

毛细管放电 46.9 nm 极紫外激光应用研究进展

崔怀愈^{1,2}, 申玉杰¹, 赵东迪¹, 安博¹, 赵永蓬^{1,2*}¹哈尔滨工业大学光电子信息科学与技术系, 黑龙江 哈尔滨 150080;²哈尔滨工业大学可调谐激光技术国家级重点实验室, 黑龙江 哈尔滨 150080

摘要 毛细管放电极紫外激光是一种小型化的纳秒极紫外激光光源。相比自由电子激光和同步辐射等短波长光源,该光源具有运行成本低、单脉冲能量高和机时充足等显著优势。随着毛细管放电极紫外激光光源的发展,其输出已提高至深度饱和区,并且实现了重复频率输出、多波长输出等多样化输出方式。小型化的灵活性和优质的输出参数使其逐渐成为进行极紫外激光应用研究的理想光源。本文介绍了自 1994 年毛细管放电极紫外激光成功输出至今,该光源在微纳结构加工、物质成分检测、生物科学以及高分辨成像等领域的前沿应用。在微纳加工方面,极短的波长和极小的能量衰减深度使得该光源能够在纳米量程内进行材料的刻蚀。同时,较长的激光脉宽增加了极紫外激光诱导自组织微纳结构的可能性。在物质成分检测方面,极紫外激光的高能量光子能够以单光子电离材料表面,结合飞行时间质谱仪测量纳米尺度范围内的材料成分,便可实现超高分辨的物质组成分布检测。在生物科学领域,极紫外激光能够实现对微生物样本的三维成分扫描,获得更多的表征信息。在高分辨成像方面,基于极紫外激光的短波长和良好的相干性,以 Gabor 同轴等方法进行高分辨成像能达到接近照明光水平的成像分辨率。已有的应用成果表明,毛细管放电极紫外激光是探索微观世界、制造微观结构的有力工具。在人类对短波长光源需求日益增长的今天,毛细管放电极紫外激光将有更多的机会展现它的应用价值和优势。

关键词 激光技术; 极紫外激光; 毛细管放电; 激光微纳加工; 高分辨成像; 质谱检测

中图分类号 O436

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230867

1 引 言

激光的诞生是人类科学史上的一次重大飞跃。几兆亿(甚至更多)同一模式光子的集合使得激光成为“最亮的光”、“最快的刀”和“最准的尺”。激光光源和相关技术的快速发展促进了军事、民生和基础前沿科学等领域的大量突破性进展。例如,近期,人类首次以激光轰击靶丸的方式实现了惯性约束核聚变反应的净能量增益,向可控核聚变迈出了关键的一步^[1]。各类激光所能触及到的应用领域与激光光源的输出参数有着密不可分的联系。当激光输出波长缩短至极紫外和 X 射线波段时,光源输出的光子能量极高且衍射极限极度减小,因而这种短波长激光光源可应用于微纳米尺度的成像和测量^[2-3]、高温高密度等离子体诊断^[4]、高分辨纳米结构生成^[5]等一系列前沿科研工作中,是人类探索微观世界的有力工具。

波长的缩短给激光的产生带来了很多困难。首先,为了获得极紫外至 X 射线波段输出,激光器的泵浦功率密度将呈指数上升,从而对泵浦源提出了极高要求。另外,短波长激光上能级的寿命短(针对利用束缚

电子跃迁实现激光输出的方案),缩短了增益介质中粒子数反转的持续时间,从而使得激光的产生条件更为苛刻。同时,由于光子能量高,材料对这一波段的反射率(尤其是在接近正入射的情况下)低,不易找到合适的材料将其加工成反射镜(组建谐振腔),进而很难实现极紫外至 X 射线波段激光的振荡输出,因此该波段的激光产生主要以单程自发辐射光放大为主。为获得短波长激光输出,世界各国科学家投入了大量的人力物力,举全国之力甚至举几国之力建造了数台大型短波长激光光源,如:美国加州的 LCLS^[6]和 LCLS-II^[7],我国的先进短波激光光源——X 射线波段的“SXFEL”和极紫外波段的“大连光源”等^[8-9]。目前,在这类大型短波长激光光源上所完成的科研成果在一定程度上代表着人类对物质本质最前沿的探索和最深刻的理解。

大型短波长激光光源能够实现优质的激光输出,从而催生可观的科研成果;但其具有运行成本高、操作过程复杂等弊端,很难满足对激光使用机时需求较高的基础科学应用研究。在这种情况下,小型化短波长激光产生机制受到了科学家的重视。迄今为止,小型

收稿日期: 2023-05-29; 修回日期: 2023-06-29; 录用日期: 2023-08-11; 网络首发日期: 2023-08-15

基金项目: 国家自然科学基金(62005066, 61875045)

通信作者: *zhaoy3@hit.edu.cn

极紫外激光主要通过电子碰撞激发机制和复合激发机制这两种方案实现。毛细管放电泵浦产生极紫外激光的电子碰撞激发机制主要有以下几方面优点:1) 可以产生高质量的增益介质,这得益于毛细管对等离子体增益介质的约束;2) 能量转换效率更高,这是因为毛细管放电能够使电脉冲能量更加高效地耦合到增益介质中;3) 毛细管放电设备更容易实现小型化,装置的运行费用和维护费用都较低。因此,毛细管放电泵浦方案是实现小型化极紫外激光的主要方案。该方案最早的研究主要是围绕类氩氩 46.9 nm 激光开展的。1994 年,美国的 Rocca 小组^[10]首次实现了基于毛细管放电方案的 46.9 nm 激光输出,证实了该方案的可行性。随后,该小组先后实现了 46.9 nm 激光的毫瓦量级功率输出以及 12 Hz 重复频率输出^[11-12]。2001 年,以色列一研究小组在 Rocca 小组之后利用相同的泵浦方案实现了 46.9 nm 激光输出^[13],之后该小组对 46.9 nm 激光的输出特性进行了系统研究^[14]。2001 年,日本的 Hotta 小组同样观测到了 46.9 nm 激光^[15],随后该小组将重点转向利用复合机制产生更短波长的激光。2002 年,意大利的 Tomassetti 小组报道了 46.9 nm 激光的成功输出^[16];随后,他们通过优化,使输出能量达到 300 μJ ^[17]。2006 年,俄罗斯的 Gafarov 小组获得 46.9 nm 激光输出^[18]并深入分析了预脉冲电流对增益介质的影响^[19]。之后,马来西亚、捷克、匈牙利和印度的研究人员分别利用毛细管放电机成功输出了 46.9 nm 激光,并针对激光的特性进行了不同程度的优化^[20-25]。2004 年,我国科研人员利用毛细管放电机实现了 46.9 nm 激光输出,使得我国成为继以色列之后第 5 个通过毛细管放电获得 46.9 nm 激光的国家^[26]。目前,46.9 nm 激光已达深度饱和,其单脉冲输出能量可达到毫焦级^[27]。

在成功获得 46.9 nm 激光之后,国内外研究人员尝试利用毛细管放电方案产生其他波长的激光。如:1997 年,Rocca 小组^[28]获得了类氩硫 60.8 nm 激光输出;2000 年,该小组报道了类氩氮 52.9 nm 激光输出,并获得了 0.5~1.0 Hz 的重复频率输出^[29];2009 年,日本一研究小组在理论上对类氢氮 13.4 nm 激光的产生进行了初步探讨^[30],但由于该方案利用毛细管放电实现复合机制的激光输出,工作难度较大。2008 年,捷克一研究小组论证了利用毛细管放电产生小于 15 nm 激光的可能性,并进行了相关的理论计算^[31]。2011 年,我国在优化的毛细管放电装置上成功实现了 69.8 nm 和 72.6 nm 激光输出,其中的 69.8 nm 激光已达到了增益饱和,并实现了极紫外波段较难达到的多程放大输出^[32-33]。

由毛细管放电极紫外激光光源方面的研究进展可以看出,虽然毛细管放电泵浦可以产生除 46.9 nm 以外的波长,但是光源的稳定输出和较高的输出能量是激光应用的前提,其他波长的激光由于输出能量较低、

激光特性不稳定等原因尚未投入到极紫外激光的应用研究中,因此毛细管放电泵浦极紫外激光应用方面的工作仅限于在 46.9 nm 这一波长上开展。随着多年的深入研究,毛细管放电 46.9 nm 激光在输出能量、相干性、多波长输出等多方面都有了大幅度提高^[34-38],使得毛细管放电 46.9 nm 激光光源成为了极紫外激光应用研究的理想光源。但是毛细管放电泵浦机制对泵浦源的要求极高,导致这一小型化的短波长激光光源并未普及,我国也仅有哈尔滨工业大学自主研发的两台毛细管放电极紫外激光器。目前,国际上报道的利用毛细管放电 46.9 nm 激光进行相关应用研究的科研成果主要来自拥有稳定光源的美国、捷克和中国等国家。利用该光源,国内外相关研究小组在微纳结构加工、物质成分检测和高分辨成像等方面均取得了突破性进展。

2 46.9 nm 极紫外激光在微纳结构加工方面的应用进展

2.1 激光直写式微纳结构加工

在毛细管放电极紫外激光稳定输出并达到增益饱和后,科学家们首先想到的应用场景是直写式微纳结构加工。这是因为极紫外激光的波长短,理论上能够聚焦出更小尺寸的光斑,进而可以实现更高分辨率的刻蚀。但是由于物质对这一波段光的吸收率极高,而且对这一波段光的折射率接近于 1,因而几乎所有基于光透射和折射现象的聚焦方式都无法应用于极紫外波段。为获得光学畸变较小的聚焦光斑,可以选取折射率不同的两种物质通过交替沉积形成多层膜来获得较高的正入射反射率^[39]。利用毛细管放电 46.9 nm 激光进行直写式微纳结构加工的首篇报道,是美国科罗拉多州立大学的 Rocca 小组发表在 *Optics Letters* 期刊上的“Focusing of a tabletop soft-X-ray laser beam and laser ablation”。他们利用 Si/Sc 多层膜球面反射镜正入射反射聚焦 46.9 nm 激光,在黄铜靶材上实现了微米级的直写刻蚀^[40]。图 1 所示为在多层膜球面反射镜焦点前后利用重复频率为 1 Hz 的 46.9 nm 激光在连续移动的铜靶表面进行一系列刻蚀后得到的结果。虽然正入射的反射率只有 43%,但是由于聚焦的光斑尺寸很小,聚焦光斑的能量密度峰值可达到 100 J/cm^2 (根据光线追迹的方法计算得到)。

Si/Sc 多层膜在 35~50 nm 极紫外波段能够在正入射条件下获得较高的反射率,但是容易被激光损伤,尤其是当毛细管放电极紫外激光达到毫焦量级的输出能量时,极紫外辐射很容易对 Si/Sc 多层膜造成损伤,因此多层膜的损伤阈值以及损伤机理需要深入研究。经检测,Si/Sc 在 46.9 nm 激光下的损伤阈值约为 0.08 J/cm^2 ,这与 Mo/Si、W/Si 等用于更短波段的多层膜的损伤阈值相近^[41]。另外,46.9 nm 激光的单光子能量很高,理论上其对材料的损伤机理应主要为单光子

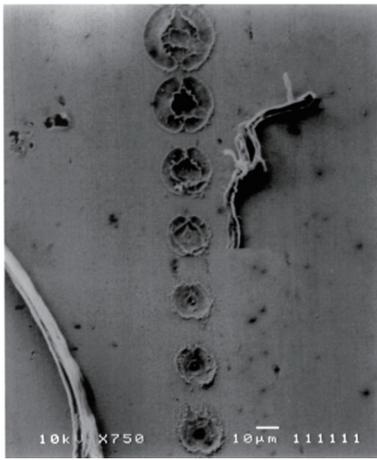


图 1 46.9 nm 激光在黄铜表面的烧蚀^[40]

Fig. 1 46.9 nm laser ablation on brass surface^[40]

电离。但在 Si/Sc 多层膜表面由 46.9 nm 激光形成的损伤区域检测到了明显的热效应。多层膜经 46.9 nm 激光烧蚀后所形成的产物与其在高温下退火处理后生成的产物是一致的,这说明 46.9 nm 激光与 Si/Sc 多层

膜作用所产生的表面高温是造成多层膜损伤的主要原因。

虽然多层膜反射镜能够获得较高的反射率,但反射率仍在 50% 以下。当极紫外激光以掠入射(入射角大于 80°)角度入射反射面时,可以获得大于 90% 的反射率,但聚焦时的光学畸变较大。图 2 所示为哈尔滨工业大学赵永蓬研究小组^[42]利用 200 个由柱面镜聚焦的 46.9 nm 激光脉冲在 Si 表面形成的烧蚀形貌以及对应的 ZEMAX 软件仿真结果。虽然光学畸变较大,但由于绝大部分激光输出能量均能够被聚焦,因此仍能在 Si 片表面形成明显的烧蚀痕迹。利用子午面和弧矢面均具有曲率的超环面镜掠入射反射聚焦 46.9 nm 激光,能够获得峰值能量密度高于柱面镜 10 倍以上的聚焦光斑,在保证反射率大于 90% 的同时获得了更好的聚焦效果^[43]。因此,从超环面镜聚焦的 46.9 nm 激光在 Si 表面产生的烧蚀形貌中可以检测到单个 46.9 nm 激光脉冲形成的烧蚀(最左侧标注“1”的位置),如图 3 所示。

