

·特邀综述·

大连极紫外相干光源

余永^{1,3}, 李钦明^{1,3}, 杨家岳¹, 王光磊¹, 史磊¹, 丁洪利¹, 陶凯¹, 汤振兴¹, 贺志刚¹,
陈志超¹, 田宇欢¹, 戴东旭¹, 吴国荣¹, 张未卿¹, 杨学明^{1*}, 冯超², 陈思²,
王震², 谷端², 陈杰², 刘晓庆², 兰太和², 冯冽², 张文艳², 钟少鹏², 张俊强², 李林², 肖诚成²,
李昊², 赵欢², 陈广花², 朱海君², 丁建国², 黄毛毛², 张伟², 赖龙伟², 杨夫彬², 王光宏²,
相升旺², 胡晓², 刘以勇², 孙森², 高飞², 蒋志强², 周孝轩², 刘永芳², 吴勇华², 陈志豪²,
王锐萍², 黄大章², 张猛², 邓海啸², 李宾², 林国强², 俞路阳², 阎映炳², 阎山川², 夏晓彬²,
周巧根², 刘波², 顾强², 谷鸣², 方国平², 冷用斌², 殷立新², 王东², 赵振堂^{2**}

¹中国科学院大连化学物理研究所分子反应动力学国家重点实验室, 辽宁 大连 116023;

²中国科学院上海应用物理研究所, 上海 201204;

³中国科学院大学, 北京 100049

摘要 先进光源的发展在前沿科学研究中发挥的作用越来越重要。近十年来, 飞速发展的自由电子激光技术为科学家们提供了探索未知世界、发现新科学规律和实现技术变革的重要工具。建成的大连极紫外(EUV)相干光源的运行波段为 50~150 nm, 单脉冲能量大于 100 μJ , 且可提供 10^{-12} s 和 10^{-13} s 量级的超快激光脉冲, 是我国第一台自由电子激光用户装置, 并且是国际上唯一运行在极紫外波段的自由电子激光用户装置, 在世界范围内为用户提供具有高峰值亮度和超短脉冲的极紫外激光。大连 EUV 相干光源是由国家自然科学基金委资助、由中国科学院大连化学物理研究所和上海应用物理研究所共同承担的重大科学仪器研制项目, 目标是打造一个以先进极紫外光源为核心、主要用于能源基础科学研究的光子科学平台。

关键词 激光光学; 自由电子激光; 极紫外激光; 能源基础研究

中图分类号

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0100005

Dalian Extreme Ultraviolet Coherent Light Source

Yu Yong^{1,3}, Li Qinming^{1,3}, Yang Jiayue¹, Wang Guanglei¹, Shi Lei¹, Ding Hongli¹,
Tao Kai¹, Tang Zhenxing¹, He Zhigang¹, Chen Zhichao¹, Tian Yuhuan¹, Dai Dongxu¹,
Wu Guorong¹, Zhang Weiqing¹, Yang Xueming^{1*}, Feng Chao²,
Chen Si², Wang Zhen², Gu Duan², Chen Jie², Liu Xiaoqing², Lan Taihe², Feng Lie²,
Zhang Wenyan², Zhong Shaopeng², Zhang Junqiang², Li Lin², Xiao Chengcheng², Li Hao²,
Zhao Huan², Chen Guanghua², Zhu Haijun², Ding Jianguo², Huang Maomao², Zhang Wei²,
Lai Longwei², Yang Fubin², Wang Guanghong², Xiang Shengwang², Hu Xiao²,
Liu Yiyong², Sun Sen², Gao Fei², Jiang Zhiqiang², Zhou Xiaoxuan², Liu Yongfang²,
Wu Yonghua², Chen Zhihao², Wang Ruiping², Huang Dazhang², Zhang Meng²,
Deng Haixiao², Li Bin², Lin Guoqiang², Yu Luyang², Yan Yingbing², Yan Shanchuan²,

收稿日期: 2018-11-10; 修回日期: 2018-11-22; 录用日期: 2018-11-30

基金项目: 国家自然科学基金(21127902, 21688102, 21673234)、中国科学院战略性先导科技专项(B类)资助(XDB17000000)

* E-mail: xmyang@dicp.ac.cn; ** E-mail: zhaozhtang@sinap.ac.cn

Xia Xiaobin², Zhou Qiaogen², Liu Bo², Gu Qiang², Gu Ming², Fang Guoping²,
Leng Yongbin², Yin Lixin², Wang Dong², Zhao Zhentang^{2**}

¹State Key Laboratory of Molecular Reaction Dynamics, Dalian Institute of Chemical Physics,
Chinese Academy of Sciences, Dalian, Liaoning 116023, China;

²Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China;

