

高重复频率、高功率高次谐波极紫外光源进展及应用

魏子娟¹, 高熙泽¹, 孟翔宇¹, 李政言^{1,4*}, 张庆斌^{2,4}, 兰鹏飞^{2**}, 陆培祥^{3,4***}¹华中科技大学光学与电子信息学院, 湖北 武汉 430074;²华中科技大学物理学院, 湖北 武汉 430074;³华中科技大学武汉光电国家研究中心, 湖北 武汉 430074;⁴湖北光谷实验室, 湖北 武汉 430074

摘要 超短超强激光脉冲驱动的高次谐波是一种极紫外到软 X 射线波段的光源, 具有指向性好、时空相干性高、亮度高等优点。高次谐波不但是在阿秒时间尺度上研究电子动力学的基础, 而且其各类技术优点也使之成为一种有效的桌面型极紫外相干光源, 在集成电路制造在线检测、材料科学、生物医药等领域中具有广泛应用。然而, 受限于传统钛蓝宝石固体飞秒激光的平均功率和高次谐波传播过程中的转换效率, 目前高次谐波极紫外光源的平均功率亟待提高。介绍了高重复频率、高平均功率高次谐波极紫外光源的产生方式及其应用。首先介绍了光纤、固体、啁啾光学参量放大器等新型高重复频率、高平均功率飞秒激光驱动源在高次谐波产生方面的研究进展, 之后讨论了激光高次谐波在弱电离气体介质中的宏观传播效应和相位匹配条件。在此基础上, 介绍了高平均功率高次谐波极紫外光源在成像检测方面的应用。

关键词 非线性光学; 高次谐波; 极紫外光源; 飞秒激光器; 极紫外成像检测

中图分类号 O437 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL231490

1 引言

飞秒强激光与气体介质相互作用可以辐射出高次谐波(HHG), 能够提供一种重要的极紫外(EUV)相干光源, 是原子分子物理^[1-3]、生物医学^[4]、材料化学^[5-6]、精密光谱计量学^[7]等基础科学领域中不可或缺的工具。气体高次谐波的产生可以用半经典的三步模型^[8]来解释: 气体原子或分子在强激光场的作用下首先发生隧穿电离产生自由电子; 然后自由电子在激光场中加速并获得能量; 最后自由电子同母离子结合并释放出阿秒量级脉冲宽度的高次谐波极紫外辐射。一方面, 高次谐波最大光子能量与驱动激光光强和波长及气体介质电离势呈正相关, 在适当实验条件下, 其光谱范围可以扩展到软 X 射线波段^[9-10]。另一方面, 基于适当的高次谐波门控技术, 可以产生脉冲宽度为数十阿秒的孤立阿秒脉冲^[11-12], 为在阿秒时间尺度上研究原子和分子系统中的电子运动提供了探测手段^[13-15]。

高次谐波不仅在基础科学领域中具有重要作用^[16-20], 还是一种广泛应用在工业领域中的相干光源, 尤其是在集成电路制造和生物医药等领域中的成像检测方面具有应用前景^[21-22]。面向工业应用的高次谐波极紫外光源既需要提供 100~500 eV 的高光子能量的

极紫外和软 X 射线辐射, 还需要具有更高(mW 以上量级)的平均功率。为了获得更短波长的辐射, 可以采用中红外飞秒驱动激光来增大高次谐波的截止频率。这种方法已经实现了 keV 量级光子能量谐波的输出^[9], 更短波长的相干光有利于提高成像分辨率, 且覆盖高原子序数材料的吸收边可用于极紫外光谱分析。为了提升高次谐波的平均功率, 一方面可以采用高重复频率、高平均功率的飞秒光纤、固体激光器和光参量啁啾放大器作为高次谐波驱动源^[23-25], 另一方面可以控制高次谐波宏观传播过程以实现相位匹配, 进而提高高次谐波转换效率。目前, 光子能量在 20 eV 以上的单次谐波最高的平均功率接近 13 mW, 重复频率为 1 MHz^[26]。

本文重点关注高重复频率激光器直接驱动产生气体高次谐波的过程, 介绍了在极紫外波段高次谐波重复频率、单脉冲能量和平均功率提升方面的研究进展。全文结构如下: 第二节对近年来高重复频率激光驱动产生高次谐波相干极紫外光源的重要工作进行了回顾。飞秒光纤激光器是产生高重复频率高次谐波的主要泵源, 在所有驱动光源系统中, 超快飞秒光纤激光器在实验中获得了目前光子通量最高的高次谐波。然而, 随着泵源重复频率的增大, 激光向高次谐波单脉冲的转换效率受到传统聚焦结构中激光峰值功率下降等

收稿日期: 2023-12-08; 修回日期: 2024-01-10; 录用日期: 2024-01-26; 网络首发日期: 2024-02-20

基金项目: 国家自然科学基金(12275099, 52130504)、光谷实验室创新工程项目(OVL2021ZD001)

通信作者: *zhengyanli@hust.edu.cn; **pengfeilan@hust.edu.cn; ***lupeixiang@hust.edu.cn

因素的限制。因此,第三节讨论了提升高次谐波单脉冲转换效率的关键问题,即高次谐波宏观传播过程中的相位匹配。针对新型高重复频率光纤激光器平均功率高但单脉冲能量低的特点,对基于高效率高次谐波产生实验的全局参数标度律展开了分析。气体高次谐波因其紧凑的桌面型装置结构、高时空相干性和短波长的特点,适合用作相干衍射成像的光源。随着高重复频率激光技术的进步和高次谐波光子通量的增大,高次谐波在成像检测方面的应用潜力将进一步被挖掘。第四节重点介绍了目前高次谐波极紫外光源在生物医学、集成电路成像检测技术等方面的应用,并在最后一节对高重复频率、高功率高次谐波光源在其他领域中的应用进行了展望。

2 高重复频率、高功率高次谐波光源的研究进展

钛蓝宝石固体飞秒激光器一直是产生高次谐波的主要驱动源,但是它在重复频率和平均功率等方面受到了限制。在过去的二十年里,以光纤激光器为代表的新一代飞秒激光器的发展在极大程度上改善了这些状况。实验表明,飞秒光纤激光器驱动产生的高次谐波在光子通量上有显著提高,如在 26.5 eV 光子能量处的平均功率达到了 10 mW 以上^[26],在 70 eV 光子能量附近的平均功率达到 1 μ W^[27],这比钛蓝宝石激光驱动产生的高次谐波源高出约一个数量级。因此,本节将重点介绍目前由飞秒光纤激光器驱动产生的高重复频率高次谐波源的研究进展。

飞秒光纤激光驱动产生高次谐波的实验研究开始于 2009 年,Boulet 等^[23]首次将重复频率为 100 kHz、中心波长为 1030 nm、脉冲宽度为 270 fs、单脉冲能量为 100 μ J 的掺镱光纤激光脉冲聚焦于氙气中,成功产生了最高光子能量为 37.6 eV 的高次谐波极紫外辐射。该工作还进一步将重复频率提高到 1 MHz,但代价是激光脉冲能量下降到 28 μ J,在氙气中产生高次谐波的最高光子能量为 18 eV。该团队在后续的工作中使用脉宽为 500 fs、单脉冲能量为 100 μ J 的 100 kHz 重复频率掺镱光纤激光器作为泵源,在氙气气盒靶中得到了总光子通量为 4.5×10^{12} photon/s 的 13~23 eV 谐波,单阶谐波的转换效率为 5×10^{-7} ^[28]。2014 年,Lorek 等^[29]用重复频率为 100 kHz、中心波长为 1030 nm、脉冲宽度为 170 fs、单脉冲能量为 54 μ J 的泵浦脉冲,在氙气喷嘴靶中得到最大光子能量为 39.7 eV 的谐波,并在 30.1 eV 光子能量附近得到了最高平均功率为 0.2 μ W、转换效率约为 3.8×10^{-8} 的单阶谐波。

在早期的飞秒光纤激光驱动高次谐波实验中,激光脉冲宽度受到激光增益带宽的限制,仅能达到数百飞秒。激光脉冲宽度过长不利于提高激光的峰值光强,并且会导致气体介质的电离率较高,不利于实现高

次谐波产生过程中的相位匹配。为了解决这一问题,采用非线性脉冲压缩技术使得飞秒光纤激光的脉冲宽度缩短近一个数量级,从而提升了高次谐波的转换效率。2010 年,Hädrich 等^[30]利用非线性压缩技术将脉宽为 800 fs、单脉冲能量为 400 μ J 的 1030 nm 激光脉冲宽度压缩至 51 fs,单脉冲能量剩余 200 μ J,在氙气喷嘴中产生最高光子能量为 56.6 eV 的高次谐波,高次谐波转换效率相较于未经非线性压缩的系统提升了一个数量级^[31]。2011 年,该课题组进一步将单脉冲能量放大至 1 mJ,利用非线性压缩系统获得脉宽为 65 fs、单脉冲能量为 580 μ J 的激光脉冲,并利用氙气靶在 25.3 eV 波段附近产生了单阶谐波平均功率为 3.2 μ W 的高次谐波,光子通量达到 7.9×10^{11} photon/s,转换效率为 1.2×10^{-7} ^[32]。2021 年,Kirsche 等^[33]使用非线性压缩系统将脉冲宽度进一步压缩至 36 fs,在单脉冲能量为 0.8 mJ、重复频率为 50 kHz、中心波长为 1030 nm 的条件下,最终在内径为 200 μ m 的中空光纤中得到 50~70 eV 的高次谐波。单阶谐波光子通量超过 1×10^{11} photon/s,平均功率在 μ W 量级,单阶谐波转换效率超过 1×10^{-8} 。

除了压缩脉冲宽度外,提高激光脉冲能量也是增大激光峰值强度和提提高次谐波转换效率的有效手段。尽管飞秒光纤激光器难以达到传统钛蓝宝石激光器的单脉冲能量输出水平,但是相干合束技术在不显著改变脉冲宽度的条件下能够有效提升驱动激光系统的输出脉冲能量。2014 年,Hädrich 等^[34]对四通道光纤激光放大器进行相干合束处理并结合非线性压缩,最终在 600 kHz 的重复频率下获得中心波长为 1030 nm、脉冲宽度为 29 fs、脉冲能量为 130 μ J 的飞秒激光脉冲,并在氙气或氩气中产生了光子能量范围为 25.0~40.0 eV 的极紫外辐射,最高平均功率达到 143 μ W,对应 3×10^{13} photon/s 的光子通量和 1.8×10^{-6} 的转换效率,较之前的同谱段实验结果提升了一个数量级。2016 年,Rothhardt 等^[27]对两个主放大器输出激光进行相干合束处理再进行非线性压缩处理,得到了重复频率为 50 kHz、中心波长为 1030 nm、单脉冲能量为 0.5 mJ、脉冲宽度为 35 fs 的泵浦脉冲,其聚焦在氙气喷嘴中产生了光子能量范围为 56.6~71.0 eV 的高次谐波,单阶谐波平均功率在 0.45~0.80 μ W 范围内,最高转换效率为 3.3×10^{-8} 。

高次谐波单原子响应效率随泵浦光波长的增加而迅速降低,因此使用更短波长的高重复频率光纤激光器进行驱动可以显著提高高次谐波的产生效率。2016 年,Klas 等^[35]将非线性压缩系统处理后的激光脉冲通过偏硼酸钡(BBO)晶体进行倍频处理,得到中心波长为 515 nm、平均功率为 11 W、脉冲宽度为 85 fs 的激光脉冲,然后将 515 nm 倍频光束聚焦到氙气或氩气喷嘴中产生高次谐波,其单阶光子通量达到 1×10^{13} photon/s 量级以上,在 21.7 eV 光子能量附近最高平均功率达到 (832 ± 204) μ W,转换效率达到 7.6×10^{-5} 。2017 年,

Zhao 等^[36]使用中心波长为 347 nm 的三倍频飞秒激光脉冲驱动氙-氙混合气体高次谐波,在 10.7 eV 光子能量附近产生了平均功率为 1.25 mW 的单阶谐波,其转换效率为 2.5×10^{-4} 。2019 年,Comby 等^[37]对掺镱光纤飞秒激光器的二、三、四次谐波飞秒激光脉冲驱动的高次谐波进行了比较研究,结果表明,在三次谐波驱动条件下,高次谐波转换效率最高,达到了 2.6×10^{-4} ,在 18 eV 光子能量附近光子通量达到 6.6×10^{14} photon/s,

平均功率达到 1.9 mW。2021 年,Klas 等^[26]将激光二倍频与非线性压缩技术相结合,实验装置如图 1(a)所示,得到重复频率为 1 MHz、中心波长为 515 nm、脉冲宽度为 18.6 fs、平均功率为 51 W 的高次谐波,在 26.5 eV 光子能量附近单阶谐波平均功率达到 12.9 mW。高次谐波谱如图 1(b)所示,对应的光子通量为 3×10^{15} photon/s,转换效率为 2.5×10^{-4} ,这是目前高次谐波输出平均功率的世界纪录。

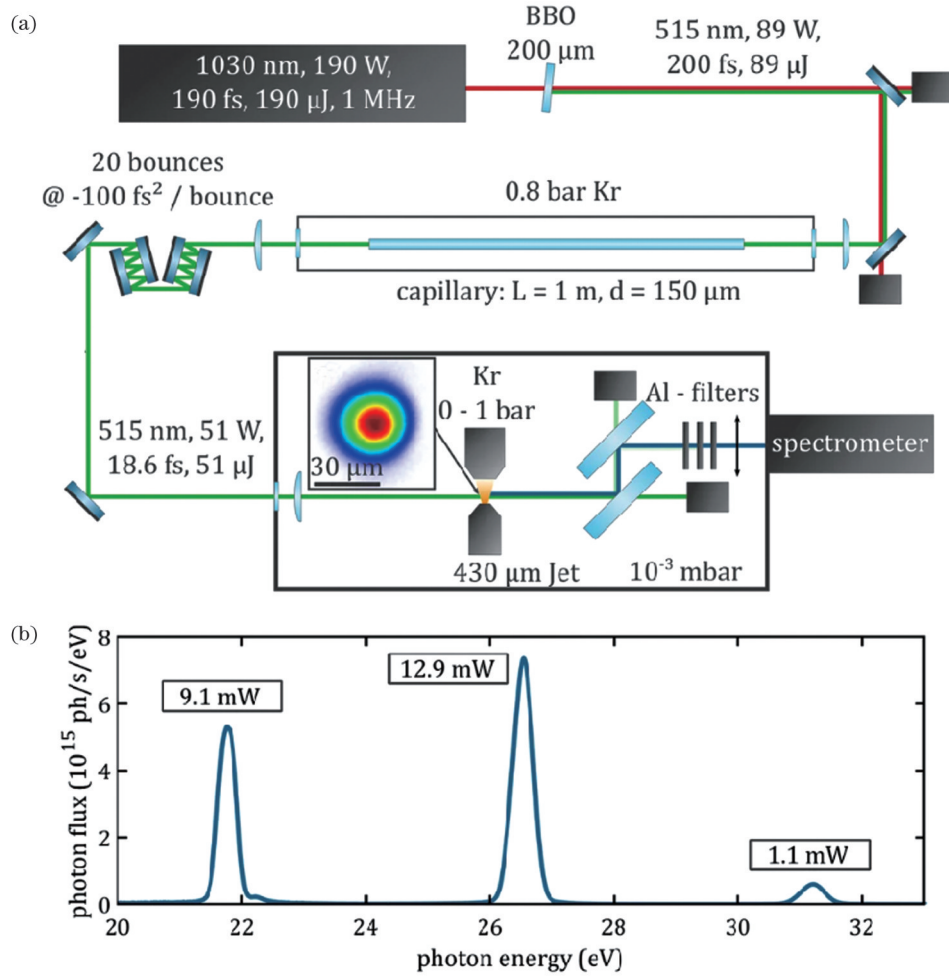


图 1 使用重复频率为 1 MHz 的光纤激光器产生的最高平均功率 HHG^[26]。(a) 高功率 HHG 实验装置;(b) 利用氙气喷嘴产生的高次谐波谱以及各阶谐波对应的平均功率