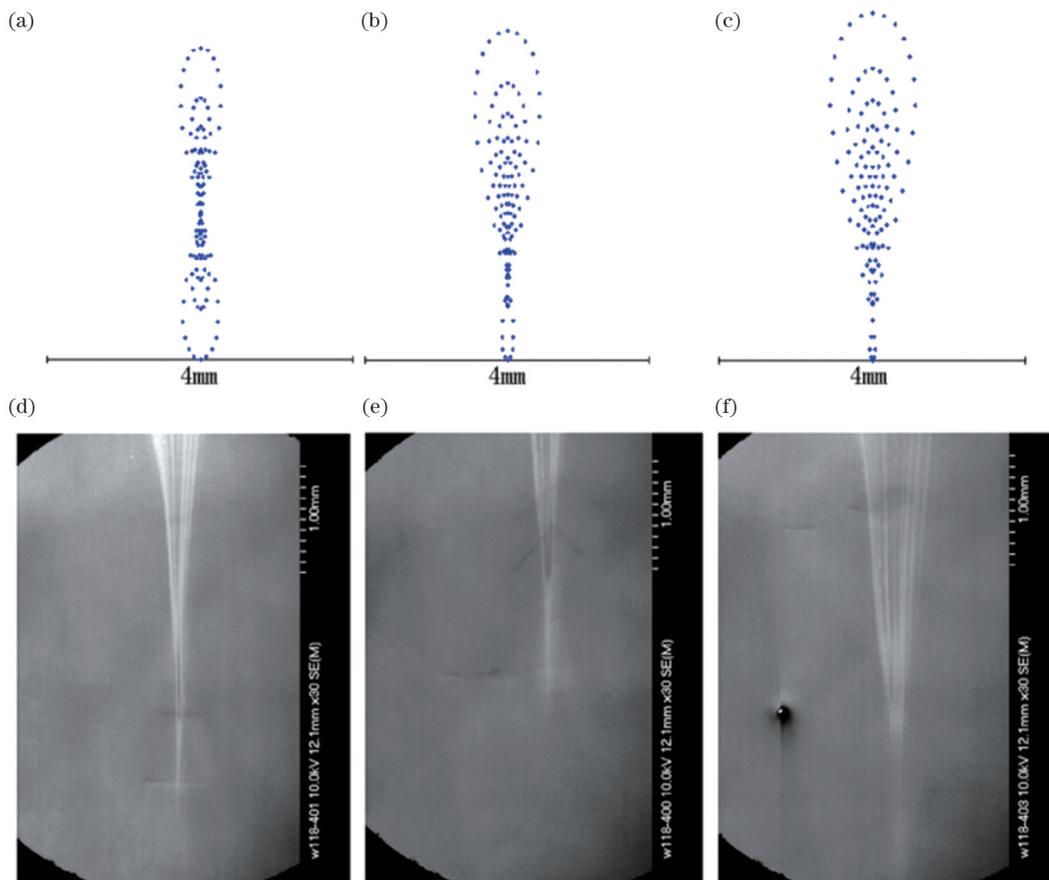


图 2 柱面镜聚焦 46.9 nm 激光的 ZEMAX 软件仿真及其在 Si 表面的烧蚀结果^[42]

Fig. 2 ZEMAX software simulation and Si surface ablation results of a 46.9 nm laser focused by a cylindrical mirror^[42]

一种能够将极紫外光聚焦到更小尺寸的方法是利用光的衍射效应进行光场调控,所使用的典型的光学元件为菲涅耳波带片(FZP)^[44]。美国的 Rocca 小组^[45]利用最外环宽度为 200 nm 的 FZP 聚焦 46.9 nm 激光,获得了直径为 230 nm 的一级衍射焦斑和直径为

170 nm 的三级衍射焦斑。由于他们所使用的 FZP 的三级衍射并未进行球差修正,因此所获得的焦斑直径比理论计算的 80 nm 大很多。光轴扫描过程中,在距离焦平面 7 μm 处获得了与理论计算值接近的直径为 82 nm 的聚焦光斑,如图 4 所示。目前,衍射法是在极

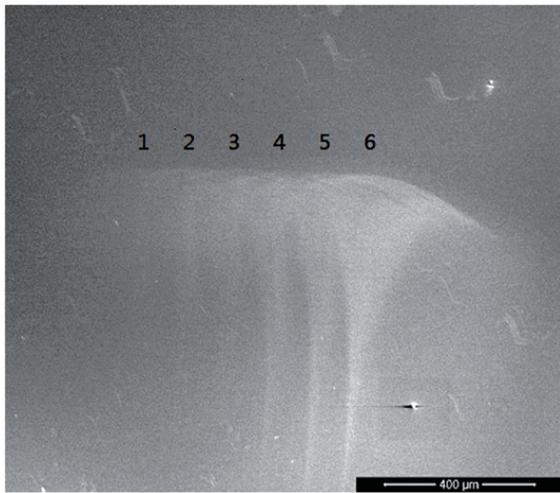


图3 超环面镜聚焦46.9 nm激光在Si表面形成的烧蚀^[43]
Fig. 3 Toroidal mirror focused 46.9 nm laser ablation formed on the Si surface^[43]

紫外波段分辨率最高的光场调控技术,调控的精细程度直接依赖于衍射型光学元件结构的最小尺寸(如FZP的最外环宽度),所以这种技术的发展依赖于材料精密加工的先进程度。目前,适用于极紫外波段的波带片的通光孔径普遍不超过1 mm,这是由于加工波带片结构的薄膜无法自支撑过大的面积。同时,波带片的衍射效率很低(上述用于聚焦46.9 nm激光的波带片的一级衍射效率约为10%)。因此,衍射型光学元件的缺点在于其无法有效地利用极紫外激光的能量,绝大部分激光能量在光场调控过程中损失掉。与光学段激光相比,极紫外激光的输出能量很低,90%以上的衰减率严重影响了衍射型光学元件在极紫外激光领域的应用。

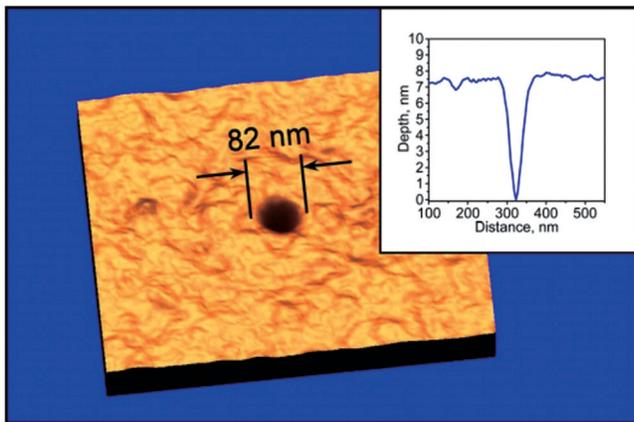


图4 距离FZP三级衍射焦平面7 μm处获得的82 nm直径的烧蚀孔^[45]
Fig. 4 Ablation hole with the diameter of 82 nm obtained at 7 μm from the focal plane of FZP^[45]

2.2 激光干涉微纳结构加工

除了聚焦单点焦斑外,利用光的干涉同样能够获得极紫外激光纳米级的光场分布。形成干涉光场的关键在于如何形成激光的振幅分割或者波前分割。洛埃

镜反射是一种简单的可以实现极紫外激光波前分割的方法,如图5所示^[46]。美国的Rocca小组通过旋转洛埃镜改变入射的46.9 nm激光与镜子的夹角,从而改变未被反射的激光 I_1 与被洛埃镜反射的激光 I_2 之间的夹角 θ ,进而根据 $d \approx \lambda / (2 \sin \theta)$ 调控干涉条纹的周期。当 θ 角调至 31° 时,在聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)光刻胶(即图5中的“sample”)上可以获得周期约为45 nm(接近波长)的类光栅纳米结构。由于该方法获得的激光干涉场没有聚焦的效果,因此需要100个激光脉冲在PMMA光刻胶的同一位置曝光才能够形成可观测条纹。理论上, θ 越大,干涉条纹的周期越小。但 θ 的增加会导致46.9 nm激光的反射率降低,从而影响刻蚀结构的清晰度和覆盖面积。在实验中,当选取 θ 角为 25° 时,获得的周期为55 nm的类光栅结构的清晰度已大幅降低,在光刻胶上形成的刻蚀深度仅为6 nm。利用干涉技术形成周期性纳米结构,其效果和干涉条纹的覆盖面积直接依赖于所用光源的时间和空间相干性。由于毛细管放电46.9 nm激光具有极好的相干性,因此能够利用干涉方法在大范围内刻蚀纳米级周期性结构。基于干涉法的激光直写加工所形成的结构的对比度与多种因素有关。如果选择比PMMA光刻胶衰减深度更长的HSQ光刻胶,则能够获得更大纵横比的纳米结构^[47]。通过正交叠加干涉条纹的刻蚀结果可以获得如图6所示的纳米点和纳米坑洞,但由于没有聚焦的效果,同样需要经过多次曝光才能在光刻胶上获得清晰的干涉图案。在刻蚀过程中,46.9 nm激光的能量密度、入射洛埃镜的角度、镜子对激光的散射以及HSQ光刻胶的显影定影条件等都会影响刻蚀的效果。

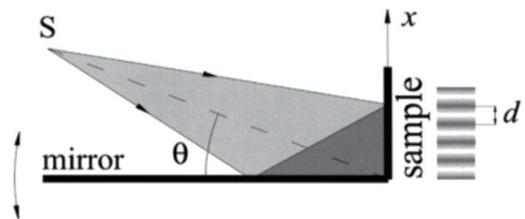


图5 洛埃镜实现波前分割的示意图^[46]
Fig. 5 Schematic diagram of the wavefront splitting achieved by the Loe mirror^[46]

相对于波前分割产生干涉场的方法,振幅分割产生的分束光在叠加时所走过的光程相同,而且来源于同一波前,因此对所调制的极紫外激光的相干性要求更低,产生的纳米结构具有更加统一和明显的衬度。利用Si膜作为支撑材料,通过电子束刻蚀的方法在附于Si膜上的光刻胶上构造出透射光栅结构,然后利用+1和-1级衍射光就可以对46.9 nm激光实现振幅分割的目的^[48]。46.9 nm激光被分束后,再经Si片掠入射反射,便可在光束传播下游形成周期约为95 nm的类光栅结构。

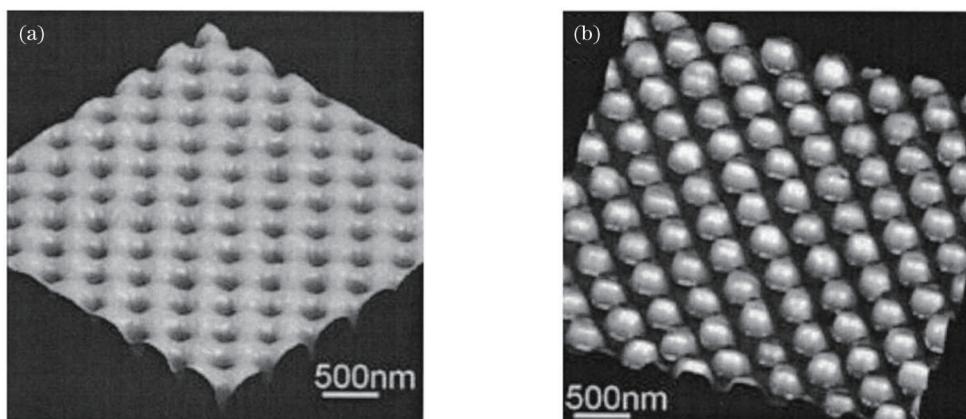


图 6 基于干涉法刻蚀的纳米坑洞和纳米点^[47]。(a)纳米坑洞;(b)纳米点

Fig. 6 Nanopits and nanodots based on interferometric etching^[47]. (a) Nanopits; (b) nanodots

近期,哈尔滨工业大学发布了一种利用管状光学元件同时实现 46.9 nm 激光干涉和聚焦的方法^[49]。如图 7 所示,利用管状光学元件抛物面型的内表面聚焦 46.9 nm 激光,调整光轴与元件中心轴具有一定夹角,使 46.9 nm 激光同时被聚焦和干涉,从而获得了

峰值能量密度更高的干涉条纹。利用高分辨率光刻胶记录干涉条纹,只需单次曝光即可刻蚀出边界清晰的周期在百纳米的类光栅结构,如图 8 所示。同时,通过调整激光与元件的夹角,可以实现对类光栅结构周期的调制。

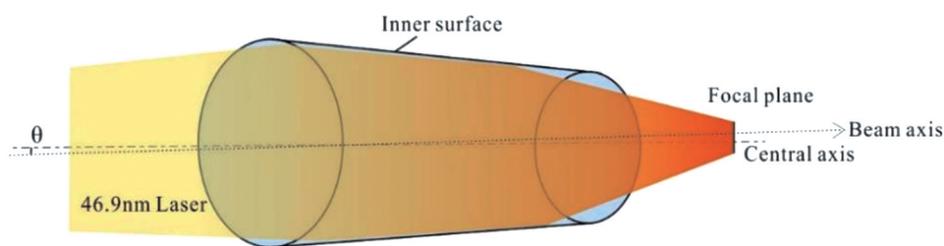


图 7 管状光学元件示意图^[49]

Fig. 7 Schematic diagram of the tubular optical element^[49]

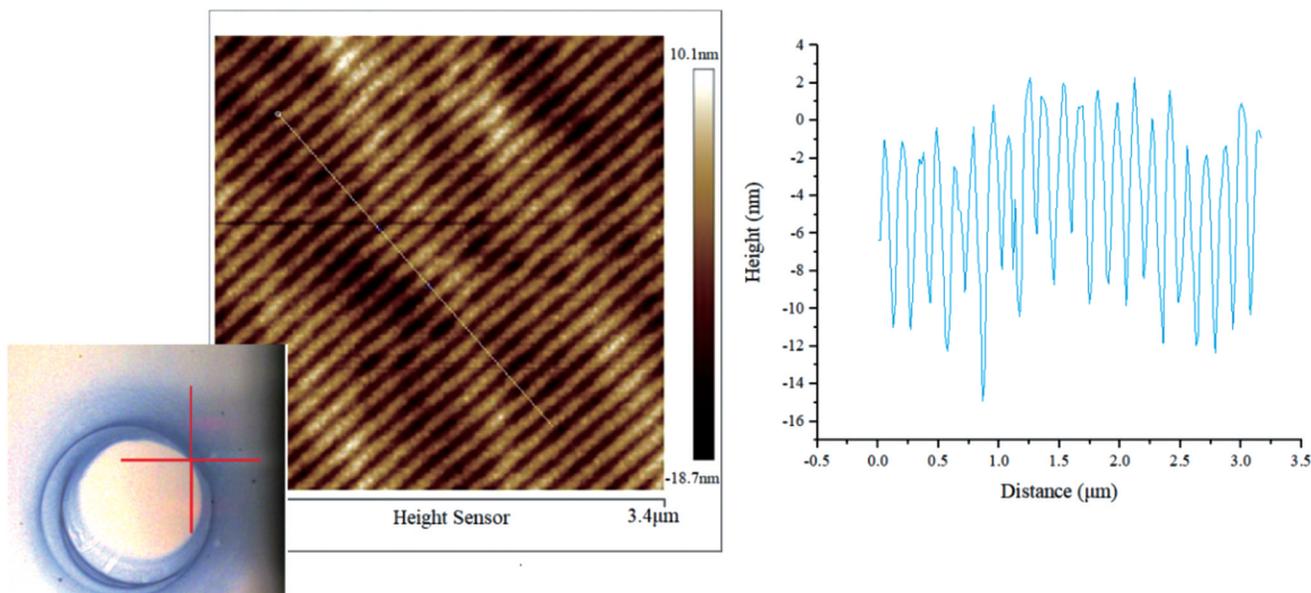


图 8 带有聚焦效果的 46.9 nm 激光的干涉刻蚀结果^[49]

