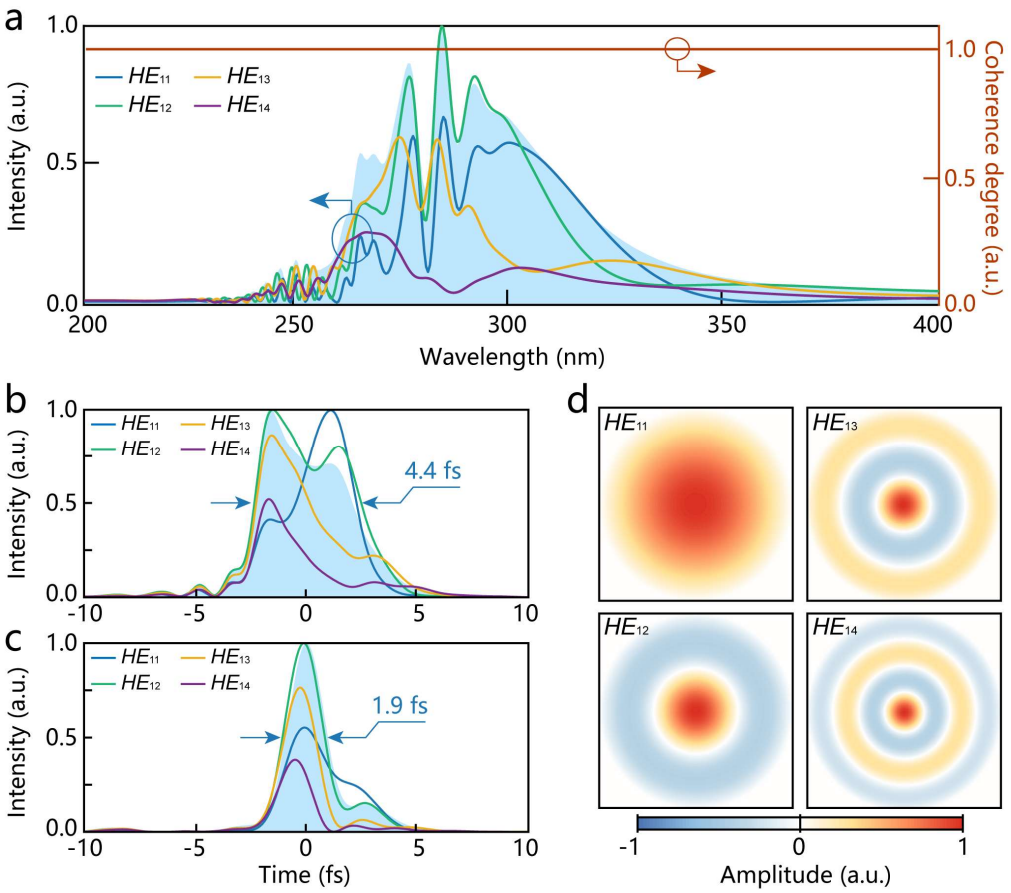


图3 5 | MMCR生成的多模紫外脉冲的模式组成、相干性和相位特性。a，图3中空芯光纤输出端多模紫外脉冲各单个模式的模拟光谱（彩色曲线）及一阶相干复度（橙色曲线）。**b** 各模式对应的时间包络。**c** 对输出多模紫外脉冲施加 -1.8 fs^2 群延迟色散后得到的压缩脉冲。（**a–c**）中的蓝色阴影表示所有模式下紫外脉冲的叠加。**d**，HE_{11} 至 HE_{14} 模式的归一化横向振幅分布。

在实验中，我们发现，由非线性时空动力学及后续色散调控所诱导的 MMCR 现象具有普遍性，在广泛的系统参数范围内均可观测到，见图6。使用同一根毛细管时，只需改变泵浦脉冲能量，相位匹配的MMCR波长即可从 ~300 nm 调谐至 ~250 nm（见图6a和图6b）；通过改变不同的系统参数，包括泵浦脉冲能量、毛细管几何尺寸，以及毛细管内填充气体的类型和压力，也可以提高或降低 MMCR 脉冲的能量。图6c和图6d展示了两个典型示例。当毛细管具有相同的几何尺寸（芯径为 500-μm，毛细管长度为 40 cm）且填充 3 bar 氩气时，能量为 175 μJ 的 40飞秒泵浦脉冲也可产生能量为 7.7-

μJ、波长为 ~300 nm 的 MMCR 脉冲，对应的转换效率为 ~4.4%，见图6c。使用芯径更大的毛细管也可以实现能量扩展。如图6d所示，使用芯径为 800 μm、长度为 1 m 且填充 6.5-bar 氦气的毛细管，在能量为 2.2 mJ 的 40飞秒脉冲泵浦下，可产生能量为 113 μJ、波长为 ~300 nm 的 MMCR 脉冲（对应的转换效率为 ~5.1%）。更多结果见补充说明 5。