Fig. 1 HHG with highest average power generated by fiber laser with 1 MHz repetition rate^[26]. (a) Experimental device of high power HHG; (b) high harmonic spectrum generated using krypton gas nozzle and corresponding average power of each order harmonic

除了对光子通量进行优化外,某些应用需要更高的极紫外光子能量,例如极紫外光刻掩膜版缺陷检测需要波长为 13.5 nm(光子能量为 91.5 eV)的单波长光源,而生物成像应用需要水窗波段(2.3~4.4 nm,对应的光子能量为 284~543 eV)光源。高次谐波截止光子能量 $E_{\text{cutoff}} = I_p + 3.17U_p$,其中 I_p 为气体电离势, U_p 为驱动激光的有质动力势,且 $U_p \propto I\lambda^2$,其中 I 为泵浦光光强, λ 为波长^[38]。为了提高谐波截止能量,可以选择合适的气体种类,同时增加驱动激光的光强和波长。

在脉冲能量一定的情况下,对驱动激光进行非线性压缩处理,既可以提高驱动激光的峰值光强,又可以

降低其电离率,这个方法是获取高光子能量高次谐波的有效手段。2020 年,Klas 等^[39]使用两级非线性脉冲压缩系统,将重复频率为 75 kHz、中心波长为 1030 nm、脉宽为 30 fs、脉冲能量为 1 mJ 的激光脉冲宽度压缩至 6.7 fs,单脉冲能量减小至 400 μJ,并将其聚焦在特制的高密度氙气靶上以产生高次谐波。当激光脉冲宽度从 30 fs 降低到 7 fs 时,最高光子能量从 80 eV 增加到 120 eV,其中 92 eV 光子能量附近的光子通量达到 7×10^9 photon/s,且平均功率为 0.1 μW、转换效率为 3.4×10^{-9} 。如果使用氙气靶,高次谐波的最高光子

能量将进一步提高到 160 eV, 其中 92 eV 光子能量附近的光子通量为 3×10^9 photon/s, 转换效率约为 1.5×10^{-9} 。2021 年, Tschernajew 等^[40]将重复频率为 600 kHz、平均功率为 100 W 的 1030 nm 光纤激光器的输出脉冲宽度压缩至 35 fs, 并将剩余功率为 63 W 的激光脉冲聚焦至氦气喷嘴中, 在 90~150 eV 光子能量范围内产生了高次谐波, 其中 92 eV 光子能量附近的光子通量达到 5×10^9 photon/s, 且平均功率为 74 nW、转换效率为 1.16×10^{-9} , 在 115~140 eV 光子能量范围内光子通量达到 1×10^{10} photon/s (带宽为 1%)。相较于钛蓝宝石激光器驱动的高次谐波实验 (92 eV 光子能量附近的光子通量能够到达 1×10^{11} photon/s)^[41], 高重复频率光纤激光器驱动的 100 eV 光子能量附近的高次谐波的光子通量仍有较大发展空间。

值得注意的是, 光参量啁啾脉冲放大 (OPCPA) 技术是另一种获取短周期激光脉冲宽度的有效手段, 并且可以更有效地调控中心波长。2013 年, Demmler 等^[25]使用重复频率为 180 kHz 的光纤激光器泵浦的光参量啁啾脉冲放大系统, 获得了中心波长为 918 nm、单脉冲能量为 25 μ J、脉宽为 6.6 fs 的脉冲, 并将该激光脉冲聚焦在氦气靶上, 产生了光子能量超过 200 eV 的高次谐波, 其

中 125 eV 光子能量附近的光子通量达到 1.3×10^8 photon/s (带宽为 1%)。2021 年, Buss 等^[42]使用重复频率为 100 kHz 的光纤激光器泵浦的两级 OPCPA 系统得到了中心波长为 800 nm 的激光脉冲, 在氦气毛细管波导中 38 eV 光子能量附近的光子通量达到 1.4×10^{12} photon/s。此外, 采用 OPCPA 技术获得的闲频光具有载波包络相位 (CEP) 自稳定的特点, 高重复频率、高功率光纤激光泵浦的超宽带、少周期、CEP 稳定的 OPCPA 闲频光是产生孤立阿秒脉冲的理想驱动源^[43]。

为了将高次谐波光子能量扩展到水窗波段, 除了压缩激光脉冲的脉宽外, 还需要增大激光波长。基于掺镱飞秒光纤激光脉冲的非线性压缩, 2014 年, Rothhardt 等^[44]利用脉宽为 7.8 fs、脉冲能量为 350 μ J、中心波长为 1030 nm 的激光脉冲在氦气中获得了光子能量高于 300 eV 的高次谐波。若要提高水窗波段的光子通量, 需要增大驱动激光的波长^[45-46]。2021 年, Gebhardt 等^[47]利用波长为 1910 nm 的掺铥光纤激光器, 产生了脉冲能量为 450 μ J、脉宽为 100 fs 的激光脉冲, 并在充氦反谐振中空光纤中获得了最高光子能量为 330 eV 的高次谐波, 其中 300 eV 光子能量附近的光子通量达到 2.8×10^6 photon/s, 且平均功率为

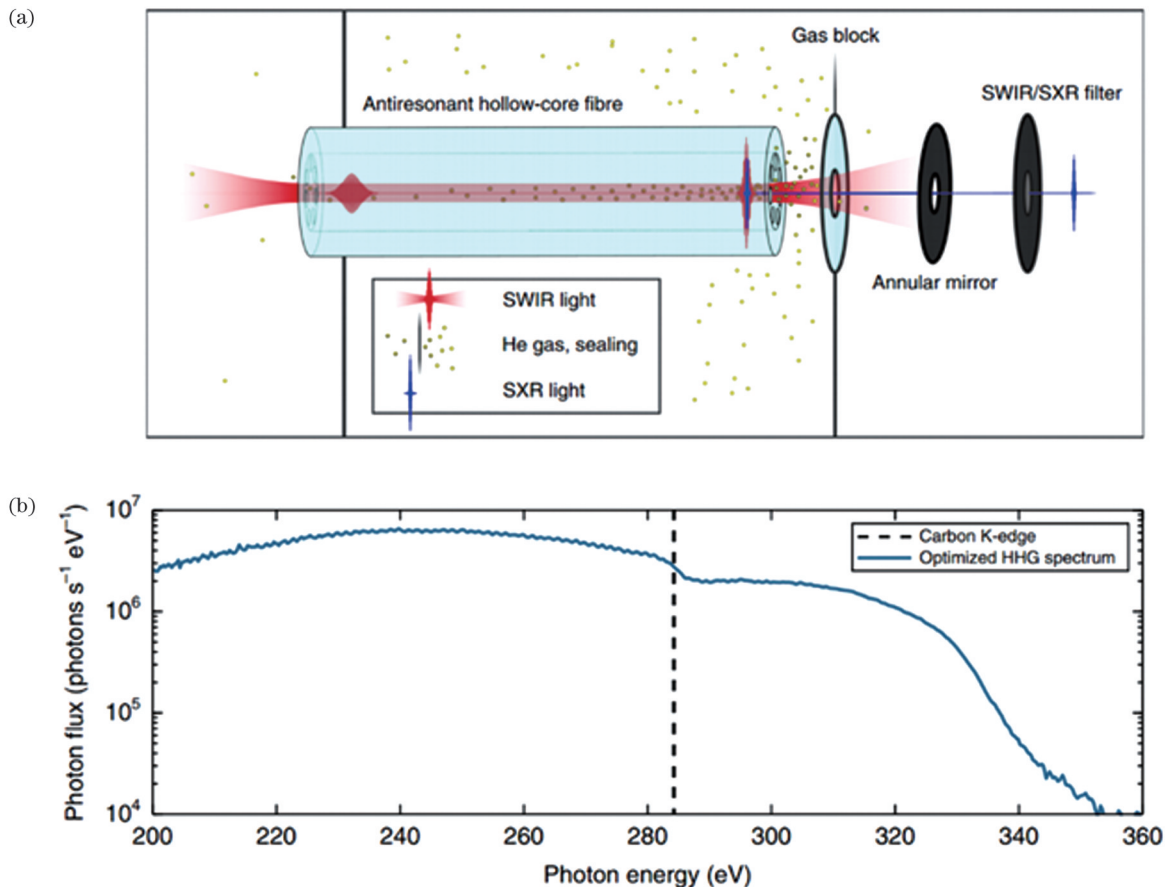


图 2 高重复频率掺铥光纤激光器产生水窗波段 HHG^[47]。(a)HHG 实验装置;(b)实验采集的 HHG 谱
Fig. 2 Water window HHG generated by high-repetition-rate thulium-doped fiber laser^[47]. (a) HHG experimental setup; (b) experimentally collected HHG spectrum

0.13 nW、转换效率为 3×10^{-12} ，实验装置和高次谐波光谱如图 2 所示。2020 年，Pupeikis 等^[48]采用光参量啁啾脉冲放大技术得到了重复频率为 100 kHz、平均功率为 25 W、脉宽为 16.5 fs 的 2.2 μm 波长亚双周期脉冲，将输出激光脉冲紧聚焦至内径为 1 mm 的氦气气盒靶中，得到了最高光子能量为 600 eV 的高次谐波辐射。

目前毫焦量级飞秒激光的重复频率大多在数百 kHz 量级，然而光电子能谱和极紫外频率梳等应用往往需要 MHz 量级重复频率的高次谐波。尽管基于增强腔的高次谐波可以实现数十甚至上百 MHz 量级的重复频率^[49]，但光子晶体光纤非线性压缩的微焦飞秒激光脉冲也可以单通驱动高次谐波，重复频率达到数 MHz 量级。2011 年，Vernaleken 等^[50]在光子晶体光纤中对高重复频率、单脉冲能量约为 2 μJ 的激光脉冲进行非线性压缩，得到波长为 1030 nm、脉宽为 35 fs、平均功率为 20 W 的驱动激光脉冲，并在氙气喷嘴靶中产生了重复频率为 20.8 MHz、光子能量为 20.5 eV 的高次谐波，这是目前单通高次谐波达到的最高重复频率。为了提高驱动激光的脉冲能量，采用新型 Kagome 光子晶体光纤(具有更低的损耗、更大的传输带宽)，适合对数微焦激光脉冲进行非线性压缩处理^[51-53]。2015 年，Hädrich 等^[54]利用充氦 Kagome 光纤进行非线性压缩，得到了能量为 7 μJ 、脉宽为 31 fs 的激

光脉冲，并在 27.7 eV 光子能量附近以 10.7 MHz 重复频率获得了 1×10^{13} photon/s 的光子通量，转换效率为 6.7×10^{-7} 。2015 年，Emaury 等^[24]在 Kagome 光纤中对重复频率为 2.4 MHz 的碟片激光振荡器输出的脉宽为 870 fs 的激光脉冲进行脉冲压缩处理，非线性压缩后的激光脉冲脉宽为 108 fs，在氙气喷嘴处产生了光子能量最高为 23 eV 的高次谐波，总光子通量达到 5×10^7 photon/s。

综上所述，高重复频率、高功率飞秒激光技术的进步是高光子通量高次谐波极紫外光源技术水平不断提升的原始动力。图 3 展示了目前主要高功率、高重复频率高次谐波产生实验的核心技术参数，包括脉冲能量、重复频率、光子能量、平均功率等，图 3 中的虚线代表着高次谐波的平均功率，不同的形状代表不同高次谐波源：气盒、气体喷嘴产生的单通高次谐波为圆形，毛细管产生的单通高次谐波为方形。目前，高重复频率单通高次谐波的最高平均功率达到了 12.9 mW，最高重复频率达到了 10 MHz 量级，最大光子能量(280~530 eV)扩展到了水窗波段。表 1 具体列出了本节中光纤激光驱动的高重复频率高次谐波实验的主要参数，以供参考。随着飞秒激光技术的进一步发展，高通量高次谐波极紫外光源技术有望产生更高平均功率、更高重复频率、更大光子能量的高次谐波源。

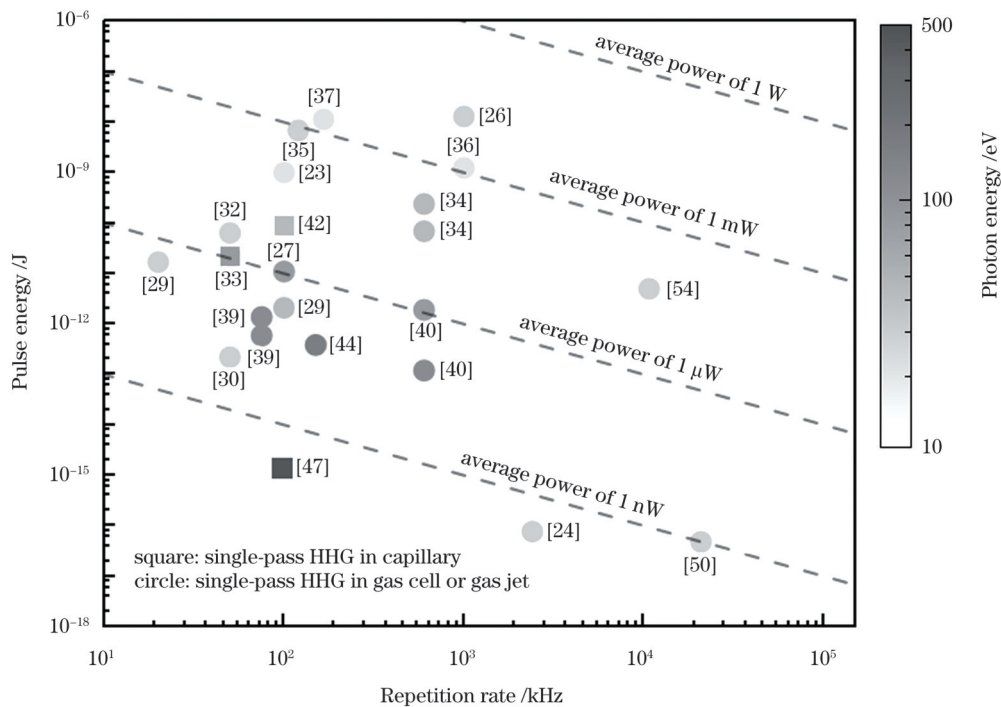


图 3 由最先进的光纤激光驱动产生的 HHG 的重复频率、单脉冲能量、光子能量和平均功率分布^[23-24, 26-27, 29-30, 32-37, 39-40, 42, 44, 47, 50, 54]