Fig. 8 Focused interference etching by 46.9 nm laser^[49]

在 46.9 nm 激光微纳结构加工方面还有一个有趣的报道,即美国 Rocca 小组^[50]根据 Talbot 效应实现的周期性图像自修复,如图 9 所示。图 9(a)为周期性图

案的掩模样品,中间的图案与周期性图案不同,被当作是掩模的缺陷图案。根据 Talbot 效应,自成像面经过 300 个 46.9 nm 激光脉冲的曝光后形成与掩模样品图

案相同的成像结果[如图 9(b)所示],唯一的区别是掩模中心原本的缺陷消失了,取而代之的是正常的图案。这就是 Talbot 自成像的缺陷修复,其原理是光经过掩模后各衍射分量之间再次相互干涉而形成的成像关系。利用 46.9 nm 激光照明周期性掩模,当缺陷率为 0.01% 和 1% 时均能实现缺陷自修复的微纳刻蚀。这种程度的缺陷率远高于实际光刻过程中所用掩模的缺陷容忍率,因此,可以利用这种技术来降低极紫外激光刻蚀周期性结构过程中的缺陷率。当所用掩模存在一定缺陷时,仍能在刻蚀面上得到完整的高分辨率加工

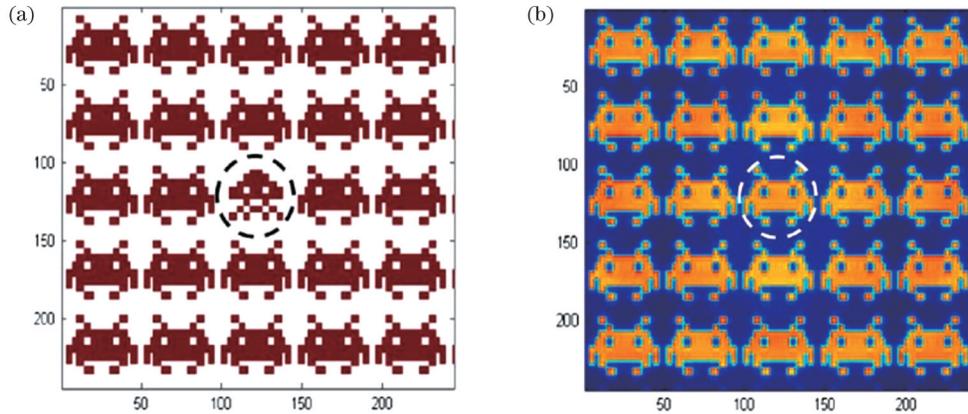


图 9 基于 Talbot 效应的周期性图像自修复^[50]。(a)掩模;(b)刻蚀结果

Fig. 9 Periodic image self-healing based on Talbot effect^[50]. (a) Mask; (b) etched result

2.3 激光诱导自组织微纳结构加工

与以上两种加工方式相比,自组织微纳结构的最小尺寸并不完全取决于激光的波长。自组织微纳结构是激光与材料相互作用后的产物,其形态取决于材料对激光辐照的反应行为。因此,该类结构的形貌、尺寸与激光以及材料的特性均有较大的关系,在一定程度上增加了自组织微纳结构的可调节性。毛细管放电 46.9 nm 激光与物质相互作用的过程较为复杂^[51]。一方面,46.9 nm 激光的波长短,单光子能量能够电离任意的原子和分子,因此光致电离是 46.9 nm 激光对材料的损伤机理之一;另一方面,相比于飞秒激光,46.9 nm 激光的脉宽很长,激光的损伤中同样有热效应的贡献^[52-53]。基于这一复杂过程,46.9 nm 激光与特定材料相互作用会诱导出自组织微纳结构。

2.3.1 46.9 nm 激光的损伤机理

由于自组织微纳结构的生成取决于 46.9 nm 激光与不同材料相互作用的过程。因此,46.9 nm 激光的损伤机理,尤其是 46.9 nm 激光与其他类型激光损伤机理的差异,是诱导自组织微纳结构研究中的基础问题。研究表明,46.9 nm 激光与聚四氟乙烯(PTFE)、聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)和聚酰亚胺(PI)三种有机材料相互作用时,材料的表现与更长波段激光作用下材料的表现差别很大^[54]。人们在 46.9 nm 激光与 157 nm 激光的对比实验中发现,157 nm 激光在三种有机材料中的衰减深度差异很大,如表 1 所示。当 157 nm 激光与

结果。

利用 46.9 nm 激光进行光场调控刻蚀纳米结构,在生物、微电子等领域具有广阔的应用前景,而 46.9 nm 激光在其中的优势是波长的缩短意味着可刻蚀的纳米尺寸更小。另外,相比于其他产生机制的极紫外激光而言,输出能量的提高能够弥补光场调控过程中损失的大量激光能量。虽然光场调控能够获得纳米级结构,但其所能加工的结构的最小尺寸被 46.9 nm 激光的衍射极限所限制,不能满足人类对于更小加工结构的需求。

上述三种有机材料相互作用时,烧蚀速率随着 157 nm 激光在三种材料中衰减深度的降低而降低。而 46.9 nm 激光在三种材料中的衰减深度处于同一量级,并且都在 20 nm 以内。这表明,在 46.9 nm 激光与三种有机材料相互作用过程中,绝大部分激光能量沉积在材料表面下方极薄的薄层内,表现为材料对 46.9 nm 激光能量的强烈吸收。在这种衰减深度条件下,三种有机材料在与 46.9 nm 激光相互作用过程中的烧蚀速率也保持着相近的数值。

表 1 46.9 nm 激光和 157 nm 激光在 PTFE、PMMA 和 PI 中的衰减深度以及这三种材料的烧蚀速率^[54]

Table 1 Decay depth of 46.9 nm and 157 nm laser in PTFE, PMMA and PI and the ablation rate of the three kinds of materials^[54]

Polymer	Ablation ration / (nm/pulse)		Attenuation length /nm	
	46.9 nm ($\phi \approx 1 \text{ J}/\text{cm}^2$)	157 nm ($\phi \approx 300 \text{ mJ}/\text{cm}^2$)	46.9 nm	157 nm
PTFE	83	370	12	172
PMMA	87	260	19	117
PI	88	150	16	79

长波长激光与有机材料相互作用时,烧蚀速率 d 与损伤阈值 ϕ_m 之间的关系为

$$d = \frac{1}{\alpha} \ln \left(\frac{\phi}{\phi_{th}} \right), \quad (1)$$

式中： α 为材料的吸收系数； ϕ 为激光的能量密度。
图 10 所示为 46.9 nm 激光对三种材料的烧蚀速率随激光能量密度的变化，其变化的规律并不符合上述关系。根据这些差异可以判断，46.9 nm 激光与长波长激光对有机材料的损伤机理有本质上的差异。根据同步辐射等极紫外光源的相关研究结果^[55-59]以及 46.9 nm 激光的特性，有机材料在 46.9 nm 激光作用下所形成的损伤主要源于材料吸收高光子能量后导致的聚合链断裂。这一过程以非热效应为主，只有一小部分激光能量对热效应有贡献，这一结论与 York 大学研究人员利用流体力学代码 POLLUX 计算分析得到的 46.9 nm 激光的损伤机理是相符的^[51]。

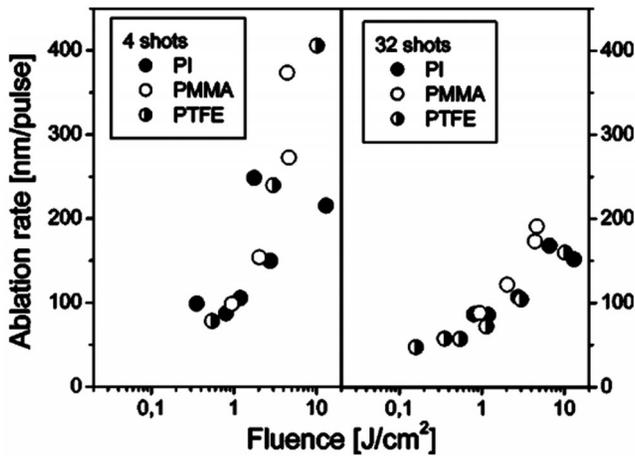


图 10 不同能量密度及脉冲发次下 46.9 nm 激光对三种材料的烧蚀速率^[54]

Fig. 10 Ablation rate of the three kinds of materials by 46.9 nm laser at different fluences and pulse numbers^[54]

对于 46.9 nm 激光对有机材料是否有明确的损伤阈值这一问题也是值得讨论的。捷克科学院对 46.9 nm 激光与无定形碳膜的相互作用进行了研究，他们发现：当激光能量密度低于计算的单脉冲损伤阈值时^[60]，如果增加烧蚀的激光脉冲发次，同样能够对碳膜形成可见的损伤^[61]。对烧蚀区域进行拉曼光谱检测后发现没有其他结构的碳物质生成，这意味着 46.9 nm 激光对碳膜的损伤源于光子能量对碳碳键的破坏。这种原子量级的去除是 46.9 nm 激光在材料加工上的优势，同时也意味着测量损伤的仪器的分辨率决定了 46.9 nm 激光损伤材料的能量密度阈值。因此，可将所能探测到的最低程度的损伤所对应的能量密度作为 46.9 nm 激光对相应材料的损伤阈值。近期，研究人员利用 46.9 nm 激光在 4H-SiC 表面上实现了原子级的去除^[62]，并在烧蚀区域检测到了自组织的周期性纳米结构。

激光与材料相互作用过程中会产生等离子体，因此对激光诱导等离子体的状态进行诊断是分析激光损

伤机理的有效方法。利用法拉第杯或朗缪尔探针可以探测 46.9 nm 激光诱导的等离子体^[53,63]。哈尔滨工业大学的赵永蓬课题组利用法拉第杯检测 46.9 nm 激光诱导等离子体的示意图以及检测到的电子信号分别如图 11 和图 12 所示。在法拉第杯上施加正向和负向的偏压，能够分别测量等离子体中的电子和离子信号。从图 12 所示的电子信号中可以看出，46.9 nm 激光诱导的等离子体中的电子的速度并不统一，这意味着从靶材表面喷射出的电子携带着不同的能量。若不考虑电子飞出之后的碰撞等相互作用，飞出电子的能量来源于材料吸收的 46.9 nm 激光光子的能量。因此，电子能量的不同意味着 46.9 nm 激光与靶材相互作用过程中存在多种方式的能量吸收，同时也说明了 46.9 nm 激光与靶材相互作用的复杂性。图 13 所示的朗缪尔探针检测可以根据靶材的导电性分为单针和双针检测，两种方式检测的都是靶面附近某处的等离子体信号。通过改变朗缪尔探针的偏压，可以测量得到靶面附近某处 46.9 nm 激光诱导等离子体的伏安特性曲线，从而可以计算得到该处电子的温度和密度。通

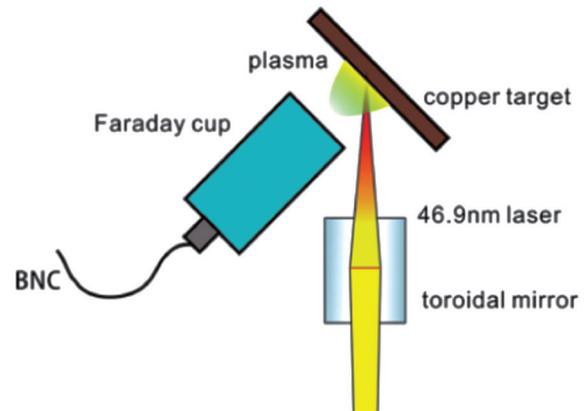


图 11 法拉第杯检测 46.9 nm 激光诱导等离子体的示意图^[53]
Fig. 11 Schematic diagram of Faraday cup detection of 46.9 nm laser-induced plasma^[53]

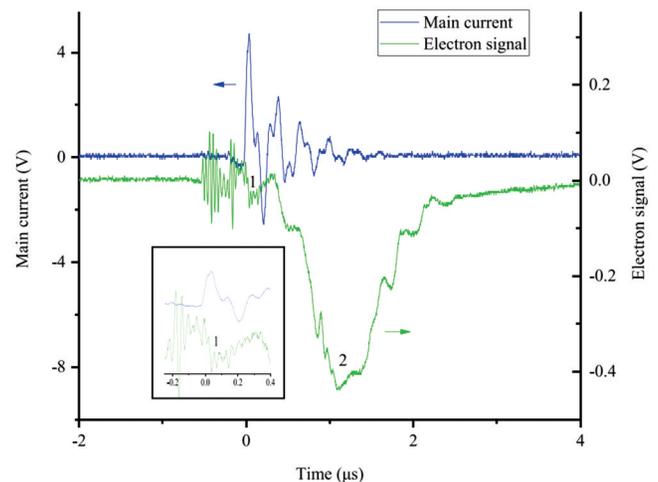


图 12 法拉第杯检测的电子信号^[53]
Fig. 12 Electronic signals detected by Faraday cup^[53]

过测量和计算可得,46.9 nm 激光诱导铯等离子体中电子的温度为 $1\sim 3$ eV,密度为 $10^{13}\sim 10^{14}$ cm^{-3} 。所测得的激光等离子体的参数,有助于定性和定量分析不同类型材料在 46.9 nm 激光作用下的损伤机理。

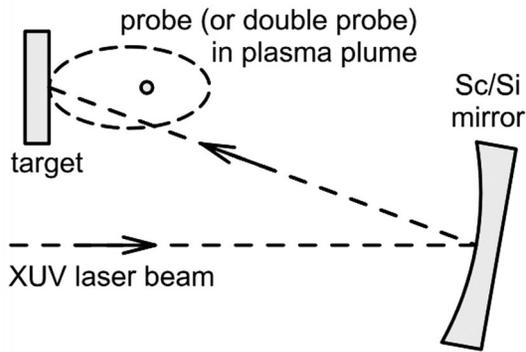


图 13 朗缪尔探针检测 46.9 nm 激光诱导等离子体的示意图^[63]
Fig. 13 Schematic representation of a Langmuir probe detecting 46.9 nm laser-induced plasma^[63]

2.3.2 46.9 nm 激光诱导的自组织微纳结构

激光诱导的自组织微纳结构可以分为三类:第一类是材料在激光辐照下从分散状态转变成的凝聚状态结构,如自组装纳米颗粒^[64-65];第二类是激光与材料表面附近的波干涉形成的周期性变化场沉积到材料表层形成的类光栅结构,如入射激光与材料表面的散射光干涉形成的经典周期性条纹^[66-67]以及入射激光与表面