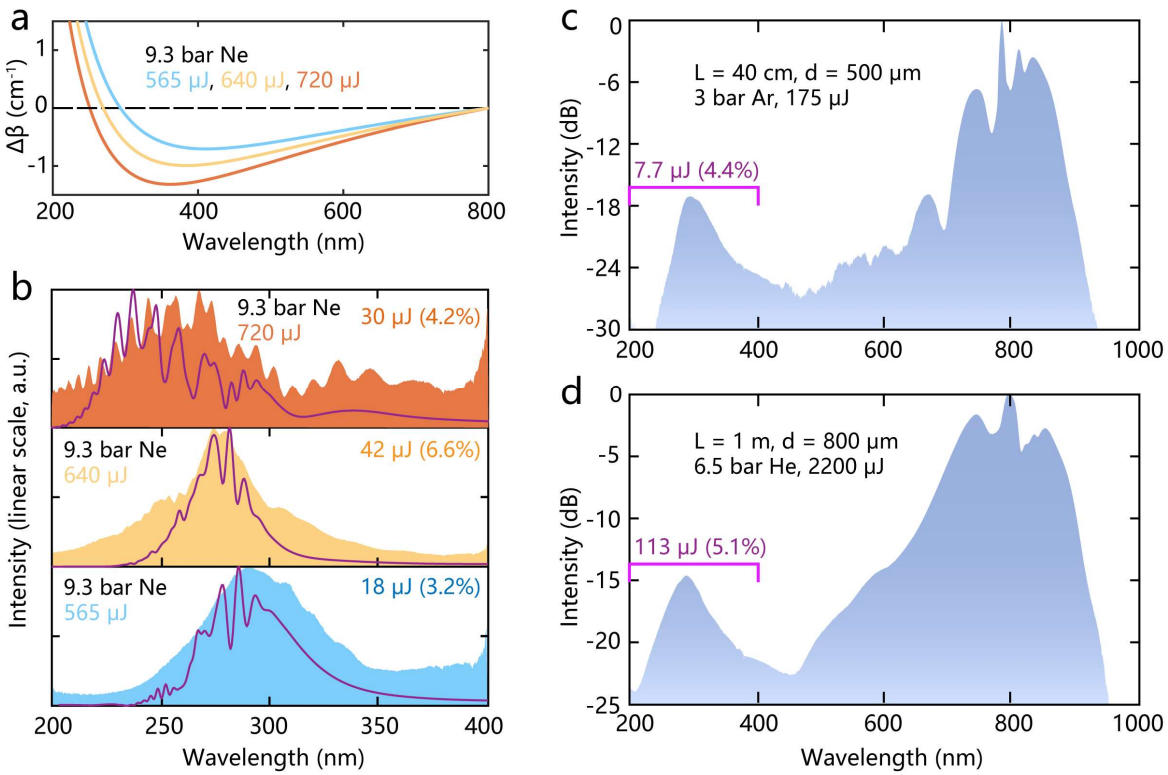


图 6 | MMCR 的中心波长调谐和能量扩展。a，不同输入能量下 MMCR 的相位匹配图。**b**，不同相位匹配波长下对应的紫外脉冲光谱。泵浦脉冲持续时间为 ~40 fs，空芯光纤长度为 40 cm，芯径为 500 μm。通过在 10% 范围内调整输入能量，使模拟多模紫外光谱（红线）与测量结果相匹配。**c**，在充有 3-bar 氩气的 40-cm 长、芯径为 500-μm 的空芯光纤中，使用 175-μJ、~40-fs 泵浦光测得的光谱。**d**，在充有 6.5-bar 氦气的 1-m 长、芯径为 800-μm 的空芯光纤中，使用 2.2-mJ、~40-fs 泵浦光测得的光谱。

与基于充气毛细管中孤子动力学的传统光学切伦科夫辐射相比，此处展示的 MMCR 机制能够有效提升紫外输出脉冲能量；更重要的是，它可以大幅简化对应用至关重要的系统配置。首先，泵浦脉冲宽度约为 40 fs（而非 10 fs），这很容易通过广泛使用的钛宝石超快激光系统获得。其次，在传统的色散波辐射方案中，孤子动力学的标度律总是要求毛细管芯径越大，气体压力越低，以确保填充气体材料与波导几何结构的色散贡献达到平衡，从而在泵浦波长处实现反常色散，并同时选出合适的相位匹配切伦科夫辐射波长[19,34]。大尺寸波导下较低的气体压力会导致光学非线性较弱，因而非线性长度较长（对应较大的系统几何尺寸）；这仍是毛细管系统实际应用面临的一大挑战。简单计算表明，在传统方案中[19],，毛细管长度

要在 ~300 nm 处获得能量达 100-μJ 级的色散波脉冲，需要 ~20 m 的长度；此时毛细管的芯径为 800 μm，且 mJ 级泵浦脉冲的脉冲宽度需为 10 fs，更多详情见补充说明 6。相比之下，在此展示的 MMCR方案中，仅使用一级 1 m 长、直径为 800-μm 的毛细管，40 fs、mJ 级泵浦脉冲便可高效驱动 ~300 nm 的 MMCR，产生能量为 113 μJ 的紫外脉冲，见图6d。

近年来，多模波导中的光学切伦科夫辐射现象引起了广泛关注[35,36,40,41]。尽管已观测到源自渐变折射率多模光纤[35,36], 中孤子动力学的多模色散波辐射，其光谱呈梳状且带宽宽广；研究人员也已在实芯多模光纤或体材料非线性介质中探索了时空动力学和模间相位匹配，以产生能量达数个 μJ 级的可见超连续谱光[40,41,51]。然而，迄今尚未探索将此类时空机制拓展至充气、全正常色散毛细管波导平台，以产生具有高光学相干性的高能量（100-μJ 级）紫外色散波脉冲。