³University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract Development of advanced light sources has become more and more important in the frontier scientific research. The development of new advanced light sources has pushed experimental studies from macroscopic world into the atomic and molecular levels, from studies of physical systems at static conditions to ultrafast dynamical processes, and from investigations at simple experimental conditions to more complex and real environment. Free electron laser (FEL) with high brightness, ultrafast laser pulses in the extreme ultraviolet (EUV) wavelength region is an ideal light source for excitation of valence electrons and ionization of molecular systems with very high efficiency. Dalian Coherent Light Source (DCLS) delivers 50–150 nm EUV beams with ultrafast pulse durations of 100 fs or ps to users. DCLS, as the first FEL user facility in China, has wide applications in the frontier researches of physics, chemistry, biology, especially in the field of basic energy sciences. This project is supported by National Natural Science Foundation of China and developed jointly by Dalian Institute of Chemical Physics and Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences.

Key words laser optics; free electron laser; extreme ultraviolet; basic energy research

OCIS codes 140.2600; 140.7240; 030.1640

1 引 言

能源是国民经济、国家安全和实现社会可持续发展的重要物质基础,能源科技则是推进这一物质基础不断发展进步的根本驱动力。面对越来越大的能源需求和越来越严峻的大气环境问题,优化利用现有化石能源和发展环境友好的洁净能源是保证国家经济持续发展的重要研究课题。无论是新能源开发还是现有化石能源的优化利用,都无可避免地依赖于能源相关的物理和化学等方面的基础研究。能源利用的本质就是各种形式能量之间的转化和转换,例如:燃烧过程中化学能转化为热能,太阳能光解水制氢中光能转化为化学能,石油化工过程中化学能之间的互相转化,可以发现这些能量转化过程离不开化学键的生成和断裂,离不开电荷和能量在原子、分子体系里的转移,离不开基础的物理化学过程,因此,研究能源相关的物理化学过程,在原子、分子层面上深入理解能源转化过程,将为解决能源化学转化相关的重大科学技术问题提供坚实的科学基础。

激光自从 20 世纪 60 年代诞生以来,在亮度、相干性、超快时间等方面取得了巨大的发展。高水平的光源促进光谱技术的迅速发展和应用普及,使其成为研究原子、分子体系的重要工具之一。不同波段的光谱反映了原子、分子体系中的不同能级跃迁,使得人们在不同层级上理解化学过程。分子的转动态能级激发位于远红外和太赫兹波段,光谱信息丰

富,被称为分子的指纹识别区;分子的振动态激发位于红外波段,光谱峰代表分子不同振动的共振频率,可以推测分子构型;分子的电子态激发位于可见光和紫外波段,此波段的激光可用来研究界面的电荷转移及激发态动力学;在极紫外(EUV)波段,大部分的原子、分子将被激发至较高的电子激发态,或者直接被单光子电离,也被称为软电离,电离效率高且具有选择性^[1-2];X 射线波段主要用于激发内壳层电子。能源相关体系中的原子、分子、自由基对反应过程的影响重大,但是含量少导致极难探测。EUV 激光电离效率高且具有物种选择性,可以实现中间体的高灵敏度识别和电离探测^[3]。此外,化学键的断裂和生成多发生在飞秒和皮秒时间尺度内,实时追踪化学键的动态过程需要超快时间特性的光源来实现。因此,超高亮度和超快时间特性的波长可调 EUV 光源,对于提升能源基础物理化学的实验研究能力至关重要,是激光技术领域发展的一个重要科技前沿。

2 EUV 光源产生方法

鉴于 EUV 光源的重要用途,世界上众多科研团队利用各种不同的方法产生 EUV 光源,在实验室里常见的方法包括气体放电灯^[4-5]、四波混频和高次谐波产生。上述方法均利用气体作为介质产生 EUV 激光,各有特点。气体放电灯设备简单,成本较低,由真空放电电极、稀有气体和高压电源组成,

例如:利用氦(He)气的 He I 线产生波长为 58.4 nm 的 EUV 光源,其优点在于光源线宽窄、通量大(光子数可达 10^{16} s^{-1}),缺点是光发射角度较大,波长调谐性差,发出的光并不是激光。利用四波混频方法产生 EUV 激光^[6-8],其原理如图 1 所示,图中 λ_1 、 λ_2 表示波长, ω_1 、 ω_2 表示角频率, ν 为不同能级的能量。在保证相位匹配的前提下,辐射频率 $\omega_{\text{VUV}} = 2\omega_1 - \omega_2$,通过微调 ω_2 可以调节辐射波长^[9]。通过选择不同的气体(氦气和氙气组合、汞蒸气、镁蒸气等)和输入不同波长的激光(多为纳秒激光),可以在 80~200 nm 波长范围内获得 EUV 激光,其中在某些特定波长的效率较高,例如在 130.2 nm 波长处,通过汞蒸气获得每个脉冲的光子数为 10^{14} ^[10-12],但是受气体原子能级的限制,波长调谐性较差,且在较短波长处的光子数极低(85 nm 波长处每个脉冲的光子数为 10^7)。研究人员将高功率的可见、红外激光聚焦在稀有气体中,稀有气体经历了电子游离-电子加速-电子离子再结合过程后产生高次谐波辐射^[13-15],辐射光子频率为驱动激光的奇数倍,波长最短可达软 X 射线,其截止光子能量可表示为

