·粒子束及加速器技术•综述·



超快 X 射线自由电子激光研究进展

贾豪彦^{1,2}, 黄森林^{1,2}, 焦 毅³, 李京祎³, 刘克新^{1,2}, 刘 帅^{1,2}, 刘伟航³, 刘中琦^{1,2}, 龙天云^{1,2,4}, 秦伟伦⁴, 赵 晟^{1,2}

(1.北京大学 核物理与核技术国家重点实验室,北京 100871; 2.北京大学 物理学院 重离子物理研究所,北京 100871;3.中国科学院 高能物理研究所,北京 100049; 4.德国电子同步加速器研究中心,德国 汉堡 22603)

摘 要:现代光源的发展不断推动着人们从更深层次上理解物质的基本结构和动力学行为。X 射线自由 电子激光作为最先进的光源,其超高的峰值功率、超短的脉冲长度和优良的相干性,为人们以原子级时空分辨 率探测和操控物质中的超快过程提供了可能。目前全世界已有多个X射线自由电子激光装置建成并投入使 用,在原子分子物理、化学、生命科学、材料科学等各学科应用中都显示出了重要价值。同时大量的研究工作 也集中于继续提高X射线自由电子激光的性能,包括把脉冲持续时间从fs量级进一步缩短至as量级,这将为超 快科学的发展带来新突破。以超快脉冲产生为主线,综述了近年来超快X射线自由电子激光产生方案的研究 进展,从产生原理、方案特性、最新成果等方面介绍了各类产生方案,总结对比了各方案的优缺点,最后对超快 X射线自由电子激光的未来发展方向进行了展望。

关键词: X射线;自由电子激光;超快光学;阿秒脉冲 中图分类号: TN248.6 文献标志码: A doi: 10.11884/HPLPB202234.220056

Research advances in ultrafast X-ray free-electron lasers

Jia Haoyan^{1,2}, Huang Senlin^{1,2}, Jiao Yi³, Li Jingyi³, Liu Kexin^{1,2}, Liu Shuai^{1,2}, Liu Weihang³, Liu Zhongqi^{1,2}, Long Tianyun^{1,2,4}, Qin Weilun⁴, Zhao Sheng^{1,2}
(1. State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology, Peking University, Beijing 100871, China;
2. Institute of Heavy Ion Physics, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China;
3. Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;
4. Deutsches Elektronen-Synchrotron (DESY), Hamburg 22603, Germany)

Abstract: Advances in modern light sources continue to improve our understanding of the fundamental structure and microscopic dynamics of matter. As the most advanced light source, X-ray free-electron lasers provide the brightest X-rays with ultrahigh peak power, ultrashort pulse length, and excellent coherence, making it possible to detect and manipulate ultrafast processes in atomic and molecular systems. X-ray free-electron laser facilities in operation worldwide have shown great value in the application fields of physics, chemistry, biology, material science, etc. Furthermore, many efforts have focused on improving the performance of X-ray free-electron lasers, including reducing the pulse duration from femtosecond to attosecond for opening new frontiers in ultrafast science. This paper mainly reviews the recent progress of ultrafast X-ray free-electron lasers and summarizes various schemes in terms of their generation mechanisms, unique properties and latest results. Finally, it predicts the future development of ultrafast X-ray free-electron lasers.

Key words: X-ray, free-electron laser, ultrafast optics, attosecond pulse

自 19 世纪末 X 射线被发现以来, X 射线技术不断发展, 彻底改变着人们对物质世界的基本理解。利用 X 射线 衍射, 可以在原子尺度上揭示物质的基本结构; 利用 X 射线的光谱特性, 可以表征材料中有关特定原子的局部键 合和结构环境细节; 利用 X 射线的穿透能力, 可以用于复杂物质的内部成像。由于其独特的科学重要性, X 射线

 ^{*} 收稿日期:2022-02-25; 修订日期:2022-03-25
 基金项目:国家自然科学基金项目(11975039)
 联系方式:贾豪彦,jiahaoyan@pku.edu.cn。
 通信作者:黃森林,huangsl@pku.edu.cn。