Fig. 3 Distribution of repetition rate, monopulse energy, photon energy, and average power of HHG generated by most advanced fiber laser driving^[23-24, 26-27, 29-30, 32-37, 39-40, 42, 44, 47, 50, 54]

表 1 光纤激光驱动产生高重复频率 HHG 实验的主要参数

Table 1 Main parameters of generating high-repetition-rate HHG experiment generated by fiber laser driving

Driving laser parameter					Gas target		HHG parameter				Ref.
Wavelength / nm	Average power / W	Repetition rate / kHz	Pulse energy / μJ	Pulse width / fs	Target type	Gas type	Photon energy range / eV	Target photon energy / eV	Average power / μW	Flux / (photon/s)	
1030	10	100	100	270	Jet	Ar	15–38	–	–	–	[23]
	28	1000	28			Xe	13–18	–	–	–	
1030	10	100	100	500	Cell	Xe	13–23	13–23	–	4.5×10^{12}	[28]
1030	5.4	100	54	170	Jet	Ar	18–40	30.1	0.2	4.5×10^{10}	[29]
1030	10	50	200	51	Jet	Kr	25–57	–	–	–	[30]
1030	29	50	580	65	Jet	Kr	19–62	25.3	3.2	7.9×10^{11}	[32]
1030	40	50	800	36	Hollow fiber	–	50–70	68.6	1.5	1.4×10^{11}	[33]
1030	80	600	130	29	Jet	Xe	25–38	30.1	143	3×10^{13}	[34]
						Kr	27–40	32.5	42	8×10^{12}	
1030	25	50	500	35	Jet	Ar	57–71	66.2	0.8	7.8×10^{10}	[27]
515	11	120	92	85	Jet	Kr	21–31	21.7	832	2.4×10^{14}	[35]
						Ar	–	26.7	72	1.7×10^{13}	
347	5	1000	5	98	Cell	Xe-Ar	–	10.7	1250	7.3×10^{14}	[36]
1030	50	166	300	135	Jet	Ar	16–52	39.7	0.57	9×10^{10}	[37]
515	19		114	130			18–36	21.7	80	2.3×10^{13}	
343	9.5		57	140			18–33	18	1.9×10^3	6.6×10^{14}	
257	2		12	135			24–34	24.1	3	8×10^{11}	
515	51	1000	51	18.6	Jet	Kr	22–31	26.5	1.29×10^4	3×10^{15}	[26]
1030	30	75	400	7	Jet	Ar	70–120	92	0.1	7×10^9	[39]
						Ne	70–160	92	0.04	3×10^9	
1030	63	600	105	35	Jet	Ar	66–84	71	3.4	3×10^{11}	[40]
						Ne	75–150	93	0.07	5×10^9	
918	4.5	180	25	6.6	Jet	Ne	100–200	125	2.6×10^{-3}	1.3×10^8	[25]
800	10	100	100	40	Hollow fiber	Ar	30–50	38	8.5	1.4×10^{12}	[42]
1030	35	100	350	7.8	Jet	Ne	120–200	120	0.06	3.1×10^9	[44]
						He	150–350	180	9×10^{-3}	3×10^8	
1910	44	98	450	100	Hollow fiber	He	200–300	300	1.3×10^{-4}	2.8×10^6	[47]
1030	20	20800	1	35	Jet	Xe	13–20	18	1×10^{-3}	3.5×10^8	[50]
1030	76	10700	7	31	Jet	Xe	21–30	27.7	51.1	1.14×10^{13}	[54]

3 气体高次谐波的宏观传播效应与相位匹配

制备高重复频率、高平均功率高次谐波的极紫外光源不仅需要新一代飞秒激光器作为泵浦源,还需要提高高次谐波产生过程中激光到极紫外辐射的能量转换效率。提高高次谐波的转换效率可以通过多种方式实现,一方面可以通过使用双色激光场、短波长激光驱动等方式提高单原子响应效率^[55-57],另一方面则需要考虑驱动激光场和高次谐波的宏观传播效应,以实现相位匹配^[58]。相比于钛蓝宝石激光器在较低重复频率

下输出的较大单脉冲能量,高重复频率飞秒光纤和固体激光器的单脉冲能量较低但平均功率很高,在传统松散聚焦气盒靶和毛细管靶中产生的高次谐波面临峰值光强下降和热负载增大等问题^[45]。因此,需要针对新型高重复频率、高功率飞秒激光驱动下的高次谐波的宏观传输效应和相位匹配进行讨论分析。

当第 q 阶高次谐波光场波矢大小 (k_q) 与基频激光光场提供的波矢量大小 (qk_1 , 其中 k_1 为基频波矢大小) 达到完美相位匹配,即波矢失配量 $\Delta k = qk_1 - k_q = 0$ 时,该阶次的高次谐波可以实现高效频率转换^[59-60]。考虑到激光的自由聚焦,波矢失配量有四个来源^[61],即

$\Delta k = \Delta k_{\text{at}} + \Delta k_{\text{el}} + \Delta k_{\text{foc}} + \Delta k_{\text{dip}}$, 其中 Δk_{at} 来自中性气体介质的材料色散, Δk_{el} 来自电离后自由电子引入的等离子体色散, Δk_{foc} 来自激光焦点附近的 Gouy 相位移动, Δk_{dip} 来自激光光强轴向差异引入的高次谐波偶极矩本征相位失配。

中性气体介质的材料色散是由给定压强气体中的基频激光和第 q 阶高次谐波的折射率差异引入的, 其波矢失配量可以表示为

$$\Delta k_{\text{at}} = qP \frac{2\pi}{\lambda_1} (1 - \eta)(n_1 - n_q), \quad (1)$$

式中: λ_1 是基频激光波长; P 是中性气体的压强; η 是激光作用下的气体电离度; n_1 和 n_q 分别为基频激光和第 q 阶高次谐波光场在中性气体介质中的折射率。因为一般气体介质中近红外、可见光波段的基频激光光场折射率大于 1, 而极紫外波段的高次谐波光场的折射率小于 1, 所以中性气体介质的材料色散引入的波矢失配量为正值。

类似地, 电离后自由电子引入的等离子体色散来自基频激光和高次谐波光场在等离子体中的折射率差异。对于基频激光, 等离子体中的折射率变化量与自由电子密度成正比; 而对于极紫外波段的高次谐波, 可以近似认为其折射率为 1。因此等离子体色散引入的波矢失配量为

$$\Delta k_{\text{el}} = -qP\lambda_1\eta N_{\text{atm}} r_e, \quad (2)$$

式中: N_{atm} 是标准条件下的气体原子密度; r_e 是经典电子半径, 其贡献值恒为负。

当自由聚焦的激光经过光束焦点时, 高斯光束在不同位置 (z) 处的轴向相位会发生 Gouy 相位移动, Gouy 相移的表达式为 $\phi_{\text{Gouy}}(z) = -\arctan(z/z_R)$, 其中 z_R 是激光焦点附近的瑞利长度。Gouy 相移引起基频激光等效相速度增加, 并引入恒为负值的波矢失配量, 其表达式为

$$\Delta k_{\text{foc}} = q \frac{d\phi_{\text{Gouy}}}{dz} = -\frac{qz_R}{z^2 + z_R^2}. \quad (3)$$

激光光强沿轴向的分布不均匀, 导致高次谐波单原子响应量子相位差异^[62], 进而引起偶极矩本征相位失配。当激光作用于单个原子时, 光电离产生的自由电子在光场中加速并积累一定的相位^[63], 近似表示为

$$\Phi_{s(1)} = \alpha_{s(1)} I(z) + t_{s(1)} \left(q\omega - \frac{I_p}{\hbar} \right) + \frac{\gamma_{s(1)}}{I(z)} \left(q\omega - \frac{I_p}{\hbar} \right)^2,$$

其中, 相位系数 $\alpha_s = 0$, $\alpha_1 = -0.16\alpha_0\lambda_1^3/(m_e c^3)$, α_0 为精细结构常数, m_e 为电子质量, c 为光速, s 和 l 分别表示高次谐波电子运动的短轨迹和长轨迹, $t_{s(1)}$ 为近似的电子返回时间, ω 为基频光频率, \hbar 为普朗克常数, $I(z)$ 为驱动光沿传播方向变化的光强, I_p 为原子电离势, 系数因子 $\gamma_s = 0.22cm_e/(\alpha_0\lambda_1)$, $\gamma_l = -0.19cm_e/(\alpha_0\lambda_1)$ 。在余弦波形激光场的半周期内, 以能产生最大光子能量电子的电离时刻为界, 先发生电离的电子轨迹被称为长轨

迹, 后者被称为短轨迹, 该命名反映了电子的偏移时间和其在光场中积累的相位不同^[62,64]。对于高斯光束, 偶极矩本征相位失配导致的波矢失配量为

$$\Delta k_{\text{dip}} = \frac{\partial \Phi_{s(1)}}{\partial I} \frac{\partial I}{\partial z} = -\frac{2z\beta_{s(1)}(z)}{z^2 + z_R^2}, \quad (4)$$

式中: I 是驱动光光强; $\beta_{s(1)}(z) = \alpha_{s(1)} I(z) - \frac{\gamma_{s(1)}}{I(z)} \left(q\omega - \frac{I_p}{\hbar} \right)^2 < 0$ 。当 $z < 0$ 时 Δk_{dip} 值为负, 反之为正。

故斯光束在自由聚焦条件下的总波矢失配量可表示为

$$\Delta k = qP \left[\frac{2\pi}{\lambda_1} (1 - \eta)(n_1 - n_q) - \lambda_1 \eta N_{\text{atm}} r_e \right] - \frac{qz_R}{z^2 + z_R^2} - \frac{2z\beta_{s(1)}(z)}{z^2 + z_R^2}. \quad (5)$$

通过控制气体介质的电离程度和使用松散聚焦来增大瑞利长度、减小 Gouy 相移, 是实现高次谐波相位匹配的有效方法。在松散聚焦的情况下, 决定相位匹配条件的关键因素是气体介质的电离度, 本课题组估算了任意光子能量的高次谐波辐射能够实现相位匹配的气体电离度范围。首先, 激光光强的最小值由以该光子能量作为截止能量的有质动力势决定, 在给定激光波长和脉宽条件下, 根据各种光电离理论模型计算气体介质电离度的下限 (η_{min})。图 4(a) 中的虚线展示了对于不同气体, 在不同波长和不同脉宽的激光脉冲作用下, 不同光子能量的高次谐波辐射实现相位匹配所需要的最小气体电离度, 其中激光电离率的计算采用了 Yudin 等^[65]提出的隧穿电离模型。气体最大电离度 (η_{max}) 即相位匹配宏观临界电离度^[66]可以通过设定式 (5) 左侧和右侧第二、三项为零得到

$$\eta_{\text{max}} = \left\{ \lambda_1^2 N_{\text{atm}} r_q \left[2\pi(n_1 - n_q) \right] + 1 \right\}^{-1}. \quad (6)$$

图 4(a) 中的实线展示了在不同激光波长条件下, 各种光子能量高次谐波辐射实现相位匹配所容许的最大气体电离度 η_{max} 。对于第 q 阶高次谐波, 只有实际气体电离度 (η_q) 满足 $\eta_{\text{min}} < \eta_q < \eta_{\text{max}}$ 时, 才有可能实现相位匹配和高次谐波的高效率产生和转换。图 4(a) 中不同灰度的阴影区域对应不同气体在不同波长、脉宽的泵浦光作用下的相位匹配有效电离区间。当 $\eta_{\text{min}} = \eta_{\text{max}}$ 时, 能够实现相位匹配的高次谐波的光子能量达到最大值 (E_{PMmax}), 不同条件下的 E_{PMmax} 已在图 4(a) 中用星形符号标记。

图 4(a) 说明, 在一定激光条件下, 能实现相位匹配的最大光子能量和气体种类有关, 一般气体原子的电离势越大, 实现相位匹配的最大光子能量 E_{PMmax} 也越大。对于 1030 nm 波长、40 fs 脉宽飞秒激光驱动的高次谐波, 实现相位匹配的最大光子能量在氦气中高于 40 eV, 在氩气中高于 50 eV, 而在氖气中最高可以