总之，我们已经表明，大芯径毛细管波导中的非线性时空脉冲传播可以将相位匹配的光学切伦科夫辐射与孤子脉冲压缩解耦，从而大幅提升系统的能量标度能力和装置紧凑性。从非线性物理的角度来看，我们的结果进一步例证了多模非线性光学系统的巨大效用，并为复杂的时空脉冲动力学提供了新的认识。从应用角度看，所演示的紫外可调谐光源具有极高的脉冲能量、数飞秒脉冲宽度以及极为简单的激光装置，有望在先进光刻、超快电子显微术和飞秒光学实验中展现巨大的应用潜力。

方法

实验装置。 该系统由一台商用钛蓝宝石飞秒激光器驱动，输出800 nm、~40 fs脉冲，重复频率为1 kHz。能量高达3.5 mJ的泵浦脉冲被耦合进入芯径为500 μm或800 μm的空芯光纤。装置的更多细节见补充说明4。

脉冲光谱与能量测量。 脉冲光谱使用两台光谱仪进行测量：一台用于紫外波段（Maya2000-Pro，200–400 nm，Ocean Insights），另一台用于可见光（VIS）至近红外（NIR）波段（Maya2000-Pro，210–1100 nm，Ocean Optics）。两台仪器均经过校准。通过合并两台光谱仪的数据并对重叠区域进行插值，获得空芯光纤输出端的完整光谱（图 1b、2a、6b–d）。测量时，输出光束经熔融石英楔片分束。透射光束被导入与紫外光谱仪耦合的积分球，反射光束则被导入与可见-近红外光谱仪耦合的另一积分球。

使用热功率计（3A-P，Ophir）测量输入脉冲能量。使用带通滤光片（255 nm 使用 Pelham Research Optical；275–375 nm 使用 FGUV11，Thorlabs）、光电二极管（PD300-UV，Ophir）和紫外光谱仪组合测量多模紫外脉冲的能量。例如，对于在泵浦能量为 565-μJ、氖气压强为 9.3 bar 时产生的宽带紫外脉冲，首先使用带通滤光片分离出一段光谱。随后使用光电二极管和紫外光谱仪分别测量其能量和光谱强度，以校准光谱能量密度。接着，使用紫外光谱仪测量未经滤光的多模紫外脉冲的光谱强度。利用校准后的光谱

能量密度，估算出宽带紫外脉冲的总能量为 18 μJ。采用相同方法测量了具有不同带宽和中心波长的紫外脉冲（结果见图 5b–d）。

光束轮廓测量。使用光学滤波器（255 nm 使用 Pelham Research Optical；300–940 nm 使用 FBH 系列、Thorlabs）和 CCD 相机（BGS-USB3-SP932U，Ophir-Spiricon）测量不同波长下输出光谱的近场光束分布（图 1a 和图 2c）。

数据可用性

合理请求时，可向通讯作者获取本研究生成的数据。

代码可用性

合理请求时，可向通讯作者获取本文使用的代码。

参考文献

1. Schoenlein, R.W. 等. 视觉的第一步：视紫红质的飞秒异构化。《科学》254, 412-415 (1991). 2. Cerullo, G. 等. 类胡萝卜素的光合作用光捕获：中间激发态的探测。《科学》298, 2395-2398 (2002). 3. Hassan, M.T. 等. 用于成像超快电子动力学的高时间分辨率电子显微镜。Nature Photonics 11, 425-430 (2017). 4. Borrego-Varillas, R. 等. 二维紫外光谱：深入了解生物分子的结构与动力学。《化学科学》10, 9907-9921 (2019). 5. Kotsina, N. 等. 空心毛细管光纤中共振色散波发射产生的数飞秒深紫外激光脉冲的光谱学应用。《化学科学》13, 9586-9594 (2022). 6. Lee, J.P. 等. 利用可调谐深紫外-可见光泵浦脉冲进行数飞秒软X射线瞬态吸收光谱。Optica 11, 1320-1323 (2024). 7. Brahms, C. 等. 二氧化钒中解耦的数飞秒相变。《自然·通讯》16, 3714 (2025). 8. Colaizzi, L. 等. 对碘甲烷紫外诱导解离动力学的数飞秒时间分辨研究。《自然·通讯》15, 9196 (2024). 9. Wanie, V. 等. 捕捉紫外激发分子中电子驱动的手性动力学。《自然》630, 109–115 (2024). 10. Tran, T. 等. 深紫外非线性光学材料。《化学材料》28, 5238 (2016). 11. Kang, L. & Lin, Z. 深紫外非线性光学晶体：概念发展与材料发现。《光科学与应用》11, 201 (2022). 12. Orii, Y. 等. 间歇运行期间将266 nm、20 W深紫外光的响应时间降至最低。《光学连续体》1, 2274-2286 (2022). 13. Kobayashi, T., Yabushita, A. & Kida, Y. 亚 10 飞秒可见光 - 近红外、紫外和深紫外脉冲的产生及其在超快光谱学中的应用。《光子学》3 (2016). 14. Baum, P., Lochbrunner, S. & Riedle, E. 可调谐7飞秒紫外脉冲的产生：消色差相位匹配与啁啾管理。《应用物理B》79, 1027–1032 (2004). 15. Galli, M. 等. 深紫外亚2飞秒脉冲的产生。Optics Letters 44, 1308–1311 (2019). 16. Schönberg, A. 等. 用于钍-229核光谱学的气体喷流阈下谐波产生。《光学快报》31, 12880-12893 (2023). 17. Dudley, J., Genty, G. & Coen, S. 光子晶体光纤中的超连续谱产生。《现代物理评论》78, 1135 (2006).