已成为物理学、化学、生命科学、材料科学等诸多科学技术领域不可或缺的工具。

由于可用源的限制,早期X射线的亮度和相干性非常有限。随着加速器技术的发展和同步辐射的发现,X射线源的发展取得了革命性的进步。从第一代"寄生"于电子储存环的兼用同步辐射光源,到专门建造的基于弯转磁铁(二极磁铁)的第二代光源,再到基于波荡器和扭摆器等插入件的第三代光源,产生的X射线亮度与相干性不断提升,且可在很宽的波长范围内调谐。目前全球范围内已形成了许多基于同步辐射光源的区域科学中心,具有数百条光束线并为不同领域的科研实验提供服务。为进一步提高X射线的亮度,新一代的衍射极限储存环光源也正在发展中^[1-3]。同步辐射光源提供的具有高亮度和强空间相干性的X射线,适用于物质静态原子和电子结构的研究,其10~100 ps 量级的脉冲长度和较差的时间相干性,无法与原子和电子运动的基本时间尺度相匹配,限制了其在超快结构动力学中的应用。

基于直线加速器的 X 射线自由电子激光(XFEL)的出现, 引发了 X 射线科学的另一场革命。XFEL 可产生持续时间为 fs 量级的可调谐相干 X 射线脉冲, 峰值亮度比第三代同步辐射光源高出 10 个数量级。其独特的脉冲性质使人们可以在原子级的空间尺度和 fs 时间尺度上动态地研究物质的结构和动力学行为。如结合泵浦探测技术, 对化学反应中过渡态分子动力学进行时间分辨测量^[4]; 研究强场效应下的原子光电离过程^[5]; 对蛋白质分子单次成像获取破坏前衍射信息^[6]等。XFEL 的发展极大地扩展了超快光谱学的能力。

产生更短持续时间的脉冲一直是人们的目标。如原子中内层电子和价电子运动的时间尺度为10~100 as 量级^[7-8],在 as 范围的时间分辨能力将使人们研究原子分子中的电子结构动力学成为可能。目前使用高次谐波产生(HHG)技术已经可以产生小于100 as 的极紫外和软 X 射线脉冲^[9-11],但由于谐波产生过程的转换效率低和更高次谐波的产生存在困难,其光子通量相对较低且难以把光子能量扩展到 keV 能级^[12-13],限制了 HHG 辐射源的应用范围。通过 XFEL 产生阿秒脉冲是一个很有前景的新方向,它克服了 HHG 源的限制,能够产生极高光子通量的脉冲,且最短辐射波长比 HHG 源小 2 个数量级。近年来,已经提出和发展了多种方案来缩短 XFEL 脉冲的持续时间,并逐渐将其时间尺度向 as 范围推进。可以预见,未来高功率的阿秒 XFEL 脉冲将为强场阿秒科学带来新的突破。

本文针对近年来的超快 XFEL 脉冲产生方案进行综述,首先讨论 XFEL 的工作原理及其在实现更短脉冲长度 上的限制因素;然后分类别介绍各种超快 XFEL 产生方案的原理、特性及结果;最后总结各类方案的优缺点,并对 未来超快 XFEL 的发展进行展望。

1 XFEL 介绍

不同于传统激光器, FEL 以真空中的相对论电子束为增益介质, 通过电子在交替极性偏转磁铁序列组成的波 荡器中的扭摆运动产生相干电磁辐射。FEL 的主要工作模式有 3 种, 分别是 FEL 振荡器、放大器和自放大自发辐 射(SASE)^[14]。FEL 振荡器采用光学谐振腔来约束辐射场, 使其在多次通过波荡器的过程中被逐渐放大。由于长 期缺乏 X 射线频段的高品质反射镜, FEL 振荡器一直工作在太赫兹至紫外频谱范围内。FEL 放大器通常采用谐波 产生等先进技术, 即通过外部激光(基波辐射)操控电子束相空间来实现高次谐波上的放大输出, 从而将辐射频率 推进至传统激光器难以覆盖的频段, 目前已实现软 X 射线频谱范围内的稳定运行, 但继续推进至硬 X 射线频段具 有很大挑战性。SASE FEL 则放大自发波荡器辐射, 因此不需要外部种子和光学谐振腔, 是目前唯一能够产生硬 X 射线的工作模式。由于 SASE FEL 起始于散粒噪声, 其时间相干性较差。为改善时间相干性, 硬 X 射线 FEL 装 置普遍采用自种子放大方案, 即让 SASE 过程产生的辐射经单色仪滤波后作为种子, 经辐射波荡器放大至饱和。