$$E_{\text{Photon-max}} \leq 3.17U_p + I_p, \quad (1)$$

式中: $U_p = e^2 E_0^2 / (4m_e \omega^2)$ 为有质动力势,其中 m_e 为电子质量, e 为电子电荷, ω 为光频率, E_0 为驱动激光电场强度; I_p 为气体分子电离势。高次谐波中单个谐波每个脉冲的光子数为 10^6 ,出射的 EUV 激光中包含了多个谐波光,高次谐波机制产生的 EUV 激光波长无法连续调谐,只能通过光栅选择不同级次的谐波来改变波长。上述三种方法在光子通量和波长调谐性上有诸多限制,优点是成本较低,可利用实验室桌面激光器实现,此类 EUV 光源广泛应用于表面、气相和液相实验研究中^[1-2]。

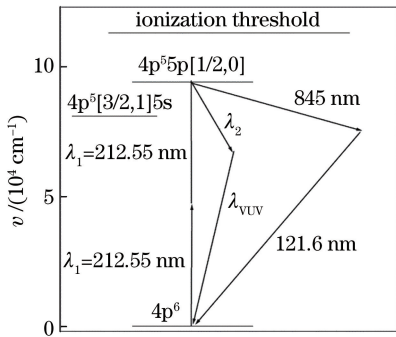


图 1 利用 Kr $4p^5 5p$ 能级四波混频产生 121.6 nm 的真空紫外(VUV)激光

Fig. 1 Four-wave mixing to produce 121.6 nm VUV laser via Kr $4p^5 5p$ energy level

基于储存环技术的同步辐射光源同样可以覆盖整个 EUV 波段。美国伯克利国家实验室的先进光源(ALS)装置拥有世界上最成功的 EUV 束线站之一^[16],ALS 的光子能量覆盖 7.4~30 eV,白光模式下(不通过单色器)的光源线宽为 2.5%、光子通量为 10^{16} s^{-1} ,单色器模式下的光源线宽为 0.1%、光子通量为 10^{14} s^{-1} 。同步辐射光源运行在准连续模式下(ALS 重复频率为 500 MHz),其单个脉冲的光子数约为 10^7 。中国科学技术大学国家同步辐射实验室^[17-18]、瑞士 Paul-Scherrer 研究所的瑞士光源^[19]、意大利 Trieste 的 Elettra 同步辐射光源等均可提供高水平的 EUV 光束线,用于团簇^[20-21]、燃烧过程^[22]、大气化学^[23-24]等研究。

基于直线电子加速器的自由电子激光(FEL)诞生于 20 世纪 70 年代^[25-27],电子经过加速后在周期磁场中以受激发射方式产生高亮度、可调谐、全相干的新型激光脉冲,即 FEL。相对于同步辐射,FEL 具有高增益的特性,激光脉冲时间为飞秒和皮秒量级,其峰值亮度(单位时间内单个脉冲内包含的光子数)可高出 8~10 个量级,显示出极大的发展潜力^[28-30]。目前,美国 LCLS(Linac Coherent Light Source)^[31-32]、德国 EXFEL(European X-ray Free Electron Laser)、意大利 FERMI(Free Electron Laser Radiation for Multidisciplinary Investigations)^[33]、日本 SACLA(Spring-8 Angstrom Compact Free Electron Laser)^[34]、韩国 PAL-XFEL(Pohang Accelerator Laboratory X-Ray Free Electron Laser)^[35]是世界上正在运行的高增益 X 射线 FEL 用户装置,科学家利用先进的 X 射线光源实现了众多科学上的首次突破,例如:首次直接观测化学键在表面生成和断裂的过程^[36-38]。但是,在大连极紫外(EUV)相干光源(简称大连光源, DCLS)实现之前,世界上还没有一台运行在 EUV 波段的 FEL 用户装置,建成的大连光源填补了世界上这一波段的空白。

通过对能源领域现有科学问题的凝练和对高亮度 EUV 光源产生方法的梳理,科学家与光源研制团队共同提出建设一台高亮度的 EUV 相干光源,将其与先进的物理化学实验研究装置相结合,可用于解决能源基础科学中的核心问题。