等离子体干涉形成的亚波长周期性条纹^[68-69]等;第三类是激光能量在材料内部传递过程中产生的机械力与激光诱导材料表面的相变结合形成的微纳结构,如激光辐照产生的热应力在脆性离子晶体表面形成的周期性纳米条纹^[70]等。

46.9 nm 激光与材料相互作用的过程较为复杂,这使得 46.9 nm 激光诱导的自组织微纳结构的产生机理具有多样性。在 46.9 nm 激光诱导自组织微纳结构方面的研究报道中,上述三种自组织微纳结构均有所涉及。近期,在单层石墨烯的辅助下,哈尔滨工业大学赵永蓬课题组^[71]利用单脉冲 46.9 nm 激光成功地在玻璃表面诱导生成了大面积纳米颗粒,如图 14 所示,颗粒的直径和高度均小于 100 nm。从图 14 中可以清晰地看出:没有石墨烯辅助的玻璃样品在 46.9 nm 激光辐照后形成的损伤区域非常光滑,没有纳米结构或纳米颗粒生成;在单层石墨烯辅助下,玻璃样品的损伤区域内生成了密集的百纳米以下的纳米颗粒。由纳米颗粒的形成过程可知该结构属于上述第一类自组织结构。考虑到单层石墨烯能够吸收约 3% 的 46.9 nm 激光能量,这意味着在 46.9 nm 激光能量与材料进行吸收转换的过程中,调制其中极小的一部分能量即可产生完全不同的烧蚀结果,说明利用 46.9 nm 激光诱导自组织微纳结构具有非常大的研究空间和潜力。

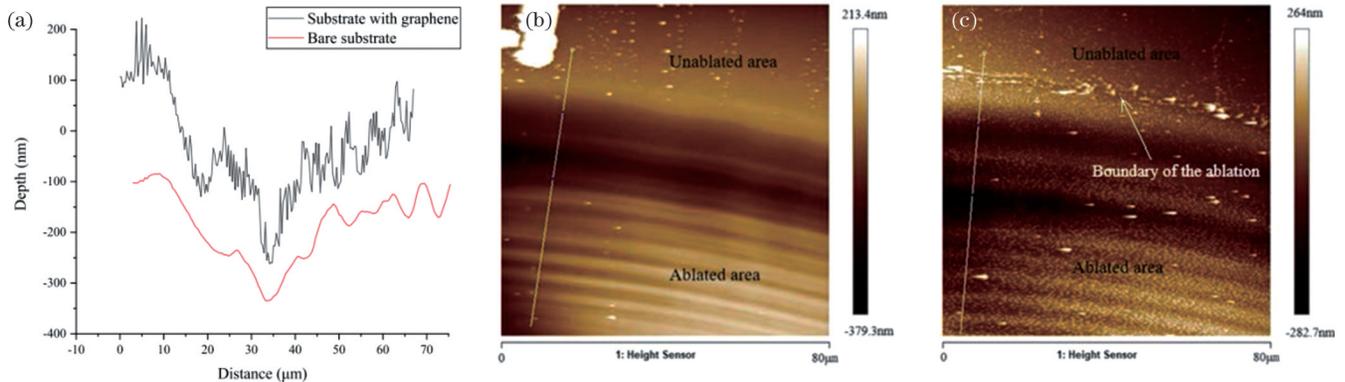


图 14 单层石墨烯辅助 46.9 nm 激光辐照生成纳米颗粒^[71]。(a)横截面高度信息;(b)玻璃基底的烧蚀结果;(c)石墨烯辅助的玻璃基底的烧蚀结果

Fig. 14 Nanoparticles generated by monolayer graphene-assisted 46.9 nm laser irradiation^[71]. (a) Cross-section depth; (b) ablation of the bare glass substrate; (c) graphene-assisted ablation of the glass substrate

捷克科学院课题组报道了 46.9 nm 激光与材料表面附近的波场相互干涉形成的激光诱导周期性表面结构(LIPSS)^[72-73],即第二类自组织微纳结构。如图 15 和图 16 所示,46.9 nm 激光聚焦后烧蚀高精度抛光的 PMMA 材料,在烧蚀区域内形成了周期性条纹结构。对于这种条纹结构的解释,目前还没有定论。46.9 nm 激光的产生机制为自发辐射的光放大,输出的激光没有固定的偏振方向,因此,探究 LIPSS 的形成过程时应排除激光偏振方向这一因素。为明确 46.9 nm 激光诱导的 LIPSS 形成的原因,未来应对 46.9 nm 激光辐

照材料过程中材料表面的波场进行深入研究,同时应在实验方面系统分析激光能量密度、脉冲发次、入射角等因素对 LIPSS 周期等形貌参数的影响。

46.9 nm 激光与 BaF_2 这类离子晶体相互作用时,能够在烧蚀区域内获得由热应力导致的晶体沿晶面方向开裂形成的微纳结构^[70,74-76],即第三类自组织微纳结构。这种由应力产生的晶体表面开裂在纳秒激光烧蚀离子晶体的报道中并不鲜见^[77],但烧蚀区域的位置大多比较随机,而且烧蚀区域表现为形貌不统一、无周期性;而 46.9 nm 激光烧蚀形成的晶体开裂则表现出了

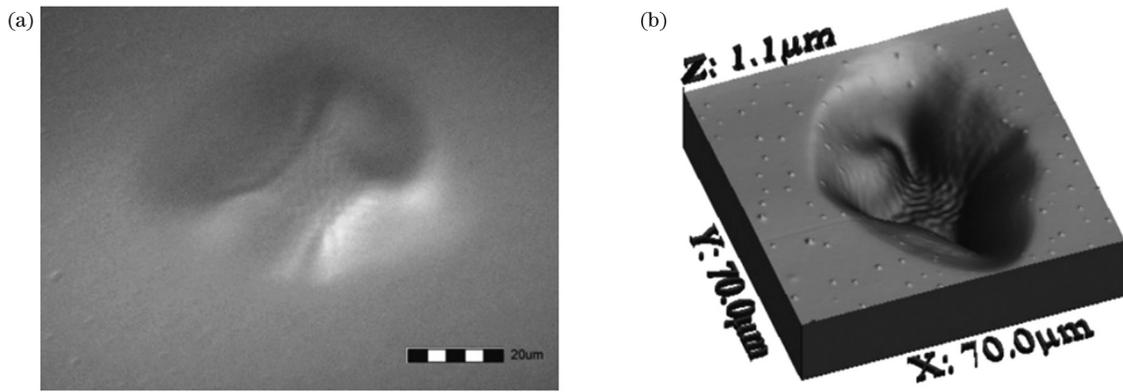


图 15 46.9 nm 激光在 PMMA 烧蚀区域内形成的 LIPSS^[72]。(a) 二维烧蚀图；(b) 三维烧蚀图

Fig. 15 LIPSS formed by 46.9 nm laser in the ablated region of PMMA^[72]. (a) Two-dimensional ablation pattern; (b) three-dimensional ablation pattern

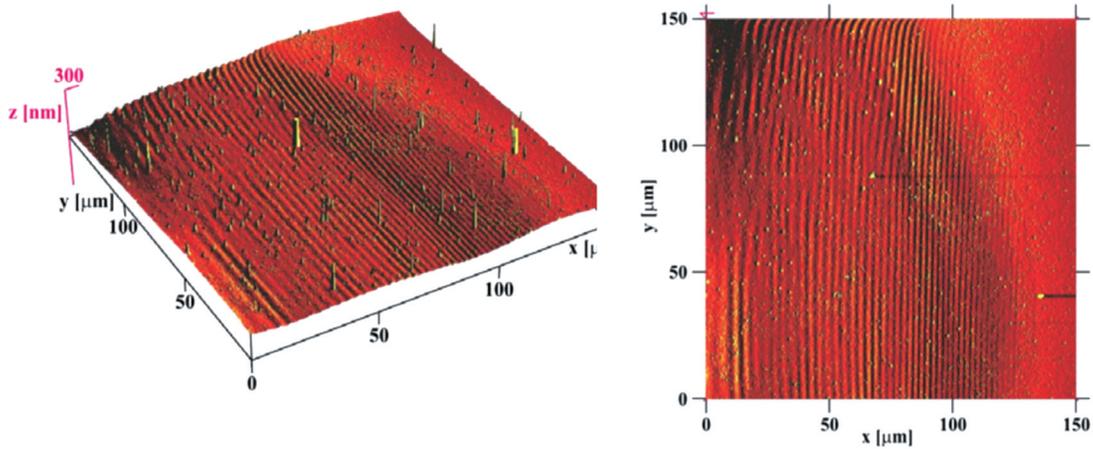


图 16 46.9 nm 激光在 PMMA 烧蚀区域内形成的 LIPSS-II^[73]

Fig. 16 LIPSS-II formed by 46.9 nm laser in the ablated region of PMMA^[73]

明显的周期性, 并且结构的形貌、周期与入射激光参数具有很强的关联性, 如图 17~19 所示。当激光的能量

密度不变而入射激光脉冲发次发生改变时, 所诱导的纳米结构的周期不变, 但多发激光产生的结构具有更

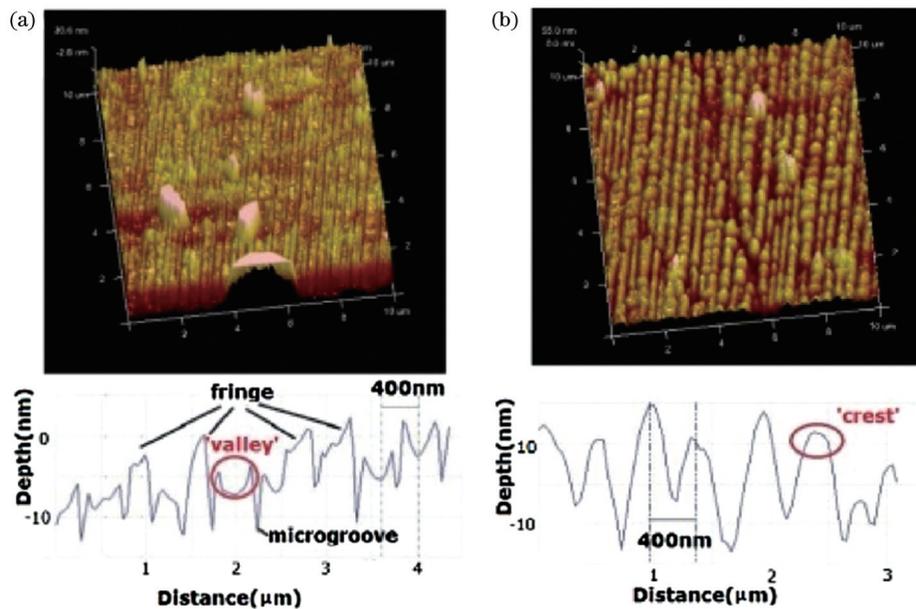


图 17 BaF₂ 烧蚀区域内由单发和多发 46.9 nm 激光诱导的周期性结构的形貌^[74]。(a) 单发激光烧蚀；(b) 多发激光烧蚀

Fig. 17 LIPSS induced by single- and multi-shot 46.9 nm laser pulses in the BaF₂ ablation region^[74]. (a) Ablation induce by single laser pulse; (b) ablation induced by multiple pulses laser

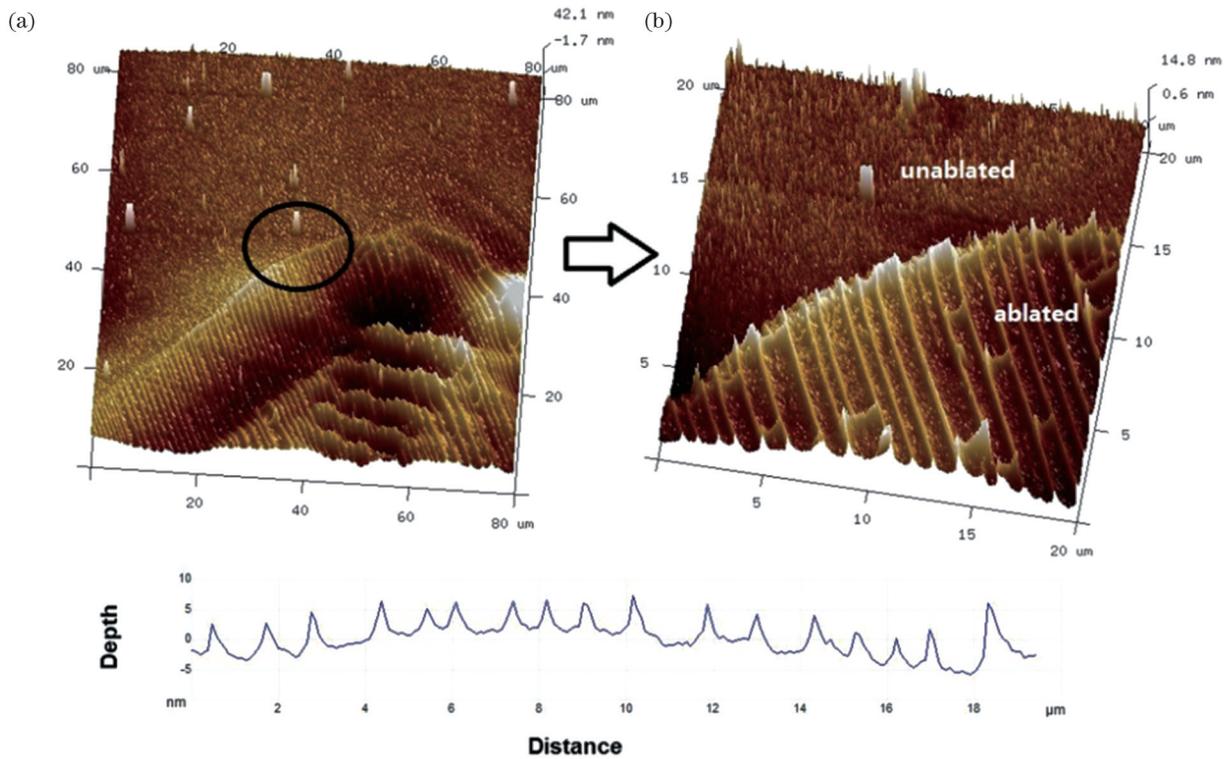


图 18 BaF₂烧蚀区域边界处周期性结构的形态^[75]。(a)烧蚀区域;(b)烧蚀区域边缘

Fig. 18 Periodic structural morphology at the boundary of the BaF₂ ablation region^[75]. (a) Ablation area; (b) edge of the ablation area