进入 21 世纪以来, 全世界建成了一系列的 XFEL 装置。2006年, 德国 DESY 的 FLASH 装置实现 13 nm 的 SASE FEL 饱和出光^[15], 成为世界首台软 X 射线 FEL 装置; 2009年, 美国 SLAC 国家加速器实验室的 LCLS 装置实现 0.15 nm 的 SASE FEL 饱和出光^[16], 成为世界首台硬 X 射线 FEL 装置; 2011年, 日本 RIKEN 的 SACLA 装置实现 了 SASE FEL 饱和出光, 将 FEL 波长推进至 0.063 nm 的超硬 X 射线波段^[17]; 2012年, 意大利 FERMI@Elettra 成功运行, 成为首台外种子型软 X 射线 FEL 装置^[18], 之后该装置采用两级级联的高增益谐波产生(HGHG)方案实现了 4.3 nm 的软 X 射线输出^[19]; 随后, 韩国 PAL-XFEL^[20](最短波长 0.1 nm)、德国 European XFEL^[21](最短波长 0.05 nm)、瑞士 SwissFEL^[22](最短波长 0.1 nm)、中国 SXFEL^[23](最短波长 2 nm)也相继出光, 其中, European XFEL 是首台基于超导加速器的硬 X 射线 FEL 装置。目前, SLAC 国家加速器实验室的 LCLS-II^[24]和上海张江实验室的 SHINE^[25]正在建设当中, 二者均为基于超导加速器的高重复频率 XFEL 装置。

迄今为止, SASE模式依然是世界各大 XFEL装置的主要工作模式。为此,本文以 SASE模式为基础,首先介

绍 XFEL 中的基本物理过程,进而讨论限制 XFEL 脉冲持续时间的主要因素。

图 1 所示为在垂直方向具有周期性变换磁场的平面波 荡器。相对论电子在穿过波荡器时,会在磁场作用下在水平 方向沿正弦轨迹扭摆运动,从而辐射出电磁波,即自发波荡 器辐射。波荡器辐射的共振波长λ可表示为

$$\lambda = \frac{\lambda_{\rm u}}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right) \tag{1}$$



Fig. 1 Working principle of a free-electron laser图 1 自由电子激光工作原理

式中: λ_u是波荡器周期长度; *K*是无量纲的波荡器磁场强度参数; γ是电子的洛伦兹因子。通过调整电子的能量或 波荡器参数, 可以在一定范围内对辐射波长进行调谐。最初, 电子在电子束团内随机分布, 各个电子发出的自发辐 射具有随机的相位, 总的辐射强度与电子数 N_e 成正比。随着电子在波荡器中继续前进, 辐射场与电子发生相互作 用导致电子产生能量调制。能量调制在波荡器纵向色散作用下演变成密度调制, 使电子形成以辐射波长为间隔的 微聚束。微聚束导致各个电子发出的辐射在相位上相关, 发生相长干涉并放大辐射场。这种 FEL 增益的机制是 一个正反馈回路, 更强的辐射场产生更强的能量调制, 从而导致更强的微聚束。最终辐射功率呈指数增长, 并在电 子束品质变差后达到饱和, 其功率增长的极限与N_e成正比。

在 FEL 增益过程中,由于电子在波荡器中的正弦轨迹比光传播的路径长,波荡器中辐射场在每个波荡器周期 会相对电子束团向前滑过一个辐射波长的距离,这种现象称为滑移效应。随着电子连续辐射且辐射波前滑移到电 子之前,辐射脉冲被拉长。在辐射脉冲内部,同一辐射场与电子束团中不同部分的电子发生相互作用,在滑移距离 内产生相位关联。对于 SASE FEL 而言,输出的辐射脉冲在时域分布上由许多彼此不相干的尖峰组成,单个尖峰 的宽度与协作长度成正比^[26]。协作长度*l*_c定义为一个 FEL 增益长度*l*_g内辐射场相对电子束团产生的滑移距离,即 *l*_c = *l*_gλ/λ_u(增益长度*l*_g为 FEL 辐射功率增长自然因子 e 倍的波荡器长度)。SASE FEL 可产生的最短脉冲为一个单 尖峰的辐射脉冲,因此其最短脉冲持续时间最终与协作长度有关。在软 X 射线中协作长度(换算成时间)通常为 1~2 fs,而硬 X 射线中协作长度通常为几百 as^[27],相较而言硬 X 射线比软 X 射线更容易产生超快脉冲。