3 大连光源

a) 高增益谐波产生型 FEL

美国 Brookhaven 国家实验室余理华教授带领

的研究小组于 2000 年首次在实验中成功实现了高增益谐波产生型 FEL(HGHG)^[39], HGHG 尤其适用于产生 EUV 波段的自由电子光源。其特别之处在于, 高能的脉冲电子束在通过一段较短的调制段波荡器的过程中与另一束飞秒种子激光相互作用, 使得电子束动能被调制; 调制后的电子束通过二级磁铁组成色散段, 将能量调制转换为空间密度调制, 则电子束里含有较强的高次谐波项; 接下来, 电子进入一段较长的辐射段波荡器, 满足共振条件的谐波分量发生相干辐射并被放大, 从而得到高功率输出。HGHG-FEL 输出波长是种子激光波长的 $1/n$ (n 为谐波数), 可以实现很好的时间和空间相干性, 具有很好的稳定性、更窄的带宽以及可以精确控制中心频率等优点。通过多级 HGHG 过程, 可获得 X 射线波段的激光输出^[40]。大连光源的最短波长为 50 nm, 谐波次数最高为 5, 有效地避开了 HGHG 方法谐波次数受限的问题, 发挥了 HGHG 造价低、光谱品质高等优势, HGHG-FEL 是大连光源的最佳技术选择。在世界上现有的 FEL 用户装置中, 意大利 FERMI 采用了 HGHG 技术^[33], 大连光源是世界上第二台基于 HGHG 技术的 FEL 用户装置。

表 1 大连光源的电子束主要性能参数

Table 1 Main performance parameters of DCLS

Parameter	Designed value	Achieved value
Energy /MeV	Max: 300	300
Energy spread /%	<0.2	0.07
Normalized emittance / (mm · mrad)	<2	$\epsilon_x = 1.02, \epsilon_y = 1.18$
Peak current /A	300	290
Charge /pC	500	500
e-bunch full length /ps	About 3	3.24
Repetition frequency /Hz	50 (max)	10 (operation), 50 (max)

表 2 大连光源激光的主要性能参数

Table 2 Main performance parameters of DCLS

Laser	Parameter	Designed value	Achieved value
Seed laser	Wavelength /nm	240-360	240-360
	Pulse energy / μ J	40	170
	Pulse length	100 fs/1 ps	119 fs/1.5 ps
FEL radiation	Wavelength /nm	50-150	50-150
	Pulse energy / μ J	≥ 100	420 at 150 nm
	Pulse length	100 fs/1 ps	About 1.5 ps (operation)

EUV 光束线位于光源和用户实验站之间, 是二者之间的桥梁。首先, 光束线具有光源性能诊断的能力, 可对辐射激光的波长、能量、光斑位置和形状进行准确测量^[41]。如图 2(c)所示, 光束一方面反馈

b) 大连光源性能

大连光源由高增益谐波产生型 FEL、EUV 光束线和用户实验站组成。光源的整体布局如图 2 所示。HGHG-FEL 由电子直线加速器和 FEL 谐波放大器组成。在驱动激光的照射下, 光阴极电子枪产生电荷量为 500 pC 的电子束。通过前三段 3 m 长的 S 波段直线加速器(A1、A2 和 A3), 能量增加至 128 MeV。磁压缩器(BC)由 4 块二级铁组成, 电子束纵向长度被压缩为初始的 25%~33%, 纵向分布宽度约为 3.2 ps。压缩后的电子束通过 4 段 S 波段直线加速器(A4、A5、A6 和 A7), 能量增加至 300 MeV, 峰值流强约为 290 A, 表 1 为电子束的设计指标和调试阶段数值, ϵ_x 、 ϵ_y 分别表示 x 和 y 方向的归一化发射度。高品质的电子束被送入谐波放大器中与种子激光相互作用, 在下游的波荡器中谐波辐射饱和和出光。HGHG-FEL 波长改变是通过调谐种子激光波长(240~360 nm 连续可调), 同时改变波荡器间隙(最小间隙为 10 mm)来实现的, 配合 HGHG 过程中的不同谐波数, 大连光源实现 EUV 波段(50~150 nm)波长连续可调。表 2 为光源的设计指标和调试达到的指标。

给光源前端, 作为进一步优化光源性能的重要参考, 另一方面传输给用户, 作为用户分析处理实验数据的重要依据。光束线采用无遮挡的激光诊断方法, 测量过程不影响下游的用户使用。其次, 为了高效