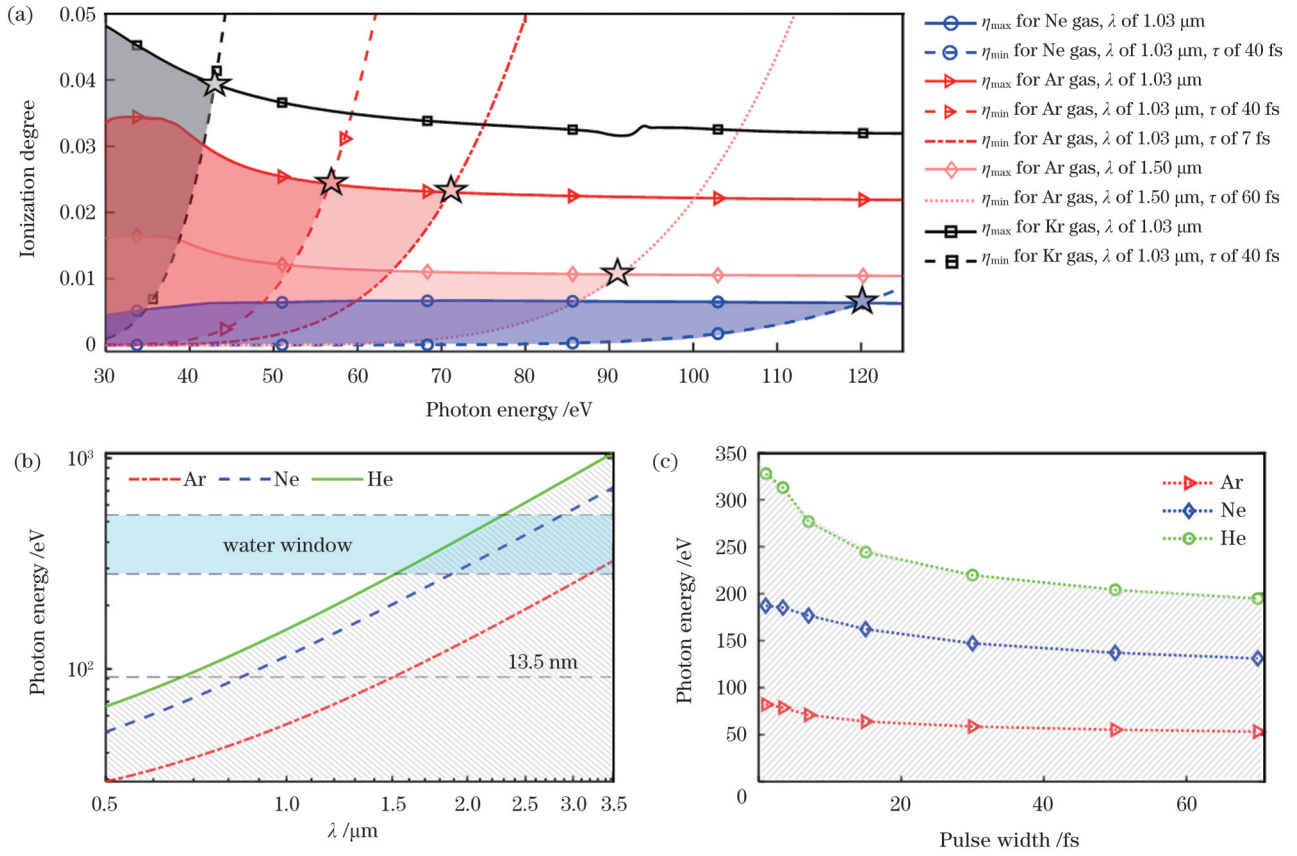


图 4 相位匹配区间。(a)在不同波长(λ)和脉宽(τ)泵浦光的驱动下,Kr、Ar和Ne气体中满足相位匹配的最小电离度(虚线)和最大电离度(实线)随光子能量的变化;(b)Ar、Ne和He气体中的 $E_{PM,max}$ 随泵浦光波长变化的理论预测结果;(c)在波长为1030 nm的泵浦光的驱动下,Ar、Ne和He气体中的 $E_{PM,max}$ 随泵浦光脉宽的变化

Fig. 4 Phase matching regions. (a) Minimum ionization degree (dash line) and maximum ionization degree (solid line) satisfying phase matching in Kr, Ar, and Ne gases versus photon energy driven by pump light with different wavelengths (λ) and pulse widths (τ); (b) theoretically predicted $E_{PM,max}$ in Ar, Ne, and He gases versus pump laser wavelength; (c) $E_{PM,max}$ in Ar, Ne, and He gases versus pump laser pulse width driven by 1030 nm pump light

达到120 eV。与此同时,气体电离势的提高使得总体电离率显著下降。

为了获得更高光子能量的高次谐波,增大基频激光波长是一种有效手段^[66-67]。虽然最大气体电离度 η_{max} 会随着激光波长的增大而减小[式(6)],但是由于最小激光光强与波长的平方成反比,且在脉宽周期数一定的情况下,最小气体电离度 η_{min} 的下降更快,故实现相位匹配的最大光子能量显著提高。如图4(a)所示,当激光波长从1030 nm提高到1500 nm且保持光学周期不变时,氩气中实现相位匹配的最大光子能量从56 eV增大到了92 eV。图4(b)直接给出了在给定光学周期(12个周期)的条件下,三种非线性介质(氩气、氖气、氦气)中实现相位匹配的最大光子能量和激光波长之间的关系。在相同介质中,要实现特定谐波的相位匹配[图4(b)斜线阴影部分],激光波长必须大于某个临界值。例如使用波长在1.5 μm以上的激光,在三种气体中都可以实现13.5 nm波长高次谐波的相位匹配,而实现水窗波段高次谐波的相位匹配不仅需要氩、氖等高电离势气体介质,还需要激光波长至少为

2 μm。需要注意的是,高次谐波单原子响应效率随激光波长的增大而显著降低^[68],因此针对光子能量较低的应用需求,选用短波长激光可以提升转换效率^[26,57]。

减小激光脉冲宽度是获得更高光子能量高次谐波的另一种有效手段。在相同截止光强的情况下,减小激光脉宽可以显著降低最小气体电离度 η_{min} ,进而提高最大光子能量^[69]。如图4(a)所示,波长为1030 nm的激光在氩气中产生特定的高次谐波时 η_{max} 有确定值,而 η_{min} 依赖于脉冲宽度。基于7 fs激光脉宽计算得到的 η_{min} 显著低于脉宽为40 fs时的 η_{min} ,相应的实现相位匹配的最大光子能量从56 eV增大到了72 eV。如图4(c)所示,在三种气体(He、Ne、Ar)介质中,实现相位匹配的最大光子能量随激光脉宽的减小而增大,因此在激光波长一定的情况下,对飞秒激光脉冲进行非线性压缩有利于获得高光子能量的辐射。例如对于1030 nm激光波长,当脉宽压缩至7 fs以下时在氩气中也能实现波长为13.5 nm的极紫外高次谐波的高通量辐射^[39]。此外,在一定 η_{max} 条件下,减小脉宽可以增大容许的峰值光强,增强高次谐波的单原子响应可以提升转换效率^[65]。

前文都是基于激光自由聚焦于气体盒或气体喷嘴靶的设计展开的讨论,为了实现长距离传输激光相位匹配,基于充气毛细管波导的相位匹配技术可以实现高光子能量高次谐波的高效率产生^[60-61,70]。在毛细管波导中,激光光强近似不变且不存在 Gouy 相移,式(5)右侧后两项不再适用,但是需要考虑波导中模式色散的影响^[60]。中空波导色散引起的波矢失配量 $\Delta k_{wg} =$

$$-q \frac{u_{nm}^2 \lambda_1}{4\pi a^2}, \text{ 其中 } a \text{ 是波导半径, } u_{nm} \text{ 是传播模式的常数因子, 对应第 } n-1 \text{ 阶贝塞尔函数的第 } m \text{ 个零解, 一阶模态 } u_{11}=2.4。 \text{ 因此, 波导中总波矢失配量为}$$

$$\Delta k = qP \left[\frac{2\pi}{\lambda_1} (1 - \eta)(n_1 - n_q) - \lambda_1 \eta N_{atm} r_c \right] - q \frac{u_{nm}^2 \lambda_1}{4\pi a^2} \quad (7)$$

实验时可以通过控制波导内部的气压和电离度来补偿波导色散引起的负失配量,实现长距离相位匹配,提高低重复频率激光驱动的高次谐波转换效率^[45]。在气体高电离区间(在该区间调整全局参数无法对介质色散进行有效补偿),前人采用准相位匹配技术在波导中得到了高效率高次谐波。准相位匹配技术的目的并不是实现高次谐波信号与基频光在整个介质中的相位匹配,而是周期性地调节每个相干长度中的波矢失配,防止高次谐波在介质传播距离内发生大幅度的相干相消。采用内径周期性变化的中空波导或者喷嘴阵列改变光束传播方向上的气体密度等方式,可将水窗波段的高次谐波转换效率提高 2~5 倍^[71-73];采用反向传播光束在毛细管波导内形成相位调制光栅,可提高气体高次谐波的最大光子能量,并将同一阶次的谐波强度提升 2 个数量级^[74]。然而随着驱动激光重复频率和平均功率的不断提高,工程上需要解决毛细管波导的散

热和损伤抑制问题。

式(5)、(6)描述的是无吸收气体介质中的宏观传播相位匹配情况,然而实际的极紫外波段高次谐波在气体介质中有强烈的自吸收效应,且会影响高次谐波的宏观传播过程^[75-76]。高次谐波的自吸收效应与气体种类、密度有关,可以定义第 q 阶谐波在气体中的特征吸收长度(L_{abs})为

$$L_{abs} = \frac{1}{\sigma_{abs} \rho} = \frac{1}{\sigma_{abs} P N_{atm}}, \quad (8)$$

式中: σ_{abs} 为第 q 阶高次谐波的光子吸收截面, $\sigma_{abs} = 2r_e \lambda_q f_2(\lambda_q)$,其中 $f_2(\cdot)$ 是特定原子对谐波的散射因子的虚部, λ_q 为第 q 阶的谐波波长; ρ 为气体密度。根据式(8)计算得到在氩气和氙气中 1030 nm 泵浦光的第 25 阶谐波(H25,光子能量为 30 eV)和第 35 阶谐波(H35,光子能量为 42 eV)以及在氖气中第 75 阶谐波(H75,光子能量为 90 eV)和第 95 阶谐波(H95,光子能量为 114 eV)的吸收长度随气压的变化[图 5(a)],在特定气压条件下高次谐波光子能量越高吸收长度越大^[77],在特定光子能量条件下吸收长度与气压成反比。

研究高次谐波的宏观传播效应需要同时考虑相位匹配和自吸收效应,其中相位匹配由波矢失配量的倒数即相干长度 [$L_{coh} = (\Delta k)^{-1}$] 来表示,自吸收效应由吸收长度 L_{abs} 表示。1999 年,Constant 等^[75]提出了宏观传输效应的一维模型:长度为 L_{med} 的气体介质中第 q 阶高次谐波的强度取决于光轴上所有单原子辐射场的相干叠加,即 $S_q \propto \left| \int_0^{L_{med}} A_q(z) \exp[i(\Delta k + i\alpha_{abs})(L_{med} - z)] dz \right|^2$,其中 A_q 是单原子响应振幅^[78],吸收系数 $\alpha_{abs} = 1/(2L_{abs})$ 。假设 A_q 沿传播方向近似恒定,高次谐波总强度可表示为

$$S_q \propto P^2 A_q^2 \frac{4L_{abs}^2}{1 + 4\pi^2(L_{abs}^2/L_{coh}^2)} \left[1 + \exp\left(-\frac{L_{med}}{L_{abs}}\right) - 2\cos\left(\frac{\pi L_{med}}{L_{coh}}\right) \exp\left(-\frac{L_{med}}{2L_{abs}}\right) \right] \quad (9)$$

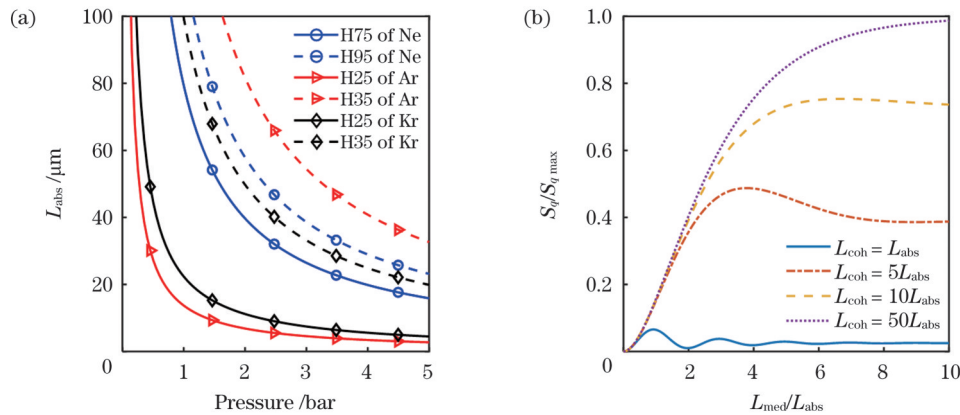


图 5 自吸收效应的影响。(a)HHG 吸收长度随气压的变化(泵浦光波长为 1030 nm);(b)在不同 L_{coh}/L_{abs} 下, $S_q/S_{q,max}$ 随 L_{med}/L_{abs} 的变化

Fig. 5 Influence of self-absorption. (a) Variation of absorption length of HHG with gas pressure (pump laser wavelength of 1030 nm); (b) $S_q/S_{q,max}$ versus L_{med}/L_{abs} under different L_{coh}/L_{abs}

在理想情况下 $\Delta k \rightarrow 0$, 相干长度 $L_{\text{coh}} \gg L_{\text{abs}}$ 且第 q 阶高次谐波的转换效率最高, 此时可以得到最大总强度 ($S_{q\text{max}}$), 进而可以根据式 (9) 对不同介质长度、吸收长度、相干长度下的高次谐波总强度进行计算, 并以 $S_{q\text{max}}$ 为基准进行归一化。根据式 (9) 可知, 高次谐波总强度 S_q 随相对介质长度 $L_{\text{med}}/L_{\text{abs}}$ 的增大逐渐达到饱和, 饱和极限值取决于 L_{coh} , 如图 5(b) 所示。当满足 $L_{\text{coh}} > 5L_{\text{abs}}$ 和 $L_{\text{med}} > 3L_{\text{abs}}$ 两个条件时, S_q 达到理想极限 $S_{q\text{max}}$ 的一半, 可以认为高次谐波实现了有效相位匹配。

基于波矢失配和自吸收效应的高次谐波宏观传输效应的分析, 以钛蓝宝石激光器为基础的高转换效率高次谐波实验取得了成功, 并取得一定的经验 (对大能量激光脉冲进行松散聚焦处理或者将其耦合进毛细管波导, 可以提高转换效率)。然而, 由于高平均功率、相对较小脉冲能量的飞秒光纤或碟片激光在高次谐波实验中的广泛应用, 研究者们需要适当提高聚焦数值孔径 (NA), 并探究相对紧聚焦条件下的宏观传播效应和相位匹配, 这对于提高高次谐波转换效率十分重要 [32, 79]。

Heyl 等 [80, 82] 和 Rothhardt 等 [81] 总结了在不同聚焦条件下, 维持确定高次谐波转换效率的关键参数标度律, 如表 2 所示。假设紧聚焦数值孔径提高 ζ 倍, 激光波长和脉宽保持不变, 为了维持光电离和产生高次谐波所需的确定激光光强, 在松散聚焦和紧聚焦情况下输入的激光脉冲能量之比为 ζ^2 , 焦斑直径 d_{med} 之比为 ζ , 瑞利长度之比为 ζ^2 , 相应地, 气体介质长度 L_{med} 之比也应当为 ζ^2 。另外, 高次谐波总能量 E_h 还与相互作用的原子数量呈正相关 [28, 81]。为了保证参与产生高次谐波的原子总数不变, 在介质长度缩小到原来的 $1/\zeta^2$ 的情况下, 气体密度必须相应增大 ζ^2 倍。因此在紧聚焦