基于上述讨论,限制 XFEL 实现更短脉冲持续时间的因素可以从两方面考虑。第一是产生辐射的电子束长。 通常电子束团的长度决定了辐射脉冲的持续时间,通过对电子束团的整形和调制使电子束团中优先产生辐射的部 分尽可能短,或者通过对电子束团的强压缩使束团的整体长度尽可能短,都能有效地减小辐射脉冲的脉宽。第二 是协作长度对脉冲持续时间的限制。电子束长的减小是有限的,即使可以无限地减小产生辐射的电子束长,滑移 效应也会使辐射脉冲拉长。如果能够通过一些新颖的方法,减少辐射脉冲和电子束团之间的滑移或消除滑移产生 的影响,则能够突破协作长度的限制,产生持续时间更短的超快 X 射线脉冲。

近年来,人们针对这两个限制因素提出并发展了许多方法。本文将根据不同方法利用的主要原理进行分类, 分别介绍相应的超快 XFEL 脉冲产生方案的研究进展。

2 超快 XFEL 脉冲产生方案

2.1 能量调制

由 FEL 共振关系可知, 电子辐射波长与其能量和波荡器 参数有关。波荡器参数固定时, 对电子束团进行合适的能量 调制, 可仅让束团中一部分电子满足目标波长的共振关系, 从而产生较短的辐射脉冲。如图 2 所示, 在电子束团进入波 荡器之前, 使用少周期超短激光脉冲, 在单周期或双周期扭 摆器中与电子相互作用, 可对电子束团产生 fs 时间尺度的能 量调制。由于相互作用的时间范围极短, mJ 量级的激光脉 冲可使电子束团能量调制的幅度达几十 MeV^[28], 这为利用 FEL 产生超短 X 射线脉冲提供了可能。

能量调制与激光脉冲具有相同的周期长度,让能量调制 峰值处的电子与目标辐射波长相匹配,可产生亚飞秒的



Fig. 2 Schematic diagram of energy modulation scheme 图 2 能量调制方案示意图

FEL 脉冲。2004年, Zholents 等人首次研究了基于少周期激光调制的超快 XFEL 脉冲产生方案^[29]。在模拟中,他们使用来自谐波级联的 2 nm 相干 X 射线作为种子辐射,用半高宽为 5 fs 的 800 nm 激光脉冲对电子束团进行能量调制。调制后电子束团中能量最大值处的电子与 2 nm 种子辐射发生相互作用,在束线下游产生脉宽为 48 as (RMS 值)的 1 nm 谐波辐射。此方案布局较为复杂,且最终谐波辐射的功率小于 5 MW。若不引入种子脉冲,直接使用能量调制后的电子产生辐射,则不同纵向位置的电子由于能量不同会产生不同频率的辐射,选择其中的高频部分也可得到由能量峰值处电子产生的超短 FEL 脉冲。Saldin 等人将能量调制与单色仪选频相结合^[28],利用放置在波荡器末端的晶体单色仪滤掉辐射脉冲的大部分频率分量,只保留高频部分,模拟得到了中心波长 0.1 nm、持续时间约 300 as、输出功率 GW 量级的 X 射线脉冲。此方案为了方便选频,高频部分需具有足够大的频率偏移,为此要求调制激光的峰值功率为 500~700 GW。同年 Saldin 等人又提出另一种超快 XFEL 产生方案^[50],使用了两段不同的波荡器。电子束团在经过能量调制后进入第一段波荡器产生种子辐射,第二段波荡器调谐至种子辐射的高频部分。当电子束团的新鲜部分(未经能量调制的部分)与种子辐射共同进入第二段波荡器后,只有高频部分被放大形成辐射尖峰,参考频率的种子辐射不起作用。最终得到脉宽为 300 as 的辐射脉冲,峰值功率可达 100 GW 量级。值得注意的是,此方案第二段波荡器中存在 SASE 模式产生的背景辐射,限制了可容许的波荡器长度及阿秒脉冲的修值功率。