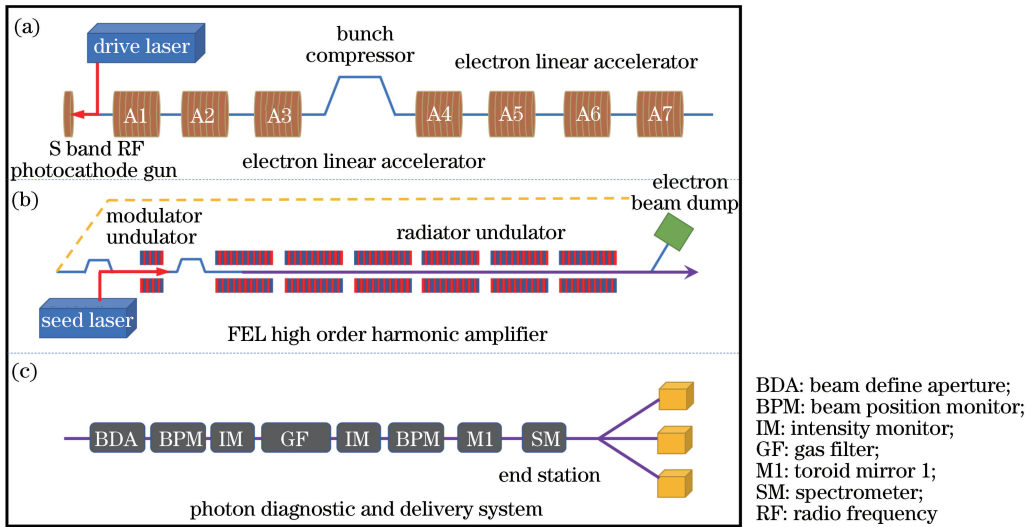


图 2 大连光源布局图。(a)电子直线加速器;(b) FEL 高次谐波放大器;(c) EUV 光束线和实验用户站
Fig. 2 Layout of DCLS. (a) Electron linear accelerator (LINAC); (b) FEL high order harmonic amplifier;
(c) photon diagnostic and delivery system

率的传输 EUV 激光、降低传输过程损耗,激光采取了掠入射方式通过高反镜,在直通线中,EUV 激光的理论传输效率可达到 80%。

c) 大连光源研制历程

2012 年 3 月光源项目在大连正式启动。2013 年 10 月,在项目概念设计和工程设计评审后,确定了最终的技术方案。2013 年 12 月,FEL 放大器部分第一台波荡器样机试制成功。2014 年 10 月,大连光源实验楼正式破土动工。2016 年 9 月 24 日,在不到两年的时间里,项目组完成了主要基建工程和主体光源装置的研制,并实现了光源装置的首次出光,创造了同类大型科学装置建设的新记录。后又经过两个多月卓有成效的调试,大连光源分别于 2016 年 11 月 25 日和 2017 年 1 月 15 日先后实现了自发辐射自放大模式(SASE)和高增益谐波放大模式(HGHG)饱和出光,它可以工作在飞秒或皮秒脉冲模式,每一个激光脉冲可产生超过 1.4×10^{14} 个光子,单脉冲亮度是世界上所有 EUV 光源中最亮的,波长可在整个 EUV 区域(50~150 nm)连续可调,具有完全的相干特性。中央电视台、人民日报、新华社和《Science》杂志纷纷报道大连光源首次出光情况,记者形象地将大连光源比喻成“照亮微观世界的超快超亮 EUV 闪光灯”。更难能可贵的是,这一装置 90% 的仪器设备是由我国自主研发的,标志着我国 FEL 相关技术已经达到国际先进水平。2017 年 7 月,大连光源已经正式对用户开放。

d) 大连光源升级计划

在原有大连光源单脉冲模式(重复频率为

50 Hz)基础上,大连光源研制团队将研制一条新的 FEL 放大器和光束线[如图 2(b)中的黄色虚线];利用同一段直线加速器,在其末端将两列电子束分别注入到现有和新建的两条放大器中,从而获得两个性能独立可调谐的、重复频率均为 50 Hz 的 EUV 激光光源,在一定程度上缓解用户研究机时不足的问题。同时,扩容出的第二条放大器线可产生任意偏振性的 EUV 激光和 3×10^{-14} s 的超短激光脉冲,在性能上与现有的放大器线实现互补(第一条线为水平偏振,光源多工作在皮秒模式下)。该升级计划的设计方案已经完成,将于 2019 年开始安装调试,预计 2019 年 6 月正式交付使用。扩容计划完成后,大连光源将由现在的一线六站扩展到两线十站,成为世界上独特的 EUVFEL 实验用户装置。