条件下, 需要增大气体介质的压强以保证高次谐波的转换效率不变 [27, 83]。

表 2 松散聚焦和紧聚焦结构中的重要物理量标度律 [80-82]
Table 2 Scaling laws of important parameters between loose and tight focusing regimes [80-82]

Parameter	Loose focusing	Tight focusing
Gas density	ρ	$\zeta^2 \rho$
Medium length	L_{med}	L_{med}/ζ^2
Medium diameter	d_{med}	d_{med}/ζ
Driving laser energy	E_{in}	E_{in}/ζ^2
Harmonic energy	E_h	E_h/ζ^2
Conversion efficiency	Γ_h	Γ_h

结合上述标度律和有效相位匹配条件, 分析高重复频率、高功率飞秒光纤激光器驱动下的高次谐波的宏观传播效应。Hädrich 等 [34] 使用重复频率为 600 kHz、中心波长为 1030 nm、脉宽为 30 fs、单脉冲能量范围为 130~150 μJ 的激光, 在氦气和氙气中实现了光子能量在 30 eV 以上的高次谐波的有效相位匹配。针对该实验参数 [峰值光强为 $8.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 焦斑半径 (ω_0) 为 45 μm , 介质长度 L_{med} 为 600 μm], 根据式 (9) 计算得到, 氦气中 H25 (光子能量为 30 eV) 和 H33 (光子能量为 40 eV) 的相干长度 (虚线) 和短轨迹归一化强度 $S_q/S_{q\text{max}}$ (实线) 随气压变化的规律, 如图 6 所示。图 6 中的竖虚线为 0.11 bar 气压 (1 bar = 10^5 Pa), 计算使用的参数均与参考文献 [34] 相似。当气压为 0.11 bar 时, H25 的吸收长度为 221 μm , 相干长度约为 $5L_{\text{abs}}$, 介质长度为 $2.7L_{\text{abs}}$, 接近有效相位匹配的条件; 而 H33 的吸收长度为 743 μm , 相干长度约为 $3L_{\text{abs}}$, 介质长度为 $0.8L_{\text{abs}}$, 未实现有效相位匹配。因此文献 [34] 所述实验中的 H33 显著弱于 H25。

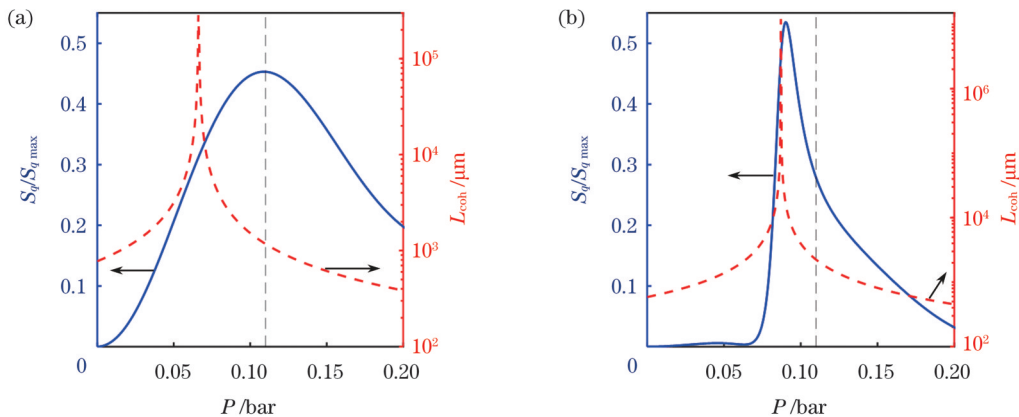


图 6 $S_q/S_{q\text{max}}$ 和 L_{coh} 随气压的变化。(a) H25; (b) H33

Fig. 6 $S_q/S_{q\text{max}}$ and L_{coh} versus gas pressure. (a) H25; (b) H33

当以波长为 13.5 nm 的极紫外辐射为优化目标时, 文献 [39] 使用重复频率为 75 kHz、波长为 1030 nm、脉宽为 7 fs、单脉冲能量为 400 μJ 的激光, 在氦气介质

中产生了高次谐波。实验中将激光聚焦至 150 μm 长的氦气气体靶中, 其焦斑半径为 37.5 μm , 当相互作用区域的气压在 2.6 bar 左右时, 波长为 13.5 nm 的高次

谐波的强度达到最大值。根据该实验参数计算波长为 13.5 nm 高次谐波的相干长度和归一化强度 $S_q/S_{q\max}$, 如图 7(a) 所示, 激光焦点处的光强为 $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 在焦点前 $0.48z_R$ 位置处基本复现了实验中波长为 13.5 nm 的高次谐波的强度(实线)随气压的变化情况。气压为 2.6 bar 时, 吸收长度为 $32 \mu\text{m}$, 相干长度约为 $14L_{\text{abs}}$ (虚线), 介质长度约为 $5L_{\text{abs}}$, 因此高次谐波在介质中实现了有效相位匹配, 且强度达到最大值。

根据高次谐波转换效率不变的标度律, 在保持光强不变的情况下将焦距尺寸扩大为原来的 10 倍, 输入的激光单脉冲能量为几十毫焦, 介质长度相应扩大 100 倍, 则在气压降低到 26 mbar 时, 波长为 13.5 nm 的

谐波信号强度也能达到最大值。如图 7(b) 所示, 在光强和介质位置不变的情况下, 吸收长度在气压为 26 mbar 处增大至 3.2 mm, 相干长度也扩展到了原来的 100 倍, 此时介质长度、吸收长度和相干长度间的相对关系未发生变化, 宏观传播效应对高次谐波的影响尺度不变, 高次谐波强度正比于激光的输入能量, 其转换效率在焦距变化前后可以维持相近水平。对上述缩放后的关键参数与目前波长为 13.5 nm 的高次谐波转换效率最高的钛蓝宝石激光器的实验参数^[84](泵浦光单脉冲能量为 50 mJ, 焦斑尺寸为 $180 \mu\text{m}$, 氖气气盒长度为 40 cm, 气压为 13 mbar) 进行比较, 比例关系基本吻合, 说明文献[39]实验中波长为 13.5 nm 的高次谐波的转换效率已接近自由聚焦的最优值。

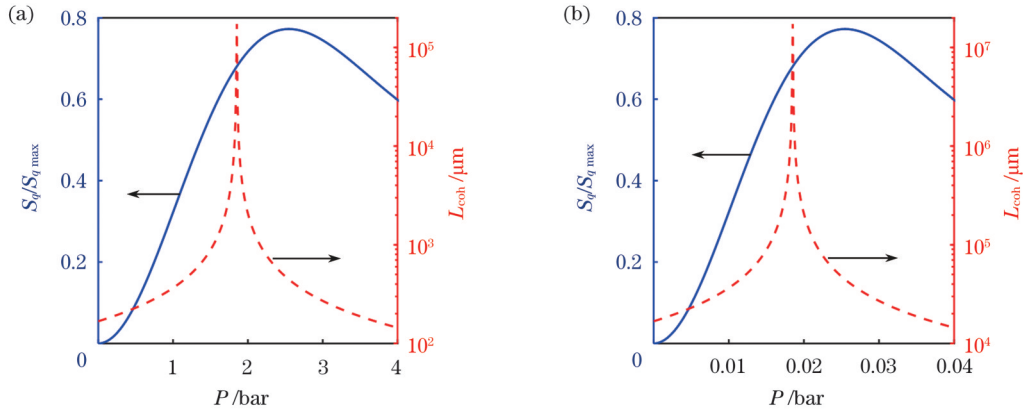


图 7 按标度律调整关键参数, 在 Ne 介质中产生的波长为 13.5 nm HHG 的 L_{coh} (虚线)与 $S_q/S_{q\max}$ (实线)随气压的变化。(a) $\omega_0 = 37.5 \mu\text{m}$, $L_{\text{med}} = 150 \mu\text{m}$; (b) $\omega_0 = 375.0 \mu\text{m}$, $L_{\text{med}} = 15 \mu\text{m}$

Fig. 7 L_{coh} (dash line) and $S_q/S_{q\max}$ (solid line) of HHG with wavelength of 13.5 nm generated in Ne medium versus gas pressure after key parameters is adjusted according to scaling law. (a) $\omega_0 = 37.5 \mu\text{m}$, $L_{\text{med}} = 150 \mu\text{m}$; (b) $\omega_0 = 375.0 \mu\text{m}$, $L_{\text{med}} = 15 \mu\text{m}$

4 高功率高次谐波极紫外光源的相干成像应用

极紫外高次谐波具有良好的相干性, 适合作为相干衍射成像的光源。一方面, 极紫外、软 X 射线波段的高次谐波在对样本进行成像时不会造成损伤, 并且其短波长能满足高横向分辨率的需求; 另一方面, 高次谐波相比 X 射线同步辐射源有着尺寸和造价上的优势, 有望实现相干衍射成像实验装置的小型化和平台化。当前, 基于高次谐波极紫外光源的成像技术主要包括: 相干衍射成像(CDI)技术、傅里叶变换全息成像(FTH)技术、叠层扫描成像(Ptychography)技术, 以及极紫外相干断层扫描(ECT)技术等。

CDI也叫无透镜成像, 是一种通过在相干光束照明的物体后方放置探测器记录散射和衍射光强, 从而获取待测物体结构信息的技术, 如图 8(a)所示。相干衍射成像技术的优点在于不使用透镜等成像元件, 避免了光学元件相差, 解决了成像光学元件难以获取 X 射线和极紫外等特殊波段的问题。由于探测器仅能获取散射和衍射光的光强信息, 必须对相位进行恢复。

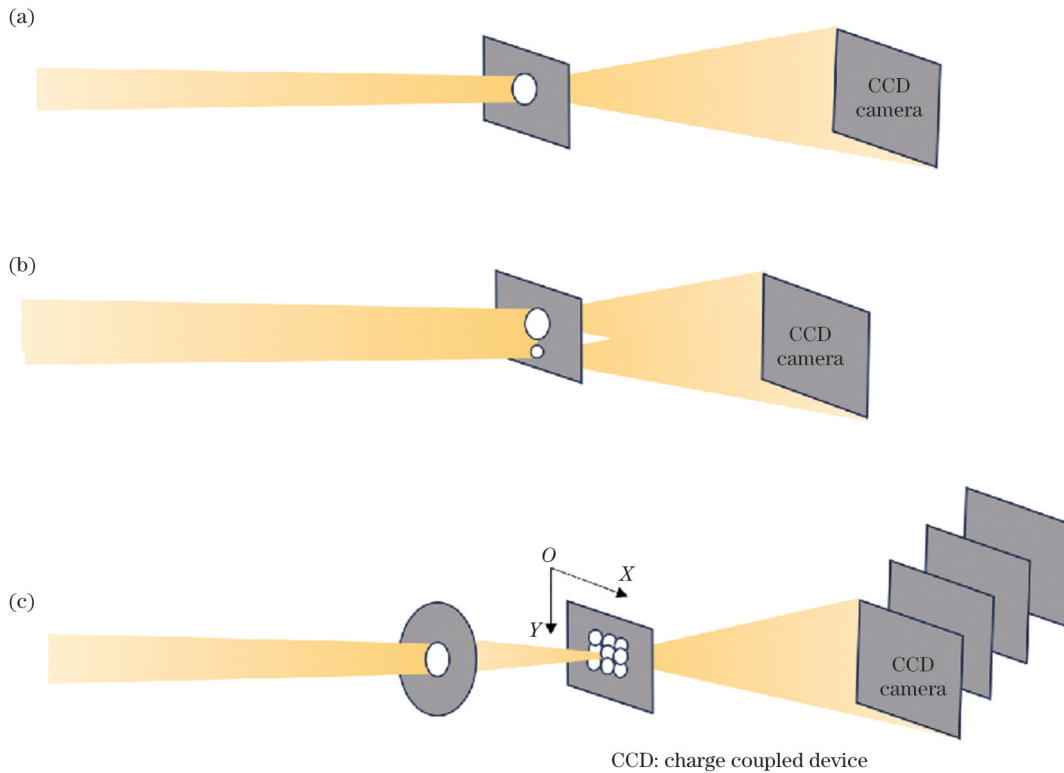
1982年, Fienup^[85]根据坐标空间和角谱空间的傅里叶变换共轭关系, 提出了一种基于远场角谱空间实测的光强信息以及近场坐标空间已知的先验信息, 迭代施加坐标空间和角谱空间约束的相位恢复算法(图 9), 用以处理相干衍射成像技术的标准数据。图 9 中 FT 表示傅里叶变换, FT^{-1} 表示傅里叶逆变换。

相干衍射成像的分辨率(Δr_1)取决于阿贝极限^[86]:

$$\Delta r_1 \geq 0.61 \frac{\lambda}{NA}. \quad (10)$$

光源波长越短, 数值孔径 NA 越大, 理论上能够达到的分辨率越小, 且数值孔径受限于探测器的几何尺寸和有限的光强与噪声的比值。相干衍射成像需要进行过采样以恢复样品图像, 过采样的程度采用过采样率表达, 将过采样率(O_s)定义为衍射图谱中的散斑间隔 Δx [$\Delta x = \frac{\lambda z_i}{a'}$, 其中 a' 为样本大小(在叠层扫描成像技术中表示光束大小), z_i 为像距] 与像素大小的比值, 即散斑占用的像素个数为

$$O_s = \frac{\Delta x}{p_s} = \frac{z_i \lambda}{p_s a'}, \quad (11)$$



CCD: charge coupled device

图 8 相干衍射成像的不同模式。(a)传统 CDI;(b)FTH;(c)叠层扫描 CDI

Fig. 8 Different modes of coherent diffraction imaging. (a) Traditional CDI; (b) FTH; (c) ptychographic CDI