除了利用能量调制峰值处的电子,也可以利用能量调制后具有不同能量啁啾(chirp)的电子产生超快 XFEL 脉 冲。考虑一个带有线性能量啁啾的电子束团(如头部能量高尾部能量低的正啁啾电子束),当电子束团中某一位置 处产生的辐射向前滑移时,与其作用的电子能量偏离共振关系,放大过程被抑制;如果同时使用磁场渐变型波荡 器,线性地改变波荡器的K值(如让波荡器间隙逐渐变窄使K值增大,通常称为"反向渐变"),则辐射波长与电子 能量的共振关系将继续维持。如图2所示,电子束团经过能量调制后,在调制幅度最大值左侧与零交叉的部分具 有很强的正啁啾,选择合适的线性波荡器渐变与之匹配,则只有过零附近的一小段电子能够产生强辐射脉冲,其余 电子的辐射放大过程受到波荡器渐变的强烈抑制。2006年, Saldin 等人系统研究了线性能量啁啾和波荡器渐变对 FEL 放大的影响,并首次提出了利用上述讨论的啁啾渐变(chirp-taper)方法产生阿秒 X 射线脉冲的方案^[3],最终模 拟产生了波长 0.15 nm、脉宽 200 as、峰值功率 100 GW 的辐射输出。此后, Fawley 在 XUV 和软 X 射线频谱范围内 对该方案进行了进一步研究^[32],模拟产生了GW量级的飞秒脉冲,并表示输出脉冲的频率啁啾特性还允许进一步 的时间压缩。2020年, Duris等人通过把能量调制电子束与正弦型渐变波荡器相结合, 把啁啾渐变的概念扩展到了 饱和后的超辐射输出^[3],使用外部激光调制和自调制^[3]的方法分别模拟产生了中心波长为2.48 nm的脉冲串和中 心波长为1.22 nm的孤立单脉冲,脉冲持续时间均低于0.4 fs,峰值功率接近TW。在该方案中由于超辐射放大[35-36], 已经饱和的辐射脉冲功率将继续增长且脉冲持续时间可进一步缩短至小于协作长度,这对滑移效应显著的软 X射线超快脉冲产生尤其有利。此外,啁啾渐变方案还可用于产生超快的双色 FEL 脉冲对。与需要外部激光器 的 X 射线泵浦探测方案相比, 双色 FEL^[37-39]由于脉冲来自同一个电子束团, 通常具有更好的时间稳定性。2019年, 张振等人提出一种双啁啾渐变方案^[40],使用具有不同磁场渐变设置的两段波荡器,分别匹配能量调制后具有不同 能量啁啾的两个电子切片,模拟产生了具有阿秒时间稳定性和可控能量分离的超快 X 射线脉冲对,两脉冲的脉宽 均为0.4 fs,峰值功率可达100 GW。

2.2 电流调制

高峰值电流可以减小 FEL 的增益长度,同时也可以增加 FEL 辐射脉冲的峰值功率。如果电子束团内某一部分电子的局部电流强度显著高于其他部分,这部分产生的辐射会最先达到饱和,形成一个较短的辐射脉冲。如图 3 所示,考虑一个由少周期激光进行调制后具有能量啁啾的电子束团,在经过由 4 个二极磁铁组成的磁压缩结构(chicane)后,束团内部产生密度调制,使得局部电流增强,形成图中所示的电流尖峰。

电子束团经过上述电流调制后进入波荡器产生 SASE 辐射的方案被称为增强型 SASE(ESASE)方案,最早由 Zholents 在 2005 年提出^[41]。模拟中, Zholents 使用脉宽为 5 fs 的 800 nm



Fig. 3 Schematic diagram of current modulation scheme 图 3 电流调制方案示意图

激光对电子束团进行调制。束团在经过磁压缩结构后,电流分布中主峰电流约为相邻峰电流的 1.5 倍,由于主峰 具有更短的增益长度,在 8 个增益长度后其辐射功率远高出邻峰。最终可得到中心波长为 0.15 nm、脉宽为 200 as 的辐射输出。