18. Russell, P. S. J. 等. 用于气体非线性光学的空芯光子晶体光纤。Nature Photonics 8, 278-286 (2014). 19. Travers, J.C. 等. 空心毛细管光纤中通过孤子动力学生成高能脉冲自压缩与紫外光。《Nature Photonics》13, 547-554 (2019). 20. Brahms, C. 等. 通过高能孤子自压缩产生的红外阿秒场瞬态与紫外至红外数飞秒脉冲。Physical Review Research 2, 043037 (2020). 21. Chen, T. 等. 孤子分裂动力学驱动的紫外色散波倍频程宽带展宽。《自然·通讯》15, 8671 (2024). 22. Zhang, C. 等. 对充气空心毛细管光纤中产生的微焦耳级数飞秒紫外色散波脉冲的测量结果。Optics Letters 47, 4830-4833 (2022). 23. Reduzzi, M. 等. 对共振色散波发射产生的亚3飞秒深紫外脉冲进行直接时间表征。《光学快报》31, 26854-26864 (2023). 24. Travers, J.C. 空芯光纤中的光孤子。《光学通讯》555, 130191 (2024). 25. Brahms, C. & Travers, J.C. HISOL：高能孤子动力学实现超快远紫外激光源。《APL光子学》9: 050901 (2024). 26. Chen, T. 等. 由40飞秒钛蓝宝石激光脉冲直接驱动的空心毛细管光纤中可调谐紫外色散波发射。Optics Letters 50, 2606-2609 (2025). 27. Yu, Y. 等. 空心毛细管光纤中产生可调谐真空紫外至可见光超快脉冲，在320 nm处色散波效率达15.7%。《光学快报》33, 30717-30726 (2025). 28. Heinzerling, A.M. 等. 场分辨阿秒孤子。Nature Photonics 19, 772–777 (2025). 29. Andrade, J.R.C. 等. 可调谐少周期真空紫外脉冲的时间表征。Nature Photonics 19, 1240–1246 (2025). 30. Akhmediev, N. & Karlsson, M. 光纤中孤子发射的切伦科夫辐射。Physical Review A 51, 2602-2607 (1995). 31. Erkintalo, M. 等. 光纤频率梳中的级联相位匹配与非线性对称性破缺。Physical Review Letters 109, 223904 (2012). 32. Brasch, V. 等. 利用孤子切伦科夫辐射的基于光子芯片的光学频率梳。《科学》351, 357-360 (2016). 33. Guo, H.-R. 等. 氮化硅纳米光子波导中通过相干色散波生成实现中红外频率梳。Nature Photonics 12, 330-335 (2018). 34. Travers, J. C. 等. 充气空芯光子晶体光纤中的超快非线性光学。Journal of the Optical Society of America B, 28, A11-A26 (2011). 35. Wright, L.G. 等. 多模光纤中的可控时空非线性效应。Nature Photonics 9, 306-310 (2015). 36. Wright, L.G. 等. 多模波时空振荡产生的超宽带色散辐射。Physical Review Letters 115, 223902 (2015). 37. Wright, L.G. 等. 渐变折射率多模光纤中的自组织不稳定性。Nature Photonics 10, 771-776 (2016). 38. Wright, L.G. 等. 多模光纤激光器中的时空锁模。《科学》358, 94-97 (2017). 39. Wright, L.G. 等. 时空锁模机制。《自然·物理》16, 565-570 (2020). 40. Kibler, B. & Béjot, P. 多模光纤中的离散化锥形波。Physical Review Letters 126, 023902 (2021). 41. Stefańska, K. 等. 实验观测到多模光纤中时空波包的自发辐射。《ACS光子学》10, 727-732 (2023). 42. Wright, L.G. 等. 高度多模非线性光学系统物理。《自然·物理》18, 1018-1030 (2022).

43. Carpeggiani, P.A.等 极端拉曼红移：超快多模非线性时空动力学、脉冲压缩与宽范围可调频率转换。*Optica* **7**, 1349-1354 (2020)。44. Safaei, R.等 空芯光纤中的高能多维孤子态。*Nature Photonics***14**, 733-739 (2020)。45. Piccoli, R.等 通过非线性光纤模式混合直接产生的强少周期可见光脉冲。*Nature Photonics* **15**, 884-889 (2021)。46. Rothenberg, J.E. 时空聚焦：飞秒脉冲自聚焦中的慢变包络近似失效。*Optics Letters* **17**, 1340-1342 (1992)。47. Gaeta, A.L. 超短脉冲的灾变坍缩。*Physical Review Letters* **84**, 3582-3585 (2000)。48. Tani, F.等 光波导中的多模超快非线性光学：笼目光子晶体光纤中的数值建模与实验。*Journal of the Optical Society of America B* **31**, 311-320 (2014)。49. Xiao, Y.等 基于空心毛细管光纤产生的亚周期驱动脉冲的孤立阿秒自由电子激光器。*Ultrafast Science* **5**, 0099 (2025)。50. Dudley, J. M. & Coen, S. 光子晶体光纤和锥形光纤中产生的超连续谱的相干特性。*Optics Letters* **27**, 1180-1182 (2002)。51. Faccio, D.等 超短光脉冲非线性动力学中的锥形辐射、脉冲分裂与X波参量放大。*Physical Review Letters* **96**, 193901 (2006)。