4 大连光源应用举例

a) 大气化学及气溶胶研究

良好的大气环境是人类赖以生存和发展的基本条件,目前已成为一个重要的全球性问题。我国大面积雾霾的形成过程中,一个最重要的特征就是经历了从纳米到微米尺度爆发式增长的高发期,气溶胶的数密度、质量浓度和化学组分都有显著的变化,然后进入缓慢增长或平稳增长的叠加期,大气中气溶胶粒子的粒径分布呈现明显的双峰特性。目前的气溶胶组分研究方法主要是运用质谱技术,其离子化技术是采用 70 eV 电子离子化,缺点是容易产生碎片,导致难以研究气溶胶的原始组分。因此,基于大连光源的气溶胶动力学研究方法,采用单光子软

电离技术,从而减少碎片和提高电离效率,开展气溶胶单颗粒研究将有助于在分子水平上揭示气溶胶的物理化学过程本质。大连光源提供极高的峰值功率和较高的平均功率,将会大幅度提高检测灵敏度,将其与高分辨率的先进实验技术结合,可探测真实大气环境中团簇气溶胶分子的成核和生长速率。

b) 燃烧科学

燃烧是一个复杂的化学反应过程,在燃烧过程中将会出现多种中间产物,这些产物的种类和含量随着环境压力、温度等条件的变化有所不同。测量中间产物的种类及浓度信息,对于理解整个燃烧过程并优化能量转换和减少有毒污染物排放有着重大的意义^[42]。目前,常规的实验方法是在实时燃烧的火焰中取样,中间产物被引入电离探测腔,经由 EUV 波段同步辐射光源电离,并结合高分辨率的质谱技术来探测,进一步测量中间产物的种类及浓度信息,以获得中间产物产生的速率常数并建立燃烧过程的动态学模型^[43]。大连光源的峰值亮度比传统的同步辐射光源高 8~10 个数量级,探测灵敏度将会大幅提高,浓度低的中间产物很有可能在燃烧过程中起到重要的作用,因此,探测到这些低浓度的中间产物将有助于更为深刻和正确地理解整个燃烧过程。

c) 星际化学

分子和分子离子广泛分布在宇宙中,早期地球生命的出现也被认为与这些分子和分子离子有着密切的关系。迄今为止,已经发现并确认有 200 多种分子和 120 多种分子离子,涉及到 7000 多个气相化学反应。整个星际是一个由中性、阳离子和阴离子共同作用的复杂化学体系,其中还伴随着各种宇宙粒子、射线等影响^[44-45]。尽管理论上有很多预测,对众多分子离子化学反应的实验研究依旧是缺失的,这为建立星际演化模型带来很多不确定性。在分子离子和辐射作用的实验室研究中,科学家们通过离子阱和分子束的方法获得分子离子样品,样品的浓度不高,因此, EUV 波段光源的亮度就成为此类研究的关键。高亮度的 EUV 光源将对星际化学领域有巨大的推动作用。

5 结 论

在初期的性能调试后,大连光源已经正式对国内用户开放,同位素测年、气溶胶成核研究、燃烧动力学、表面催化等重要研究工作即将基于大连光源开展。目前,用户已经对水分子及团簇开展系统性

研究工作,旨在进一步理解水的性质,探索水分子在物理、化学、生物等过程中的作用机理,例如:水分子在 EUV 波段的光解动力学研究,这些探索将帮助人类理解星际中 OH 自由基的产生和能级布局;结合红外光谱技术,首次测得水中性团簇(三聚体,四聚体,五聚体)的红外光谱,深入解析了团簇水中氢键的构成,这对于理解空气中水分子的聚集过程(雾的形成过程)有着重要的意义。围绕这一光源,一个专门用于能源基础科学研究的全国性平台——基于可调谐 EUV 相干光源的能源基础科学研究(主要聚焦于能源化学转化本质与调控研究)平台已经逐渐完善并建立。

大连光源是基于常温加速器技术的 FEL 装置,其具有峰值亮度高、超快激光脉冲等特性,因而在能源化学领域有着广泛的应用前景。但是,与同类型的同步辐射光源相比,常温加速器技术的 FEL 重复频率较低,使得连续注入的样品损耗巨大,数据累积却远远不够;较低的数据采集速率使得超快抽运-探测实验用户实验周期较长,甚至很多实验无法完成。基于直线加速器技术的 FEL 只能支持单用户在线使用,大部分用户无法获得宝贵的机时,大大限制了 FEL 的应用。基于超导加速器技术的高重复频率 FEL 工作频率可达 1 MHz,解决了采集速率低和用户少的问题,在样品同样损耗的情况下,高采集速率使得更多的抽运-探测实验成为可能;此外,电子束分束注入多条 FEL 放大器可支持多用户同时使用,且激光性能均独立可调谐。由此可见,建设新一代 FEL 装置,特别是基于超导加速器技术、高重复频率、高亮度相干光源成为一个明显的趋势,德国正在调试的 European XFEL,美国正在建设的 LCLS-II 和上海正在建设的上海硬 X 射线自由电子激光装置均为此类型的光源,也是 FEL 发展的新方向。上述三个光源目标均在硬 X 射线波段,国际上在 EUV 波段仍是空白。因此,推动和发展基于超导加速器技术、高重复频率、高亮度的新一代 EUV 光源承接上海硬 X 射线自由电子激光装置光源能区,弥补了 EUV 波段空白,对于我国大型科学装置的发展具有重大战略意义。