加光滑的表面,而且形态更加统一,如图 17 所示。图 18 所示的烧蚀区域边缘处的周期性结构被严格限制在烧蚀区域内部,基本没有延展到未烧蚀区域。考虑到这种结构是由烧蚀过程中产生的热应力导致的,而应力在材料内部的传播范围通常大于激光辐照区,因此基于这种机理产生的纳米结构能够严格控制在激光辐照区域内是非常独特的。哈尔滨工业大学与捷克

科学院合作对 BaF₂ 表面在极紫外激光照射下形成的光栅状纳米结构进行了研究,结果显示:当改变入射激光的能量密度时,可以明显看到所诱导的结构周期随着激光能量密度的降低而减小(如图 19 所示)。这一结果证实了该类周期性纳米结构具有良好的调制性,并且有望形成更小周期(如百纳米以下)的类光栅结构。

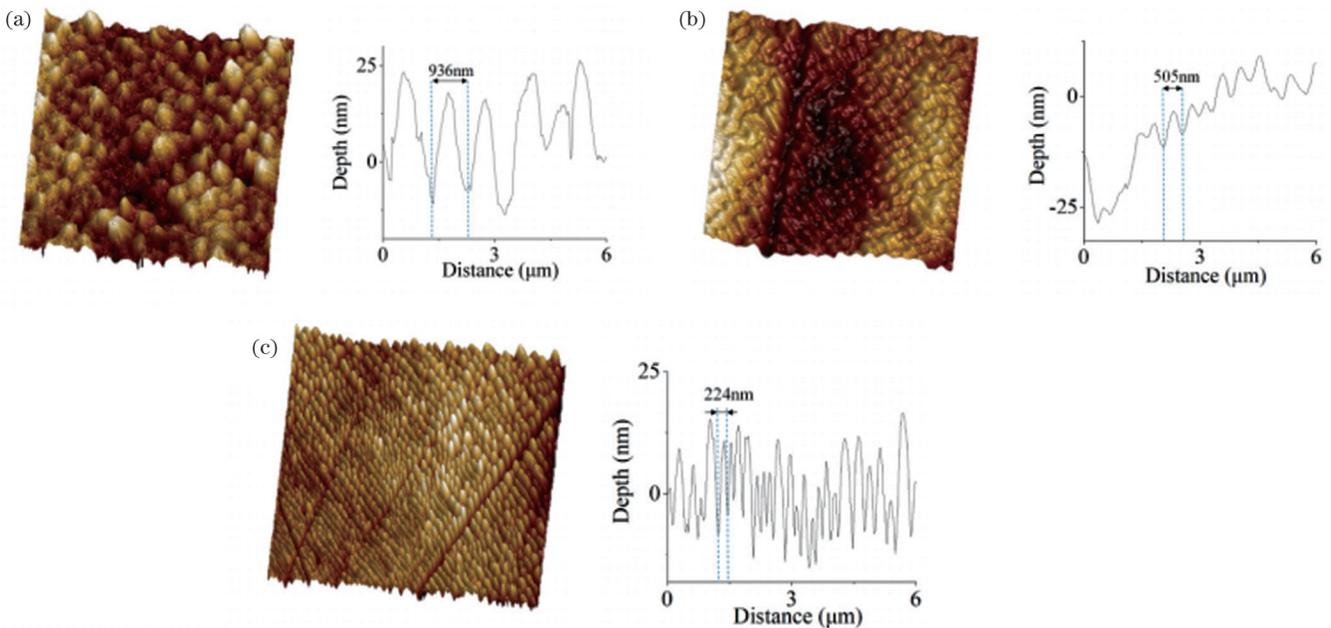


图 19 BaF₂烧蚀区域内形成的微纳结构周期与激光能量密度的关系^[76]。(a) 230 mJ/cm²; (b) 30 mJ/cm²; (c) 15 mJ/cm²

Fig. 19 Relationship between the period of micro-nano structures formed within the BaF₂ ablation region and laser energy density^[76].

(a) 230 mJ/cm²; (b) 30 mJ/cm²; (c) 15 mJ/cm²

3 46.9 nm 极紫外激光在物质成分检测及生物领域的应用进展

将 46.9 nm 激光与飞行时间质谱仪耦合构建基于单光子电离的成分检测系统,意味着 46.9 nm 激光的应用领域已从宏观尺度迈入微观的原子分子尺度^[78],同时也意味着 46.9 nm 激光的应用已被拓展至生物学领域。反射式 46.9 nm 激光质谱仪的示意图如图 20 所示^[79]。46.9 nm 激光经过准直后聚焦到需要探测的靶材上,靶材经 46.9 nm 激光烧蚀后,沿垂直于靶面的方向喷出等离子体。经电场加速后,不同荷质比的离子以不同的速度进入反射电场中,反射后被光电倍增管(MCP)捕获。此时示波器上可显示时域上的多个尖峰,每个尖峰对应一种荷质比的离子。由每种粒子到达 MCP 的时间可以反推出该粒子的成分组成。反射式质谱仪的优点是能够弥补离子在不同位置被加速后所带来的测量上的误差。

将 46.9 nm 激光作为质谱电离源的好处是高能量的光子能够以单光子电离的方式离子化待测样品。

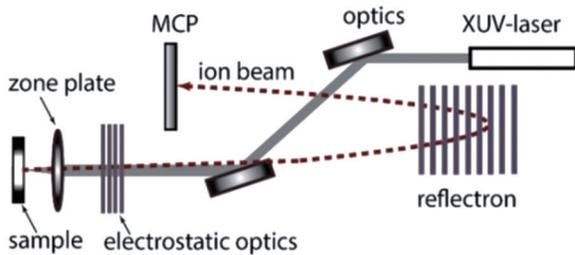


图 20 46.9 nm 激光质谱仪示意图^[79]

Fig. 20 Schematic diagram of the 46.9 nm laser mass spectrometer^[79]

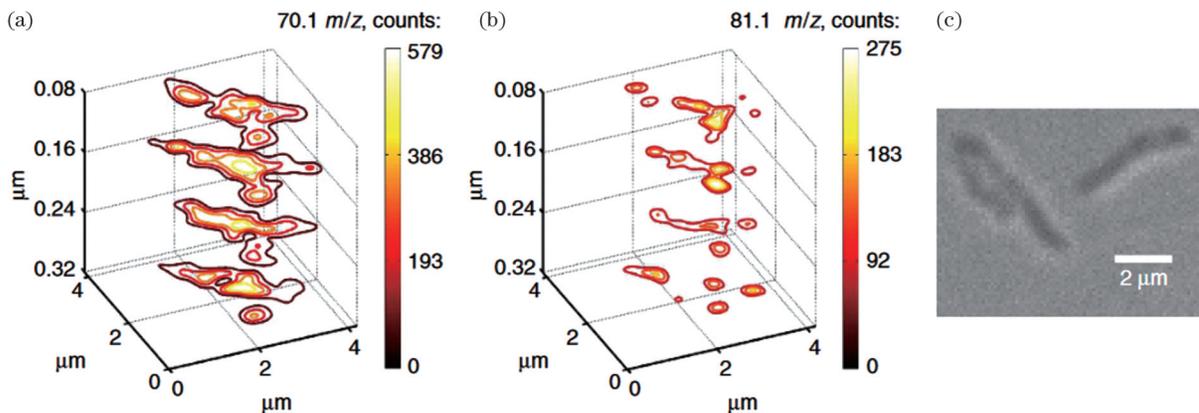


图 21 46.9 nm 激光质谱仪实现的高分辨三维质谱成像^[80]。(a) $m/z=70.1$; (b) $m/z=81.1$; (c) 样品的激光共聚焦显微照片

Fig. 21 High-resolution three-dimensional mass spectrometry imaging achieved by 46.9 nm laser mass spectrometer^[80]. (a) $m/z=70.1$; (b) $m/z=81.1$; (c) confocal microscopy image of the sample

除了对生物样品进行质谱检测外,46.9 nm 激光还能够用来研究 DNA 等生物分子的电离辐射损伤。对生物分子电离辐射损伤的研究是分析细胞、组织和活体电离辐射损伤机理的基础。其中,DNA 分子是单个细胞被损伤的主要目标。46.9 nm 激光能够以单光子

相比于电子束轰击样品产生离子的方式,单光子电离不会产生大量的碎片离子峰,并且具有更高的能量分辨率。目前,同步辐射光源常用真空紫外乃至更短的波长进行物质的单光子电离质谱检测。但同步辐射光源体积巨大且机时稀缺,难以维系大量的系统性实验研究。而毛细管放电 46.9 nm 激光器具有小型化的特点,即便是耦合飞行时间质谱仪,仍然可以实现桌面化,这使得质谱检测变得更加容易,同时能够降低检测成本。另外,相比于真空紫外,46.9 nm 激光在材料中的衰减深度只有纳米量级,并且可以利用衍射型光学元件将光斑直径聚焦到 100 nm 以下,因此用 46.9 nm 激光电离样品表面时,只要提取极少量的样品,便可以获得足够的成分信息,激光对样品的破坏极小。对于多种组分样品而言,这意味着 46.9 nm 激光质谱检测仪的分辨率远高于真空紫外质谱仪和电子质谱仪等。另外,对一定范围内的样品进行点扫描,可以实现对样品成分的高分辨三维成像^[80]。

图 21 所示是美国一小组的研究成果。该小组利用 46.9 nm 激光电离包皮垢分枝杆菌,研究了两种质荷比($m/z=70.1$ 和 $m/z=81.1$)的离子在 $4 \mu\text{m} \times 4 \mu\text{m} \times 0.08 \mu\text{m}$ 体积内的分布情况。图 21(c) 为共聚焦显微镜下的样品形貌。在这种条件下,成像的分辨率取决于 46.9 nm 激光辐照在样品表面的焦斑大小及其在样品中的衰减深度。图 21 所示的质谱成像结果可以达到横向 75 nm、纵向 20 nm 的高分辨率。如今,瑞士、美国的研究人员已经采用 46.9 nm 激光质谱仪对多种有机和无机材料进行了成分检测^[81-84],检测结果验证了 46.9 nm 激光质谱检测的可行性和及其应用的广泛性。

电离的方式损伤 DNA,因此能够作为分析 DNA 分子电离辐射损伤机理的有效工具。

46.9 nm 激光以直接和间接两种方式对 DNA 分子产生影响,其中:直接方式对 DNA 中磷酸盐及糖的价电子直接进行激发电离;间接方式通过直接方式产

生的羟基扩散实现对 DNA 分子的损伤^[85]。这两种方式都能够导致化学键断裂以及随后的 DNA 单链断裂 (SSB) 和双链断裂 (DSB)。46.9 nm 激光的波长很短,材料对其极大的吸收系数以及其在材料内极小的衰减深度使得激光能量沉积在样品的表层,减小了热效应对待测样品的影响。同时,与质谱检测的优势类似,46.9 nm 激光能够提高对生物分子检测的分辨率。因此,利用 46.9 nm 激光研究 DNA 分子的损伤过程有助于阐释 DNA 单链断裂 (SSB)、双链断裂 (DSB) 的机理,并为生物分子的高分辨率成像研究打下基础,

这些优势是传统长波段激光光源难以达到的^[86-88]。图 22 所示为 46.9 nm 激光的辐照剂量与 DNA 分子 SSB、DSB 产量的关系,所用的 DNA 分子为简单的 DNA 模型,即 pBR322 大肠杆菌 DNA 质粒。由于 46.9 nm 激光的辐照, DNA 分子的 SSB 和 DSB 均可被检测到。所产生的 SSB 表明 46.9 nm 激光对 DNA 分子造成的化学变化来源于电离辐射,这与利用紫外光辐照 DNA 分子所造成的损伤具有本质的区别。当 46.9 nm 激光的辐照剂量增大时, DNA 断链的效率随之提高。

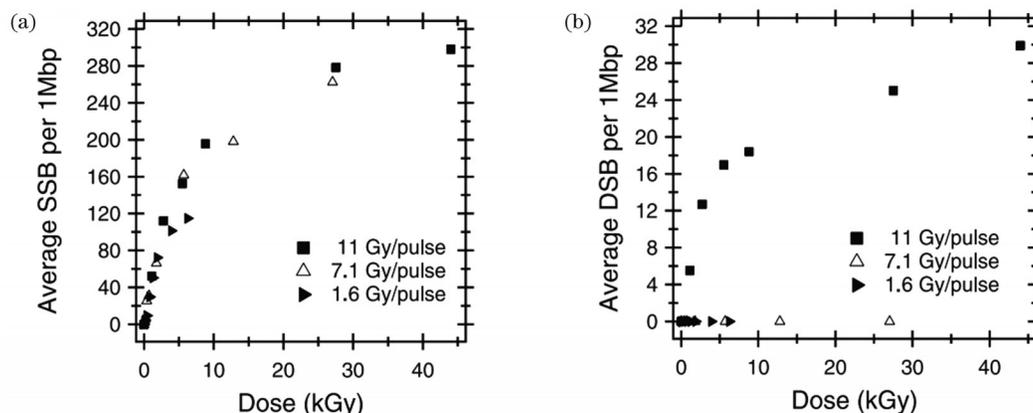


图 22 46.9 nm 激光的辐射剂量与 DNA 分子 SSB 和 DSB 产量的关系^[87]。(a)辐射剂量与 SSB 产量的关系;(b)辐射剂量与 DSB 产量的关系

Fig. 22 Radiation dose of 46.9 nm laser in relation to SSB and DSB yields of DNA molecules^[87]. (a) Radiation dose in relation to SSB yield; (b) radiation dose in relation to DSB yield

4 46.9 nm 极紫外激光在高分辨成像领域的应用进展

激光成像是现代激光产业的重要组成部分,随着纳米技术、生物医学以及材料科学等领域的不断发展,人们对了解微观世界的需求更加迫切,而激光成像提供了一种可行的解决方法。激光的单色性和方向性都很好,光波长越短,人们借助激光成像看到物体微观精细结构的可能性就越大。46.9 nm 激光具有波长短、脉冲瞬时功率大以及单脉冲能量高等优点,非常适合进行物体的高分辨成像。由于获得 46.9 nm 激光光源比较困难,所以到目前为止世界各国对极紫外激光成像的研究还比较少。但从其成像的实验结果来看,46.9 nm 激光成像有很大的发展前景。