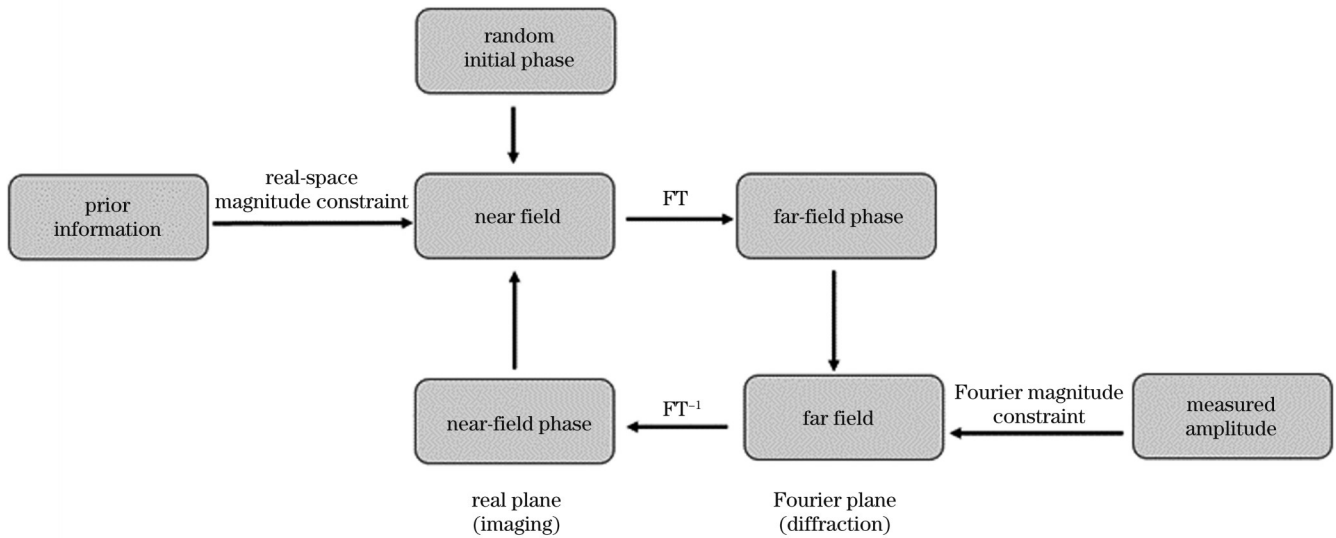


图 9 相位恢复算法示意图

Fig. 9 Schematic of phase retrieval algorithm

式中: p_s 表示相机单个像素的大小。过采样过程意味着需要对样品周围的无密度区域进行照明,因此相干衍射成像的分辨率不仅受限于阿贝极限,还受限于光源的相干性,入射光束的相干长度应大于样品的尺寸与无密度区域尺寸的总和。光源相干性越好,光谱带宽越小,分辨能力越强。相干衍射成像所能达到的最小空间分辨率(Δr_2)为

$$\Delta r_2 \geq \frac{O_s a' \Delta \lambda}{\lambda} = \frac{z_i \Delta \lambda}{p_s}, \quad (12)$$

式中: $\Delta \lambda / \lambda$ 代表相对光谱带宽^[87]。从式(11)和式(12)可以看出,非理想单色光的光源会导致衍射散斑在相机上发生缩放,缩放后的散斑小于相机像素大小。为了实现稳定可靠的图像重建,过采样率必须大于2,即像素大小应小于衍射图谱斑点距离的一半。相干衍射成像的分辨率同时受限于阿贝极限和光源的相干性,基于式(10)、(12)的计算结果中的较大值决定了相干衍射成像的分辨能力的上限。

2007年,美国科罗拉多大学首次将高次谐波极紫

外光源用于相干衍射成像。飞秒激光在充氩空芯波导中产生了宽谱极紫外辐射,采用多层膜带通反射镜选择的 29 nm 波长激光,照射具有“J”形孔洞的碳膜样品,利用远场大幅面相机采集衍射光并进行相位恢复,重构得出 214 nm 分辨率的图像^[88]。为了进一步提高分辨率,2016 年, Tadesse 等^[89]使用飞秒光纤激光器产生了中心波长为 18 nm、相对光谱带宽为 1/200 的高次谐波光源,结合接近 0.7 的成像数值孔径,使图像的最高分辨率达到了 13.6 nm。

透射式光路的高次谐波相干衍射成像无法应用于厚度大于光源吸收长度的样本以及具有基底的表面结构。2012 年, Gardner 等^[90]提出了反射式光路以进行高次谐波相干衍射成像,并在算法中加入坐标变换,对离轴的反射光路进行修正。该设计思路随后被应用于纳米表面结构的成像和缺陷检测中。2016 年, Shanblatt 等^[91]使用波长为 29.1 nm 的单阶次高次谐波,实现了镶嵌在二氧化硅中的铜纳米表面结构和 100 nm 厚铝膜掩盖下的铜纳米线的相干衍射成像测量。高次谐波相干衍射成像也可应用于生物医学领域。2014 年, Zürich 等^[92]使用波长为 38 nm 的高次谐波光源,对镀金硅胶载玻片上未标记、未染色的乳腺癌细胞进行反射式相干衍射成像,实现了癌细胞的分型。

高次谐波的转换效率和输出平均功率相对较低,这是影响相干衍射成像效率的重要因素。提高高次谐波转换效率可以实现不可重复物理过程的单发成像。2009 年, Ravasio 等^[93]使用单脉冲能量为 35 mJ 的飞秒激光脉冲,利用焦距为 5.5 m 的长焦透镜将其松散聚焦于尺寸为 10 cm、气压为 2 mbar 的充氩气盒中,产生了单脉冲能量为 0.6 μ J、高亮度、小发散角(500 μ rad)的高次谐波光源,实现了样品的单发相干衍射成像。另外一种增加有效的可利用的光子数量的方式是用宽谱高次谐波取代选频后的准单色光作为照明光源。2020 年, Huijts 等^[94]提出了一种对宽带光源衍射图案进行相位检索的矩阵反演算法,在传统的相位检索算法运行前对图案进行数值单色化处理,最终实现宽衍射图案的重构。

相干衍射成像的广泛应用受限于两个技术瓶颈: 1) 相位恢复算法的时间成本高、计算量大,而且测得的衍射图案的信噪比和过采样率也会影响收敛速度; 2) 测量单幅远场衍射光强分布仅能获取有限尺寸的孤立样品信息。

为了降低相位恢复算法对成像技术的影响,并提高成像鲁棒性,可以在待测物旁引入已知强度和相位、并与待测物散射光相互干涉的参考光,这样原光场的相位信息可以不借助迭代重构算法而直接从干涉图样中获取,这种方法叫作 FTH 技术^[95],如图 8(b)所示。2009 年, Sandberg 等^[96]首次使用 29 nm 波长的高次谐波极紫外光源照明待测物及其周围 5 个直径

为 (125 ± 6) nm 的透射孔,实现了分辨率达到 89 nm 的傅里叶变换全息成像,且将曝光时间从传统相干衍射成像的 1 h 缩短到傅里叶变换全息成像的 30 s。为了提高成像分辨率,需要对引入参考光的透射孔结构的尺寸和形状进行优化^[97-99]。2018 年, Tadesse 等^[97]选用直径为 50 nm 的圆孔作为参考光的透射结构,在减小孔径尺寸、增大参考光发散角和提高成像分辨率的同时提高图像信噪比,利用 18.5 nm 波长的高次谐波光源实现了优于 34 nm 的成像分辨率。2010 年, Gauthier 等^[99]使用两个方向相互垂直的狭缝作为参考光的透射结构,通过计算全息图的傅里叶逆变换结果沿狭缝方向的导数,重构获得了待测样品的图像。

为了解决扩展尺寸、非孤立样品的成像问题,人们在相干衍射成像的基础上对照明光束位置进行扫描,扫描过程中记录多个位置的衍射图案,且在相邻的位置之间,光束照明区域重叠以包含冗余待测物体的信息,利用迭代算法反演物体结构。如图 8(c)所示,这种扫描式相干衍射成像方法被称作叠层扫描成像技术^[100-103]。2014 年,美国科罗拉多大学首次使用高次谐波极紫外光源进行叠层扫描成像,利用 29 nm 波长、10 μ m 焦斑尺寸的高次谐波光源对硅基板上 30 nm 厚的钛制图案进行反射式成像,以 2.5 μ m 的步长扫描样品的 90 个照明位置,重构得出待测图案且达到 150 nm 的分辨率,如图 10(a)所示^[104]。2015 年,该课题组将数值孔径从 0.1 提升到 0.4,进一步把分辨率优化到 40 nm^[105]。相比于传统相干衍射成像,叠层扫描成像技术的视场范围仅取决于扫描步数与曝光时间,有可能实现大视场纳米结构成像。2016 年, Baksh 等^[106]利用 967 张衍射图案完成了尺寸大于 100 μ m 的物体的宽视场叠层扫描成像。因此,叠层扫描成像技术可以广泛应用于生命医学、集成电路制造、材料科学等领域:在生物成像方面,2020 年, Baksh 等^[107]使用波长为 29 nm 的高次谐波对小鼠海马体神经元进行了三维叠层扫描成像,达到了横向 80 nm 和纵向 0.8 nm 的空间分辨率,如图 10(b)所示;在集成电路制造方面,利用波长为 13.5 nm 的极紫外高次谐波光源可以实现对极紫外光刻掩膜版的原波长缺陷检测^[108-109];在材料科学方面,极紫外波段的高次谐波对材料界面具有较好的光学响应,被应用于纳米量级的横向和纵向分辨率的晶体结构和纳米表面结构的三维成像^[110-111]。2021 年, Tanksalvala 等^[110]利用极紫外光对不同化学成分的敏感响应,使用叠层扫描成像技术对生长在不同掺杂浓度基底上的 SiO_2 、 Si_3N_4 等不同材料纳米表面结构实现了材料分辨的三维成像。

相干衍射成像技术的侧重点是获取待测样品的横向空间信息,而对样品的深度信息不敏感。然而光学相干断层成像(OCT)技术因利用宽谱光源相干长度短的特点,可以获得样品的深度信息,得到了广泛应

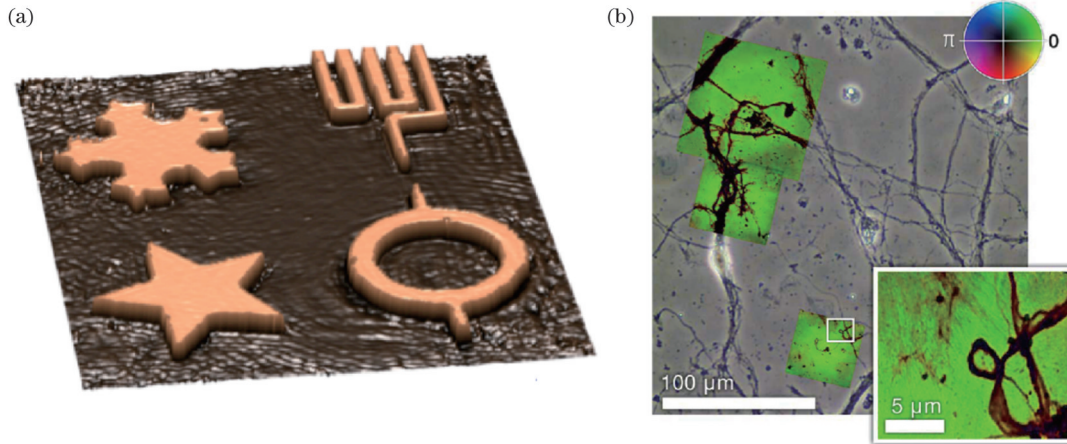


图 10 基于 HHG 叠层扫描成像技术的成像实例。(a)首次使用 HHG 进行叠层扫描成像得到的样品重构图^[104]; (b)基于叠层扫描成像技术的小鼠海马神经元的成像结果^[107]

Fig. 10 Imaging examples using HHG ptychography. (a) Sample reconstruction image obtained by ptychography using HHG for the first time^[104]; (b) imaging result of mouse hippocampal neuron based on ptychography^[107]

用^[112]。光学相干断层成像技术的纵向分辨率由照明宽谱光源的相干长度或者光谱带宽决定,由于高次谐波的光谱带宽可以覆盖整个极紫外到软 X 射线波段,其纵向分辨率可以达到纳米量级^[113]。2017 年, Fuchs 等^[114]首次使用光子能量在 30~70 eV 范围内的高次谐波宽谱光源,实现了对纳米材料结构的相干断层

成像测量,如图 11 所示。样品成像信息达到了 24 nm 的纵向空间分辨率和 23 μm 的横向空间分辨率。2021 年,该课题组还在重构算法中考虑了材料光学性质对反射光谱的影响,在对二氧化硅、硅、钛、银等薄膜材料种类分辨中,实现了纵向分辨率为 27 nm 的三维成像测量^[115]。

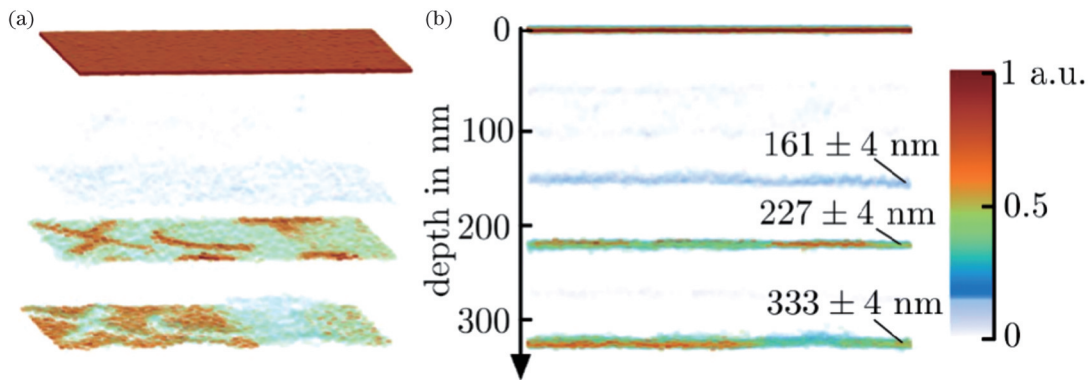


图 11 用 OCT 测量的三维结构剖面^[114]。(a)深度和横向信息; (b)深度信息

Fig. 11 Three-dimensional structural profiles measured by OCT^[114]. (a) Depth and lateral information; (b) depth information

5 结束语

在高重复频率、高功率飞秒激光技术的推动下,高次谐波光源的重复频率和光子通量不断优化。相比传统钛蓝宝石固体飞秒激光器,高平均功率飞秒光纤和固体激光器的脉冲宽度长、单脉冲能量低、调谐范围窄等问题正在得到解决。利用各类非线性压缩技术,将飞秒光纤激光的脉冲宽度压缩到少周期量级;利用相干合束技术,高重复频率飞秒激光的脉冲能量可以达到数十毫焦量级;利用 OPCPA 技术驱动激光波长可在较大范围内调谐,同时,稳定的 CEP 和超短脉宽的脉冲输出有利于产生孤立阿秒脉冲。这些激光技术的进步使得满足各类场景应用需求的高重复频率、高通量高次谐波极紫外光源成为可能,通过在单原子响应