致谢

本研究部分得到国家自然科学基金委员会（M.P. 获资助项目编号 W2541021，J.Y.P. 获资助项目编号 62505330，R.X.L. 获资助项目编号 12388102，K.H.L. 获资助项目编号 42550189）、中国科学院战略性先导科技专项（Z.Y.H. 和 M.P. 获资助项目编号 XDB0650000）、上海市科技计划项目资助（Z.Y.H. 和 M.P. 获资助项目编号 23JC1410100）、国家博士后创新人才支持计划（J.Y.P. 获资助项目编号 BX20250361）、中国博士后科学基金会（J.Y.P. 获资助项目编号 2025M780803）、上海市科技重大专项（Z.Y.H. 和 M.P.）以及阜阳市高层次人才团队项目（J.P.H、W.B.H.、X.J. 和 M.P.）的支持。

作者贡献

Z.Y.H. 和 M.P. 构思了本研究。T.D.C 和 Z.Y.H 开展了实验。W.B.H.、J.P.H.、X.J.、H.H、K.H.L、Y.X.L. 和 R.X.L. 提供了必要的实验设备和资源。T.D.C. 进行了数值模拟。T.D.C.、Z.Y.H. 和 M.P. 进行了理论与实验分析并撰写了手稿；Z.Y.H.、Y.X.L. 和 M.P. 负责监督项目。所有作者均参与了结果讨论和手稿编辑。

竞争利益

作者声明不存在竞争利益。

其他信息

本文的补充信息可在 xxxxxx 获取。

补充信息：

“时空动力学实现的全正常色散波导中的深紫外切伦科夫辐射”

Tiandao Chen[1], Zhiyuan Huang[1,2,3,*], Jinyu Pan[1], Donghan Liu[1,2,3], Ruochen Yin[2,3], Xinglin Zeng[2,3],Jinxin Zhan[2,3], Jiapeng Huang[2,3], Wenbin He[2,3], Xin Jiang[2,3], Hao Hong[4], Kaihui Liu[4], Yuxin Leng[1,5,*],Ruxin Li[1,6] 和 Meng Pang[1,2,3,5,*]

[1]超强激光科学与技术国家重点实验室，上海光学精密机械研究所（SIOM），中国科学院（CAS），中国上海 201800

[2]Russell先进光波科学中心，上海光学精密机械研究所（SIOM）与杭州光学精密机械研究所（HIOM），中国杭州 311400

[3]浙江省微结构特种光纤重点实验室，杭州光学精密机械研究所（HIOM），中国杭州 311400

[4]北京大学物理学院介观物理国家重点实验室和纳光电子前沿科学中心，中国北京

[5]中国科学院大学杭州高等研究院，中国杭州 310024

[6]张江实验室，上海 201210，中国

[*]通讯作者：huangzhiyuan@siom.ac.cn；lengyuxin@siom.ac.cn；pangmeng@siom.ac.cn

补充说明1：群速度相关色散调制项

如正文所述，空芯光纤内脉冲的空间轮廓收缩类似于自聚焦效应。因此，我们可以采用类似的方法来表示此类脉冲的群速度。根据参考文献[1], , 自聚焦超短脉冲以群速度SF $_g v$ 传播，其表达式为：

$$v_g^{\mathrm{SF}} = v_g \cos\theta \tag{S1}$$

其中，$_g v$是平面波的群速度，在此情况下非常接近真空光速c。参数θ 表示径向波矢与总波矢之比，可通过发散角公式$_0$ $_0$( )$w\theta$ λ π = 进行估算。这里，$_0\lambda$ 是脉冲的中心波长，$_0 w$ 是时间峰值处的束腰半径。由于( )^1 SF SF 1 $_g v\beta$ – = 、/ $_1$ =( )^1 $_g v\beta$ –且$_0$ $_0 w$ λ ≫ ，公式(S1)可展开为：

$$\beta_1^{\mathrm{SF}} \approx \beta_1 (1 + \frac{\theta^2}{2}) \tag{S2}$$

因此，群速度减速引起的色散调制项SF STD 1 $_1\beta$ β β = –可表示为：

$$\beta_{\mathrm{STD}} = \frac{\beta_1}{2}\theta^2 \tag{S3}$$

补充说明 2：色散调制项的估算

我们使用发散角公式0 0( )wθ λ π = / 估算STDβ 的值。方程（S3）可改写为:

$$\beta_{\mathrm{STD}} = \frac{\beta_1}{2}\left(\frac{\lambda_0}{\pi w_0}\right)^2 \tag{S4}$$

公式（S4）能够很好地估算STDβ 。根据正文图 3a 所示的仿真结果，多模切伦科夫辐射（MMCR）点附近时间峰值处的束腰半径为 ~42 μm。使用0λ = 800 nm 和 1 = 1/cβ ，公式（S4）得出STDβ = 0.613 fs/cm。将该值代入正文中的公式（1），可估算出相位匹配波长为 ~290 nm，与实验结果高度吻合，见正文图 1b。