20 世纪, Gabor 提出了全息理论,其优点是成像质量较高,同时也具有一定的抗干扰能力。国内外研究人员对此成像理论以及全息再现算法进行了深入研究,促进了全息成像理论的飞速发展。与传统激光成像相比,46.9 nm 激光全息成像的优点在于其成像分辨率可以达到百纳米以下,全息图记录简单方便。图 23 所示是美国一小组的研究工作^[89]。他们将光刻胶 (PMMA) 旋涂在硅晶片上作为记录介质,并在硅

薄膜上放置碳纳米管样品。46.9 nm 激光照射碳纳米管样品后从硅膜透射出去,衍射信息被光刻胶记录,经过显影定影后使用原子力显微镜扫描光刻胶表面的高度信息,生成数字化全息图,再通过一系列数值计算后采用二维快速傅里叶逆变换便可得到碳纳米管的重建图像。对重建图像评估可知成像分辨率约为 46 nm。

46.9 nm 激光在三维全息成像中同样具有广泛应用。在 46.9 nm 激光的三维全息成像中,深度信息是三维重建中一个重要的量,选择物体到全息图的合适距离对于获取所需深度信息非常重要,此距离的一个微小变化就会使重建图像出现差异。通过改变算法中物体到全息图的距离,可以产生不同的重建图像,只有在最佳距离下才会产生最清晰的图像。对重建图像进行一系列处理,可以得到图像的深度信息^[90]。

随着全息成像技术的不断发展,人们提出了一种灵活度和精度更高的成像方法——傅里叶变换全息成像。傅里叶全息成像与 Gabor 全息成像是两种不同的全息成像技术。傅里叶全息成像利用傅里叶光学原理,将被记录物体的光场转换到傅里叶平面进行记录和重建。同时,它使用傅里叶变换处理光的干涉信息,记录、重建物体的光场。46.9 nm 激光傅里叶变

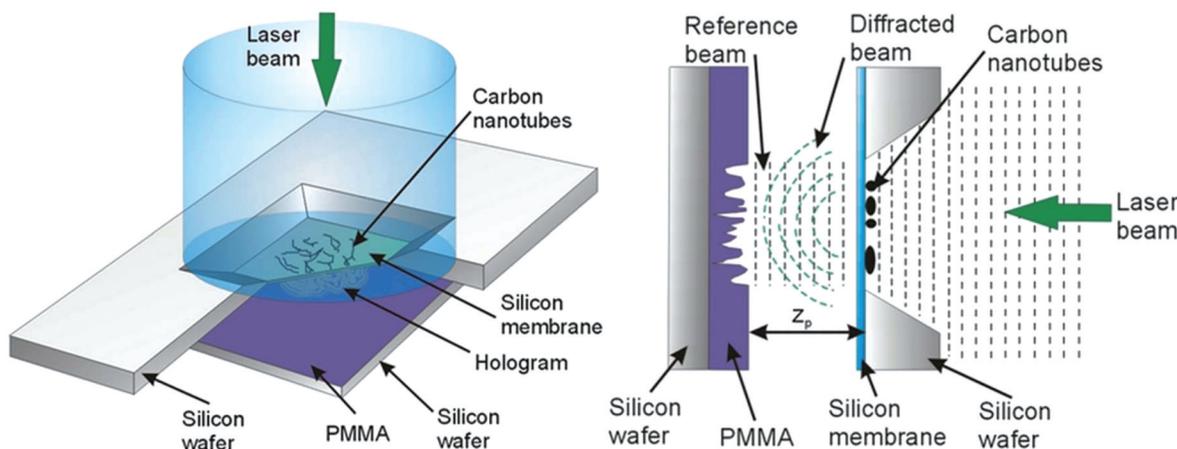


图 23 46.9 nm 激光 Gabor 全息装置图和侧视图^[89]

Fig. 23 46.9 nm laser Gabor holographic device diagram and side view^[89]

换全息装置如图 24 所示。采用高相干的 1.2 ns、46.9 nm 激光脉冲照射菲涅耳波带片,通过菲涅耳波带片的第一级衍射产生参考波,入射光通过波带片的中心直接照射到样品上,CCD 接收物波和参考波的干涉信息,最后对干涉图样的傅里叶逆变换的模平方进行数值重建。Malm 等^[91]利用图 24 所示的实验装置进行了单脉冲和多脉冲实验,观察成像分辨率可知都达到了纳米级分辨率,而且多脉冲实验的分辨率更高,约为 128 nm。

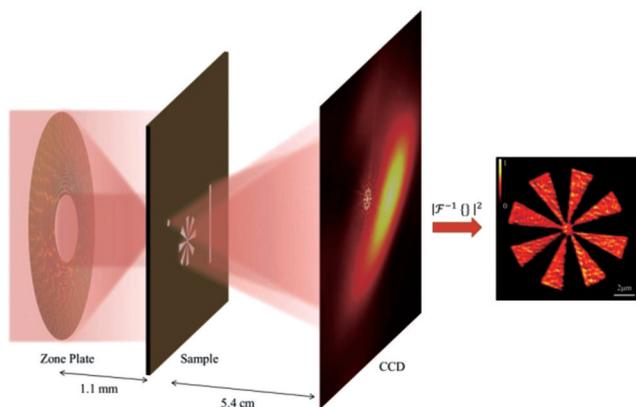


图 24 46.9 nm 激光傅里叶变换全息成像装置示意图^[91]

Fig. 24 Schematic diagram of 46.9 nm laser Fourier transform holographic imaging device^[91]

随着科学技术的发展,显微成像也在不断进步和创新。目前,显微成像技术已经被应用于许多领域,例如生物医学研究、纳米技术以及材料科学等领域。然而,受限于光学衍射极限,传统光学显微成像的极限分辨率只能达到 200 nm 左右,当被观测物体的尺寸接近或小于光的波长时,难以获得高分辨率图像。为了突破分辨率瓶颈,相关研究人员一直在努力开发新的显微成像技术。46.9 nm 极紫外激光的波长比可见光降低了一个数量级,理论上其分辨率会得到极大提高。因此,以 46.9 nm 激光为光源的显微成像技术,例如 46.9 nm 相干衍射显微成像技术

以及 46.9 nm 全场激光显微成像技术,吸引了国内外的广泛关注。接下来将对这两种技术进行简单阐述。

相干衍射显微成像装置图^[92]如图 25 所示。46.9 nm 激光由多层膜反射镜聚焦到样品上,CCD 接收衍射图样,用铝膜阻挡较长波长的辐射。为了获得更高的空间分辨率,改变 CCD 与样品的位置,使它们的距离更近。这种方法虽然提高了空间分辨率,但却会导致 CCD 上的衍射强度失真,如图 26(a)、(b)所示。可以采用插值方法消除衍射强度失真。图 26(d)、(e)显示了曲率校正的衍射图案,图 26(c)、(f)则显示了曲率校正前后重建图像的大小。可见,曲率校正确实显著提高了重建图像的质量。通过分辨率评估、对比可知重建图像的分辨率达到了 71 nm^[92]。

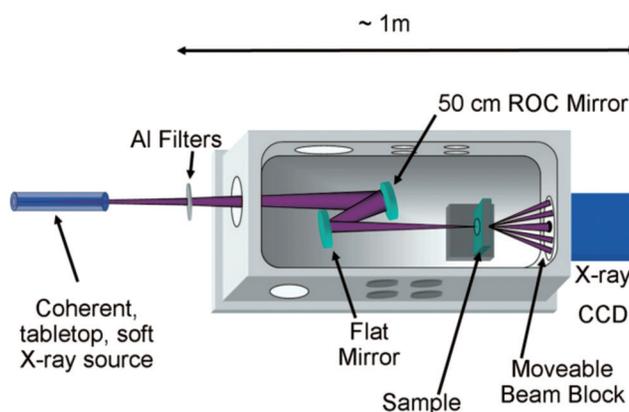


图 25 46.9 nm 激光衍射显微镜装置示意图^[92]

Fig. 25 Schematic diagram of 46.9 nm laser diffraction microscope device^[92]

全场显微镜是一种通过光学途径观察整个样品的显微镜。与局部观察的显微镜不同,全场显微镜可以同时观察到样品中的大面积区域,提供了广阔的视野和全景图像。Carbajo 等^[93]采用图 27 所示的 46.9 nm 激光全场显微镜进行了纳米级动态记录。1.5 ns 激光

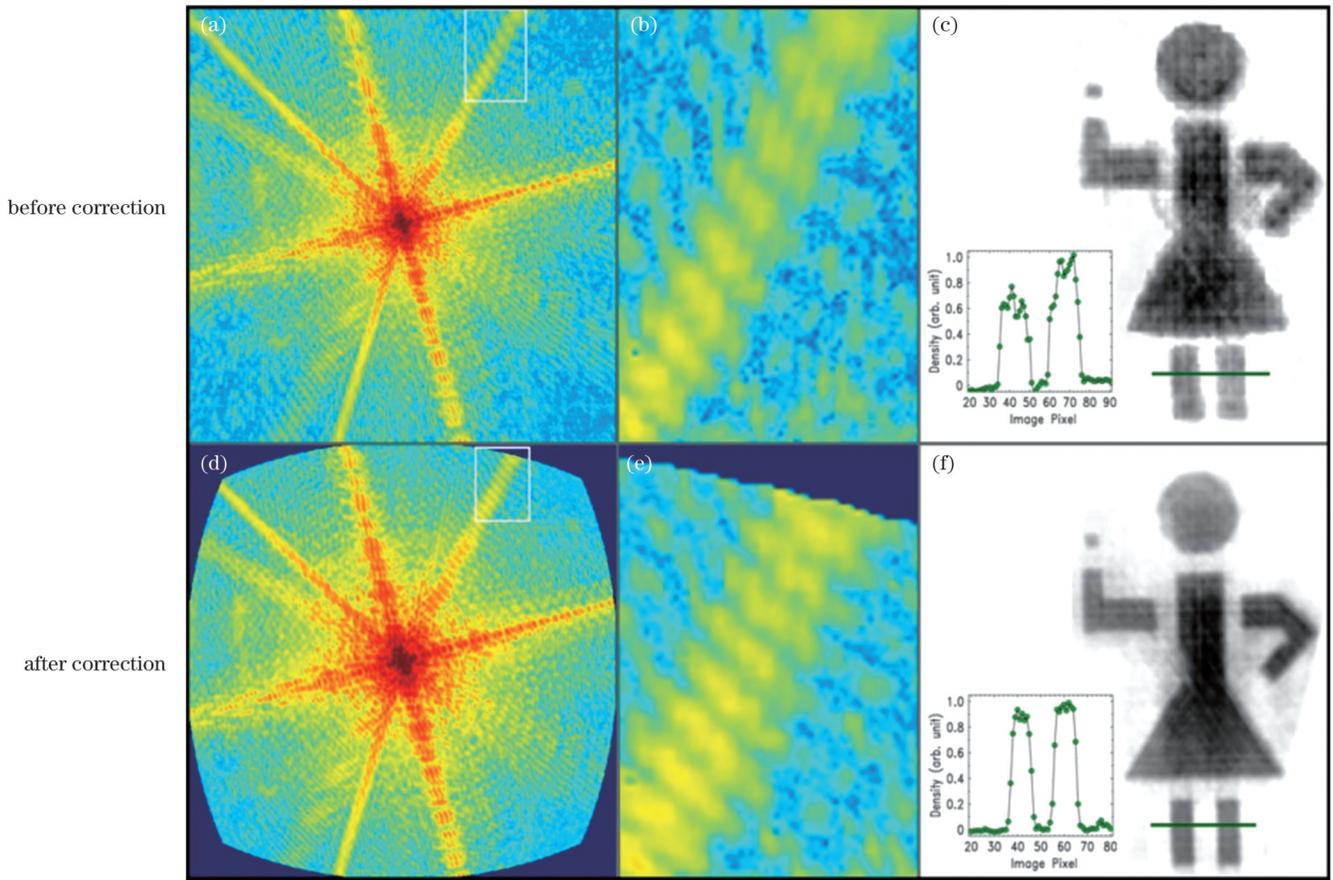


图 26 校正前后的衍射图样和重建图像^[92]

Fig. 26 Diffraction patterns and reconstructed images before and after correction^[92]

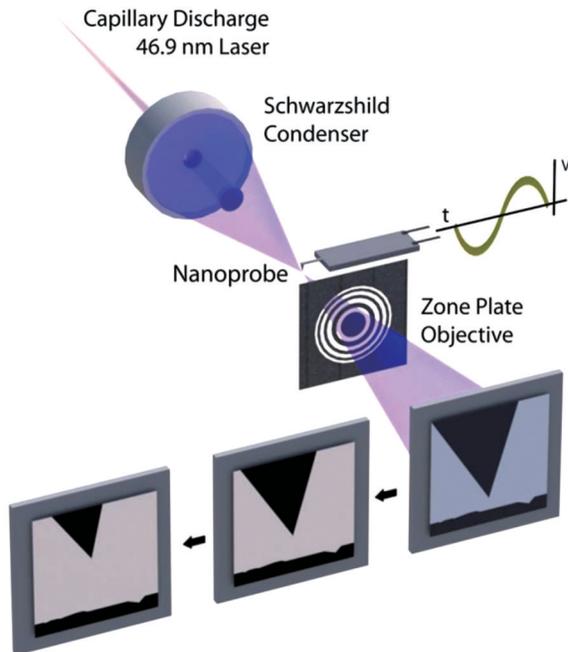


图 27 46.9 nm 激光全场显微镜装置示意图^[93]

Fig. 27 Schematic diagram of 46.9 nm laser full-field microscope device^[93]