参 考 文 献

- [1] Attwood D. Soft X-rays and extreme ultraviolet radiation [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 1999.
- [2] Quack M. Merkt F. Handbook of high-resolution

- spectroscopy [M]. Hoboken: John Wiley & Son, 2010.
- [3] Kostko O, Bandyopadhyay B, Ahmed M. Vacuum ultraviolet photoionization of complex chemical systems[J]. Annual Review of Physical Chemistry, 2016, 67(1): 19-40.
- [4] Souma S, Sato T, Takahashi T, *et al.* High-intensity xenon plasma discharge lamp for bulk-sensitive high-resolution photoemission spectroscopy [J]. Review of Scientific Instruments, 2007, 78 (12): 123104.
- [5] Mühlberger F, Wieser J, Morozov A, *et al.* Single-photon ionization quadrupole mass spectrometry with an electron beam pumped excimer light source [J]. Analytical Chemistry, 2005, 77(7): 2218-2226.
- [6] Marangos J P, Shen N, Ma H, *et al.* Broadly tunable vacuum-ultraviolet radiation source employing resonant enhanced sum-difference frequency mixing in krypton [J]. Journal of the Optical Society of America B, 1990, 7(7): 1254-1259.
- [7] Hilber G, Lago A, Wallenstein R. Broadly tunable vacuum-ultraviolet/extreme-ultraviolet radiation generated by resonant third-order frequency conversion in krypton [J]. Journal of the Optical Society of America B, 1987, 4(11): 1753-1764.
- [8] Langer H, Puell H, Röhr H. Lyman alpha (1216 Å) generation in krypton [J]. Optics Communications, 1980, 34(1): 137-142.
- [9] Yuan K J, Dixon R N, Yang X M. Photochemistry of the water molecule: adiabatic versus nonadiabatic dynamics[J]. Accounts of Chemical Research, 2011, 44(5): 369-378.
- [10] Smith A V, Alford W J. Practical guide for 7s resonant frequency mixing in mercury: Generation of light in the 230-185-and 140-120-nm ranges [J]. Journal of the Optical Society of America B, 1987, 4 (11): 1765-1770.
- [11] Albert D R, Proctor D L, Davis H F, *et al.* High-intensity coherent vacuum ultraviolet source using unfocussed commercial dye lasers [J]. Review of Scientific Instruments, 2013, 84(6): 063104.
- [12] Todt M A, Albert D R, Davis H F. High intensity vacuum ultraviolet and extreme ultraviolet production by noncollinear mixing in laser vaporized media[J]. Review of Scientific Instruments, 2016, 87 (6): 063106.
- [13] Brandi F, Neshev D, Ubachs W. High-order harmonic generation yielding tunable extreme-ultraviolet radiation of high spectral purity [J]. Physical Review Letters, 2003, 91(16): 163901.
- [14] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. Physical Review Letters, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [15] 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.
- [16] Yang X, Lin J, Lee Y T, *et al.* Universal crossed molecular beams apparatus with synchrotron photoionization mass spectrometric product detection [J]. Review of Scientific Instruments, 1997, 68(9): 3317-3326.
- [17] Zou C W, Sun B, Zhang W H, *et al.* Commissioning of a new beamline and station for ARPES at NSRL [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2005, 548(3): 574-581.
- [18] Zhou Z Y, Du X W, Yang J Z, *et al.* The vacuum ultraviolet beamline/endstations at NSRL dedicated to combustion research [J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2016, 23(4): 1035-1045.
- [19] Johnson M, Bodi A, Schulz L, *et al.* Vacuum ultraviolet beamline at the Swiss light source for chemical dynamics studies [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2009, 610(2): 597-603.
- [20] Jongma R T, Huang Y H, Shi S M, *et al.* Rapid evaporative cooling suppresses fragmentation in mass spectrometry: synthesis of “unprotonated” water cluster ions [J]. The Journal of Physical Chemistry A, 1998, 102(45): 8847-8854.
- [21] Mizuse K, Kuo J L, Fujii A. Structural trends of ionized water networks: Infrared spectroscopy of watercluster radical cations (H_2O)_n + ($n = 3 - 11$) [J]. Chemical Science, 2011, 2(5): 868-876.
- [22] Reusch E, Holzmeier F, Constantinidis P, *et al.* Isomer-selective generation and spectroscopic characterization of picolyl radicals [J]. Angewandte Chemie International Edition, 2017, 56(27): 8000-8003.
- [23] Kroll J H, Donahue N M, Jimenez J L, *et al.* Carbon oxidation state as a metric for describing the chemistry of atmospheric organic aerosol [J]. Nature Chemistry, 2011, 3(2): 133-139.
- [24] Rollins A W, Smith J D, Wilson K R, *et al.* Real time in situ detection of organic nitrates in atmospheric aerosols [J]. Environmental Science & Technology, 2010, 44(14): 5540-5545.
- [25] Madey J M J. Stimulated emission of bremsstrahlung in a periodic magnetic field [J]. Journal of Applied