补充说明 3：数值模拟模型

本文介绍本研究的数值模型。假设空芯光纤（HCF）内部的电场保持圆柱对称性，并可展开为 $_{1m}HE$ 模式的线性叠加：$_{0}[\ _{1}\ \ ](,,)(,)(/)_{m\ m\ m}Ezr\,Ez\,Jura\omega\ \ \omega=\sum\tilde{}\ \tilde{}$，其中$(,,)Ezr$ $\omega\ \tilde{}$ 表示频域中的电场，z表示传播距离，ω 表示脉冲的角频率，$(,)^{m}Ez\ \omega\ \tilde{}$ 表示$_{1m}HE$模式的振幅，$_{0}J$为零阶贝塞尔函数，$_{1m}u$是$_{0}J$的第 m^{th} 个零点，r为径向坐标，a 为空芯光纤的纤芯半径。正文图 2–6 所示的数值模拟基于多模单向脉冲传播方程[2,3],，该方程包含光电离项，形式如下[2,3]:

$$\frac{\partial\tilde{E}^{m}(z,\omega)}{\partial z}=i\left(\beta^{m}(\omega)-\frac{\omega}{v_{\mathrm{g}}}\right)\tilde{E}^{m}(z,\omega)-\frac{\alpha^{m}(\omega)}{2}\tilde{E}^{m}(z,\omega)+i\frac{\omega^{2}\tilde{P}_{NL}^{m}(z,\omega)}{2c^{2}\varepsilon_{0}\beta^{m}(\omega)}\tag{S5}$$

其中，$_{m}\beta$ 是$_{1m}HE$ 模式的传播常数，$^{m}\alpha\ \ \omega$ 是该模式的线性毛细管损耗，$_{0}\varepsilon$ 是真空介电常数，$(,)^{m}{}_{NL}Pz\omega\ \tilde{}$ 表示$_{1m}HE$ 模式在频域中的非线性响应，可表示为$_{0\ 1\ 0}(,)2(/)(,,)_{a\ m\ NL}{}_{m\ NL}\ P\ z\ rdrJ\ u\ r\ a\ P\ zr\ \omega\ \ \pi\ \ \omega\ \ =\int\tilde{}\ \tilde{}$。其中，$(,,)_{NL}Pzr\omega\ \tilde{}$ 是频域中的非线性极化，可表示为[4-6]:

$$\tilde{P}_{NL}(z,r,\omega)=F\left[\varepsilon_{0}\chi^{(3)}E(z,r,t)^{3}+P_{ion}(z,r,t)\right]\tag{S6}$$

其中，F 表示傅里叶变换，$_{(3)}\chi$ 是与克尔效应相关的三阶非线性极化率，E是时域中的电场，而t是以群速度移动的参考系中的时间。$(,,)_{ion}P\ z\ rt$ 是电离诱导等离子体响应，表示为[4-6]:

$$\frac{\partial P_{ion}(z,r,t)}{\partial t}=\frac{I_{P}}{E(z,r,t)}\frac{\partial\rho(z,r,t)}{\partial t}+\frac{e^{2}}{m_{e}}\int_{-\infty}^{t}\rho(z,r,t')E(z,r,t')dt'\tag{S7}$$

其中，$_{P}I$为气体的电离势，ρ 为等离子体密度，e为电子电荷，且$_{e}m$ 为电子质量。等离子体密度的演化遵循:

$$\frac{\partial\rho}{\partial t}=W(I)(\rho_{nt}-\rho)+\frac{s}{I_{P}}\rho I\tag{S8}$$

其中，$(\ )WI$ 为场依赖电离速率，I 为激光脉冲强度，$_{nt}\rho$ 为中性气体密度，s 为碰撞电离的截面。

式（S4）中的传播常数 $_{m}\beta$ 由毛细管色散关系[7]得出:

$$\beta^{m}(\omega)=\frac{\omega}{c}\sqrt{n_{gas}^{2}(\omega)-\frac{u_{1m}^{2}c^{2}}{\omega^{2}a^{2}}} \tag{S9}$$

其中，$_{gas}n$ 是填充气体的折射率，取决于光频率、气体压力和温度。空芯光纤的线性损耗可表示为[8]:

$$\alpha^{m}(\omega)=\frac{u_{1m}^{2}c^{2}}{\omega^{2}a^{3}}\frac{\eta^{2}+1}{\sqrt{\eta^{2}-1}} \tag{S10}$$

其中η 是　包层介质的折射率与填充气体的折射率之比。

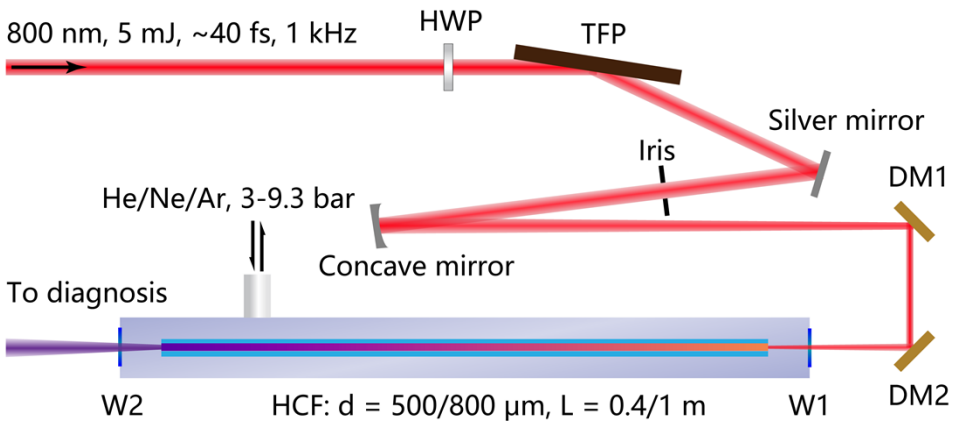
在仿真中，我们采用 ~40 fs（半高全宽）、800 nm 的高斯形脉冲作为输入，并假设其完全耦合进入空芯毛细管光纤（HCF）的基模。