脉冲对纳米探针尖端进行闪光照射,共采集了100多幅连续图像,图 28 显示了4个单次拍摄图像以及尖端在整个周期的振荡情况。记录的纳米探针尖端在整个

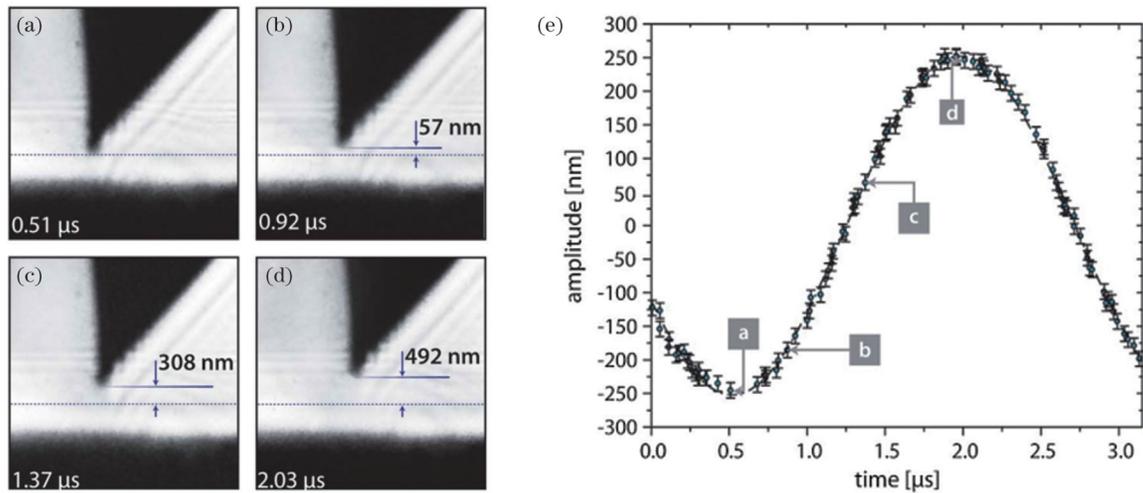
周期内的振荡结果为纳米技术、生物医学以及材料科学等领域的创新开辟了新途径。

5 总结与展望

在科技飞速发展的今天,人类对短波长光源的需求日益增长。在这种情况下,基于毛细管放电机理建立的小型化极紫外激光光源具有非常广阔的应用前景和独特优势。目前,毛细管放电 46.9 nm 激光已在材料加工、化学、生物、光学成像等领域取得了一定的创新性成果。为了促进毛细管放电极紫外激光的发展,笔者认为未来需要进一步关注以下三方面的研究工作:

1) 毛细管放电极紫外激光光源的普及和优化

目前,国际上仅有4~5个国家拥有毛细管放电极紫外激光光源,我国也仅有哈尔滨工业大学一个课题组拥有该光源。光源的稀少在很大程度上限制了它的应用。为了适应更多的应用场景,毛细管放电极紫外激光光源应向高重复频率、高能量、多波长、高集成度方向发展,这对毛细管放电激光装置中的增益介质条件、谐振腔的建立,尤其是对泵浦源提出了更高要求。同时,开展毛细管放电极紫外激光特性方面的研究,能够从最本质的物理过程入手阐释毛细管放电极紫外光的产生机理,从而指导光源的优化。

图 28 纳米尖端单次拍摄图像和周期内的振荡情况^[93]Fig. 28 Nano tip single shot image and oscillation in the period^[93]

2) 极紫外波段的光场调控

光源从最初产生到能够实现特定的应用,其中一个非常重要的环节就是对初始光进行光场调控。由于这一波段的特性,适用于极紫外光源的光场调控方式非常有限,目前能够实现的光场调控效果也仅局限于单点聚焦以及产生干涉或衍射等最基本的光场。这不仅是毛细管放电极紫外激光的应用难点,更是整个极紫外波段需要攻克的关键难题。光场的单一使得极紫外光源的应用场景受到了极大限制,尤其是在高分辨成像、光诱导物理化学反应等方面的优势没有很好地展示出来。因此,迫切需要能够在振幅、相位以及偏振等方面调制极紫外激光光源的方法或光学器件。而毛细管放电极紫外激光在波长范围、相干性、输出能量等方面的特性,使其成为验证这类方法或器件的理想光源。

3) 极紫外激光的新应用

极紫外波段在整个电磁波中处于非常特殊的一个波段范围。在这个范围内,材料对它的吸收系数非常高,这使得在红外-紫外波段广泛应用的技术手段和测量方法在极紫外波段都无法应用。这是极紫外波段光源的特点,同时也是它的优势。由于吸收系数极高,各种材料对应的衰减深度基本处于几纳米至几十纳米范围内。因此,极紫外激光的能量能够沉积在非常浅的材料表层内。在这种极端的条件下,材料所展现出的表面反应是非常特殊的。如能将极紫外激光诱导的这种特殊的表面反应应用于材料、生物等领域,将会对极紫外激光的发展起到明显的推动作用。同时,利用毛细管放电紫外激光在非线性光学、激光光谱等方向上开展全新的应用研究,也可能会获得原创性的科研成果。

参 考 文 献

[1] 倪思洁. 美能源部宣布实现核聚变净能量增益[N]. 中国科学报, 2022-12-15(1).

Ni S J. U.S. Department of Energy announces net fusion energy gain[N]. Chinese Science Edition Newspaper, 2022-12-15(1).

[2] Wachulak P, Torrisi A, Ayele M, et al. Nanoimaging using soft X-ray and EUV laser-plasma sources[J]. EPJ Web of Conferences, 2018, 167: 03001.

[3] 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.

[4] 王琛, 王伟, 孙今人, 等. 利用X射线激光干涉诊断等离子体电子密度[J]. 物理学报, 2005, 54(1): 202-205.

Wang C, Wang W, Sun J R, et al. Experimental diagnoses of plasma electron density by interferometry using an X-ray laser as probe[J]. Acta Physica Sinica, 2005, 54(1): 202-205.

[5] Makimura T, Torii S, Niino H, et al. Nano- and micromachining of transparent materials using laser plasma soft X-rays[C]//2009 Conference on Lasers & Electro Optics & The Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics, July 30-August 3, 2009, Shanghai, China. New York: IEEE Press, 2009.

[6] Cornacchia M. The linac coherent light source[J]. Synchrotron Radiation News, 1998, 11(1): 28-33.

[7] Raubenheimer T O. The LCLS-II, a new FEL facility at SLAC [C/OL]. Proceedings of the 36th International Free Electron Laser Conference. [2023-05-20]. <http://ir.ihp.ac.cn/handle/311005/257050>.

[8] 赵振堂, 王东, 殷立新, 等. 上海软X射线自由电子激光装置[J]. 中国激光, 2019, 46(1): 0100004.

Zhao Z T, Wang D, Yin L X, et al. Shanghai soft X-ray free-electron laser facility[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(1): 0100004.

[9] 杨家岳, 李钦明, 俞盛锐, 等. 原子、分子以及自由基的高效电离探测: 大连相干光源光束线[C]//第十五届全国化学动力学会议论文集. 北京: 中国化学会, 2017: 314.

Yang J Y, Li Q M, Yu S Y, et al. Efficient ionization detection of atoms, molecules, and free radicals: dalian coherent light source beamline[C]//Proceedings of the 15th National Conference on Chemical Kinetics. Beijing: Chinese Chemical Society, 2017: 314.

[10] Rocca J J, Shlyaptsev V, Tomasel F G, et al. Demonstration of a discharge pumped table-top soft-X-ray laser[J]. Physical Review Letters, 1994, 73(16): 2192-2195.

[11] Benware B R, Macchietto C D, Moreno C H, et al. Demonstration of a high average power tabletop soft X-ray laser[J]. Physical Review Letters, 1998, 81(26): 5804-5807.

[12] Heinbuch S, Grisham M, Martz D, et al. Demonstration of a desktop size high repetition rate soft X-ray laser[J]. Optics Express, 2005, 13(11): 4050-4055.

- [13] Ben-Kish A, Shuker M, Nemirovsky R A, et al. Plasma dynamics in capillary discharge soft X-ray lasers[J]. *Physical Review Letters*, 2001, 87(1): 015002.
- [14] Ritucci A, Tomassetti G, Palladino L, et al. Investigation of the output pulse characteristics of a 46.9 nm Ar capillary discharge soft X-ray laser[C]. *AIP Conference Proceedings*, 2002, 641(1): 119-124.
- [15] Hotta E, Sakai Y, Hayashi Y, et al. Extreme ultraviolet light sources and soft X-ray laser based on discharge produced plasma [J]. *Proceedings of SPIE*, 2015, 9524: 95242U.
- [16] Tomassetti G, Ritucci A, Reale A, et al. Capillary discharge soft X-ray lasing in Ne-like Ar pumped by long current pulses[J]. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 2002, 19(1): 73-77.
- [17] Ritucci A, Tomassetti G, Reale A, et al. Investigation of a highly saturated soft X-ray amplification in a capillary discharge plasma waveguide[J]. *Applied Physics B*, 2004, 78(7): 965-969.
- [18] Ostashev V I, Gafarov A M, Politov V Y, et al. Evidence of soft X-ray lasing in SIGNAL pulsed-power facility experiments with argon capillary plasma[J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2006, 34(5): 2368-2376.
- [19] Afonin V I, Gafarov A M, Gilev O N, et al. Effect of the direction of a preionization current on X-ray emission from a capillary discharge plasma[J]. *Plasma Physics Reports*, 2007, 33(7): 562-566.
- [20] Tan C A, Kwek K H. Development of a low current discharge-driven soft X-ray laser[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2007, 40(16): 4787-4792.
- [21] Kwek K H, Tan C A, Kusse B R, et al. Lasing in Ne-like argon capillary discharge at low current and the effect of current prepulse [J]. *AIP Conference Proceedings*, 2009, 1088(1): 168-171.
- [22] Kolacek K. Repetitive XUV laser based on the fast capillary discharge[J]. *Proceedings of SPIE*, 2011, 8140: 814015.
- [23] Szasz J, Kiss M, Santa I, et al. Critical parameters of the pumping scheme of Ar^{+8} lasers excited by Z pinches in long capillaries[J]. *Contributions to Plasma Physics*, 2012, 52(9): 770-775.
- [24] Szasz J, Kiss M, Santa I, et al. Magneto-electric confinement and stabilization of Z-pinch in a soft-X-ray Ar^{+8} laser[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 110(18): 183902.
- [25] Barnwal S, Prasad Y B S R, Nigam S, et al. Characterization of the 46.9-nm soft X-ray laser beam from a capillary discharge[J]. *Applied Physics B*, 2014, 117(1): 131-139.
- [26] Cheng Y L, Zhao Y P, Wang Q, et al. Soft X-ray amplification in 3- and 4-mm diameter capillaries[J]. *Chinese Optics Letters*, 2004, 2(11): 658-660.
- [27] Khan M U, Zhao Y P, Hui T, et al. Impact of discharge currents on the intensity of 46.9 nm capillary discharge soft X-ray laser[J]. *Optics Express*, 2019, 27(12): 16738-16750.
- [28] Tomasel F G, Rocca J J, Shlyaptsev V N, et al. Lasing at 60.8 nm in Ne-like sulfur ions in ablated material excited by a capillary discharge[J]. *Physical Review A*, 1997, 55(2): 1437-1440.
- [29] Frati M, Seminario M, Rocca J J. Demonstration of a 10- μJ tabletop laser at 52.9 nm in neonlike chlorine[J]. *Optics Letters*, 2000, 25(14): 1022-1024.
- [30] Sakai Y, Takahashi S, Watanabe T H M, et al. The possibility of a capillary discharge soft X-ray laser with shorter wavelength by utilizing a recombination scheme[J]. *Journal of Plasma & Fusion Research*, 2009, 8: 1317-1312.
- [31] Kolacek K, Schmidt J, Prukner V, et al. Ways to discharge-based soft X-ray lasers with the wavelength $\lambda < 15$ nm[J]. *Laser and Particle Beams*, 2008, 26(2): 167-178.
- [32] Zhao Y P, Jiang S, Xie Y, et al. Demonstration of soft X-ray laser of Ne-like Ar at 69.8 nm pumped by capillary discharge[J]. *Optics Letters*, 2011, 36(17): 3458-3460.
- [33] Zhao Y P, Liu T, Zhang W H, et al. Demonstration of gain saturation and double-pass amplification of a 69.8 nm laser pumped by capillary discharge[J]. *Optics Letters*, 2016, 41(16): 3779-3782.
- [34] Liu Y, Seminario M, Tomasel F G, et al. Achievement of essentially full spatial coherence in a high-average-power soft-X-ray laser[J]. *Physical Review A*, 2001, 63(3): 033802.
- [35] Tong H, Zhao Y P, Khan M U, et al. Enhancement of Ne-like Ar 46.9 nm laser intensity by increasing the inner diameter of the capillary[J]. *The European Physical Journal D*, 2019, 73(7): 132.
- [36] Zhao Y P, Liu T, Jiang S, et al. Characteristics of a multi-wavelength Ne-like Ar laser excited by capillary discharge[J]. *Applied Physics B*, 2016, 122(5): 1-6.
- [37] Zhao Y P, Zhao D D, An B, et al. Demonstration of double-pass amplification of gain saturated 46.9 nm laser[J]. *Optics Communications*, 2022, 506: 127571.
- [38] Zhao D D, Zhao Y P, An B, et al. Demonstration of multi-pass amplification of 46.9 nm laser pumped by capillary discharge[J]. *Matter and Radiation at Extremes*, 2023, 8(4): 044402.
- [39] Elson J M, Rahn J P, Bennett J M. Relationship of the total integrated scattering from multilayer-coated optics to angle of incidence, polarization, correlation length, and roughness cross-correlation properties[J]. *Applied Optics*, 1983, 22(20): 3207-3219.
- [40] Benware B R, Ozols A, Rocca J J, et al. Focusing of a tabletop soft-X-ray laser beam and laser ablation[J]. *Optics Letters*, 1999, 24(23): 1714-1716.
- [41] Grisham M, Vaschenko G, Menoni C S, et al. Damage to extreme-ultraviolet Sc/Si multilayer mirrors exposed to intense 46.9-nm laser pulses[J]. *Optics Letters*, 2004, 29(6): 620-622.
- [42] Cui H Y, Zhao Y P, Jiang S, et al. Experiment of Si target ablation with soft X-ray laser operating at a wavelength of 46.9 nm [J]. *Optics & Laser Technology*, 2013, 46: 20-24.
- [43] Zhao Y P, Cui H Y, Zhang W H, et al. Si and Cu ablation with a 46.9-nm laser focused by a toroidal mirror[J]. *Optics Express*, 2015, 23(11): 14126-14134.
- [44] Baez A V. Fresnel zone plate for optical image formation using extreme ultraviolet and soft X radiation[J]. *Journal of the Optical Society of America*, 1961, 51(4): 405-412.
- [45] Vaschenko G, Etxarri A G, Menoni C S, et al. Nanometer-scale ablation with a table-top soft X-ray laser[J]. *Optics Letters*, 2006, 31(24): 3615-3617.
- [46] Capeluto M G, Vaschenko G, Grisham M, et al. Nanopatterning with interferometric lithography using a compact $\lambda = 46.9$ -nm laser [J]. *IEEE Transactions on Nanotechnology*, 2006, 5(1): 3-7.
- [47] Wachulak P W, Capeluto M G, Marconi M C, et al. Nanoscale patterning in high resolution HSQ photoresist by interferometric lithography with tabletop extreme ultraviolet lasers[J]. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena*, 2007, 25(6): 2094-2097.
- [48] Wachulak P, Grisham M, Heimbuch S, et al. Interferometric lithography with an amplitude division interferometer and a desktop extreme ultraviolet laser[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2008, 25(7): B104-B107.
- [49] Cui H Y, Wang Z Y, Wu S, et al. Focusing and wavefront splitting of an extreme ultraviolet laser with a tubular optical element[J]. *Photonics*, 2023, 10(6): 629.
- [50] Urbanski L, Isuyan A, Stein A, et al. Defect-tolerant extreme ultraviolet nanoscale printing[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(17): 3633-3635.
- [51] Rossall A K, Aslanyan V, Tallents G J, et al. Ablation of submicrometer holes using an extreme-ultraviolet laser[J]. *Physical Review Applied*, 2015, 3(6): 064013.
- [52] Cui H Y, Zhao Y P, Khan M U, et al. Study of thermal effect in the interaction of nanosecond capillary discharge extreme ultraviolet laser with copper[J]. *Applied Sciences*, 2019, 10(1): 214.
- [53] Cui H Y, Li L, Zhao D D, et al. Study of photo-ionization and thermal effects on the interaction of a nanosecond extreme ultraviolet laser with copper[J]. *Optics Express*, 2022, 30(4): 5817-5825.