- Physics, 1971, 42(5): 1906-1913.
- [26] Elias L R, Fairbank W M, Madey J M J, *et al.* Observation of stimulated emission of radiation by relativistic electrons in a spatially periodic transverse magnetic field[J]. Physical Review Letters, 1976, 36(13): 717-720.
- [27] Deacon D A G, Elias L R, Madey J M J, *et al.* First operation of a free-electron laser[J]. Physical Review Letters, 1977, 38(16): 892-894.
- [28] O'Shea P G, Freund H P. Free-electron lasers: Status and applications [J]. Science, 2001, 292(5523): 1853-1858.
- [29] Yabashi M, Tanaka H. The next ten years of x-ray science[J]. Nature Photonics, 2017, 11(1): 12-14.
- [30] Ullrich J, Rudenko A, Moshhammer R. Free-electron lasers: new avenues in molecular physics and photochemistry [J]. Annual Review of Physical Chemistry, 2012, 63(1): 635-660.
- [31] Emma P, Akre R, Arthur J, *et al.* First lasing and operation of an ångström-wavelength free-electron laser[J]. Nature Photonics, 2010, 4(9): 641-647.
- [32] Bostedt C, Boutet S, Fritz D M, *et al.* Linac coherent light source: the first five years [J]. Reviews of Modern Physics, 2016, 88: 015007.
- [33] Allaria E, Appio R, Badano L, *et al.* Highly coherent and stable pulses from the FERMI seeded free-electron laser in the extreme ultraviolet [J]. Nature Photonics, 2012, 6(10): 699-704.
- [34] Ishikawa T, Aoyagi H, Asaka T, *et al.* A compact X-ray free-electron laser emitting in the sub-ångström region[J]. Nature Photonics, 2012, 6(8): 540-544.
- [35] Kang H-S, Min C-K, Heo H, *et al.* Hard X-ray free-electron laser with femtosecond-scale timing jitter[J]. Nature Photonics, 2017, 11(11): 708-713.
- [36] Miniti MP, Budarz J M, Kirrander A, *et al.* Imaging molecular motion: Femtosecond X-ray scattering of an electrocyclic chemical reaction [J]. Physical Review Letters, 2015, 114(25): 255501.
- [37] Öström H, Öberg H, Xin H, *et al.* Probing the transition state region in catalytic co oxidation on ru [J]. Science, 2015, 347(6225): 978-982.
- [38] Barends T R M, Foucar L, Ardevol A, *et al.* Direct observation of ultrafast collective motions in CO myoglobin upon ligand dissociation [J]. Science, 2015, 350(6259): 445-450.
- [39] Yu L H, Babzien M, Ben-Zvi I, *et al.* High-gain harmonic-generation free-electron laser [J]. Science, 2000, 289(5481): 932-934.
- [40] Allaria E, Castronovo D, Cinquegrana P, *et al.* Two-stage seeded soft-X-ray free-electron laser [J]. Nature Photonics, 2013, 7(11): 913-918.
- [41] Li C Y, Wei S, Du X W, *et al.* On-line spectral diagnostic system for dalian coherent light source[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2015, 783: 65-67.
- [42] Oßwald P, Guldenberg H, Kohse-Höinghaus K, *et al.* Combustion of butanol isomers-a detailed molecular beam mass spectrometry investigation of their flame chemistry[J]. Combustion and Flame, 2011, 158(1): 2-15.
- [43] Li Y Y, Qi F. Recent applications of synchrotron VUV photoionization mass spectrometry: insight into combustion chemistry [J]. Accounts of Chemical Research, 2010, 43(1): 68-78.
- [44] Agúndez M, Wakelam V. Chemistry of dark clouds: databases, networks, and models [J]. Chemical Reviews, 2013, 113(12): 8710-8737.
- [45] Bourgalais J, Capron M, Kailasanathan R K A, *et al.* The $c(^3p) + NH_3$ reaction in interstellar chemistry. i. investigation of the product formation channels[J]. The Astrophysical Journal, 2015, 812(2): 106.