补充说明4：实验装置

高能多模紫外（UV）脉冲产生装置如图S1所示。该系统由一台商用钛蓝宝石飞秒激光器（Legend Elite，Coherent）驱动，其输出脉冲的中心波长为 800 nm，脉冲能量为 5 mJ，脉冲持续时间约为 40 fs，重复频率为 1 kHz。驱动脉冲首先通过半波片（HWP）和薄膜偏振片（TFP），二者共同用作可调衰减器以调节能量。随后，利用焦距为

2 3 500 m
μ 0 4 800 μ 1

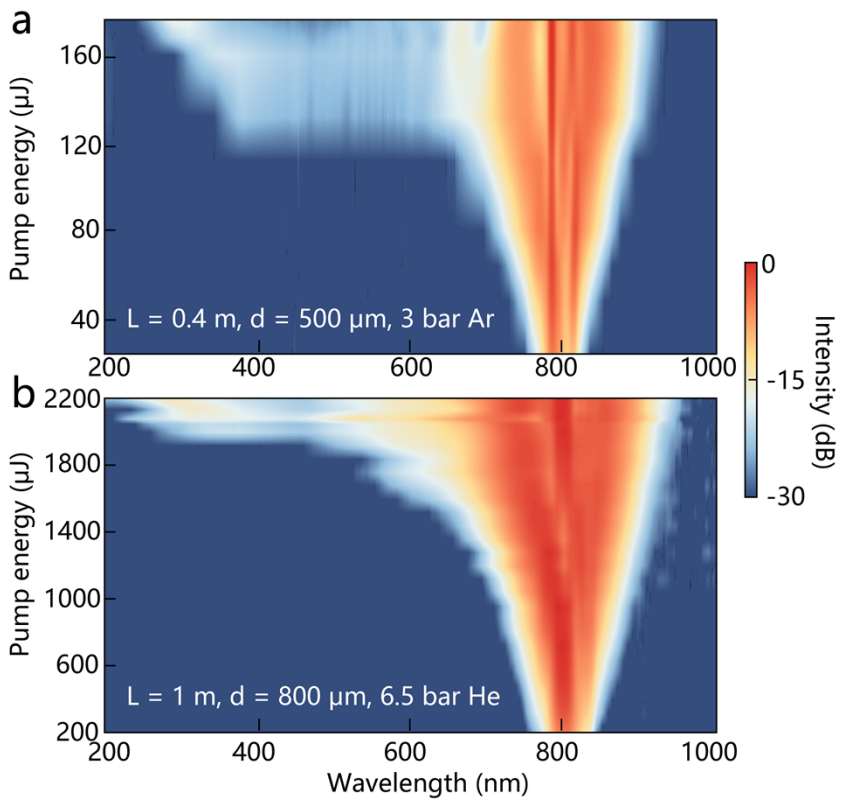
或 m 的凹面镜，将衰减后的脉冲耦合进入空心毛细管光纤（HCF）。实验采用了两种 HCF 配置：一种芯径为 m、长度为 . m；另一种芯径为 m、长度为 m。HCF 的输入端和输出端分别用厚度为 0.5 mm 的镀膜熔融石英（FS）窗口和厚度为 1 mm 的未镀膜氟化镁（MgF_2）窗口密封。长度为 0.4 m 的 HCF 内充入 9.3 bar 的氖气或 3 bar 的氩气，长度为 1 m 的 HCF 内则充入 6.5 bar 的氦气。两种配置的实测透射效率均约为 80%。最后，通过光谱分析、脉冲能量测量和光束轮廓诊断，对空芯毛细管光纤输出端产生的多模紫外脉冲进行了全面表征。



补充图S1。 实验装置。HWP，半波片；TFP，薄膜偏振器；DM1-DM2，介质镜；W1-W2，第一个（W1）是熔融石英（FS）窗口，最后一个（W2）是氟化镁（MgF_2）窗口；HCF，空心毛细管光纤；d，光纤直径；L，光纤长度。

补充说明 5：MMCR 的能量扩展

如正文所述，通过适当调节相关系统参数，可以实现多模切伦科夫辐射过程能量水平的扩展。图 S2 展示了两种不同实验配置下，随着泵浦能量增加而发生的光谱演化动力学。尽管两种配置的能量尺度相差一个数量级，但二者表现出定性相似的光谱行为，均持续产生中心波长约为 300 nm 的多模紫外脉冲，其测得的脉冲能量分别为 7.7 μJ 和 113 μJ。有关相应光谱轮廓的更详细表征，请参阅正文中的图 6(c) 和 6(d)。