- [54] Juha L, Bittner M, Chvostova D, et al. Ablation of organic polymers by 46.9-nm-laser radiation[J]. Applied Physics Letters, 2005, 86(3): 034109.
- [55] Juha L, Krása J, Präg A, et al. Ablation of poly(methyl methacrylate) by a single pulse of soft X-rays emitted from Z-pinch and laser-produced plasmas[J]. Surface Review and Letters, 2002, 9(1): 347-352.
- [56] Juha L, Präg R A, Krása J, et al. Ablation of organic polymers and elemental solids induced by intense XUV radiation[J]. AIP Conference Proceedings, 2002, 641(1): 54-59.
- [57] Zhang X, Jacobsen C, Lindaas S, et al. Exposure strategies for polymethyl methacrylate from *in situ* X-ray absorption near edge structure spectroscopy[J]. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena, 1995, 13(4): 1477-1483.
- [58] Maida O, Kohma N, Ueno M, et al. Evaporation and expansion of poly-tetra-fluoro-ethylene induced by irradiation of soft X-rays from a figure-8 undulator[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2001, 40(4R): 2435-2439.
- [59] Beetz T, Jacobsen C. Soft X-ray radiation-damage studies in PMMA using a cryo-STXM[J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2003, 10(3): 280-283.
- [60] Liu J M. Simple technique for measurements of pulsed Gaussian-beam spot sizes[J]. Optics Letters, 1982, 7(5): 196-198.
- [61] Juha L, Hájková V, Chalupský J, et al. Capillary-discharge 46.9-nm laser-induced damage to a-C thin films exposed to multiple laser shots below single-shot damage threshold[J]. Proceedings of SPIE, 2007, 6586: 65860D.
- [62] An H J, Wang J S, Cui H Y, et al. Periodic surface structure of 4H-SiC by 46.9 nm laser[J]. Optics Express, 2023, 31(10): 15438-15448.
- [63] Pira P, Burian T, Kolpaková A, et al. Langmuir probe measurement of the bismuth plasma plume formed by an extreme-ultraviolet pulsed laser[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2014, 47(40): 405205.
- [64] Tanaka T, Annaka M, Ilmain F, et al. Phase transitions of gels [M]//Karalis T K. Mechanics of swelling. NATO ASI series. Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1992, 64: 683-703.
- [65] Li Y, Tanaka T. Phase transition of gels[J]. Annual Review of Materials Science, 1992, 22: 243-277.
- [66] Emmony D C, Howson R P, Willis L J. Laser mirror damage in germanium at 10.6 μm [J]. Applied Physics Letters, 1973, 23(11): 598-600.
- [67] Sipe J E, Young J F, Preston J S, et al. Laser-induced periodic surface structure. I. Theory[J]. Physical Review B, 1983, 27(2): 1141-1154.
- [68] Vorobyev A Y, Makin V S, Guo C L. Periodic ordering of random surface nanostructures induced by femtosecond laser pulses on metals[J]. Journal of Applied Physics, 2007, 101(3): 034903.
- [69] Vorobyev A Y, Guo C L. Femtosecond laser-induced periodic surface structure formation on tungsten[J]. Journal of Applied Physics, 2008, 104(6): 063523.
- [70] Ritucci A, Tomassetti G, Reale A, et al. Damage and ablation of large bandgap dielectrics induced by a 46.9 nm laser beam[J]. Optics Letters, 2006, 31(1): 68-70.
- [71] Cui H Y, Li L, Zhao D D, et al. Nanoparticles induced by nanosecond extreme ultraviolet laser at 46.9 nm assisted by single-layer graphene[J]. Optics & Laser Technology, 2022, 156: 108561.
- [72] Vyšin L, Burian T, Chalupský J, et al. Characterization of the focused beam of desktop 10-Hz capillary-discharge 46.9-nm laser [J]. Proceedings of SPIE, 2009, 7361: 73610O.
- [73] Frolov O, Kolacek K, Straus J, et al. Generation and application of the soft X-ray laser beam based on capillary discharge[J]. Journal of Physics: Conference Series, 2014, 511(1): 012035.
- [74] Zhao Y P, Cui H Y, Zhang S Q, et al. Formation of nanostructures induced by capillary-discharge soft X-ray laser on BaF₂ surfaces[J]. Applied Surface Science, 2017, 396: 1201-1205.
- [75] Cui H Y, Zhang S Q, Li J J, et al. Craters and nanostructures on BaF₂ sample induced by a focused 46.9 nm laser[J]. AIP Advances, 2017, 7(8): 085116.
- [76] Cui H Y, Frolov A, Schmidt J, et al. Characterizing the grating-like nanostructures formed on BaF₂ surfaces exposed to extreme ultraviolet laser radiation[J]. Applied Sciences, 2022, 12(3): 1251.
- [77] Li C H, Kang X L, Han W, et al. Nanosecond laser-induced surface damage and material failure mechanism of single crystal CaF₂ (111) at 355 nm[J]. Applied Surface Science, 2019, 480: 1070-1077.
- [78] Shin J W, Dong F, Grisham M E, et al. Extreme ultraviolet photoionization of aldoses and ketoses[J]. Chemical Physics Letters, 2011, 506(4/5/6): 161-166.
- [79] Müller R, Kuznetsov I, Arbelo Y, et al. Depth-profiling microanalysis of CoNCN water-oxidation catalyst using a $\lambda = 46.9$ nm plasma laser for nano-ionization mass spectrometry[J]. Analytical Chemistry, 2018, 90(15): 9234-9240.
- [80] Kuznetsov I, Filevich J, Dong F, et al. Three-dimensional nanoscale molecular imaging by extreme ultraviolet laser ablation mass spectrometry[J]. Nature Communications, 2015, 6: 6944.
- [81] Bleiner D, Rush L A, Rocca J J, et al. Rapid quasi non-destructive 3D chemical visualization with tabletop X-ray laser mass spectrometry[J]. Proceedings of SPIE, 2019, 11111: 1111107.
- [82] Menoni C S. Nanoscale chemical imaging by extreme ultraviolet laser ablation time of flight spectrometry[C]//High-Brightness Sources and Light-driven Interactions, March 26-28, 2018, Strasbourg, France. Washington, DC: Optica Publishing Group, 2018: ET2B.1.
- [83] Kuznetsov I, Green T, Chao W, et al. Soft X-ray ablation mass spectrometry: high sensitivity elemental trace analysis[J]. Proceedings of SPIE, 2017, 10243: 102430G.
- [84] Bleiner D, Trottmann M, Cabas-Vidani A, et al. XUV laser mass spectrometry for nano-scale 3D elemental profiling of functional thin films[J]. Applied Physics A, 2020, 126(3): 230.
- [85] Mozumder A. Ionization and excitation yields in liquid water due to the primary irradiation: relationship of radiolysis with far UV-photolysis[J]. Physical Chemistry Chemical Physics, 2002, 4(8): 1451-1456.
- [86] Nováková E, Davidková M, Vyšin L, et al. Damage to dry plasmid DNA induced by nanosecond XUV-laser pulses[J]. Proceedings of SPIE, 2011, 8077: 80770W.
- [87] Nováková E, Vyšin L, Burian T, et al. Breaking DNA strands by extreme-ultraviolet laser pulses in vacuum[J]. Physical Review E, 2015, 91(4): 042718.
- [88] Vyšin L, Burian T, Ukraintsev E, et al. Dose-rate effects in breaking DNA strands by short pulses of extreme ultraviolet radiation[J]. Radiation Research, 2018, 189(5): 466-476.
- [89] Wachulak P W, Marconi M C, Bartels R A, et al. Soft X-ray laser holography with wavelength resolution[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2008, 25(11): 1811-1814.
- [90] Wachulak P W, Marconi M C, Bartels R A, et al. Holographic imaging with a nanometer resolution using compact table-top EUV laser[J]. Opto-Electronics Review, 2010, 18(1): 80-90.
- [91] Malm E B, Monserud N C, Brown C G, et al. Tabletop single-shot extreme ultraviolet Fourier transform holography of an extended object[J]. Optics Express, 2013, 21(8): 9959-9966.
- [92] Sandberg R L, Song C Y, Wachulak P W, et al. High numerical aperture tabletop soft X-ray diffraction microscopy with 70-nm resolution[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2008, 105(1): 24-27.
- [93] Carbajo S, Howlett I D, Brizuela F, et al. Sequential single-shot imaging of nanoscale dynamic interactions with a table-top soft X-ray laser[J]. Optics Letters, 2012, 37(14): 2994-2996.

Advanced Applications for Capillary Discharge 46.9 nm Extreme Ultraviolet Laser

Cui Huaiyu^{1,2}, Shen Yujie¹, Zhao Dongdi¹, An Bo¹, Zhao Yongpeng^{1,2*}

¹*Department of Opto-Electronic Information Science and Technology, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, Heilongjiang, China;*

²*National Key Laboratory of Science and Technology on Tunable Laser, Harbin Institute of Technology, Harbin 150080, Heilongjiang, China*

Abstract

Significance Laser development represents a significant leap forward in the history of human science. The aggregation of billions (or potentially more) of photons in the same mode makes the laser the “brightest light”, “fastest knife” and “most accurate ruler”. Rapid laser source development and related technologies have promoted numerous breakthrough advances in the military, civilian and fundamental scientific fields. The lasers application areas are related to the laser source output parameters. When the laser output wavelength is shortened to extreme ultraviolet (EUV) and X-ray bands, the high photon energy produced by the light source and the extremely small diffraction limit make these short wavelength radiation sources favorable tools for exploring the microscopic world through cutting-edge scientific research. This includes micro-nano scale imaging and measurement, high-temperature, high-density plasma diagnostics, and high-resolution nanostructure generation.

Wavelength shortening has introduced many laser generation difficulties. To achieve short-wavelength laser output, scientists worldwide have invested significant effort into constructing large-scale short-wavelength laser sources, such as LCLS, LCLS-II in the USA and SXFEL, DCLS in China. Current research on such laser sources represents humanity’s exploration of the material essence forefront and the deepest understanding of nature. Large-scale short-wavelength laser sources generate high-quality laser outputs, leading to significant scientific research achievements. However, some drawbacks exist including high operating costs and complex operation processes, thus, making it difficult to address the high demand for laser utilization in fundamental scientific research. In this situation, how to miniaturize short-wavelength laser has gained attention. Capillary discharge pumping is a proven mechanism for achieving miniaturized EUV laser output. International research groups have been studying this field since Rocca demonstrated this type of laser output in 1994. In 2004, the Zhao group from the Harbin Institute of Technology self-developed this laser, which remains the only EUV laser source in operation that uses capillary discharge pumping in China. Subsequently, capillary discharge 46.9 nm wavelength EUV lasers have made significant improvements in output energy, coherence and multi-wavelength output, which have already become an ideal light source for EUV laser application research. Meanwhile, capillary discharge EUV lasers have been applied in micro/nano-structure processing, material composition detection and high-resolution imaging fields.

Progress In the micro/nano-processing field, the 46.9 nm laser is capable of creating ablation patterns of PMMA photoresist of 82 nm diameter by the third order diffraction focusing of a freestanding Fresnel zone plate (Fig. 4). The ablation pattern walls are extremely clean. The results demonstrate the feasibility of utilizing focused EUV lasers for nanoscale direct writing processes. The EUV laser interference effect is another approach for creating micro/nano-structures. With a tubular optical element, the 46.9 nm laser is focused and split to trigger light interference simultaneously, and focused interference fringes are formed and recorded on the PMMA with the period of ~ 150 nm (Fig. 8). Nano-structures self-formation is also particular surface behavior which is triggered by 46.9 nm laser irradiation. With given material, the ablation process could be modulated and create novel phenomena. With single-layer graphene assistance, self-formed nanoparticles could be created all over the ablation area using single laser pulse exposure (Fig. 14). The advantage of these self-formed nanostructures is that the scale of the structures is not dependent on the radiation source diffraction limitation, which increases the flexibility of nano-processing technology. This suggests significant potential for the 46.9 nm laser in this particular field. Recently, the 46.9 nm laser has been predominantly utilized in spectrochemistry. Because of high photon energy, this laser is capable of ionizing atoms or molecules using single photon-ionization. By coupling the time-of-flight mass spectrometer, the 46.9 nm laser analyzes the target surface composition. Furthermore, high-resolution imaging with the composition contrast can be achieved by scanning the surface (Fig. 21). Therefore, this research connects EUV lasers with biology, chemistry and physics applications at the atomic and molecular scale.

Conclusions and Prospects The capillary discharge EUV laser is a miniaturized laser source. Compared with short-wavelength light sources, such as free-electron lasers and synchrotron radiation sources, capillary discharge lasers have the advantages of low operating cost, high single-pulse energy and sufficient user time. Superior laser characteristics and the flexibility

of miniaturization make it a suitable radiation source for EUV laser applications. This study presents cutting-edge applications for this laser in the micro/nano-structure processing, material composition detection, biological disciplines and high-resolution imaging fields, to date. Hence, it can be confirmed that the capillary discharge EUV laser is a powerful tool for probing and processing micro/nano-structures. Currently, the demand for short-wavelength light sources is increasing, thus indicating, that in accordance with its potential application value, multiple future advantageous development opportunities are expected to emerge.

Key words laser technique; extreme ultraviolet laser; capillary discharge; laser micro/nano-processing; high-resolution imaging; mass spectrometry detection