层面控制激光光强和波长,在宏观传播层面控制高次谐波的自吸收与相位匹配,新一代激光技术已经能够实现毫瓦量级的平均功率、百电子伏特量级的最大光子能量、数十兆赫兹重复频率的极紫外相干光源输出。高重复频率高次谐波光源平均功率的增加将进一步丰富阿秒科学相关的基础研究内容^[116-117],脉宽在几十至几百阿秒量级的高通量阿秒光源,为在电子运动的时间尺度上研究原子和分子系统提供了可行性^[118],也将有助于减轻光电子辐射光谱中的空间电荷效应^[119],缩短采集时间,以及提高 EUV 瞬态吸收光谱实验^[120]和 EUV 泵浦-EUV 探测等时间分辨测量^[121]中的信噪比。利用高重复频率、高光子通量极紫外相干光源,高次谐波辐射将从前沿科学研究的实验室走向各类应用场景,尤其是成像检测领域。相干衍射成像和相干断层

成像技术可以分别在横向和纵向上实现纳米尺度三维结构物体的高空间分辨、材料分辨测量,因此基于高光子通量光源的成像技术与仪器有望在集成电路制造、纳米材料、生物医学等领域中取得实际应用。

参 考 文 献

- [1] Bertrand J B, Wörner H J, Salières P, et al. Linked attosecond phase interferometry for molecular frame measurements[J]. *Nature Physics*, 2013, 9: 174-178.
- [2] Månsson E P, Guénot D, Arnold C L, et al. Double ionization probed on the attosecond timescale[J]. *Nature Physics*, 2014, 10: 207-211.
- [3] Calegari F, Ayuso D, Trabattoni A, et al. Ultrafast electron dynamics in phenylalanine initiated by attosecond pulses[J]. *Science*, 2014, 346(6207): 336-339.
- [4] Dierolf M, Menzel A, Thibault P, et al. Ptychographic X-ray computed tomography at the nanoscale[J]. *Nature*, 2010, 467(7314): 436-439.
- [5] La-O-Vorakiat C, Siemens M, Murnane M M, et al. Ultrafast demagnetization dynamics at the M edges of magnetic elements observed using a tabletop high-harmonic soft X-ray source[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(25): 257402.
- [6] Rohwer T, Hellmann S, Wiesenmayer M, et al. Collapse of long-range charge order tracked by time-resolved photoemission at high momenta[J]. *Nature*, 2011, 471(7339): 490-493.
- [7] Cingöz A, Yost D C, Allison T K, et al. Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet[J]. *Nature*, 2012, 482(7383): 68-71.
- [8] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [9] 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.
- [10] Silva F, Teichmann S M, Cousin S L, et al. Spatiotemporal isolation of attosecond soft X-ray pulses in the water window[J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 6611.
- [11] 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.
- [12] Li J, Ren X M, Yin Y C, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge[J]. *Nature Communications*, 2017, 8(1): 186.
- [13] Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, et al. Attosecond ionization and tunneling delay time measurements in helium[J]. *Science*, 2008, 322(5907): 1525-1529.
- [14] Schultze M, Fiess M, Karpowicz N, et al. Delay in photoemission[J]. *Science*, 2010, 328(5986): 1658-1662.
- [15] Kandula D Z, Gohle C, Pinkert T J, et al. Extreme ultraviolet frequency comb metrology[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(6): 063001.
- [16] Li X F, L'Huillier A, Ferray M, et al. Multiple-harmonic generation in rare gases at high laser intensity[J]. *Physical Review A*, 1989, 39(11): 5751-5761.
- [17] 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.
- [18] 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.
- [19] Hentschel M, Kienberger R, Spielmann C, et al. Attosecond metrology[J]. *Nature*, 2001, 414: 509-513.
- [20] Corkum P B, Krausz F. Attosecond science[J]. *Nature Physics*, 2007, 3: 381-387.
- [21] Zürich M, Rothhardt J, Hädrich S, et al. Real-time and sub-wavelength ultrafast coherent diffraction imaging in the extreme ultraviolet[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4: 7356.
- [22] Miao J W, Ishikawa T, Robinson I K, et al. Beyond crystallography: diffractive imaging using coherent X-ray light sources[J]. *Science*, 2015, 348(6234): 530-535.
- [23] Boulet J, Zaouter Y, Limpert J, et al. High-order harmonic generation at a megahertz-level repetition rate directly driven by an ytterbium-doped-fiber chirped-pulse amplification system[J]. *Optics Letters*, 2009, 34(9): 1489-1491.
- [24] Emaury F, Diebold A, Saraceno C J, et al. Compact extreme ultraviolet source at megahertz pulse repetition rate with a low-noise ultrafast thin-disk laser oscillator[J]. *Optica*, 2015, 2(11): 980.
- [25] Demmler S, Rothhardt J, Hädrich S, et al. Generation of high photon flux coherent soft X-ray radiation with few-cycle pulses[J]. *Optics Letters*, 2013, 38(23): 5051-5054.
- [26] Klas R, Kirsche A, Gebhardt M, et al. Ultra-short-pulse high-average-power megahertz-repetition-rate coherent extreme-ultraviolet light source[J]. *PhotonIX*, 2021, 2(1): 4.
- [27] Rothhardt J, Hädrich S, Shamir Y, et al. High-repetition-rate and high-photon-flux 70 eV high-harmonic source for coincidence ion imaging of gas-phase molecules[J]. *Optics Express*, 2016, 24(16): 18133-18147.
- [28] Cabasse A, Machinet G, Dubrouil A, et al. Optimization and phase matching of fiber-laser-driven high-order harmonic generation at high repetition rate[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(22): 4618-4620.
- [29] Lorek E, Larsen E W, Heyl C M, et al. High-order harmonic generation using a high-repetition-rate turnkey laser[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2014, 85(12): 123106.
- [30] Hädrich S, Rothhardt J, Krebs M, et al. Short wavelength generation at high repetition rate by direct high harmonic generation [C]//International Conference on Ultrafast Phenomena, July 18-23, 2010, Snowmass, Colorado. Washington, DC: OSA, 2010: MD2.
- [31] Hädrich S, Rothhardt J, Krebs M, et al. High harmonic generation by novel fiber amplifier based sources[J]. *Optics Express*, 2010, 18(19): 20242-20250.
- [32] Hädrich S, Krebs M, Rothhardt J, et al. Generation of μW level plateau harmonics at high repetition rate[J]. *Optics Express*, 2011, 19(20): 19374-19383.
- [33] Kirsche A, Klas R, Gebhardt M, et al. Continuously tunable high photon flux high harmonic source at 50-70 eV[C]//2021 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC), June 21-25, 2021, Munich, Germany. New York: IEEE Press, 2021.
- [34] Hädrich S, Klenke A, Rothhardt J, et al. High photon flux tabletop coherent extreme-ultraviolet source[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8: 779-783.
- [35] Klas R, Demmler S, Tschernajew M, et al. Table-top milliwatt-class extreme ultraviolet high harmonic light source[J]. *Optica*, 2016, 3(11): 1167-1170.
- [36] Zhao Z G, Kobayashi Y. Realization of a mW-level 10.7-eV ($\lambda=115.6$ nm) laser by cascaded third harmonic generation of a Yb: fiber CPA laser at 1-MHz[J]. *Optics Express*, 2017, 25(12): 13517-13526.
- [37] Comby A, Descamps D, Beauvarlet S, et al. Cascaded harmonic generation from a fiber laser: a milliwatt XUV source[J]. *Optics Express*, 2019, 27(15): 20383-20396.
- [38] Bucksbaum P H, Freeman R R, Bashkansky M, et al. Role of the ponderomotive potential in above-threshold ionization[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1987, 4(5): 760-764.
- [39] Klas R, Eschen W, Kirsche A, et al. Generation of coherent broadband high photon flux continua in the XUV with a sub-two-cycle fiber laser[J]. *Optics Express*, 2020, 28(5): 6188-6196.
- [40] Tschernajew M, Hädrich S, Klas R, et al. High repetition rate high harmonic generation with ultra-high photon flux[C]//2021 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC), June

- 21-25, 2021, Munich, Germany. New York: IEEE Press, 2021.
- [41] Popmintchev D, Hernández-García C, Dollar F, et al. Ultraviolet surprise: efficient soft X-ray high-harmonic generation in multiply ionized plasmas[J]. *Science*, 2015, 350(6265): 1225-1231.
- [42] Buss J H, Petev M, Golz T, et al. High repetition rate extreme ultraviolet source driven by tunable OPCPA[C]//OSA Nonlinear Optics 2021, August 9-13, 2021, Washington, DC. Washington, DC: Optica Publishing Group, 2021: NTu1A.6.
- [43] Krebs M, Hädrich S, Demmler S, et al. Towards isolated attosecond pulses at megahertz repetition rates[J]. *Nature Photonics*, 2013, 7: 555-559.
- [44] Rothhardt J, Hädrich S, Klenke A, et al. 53 W average power few-cycle fiber laser system generating soft X rays up to the water window[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(17): 5224-5227.
- [45] Popmintchev D, Galloway B R, Chen M C, et al. Near- and extended-edge X-ray-absorption fine-structure spectroscopy using ultrafast coherent high-order harmonic supercontinua[J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(9): 093002.
- [46] Fu Y X, Nishimura K, Shao R Z, et al. High efficiency ultrafast water-window harmonic generation for single-shot soft X-ray spectroscopy[J]. *Communications Physics*, 2020, 3: 92.
- [47] Gebhardt M, Heuermann T, Klas R, et al. Bright, high-repetition-rate water window soft X-ray source enabled by nonlinear pulse self-compression in an antiresonant hollow-core fibre[J]. *Light, Science & Applications*, 2021, 10(1): 36.
- [48] Pupekis J, Chevrevil P A, Bigler N, et al. Water window soft X-ray source enabled by a 25 W few-cycle 2.2 μm OPCPA at 100 kHz[J]. *Optica*, 2020, 7(2): 168-171.
- [49] Pupeza I, Zhang C K, Högner M, et al. Extreme-ultraviolet frequency combs for precision metrology and attosecond science[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15: 175-186.
- [50] Vernaleken A, Weitenberg J, Sartorius T, et al. Single-pass high-harmonic generation at 20.8 MHz repetition rate[J]. *Optics Letters*, 2011, 36(17): 3428-3430.
- [51] Jocher C, Eidam T, Hädrich S, et al. Sub 25 fs pulses from solid-core nonlinear compression stage at 250 W of average power[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(21): 4407-4409.
- [52] Emaury F, Dutin C F, Saraceno C J, et al. Beam delivery and pulse compression to sub-50 fs of a modelocked thin-disk laser in a gas-filled Kagome-type HC-PCF fiber[J]. *Optics Express*, 2013, 21(4): 4986-4994.
- [53] Mak K F, Seidel M, Pronin O, et al. Compressing μJ -level pulses from 250 fs to sub-10 fs at 38-MHz repetition rate using two gas-filled hollow-core photonic crystal fiber stages[J]. *Optics Letters*, 2015, 40(7): 1238-1241.
- [54] Hädrich S, Krebs M, Hoffmann A, et al. Exploring new avenues in high repetition rate table-top coherent extreme ultraviolet sources[J]. *Light: Science & Applications*, 2015, 4(8): e320.
- [55] Jin C, Wang G L, Wei H, et al. Waveforms for optimal sub-keV high-order harmonics with synthesized two- or three-colour laser fields[J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 4003.
- [56] Severt T, Troß J, Kolliopoulos G, et al. Enhancing high-order harmonic generation by controlling the diffusion of the electron wave packet[J]. *Optica*, 2021, 8(8): 1113-1121.
- [57] Wang H, Xu Y M, Ulonska S, et al. Bright high-repetition-rate source of narrowband extreme-ultraviolet harmonics beyond 22 eV[J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 7459.
- [58] 石顺祥. 非线性光学[M]. 2版. 西安: 西安电子科技大学出版社, 2012.
- Shi S X. *Nonlinear optics*[M]. 2nd ed. Xi'an: Xidian University Press, 2012.
- [59] Balcou P, Salières P, L'Huillier A, et al. Generalized phase-matching conditions for high harmonics: the role of field-gradient forces[J]. *Physical Review A*, 1997, 55(4): 3204-3210.
- [60] Rundquist A, Durfee C G, Chang Z, et al. Phase-matched generation of coherent soft X-rays[J]. *Science*, 1998, 280(5368): 1412-1415.
- [61] Kazamias S, Douillet D, Weihe F, et al. Global optimization of high harmonic generation[J]. *Physical Review Letters*, 2003, 90(19): 193901.
- [62] Salières P, L'Huillier A, Lewenstein M. Coherence control of high-order harmonics[J]. *Physical Review Letters*, 1995, 74(19): 3776-3779.
- [63] Guo C, Harth A, Carlström S, et al. Phase control of attosecond pulses in a train[J]. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 2018, 51(3): 034006.
- [64] Lewenstein M, Salières P, L'Huillier A. Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 1995, 52(6): 4747-4754.
- [65] Yudin G L, Ivanov M Y. Nonadiabatic tunnel ionization: looking inside a laser cycle[J]. *Physical Review A*, 2001, 64(1): 013409.
- [66] Popmintchev T, Chen M C, Bahabad A, et al. Phase matching of high harmonic generation in the soft and hard X-ray regions of the spectrum[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2009, 106(26): 10516-10521.
- [67] Popmintchev T, Chen M C, Cohen O, et al. Extended phase matching of high harmonics driven by mid-infrared light[J]. *Optics Letters*, 2008, 33(18): 2128-2130.
- [68] Shiner A D, Trallero-Herrero C, Kajumba N, et al. Wavelength scaling of high harmonic generation efficiency[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(7): 073902.
- [69] Weissenbilder R, Carlström S, Rego L, et al. How to optimize high-order harmonic generation in gases[J]. *Nature Reviews Physics*, 2022, 4: 713-722.
- [70] Durfee C G, Rundquist A R, Backus S, et al. Phase matching of high-order harmonics in hollow waveguides[J]. *Physical Review Letters*, 1999, 83(11): 2187-2190.
- [71] Gibson E A, Paul A, Wagner N, et al. Coherent soft X-ray generation in the water window with quasi-phase matching[J]. *Science*, 2003, 302(5642): 95-98.
- [72] Seres J, Yakovlev V S, Seres E, et al. Coherent superposition of laser-driven soft-X-ray harmonics from successive sources[J]. *Nature Physics*, 2007, 3: 878-883.
- [73] Willner A, Tavella F, Yeung M, et al. Coherent control of high harmonic generation via dual-gas multijet arrays[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107(17): 175002.
- [74] Zhang X S, Lytle A L, Popmintchev T, et al. Quasi-phase-matching and quantum-path control of high-harmonic generation using counterpropagating light[J]. *Nature Physics*, 2007, 3: 270-275.
- [75] Constant E, Garzella D, Breger P, et al. Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: model and experiment[J]. *Physical Review Letters*, 1999, 82(8): 1668-1671.
- [76] Kazamias S, Daboussi S, Guilbaud O, et al. Pressure-induced phase matching in high-order harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 2011, 83(6): 063405.
- [77] Cooper J W. Photoionization from outer atomic subshells. A model study[J]. *Physical Review*, 1962, 128(2): 681-693.
- [78] 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.
- [79] Lindner F, Stremme W, Schätzel M G, et al. High-order harmonic generation at a repetition rate of 100 kHz[J]. *Physical Review A*, 2003, 68(1): 013814.
- [80] Heyl C M, Coudert-Alteirac H, Miranda M, et al. Scale-invariant nonlinear optics in gases[J]. *Optica*, 2016, 3(1): 75-81.
- [81] Rothhardt J, Krebs M, Hädrich S, et al. Absorption-limited and phase-matched high harmonic generation in the tight focusing regime[J]. *New Journal of Physics*, 2014, 16(3): 033022.
- [82] Heyl C M, Güdde J, L'Huillier A, et al. High-order harmonic generation with μJ laser pulses at high repetition rates[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2012, 45(7): 074020.
- [83] Harth A, Guo C, Cheng Y C, et al. Compact 200 kHz HHG source driven by a few-cycle OPCPA[J]. *Journal of Optics*, 2018,