补充图 S2. 不同毛细管几何结构下测得的光谱演化。脉冲光谱随泵浦脉冲能量的演化：(a) 充有 3 bar 氩气、长 0.4 m、直径 500-μm 的毛细管光纤；(b) 充有 6.5 bar 氦气、长 1 m、直径 800-μm 的毛细管光纤。泵浦脉冲参数与正文图 6(c) 和 6(d) 中使用的参数相同。

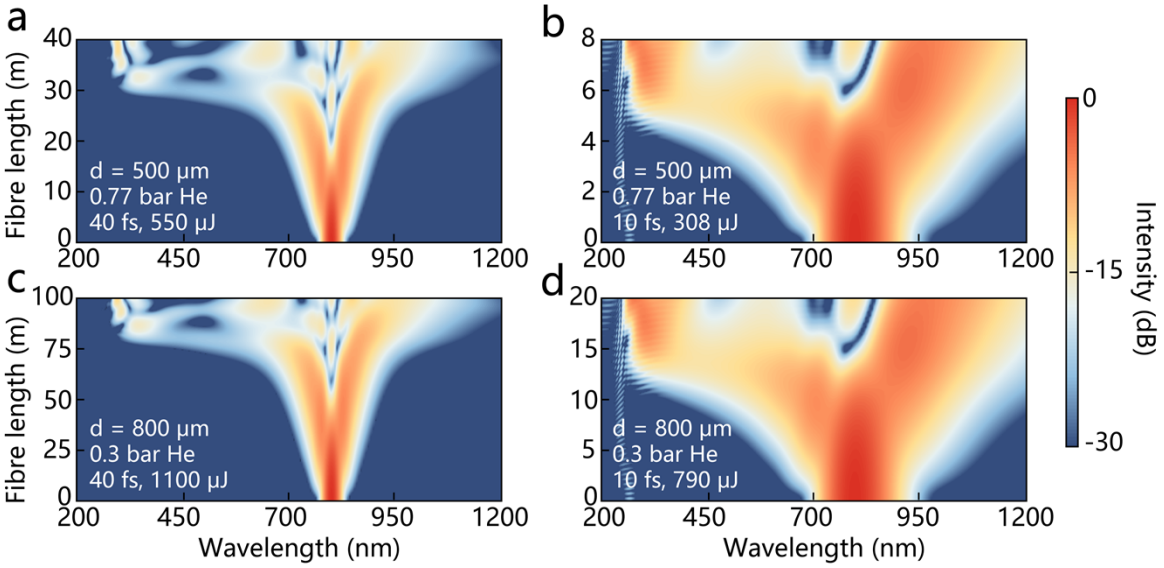
补充说明 6：传统的孤子驱动高能紫外切伦科夫辐射

尽管通过充气空芯光纤中的一维孤子动力学产生切伦科夫辐射，被广泛认为是生成微焦耳级、可

例如，对传统切伦科夫辐射进行仿真：在充有 0.77 bar 氦气、芯径为 500-μm 的空芯光纤中，

μJ 的

若将孤子动力学扩展至更高能量，并以百微焦耳级紫外切伦科夫辐射为目标，则所需光纤长度约



补充图 S3. 传统孤子驱动切伦科夫辐射的仿真。采用不同泵浦脉冲和毛细管几何结构时，模拟光谱随光纤长度的演化：(a) 直径为 500-μm 的毛细管光纤，在 0.77 bar 氦气中以 40 fs、550 μJ 的脉冲泵浦；(b) 直径为 500-μm 的毛细管光纤，在 0.77 bar 氦气中以 10 fs、308 μJ 的脉冲泵浦；(c) 直径为 800-μm 的毛细管光纤，在 0.3 bar 氦气中以 40 fs、1100 μJ 的脉冲泵浦；(d) 直径为 800-μm 的毛细管光纤，在 0.3 bar 氦气中以 10 fs、790 μJ 的脉冲泵浦。模拟参数参考文献 [2] 的实验结果和孤子动力学的标度定律，产生了 ~300 nm、百微焦耳级的深紫外脉冲。

补充参考文献

1. Rothenberg, J.E. 时空聚焦：飞秒脉冲自聚焦过程中慢变包络近似的失效。*Optics Letters* **17,** 1340-1342 (1992). 2. Travers, J.C. 等 通过空心毛细管光纤中的孤子动力学实现高能脉冲自压缩与紫外光生成。*Nature Photonics* **13,** 547-554 (2019). 3. Tani, F. 等 光波导中的多模超快非线性光学：笼目光子晶体光纤中的数值建模与实验。*Journal of the Optical Society of America B* **31,** 311-320 (2014). 4. Chang, W. 等 电离对基于气体的超快非线性光纤光学的影响。《光学快报》 **19,** 21018-21027 (2011). 5. Huang, Z. 等 通过孤子-等离子体相互作用产生的可见光区波长可调谐少周期脉冲。《光学快报》 **26,** 34977-34993 (2018). 6. Pan, J. 等 充气反谐振空心光纤中与两级孤子自压缩相耦合的宽带色散波发射。《激光与光子学评论》 **18,** 2400531 (2024). 7. Marcatili, E.A.J.与Schmeltzer, R.A. 用于长距离光传输与激光的空心金属及介质波导。《贝尔系统技术杂志》 **43,** 1783-1809 (1964).