- 20(1): 014007.
- [84] Takahashi E J, Nabekawa Y, Midorikawa K. Low-divergence coherent soft X-ray source at 13 nm by high-order harmonics[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 84(1): 4-6.
- [85] Fienup J R. Phase retrieval algorithms: a comparison[J]. *Applied Optics*, 1982, 21(15): 2758-2769.
- [86] Abbe E. Beiträge zur theorie des mikroskops und der mikroskopischen wahrnehmung[J]. *Archiv Für Mikroskopische Anatomie*, 1873, 9(1): 413-468.
- [87] Spence J C H, Weierstall U, Howells M. Coherence and sampling requirements for diffractive imaging[J]. *Ultramicroscopy*, 2004, 101(2/3/4): 149-152.
- [88] 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.
- [89] Tadesse G K, Klas R, Demmler S, et al. High speed and high resolution table-top nanoscale imaging[J]. *Optics Letters*, 2016, 41(22): 5170-5173.
- [90] Gardner D F, Zhang B S, Seaberg M D, et al. High numerical aperture reflection mode coherent diffraction microscopy using off-axis apertured illumination[J]. *Optics Express*, 2012, 20(17): 19050-19059.
- [91] Shanblatt E R, Porter C L, Gardner D F, et al. Quantitative chemically-specific coherent diffractive imaging of reactions and diffusion at buried interfaces using a tabletop EUV nanoscope[C]// *Computational Optical Sensing and Imaging 2016*, July 25-28, 2016, Heidelberg, Germany. Washington, DC: OSA, 2016: CT4C.1.
- [92] Zürich M, Foertsch S, Matzas M, et al. Cancer cell classification with coherent diffraction imaging using an extreme ultraviolet radiation source[J]. *Journal of Medical Imaging*, 2014, 1(3): 031008.
- [93] 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.
- [94] Huijts J, Fernandez S, Gauthier D, et al. Broadband coherent diffractive imaging[J]. *Nature Photonics*, 2020, 14: 618-622.
- [95] Winthrop J T, Worthington C R. X-ray microscopy by successive Fourier transformation[J]. *Physics Letters*, 1965, 15(2): 124-126.
- [96] Sandberg R L, Raymondson D A, La-O-Vorakiat C, et al. Tabletop soft-X-ray Fourier transform holography with 50 nm resolution[J]. *Optics Letters*, 2009, 34(11): 1618-1620.
- [97] Tadesse G K, Eschen W, Klas R, et al. High resolution XUV Fourier transform holography on a table top[J]. *Scientific Reports*, 2018, 8(1): 8677.
- [98] Guizar-Sicairos M, Fienup J R. Holography with extended reference by autocorrelation linear differential operation[J]. *Optics Express*, 2007, 15(26): 17592-17612.
- [99] Gauthier D, Guizar-Sicairos M, Ge X, et al. Single-shot femtosecond X-ray holography using extended references[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(9): 093901.
- [100] Abbey B, Whitehead L W, Quiney H M, et al. Lensless imaging using broadband X-ray sources[J]. *Nature Photonics*, 2011, 5: 420-424.
- [101] Whitehead L W, Williams G J, Quiney H M, et al. Diffractive imaging using partially coherent X rays[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(24): 243902.
- [102] Thibault P, Dierolf M, Menzel A, et al. High-resolution scanning X-ray diffraction microscopy[J]. *Science*, 2008, 321(5887): 379-382.
- [103] Maiden A M, Rodenburg J M. An improved ptychographical phase retrieval algorithm for diffractive imaging[J]. *Ultramicroscopy*, 2009, 109(10): 1256-1262.
- [104] Seaberg M D, Zhang B S, Gardner D F, et al. Tabletop nanometer extreme ultraviolet imaging in an extended reflection mode using coherent Fresnel ptychography[J]. *Optica*, 2014, 1(1): 39-44.
- [105] Zhang B S, Gardner D F, Seaberg M D, et al. High contrast 3D imaging of surfaces near the wavelength limit using tabletop EUV ptychography[J]. *Ultramicroscopy*, 2015, 158: 98-104.
- [106] Baksh P D, Ostrčil M, Kim H S, et al. Wide-field broadband extreme ultraviolet transmission ptychography using a high-harmonic source[J]. *Optics Letters*, 2016, 41(7): 1317-1320.
- [107] Baksh P D, Ostrčil M, Miszczak M, et al. Quantitative and correlative extreme ultraviolet coherent imaging of mouse hippocampal neurons at high resolution[J]. *Science Advances*, 2020, 6(18): eaaz3025.
- [108] Mamezaki D, Harada T, Nagata Y, et al. Imaging performance improvement of coherent extreme-ultraviolet scatterometry microscope with high-harmonic-generation extreme-ultraviolet source[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2017, 56(6S1): 06GB01.
- [109] Nagata Y, Harada T, Watanabe T, et al. At wavelength coherent scatterometry microscope using high-order harmonics for EUV mask inspection[J]. *International Journal of Extreme Manufacturing*, 2019, 1(3): 032001.
- [110] Tanksalvala M, Porter C L, Esashi Y, et al. Nondestructive, high-resolution, chemically specific 3D nanostructure characterization using phase-sensitive EUV imaging reflectometry [J]. *Science Advances*, 2021, 7(5): eabd9667.
- [111] Mancini G F, Karl R M, Shanblatt E R, et al. Colloidal crystal order and structure revealed by tabletop extreme ultraviolet scattering and coherent diffractive imaging[J]. *Optics Express*, 2018, 26(9): 11393-11406.
- [112] Huang D, Swanson E A, Lin C P, et al. Optical coherence tomography[J]. *Science*, 1991, 254(5035): 1178-1181.
- [113] Fuchs S, Blinne A, Rödel C, et al. Optical coherence tomography using broad-bandwidth XUV and soft X-ray radiation[J]. *Applied Physics B*, 2012, 106(4): 789-795.
- [114] Fuchs S, Wünsche M, Nathanael J, et al. Optical coherence tomography with nanoscale axial resolution using a laser-driven high-harmonic source[J]. *Optica*, 2017, 4(8): 903-906.
- [115] Wiesner F, Wünsche M, Reinhard J, et al. Material-specific imaging of nanolayers using extreme ultraviolet coherence tomography[J]. *Optica*, 2021, 8(2): 230-238.
- [116] 戴晨, 汪洋, 缪志明, 等. 基于飞秒激光与物质相互作用的高次谐波产生及应用[J]. *激光与光电子学进展*, 2021, 58(3): 0300001. Dai C, Wang Y, Miao Z M, et al. Generation and application of high-order harmonics based on interaction between femtosecond laser and matter[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2021, 58(3): 0300001.
- [117] 董嘉豪, 梁青青, 许亮, 等. 气体高次谐波产生中的角动量守恒 [J]. *激光与光电子学进展*, 2023, 60(15): 1526001. Dong J H, Liang Q Q, Xu L, et al. Angular momentum conservation for high-harmonic generation in gases[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2023, 60(15): 1526001.
- [118] 谢端, 银燕, 周泓宇. 基于强激光与等离子体波导激发高亮度、圆偏振高次谐波理论研究 [J]. *光学学报*, 2022, 42(21): 2114001. Xie D, Yin Y, Zhou H Y. Theoretical investigation of high-brightness and circularly polarized high-order harmonics excited by intense laser and plasma waveguide[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(21): 2114001.
- [119] Keunecke M, Möller C, Schmitt D, et al. Time-resolved momentum microscopy with a 1 MHz high-harmonic extreme ultraviolet beamline[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2020, 91(6): 063905.
- [120] Hütten K, Mittermair M, Stock S O, et al. Ultrafast quantum control of ionization dynamics in krypton[J]. *Nature Communications*, 2018, 9: 719.
- [121] González-Castrillo A, Martín F, Palacios A. Quantum state holography to reconstruct the molecular wave packet using an attosecond XUV-XUV pump-probe technique[J]. *Scientific Reports*, 2020, 10(1): 12981.

High Harmonic Extreme Ultraviolet Light Source with High Repetition Rate and Power

Wei Zijuan¹, Gao Xize¹, Meng Xiangyu¹, Li Zhengyan^{1,4*}, Zhang Qingbin^{2,4},
Lan Pengfei^{2**}, Lu Peixiang^{3,4***}

¹*School of Optical and Electronic Information, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, Hubei, China;*

²*School of Physics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, Hubei, China;*

³*Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, Hubei, China;*

⁴*Optics Valley Laboratory, Wuhan 430074, Hubei, China*

Abstract

Significance As a desktop-level extreme ultraviolet (EUV) coherent light source, high harmonic generation (HHG) becomes an indispensable tool in fundamental science fields such as atomic and molecular physics, biomedicine, materials chemistry, and precision spectroscopy. The maximum photon energy of high harmonics in gas extends to the soft X-ray spectral range. Based on the appropriate gating technique of high harmonics, it is possible to generate isolated attosecond pulses with tens of attoseconds pulse widths, providing feasibility for the study of electron motion in atomic and molecular systems on the attosecond time scale. In addition to being critical in basic science, HHG also serves as a coherent light source with wide industrial applications, especially in integrated circuit manufacturing and imaging detection in biomedicine. High harmonic extreme ultraviolet light sources for industrial applications require both high photon energy (100–500 eV) and higher average power (above mW). To obtain a shorter wavelength high harmonic, the mid-infrared femtosecond laser, combined with nonlinear pulse compression technology, realizes the output of keV photon energy harmonics. The shorter wavelength aids in improving imaging resolution and covering the absorption edge of high atomic number materials, which can be used for extreme ultraviolet spectrum analysis. To improve the average power of higher harmonics, it is better on one hand to use the higher repetition rate and higher power driving laser. On the other hand, improving the conversion efficiency of high harmonics is necessary, which can be realized by controlling the macroscopic propagation process of high harmonics to achieve phase matching.

Progress In this study, we focus on the process of producing high harmonics directly in a single pass driven by high repetition rate lasers, and introduce the progress in repetition rate, single pulse energy, and average power improvement of HHG extreme ultraviolet light sources. The paper organizes in the following way: after a brief introduction in the first section, which includes the HHG three-step model, the second section reviews the work on HHG sources driven by high repetition rate lasers in recent years, with the femtosecond fiber laser being the main pump source for producing high repetition rate HHG. The main parameters from these experiments are listed in Table 1. With the development of femtosecond fiber laser techniques, such as nonlinear compression, coherent combination, and optical parametric chirped pulse amplification (OPCPA), high harmonic sources are evolving towards higher photon flux, higher cutoff photon energy, and higher repetition rates. Figures 1 and 2 present the experimental device diagrams and spectra of two significant high repetition HHG works. Figure 3 shows the distribution of the main optical parameters of HHG extreme ultraviolet sources driven by the most advanced fiber laser described in this section.

The third section discusses the key to improving high harmonic conversion efficiency, namely, phase matching in the macroscopic propagation process of HHG. By discussing the wave vector mismatch between the fundamental field and the high harmonic field, we determine how the phase-matched HHG photon energy threshold is influenced by different gas medium types, wavelengths, and pulse lengths of the driving laser, as shown in Fig. 4. Considering the effect of nonlinear gas medium absorption, the effective phase matching conditions are presented in Fig. 5. We introduce the scaling law that keeps HHG conversion efficiency constant by adjusting the global physical quantity under different focusing conditions, which is well utilized in the HHG experimental parameters design under tight focusing conditions for femtosecond fiber or disk lasers with high average power and relatively small pulse energy, as listed in Table 2. Then, combined with effective phase matching conditions and the scaling law, the macroscopic propagation process of two different bands of HHG in high-repetition-rate experiments is briefly discussed, as illustrated in Figs. 6 and 7.

In section four, we introduce the main imaging technologies based on the extreme ultraviolet HHG source currently in use. Three different coherent diffraction imaging (CDI) techniques, conventional CDI for isolated samples, Fourier-transform holography (FTH), and ptychography are discussed in this section, as shown in Fig. 8. The phase retrieval algorithm in the standard data processing procedure for CDI is also briefly introduced, as shown in Fig. 9. Finally, we discuss EUV coherence tomography (ECT) technology used for object depth information detection. Figures 10 and 11 are sample reconstructions of ptychography and ECT, respectively.

Conclusions and Prospects With the advancement of high repetition rate and high power femtosecond laser technology, the repetition rate and photon flux of high harmonic sources continuously improve. The limitations of high power femtosecond fiber and solid-state lasers, such as long pulse widths, low single pulse energy, and narrow tuning ranges, are being overcome compared to the traditional Ti:sapphire solid-state femtosecond laser. Various nonlinear compression techniques enable the compression of femtosecond fiber laser pulse widths to just a few cycles. With coherent combination technology, the pulse energy of high repetition rate femtosecond lasers can reach the tens of mJ level. OPCPA technology allows for tuning the driving laser wavelength over a wide range. By controlling the laser intensity and wavelength at the single-atom response level, and adjusting the self-absorption and phase matching of high harmonics during the macroscopic propagation process, new laser technologies now enable the production of extreme ultraviolet coherent light sources with the highest average power of 10 mW, the maximum photon energy of 100 eV, and the highest repetition rate of tens of MHz. Through high-repetition and high-flux extreme ultraviolet coherent sources, HHG is branching into various application scenarios beyond the scientific research laboratory, especially in the field of imaging detection. Coherent diffraction imaging and coherent tomography can achieve high spatial and material resolution of nanoscale three-dimensional structures, both transversely and longitudinally. Consequently, imaging technology and instruments based on the high photon flux HHG source are anticipated to find applications in the fields of integrated circuit manufacturing, nanomaterials, biomedicine, and more.

Key words nonlinear optics; high harmonic generation; extreme ultraviolet light source; femtosecond laser; extreme ultraviolet imaging detection