早期 ESASE 方案存在的一个问题是电子束团经调制后形成多个电流尖峰,从而产生多个辐射尖峰。为了得 到孤立的阿秒脉冲,人们做出了许多尝试来改善输出辐射中主峰与次峰的对比度。Zholents 等人首先提出了双激 光调制的方法^[42],使用 1200 nm 和 1600 nm 两种少周期激光脉冲对电子束进行调制。由于激光波长不同,两次调制 在主峰处的幅度得到增强,而侧峰处的调制相互抵消导致侧峰的幅度减弱。最终模拟得到了波长 0.15 nm、脉宽 250 as 的 X 射线脉冲,主峰的脉冲能量平均为 9.8 µJ,侧峰的能量约为 1 µJ,对比度相较使用单个激光脉冲调制的 方案提高了 2 倍。2009 年,丁原涛等人对双激光调制方案进行了扩展^[43],使用十几个周期长的调制激光,同时通过 调整第二个激光脉冲的频率、强度和脉宽来优化电子束团的能量调制。由于中心电流尖峰处存在很强的纵向空 间电荷力,导致尖峰处电子产生强能量啁啾。因此模拟中使用渐变型波荡器维持 FEL 增益过程,最终得到了波长 0.15 nm、脉宽 100 as、峰值功率 2.3 GW 的 X 射线脉冲输出,中心峰的辐射功率比侧峰高出 20 倍。除上述方法外, Kumar 等人对 ESASE 中不同的调制激光波长、激光脉冲持续时间、射频加速相位、电子束长和平均电流进行了比 较模拟^[4445],以优化电子束的能量分布,控制侧峰电流大小。最终针对韩国 PAL-XFEL 的参数,模拟得到了波长 0.1 nm、 脉宽 146 as 的单尖峰 X 射线脉冲输出,脉冲峰值功率为 58 GW。此方案得到的主峰功率比侧峰功率大 2 个数量 级,对比度得到了很大提高。

传统 ESASE 方案中使用的外部少周期激光功率需要高达数十 GW,这种激光较难获得且在高重复频率 FEL 装置上无法实现。为了克服这一困难,在 FEL 方案上人们提出了一些新的改进。2018年,齐争等人提出一种方案^[46],把角色散引入电子束中,消除了初始电子束能散对密度调制的影响。相比传统 ESASE 方案,此方法在相同参数下可形成更强的电流尖峰,从而将所需调制激光的功率降低了 1 个量级。模拟中针对 SHINE 的参数使用峰值功率为 2.6 GW 的调制激光与电子束相互作用,可得到脉冲能量 5.5 μJ、脉宽 210 as、波长 0.15 nm 的 X 射线脉冲输出,且辐射脉冲的信噪比也有所提高。2019年, MacArthur 等人提出了一种无需外部激光即可对电子束进行能量调制的稳相自调制方法,并在 LCLS 上进行了实验验证^[34]。该方案利用电子束尾部的电流尖峰在扭摆器中产生具有GW 功率的相干红外辐射脉冲,该辐射场在同一扭摆器中对电子束进行能量调制,调制幅度可达到几 MeV 且具有 100 as 量级的稳定性。上述方法为高重复频率 FEL 装置利用调制电子束产生亚飞秒 X 射线提供了可能。

在 ESASE 实验方面, LCLS 已经取得了许多突破性的成果。2020年, Duris 等人基于自调制方法进行了首个 ESASE 实验的成功演示 (图 4)^[47], 在 LCLS 上产生了峰值功率超过 100 GW 的孤立软 X 射线阿秒脉冲,使用阿秒角条纹光谱^[48-49] 对 X 射线脉冲的时间结构进行单次测量和重建,其中光子能量为 905eV 时脉冲持续时间的中值为 280 as,光子能量为 570 eV 时脉冲持续时间的中值为 480 as。同年,张振等人进行了另一种基于光阴极驱动激光时间整形的自调制 ESASE 实验^[50],在 940 eV 的光子能量下产生了脉冲持续时间为 250 as 的 X 射线脉冲,脉冲能量的最大值超过 100 μJ。2021年, Duris 等人又进行了直接使用外部激光调制的 ESASE 实验^[51],产生了光子能量为 560 eV



Fig. 4 Schematic illustration of the ESASE experiment at LCLS^[47] 图 4 LCLS ESASE 实验装置示意图^[47]

的单尖峰 X 射线脉冲,脉冲能量为 39 μJ±21 μJ,脉宽约为 1 fs。ESASE 实验产生的 X 射线脉冲光子通量比现有的 其他阿秒软 X 射线源大数百万倍^[47],且使用自调制的方法很容易扩展到 MHz 的重复频率,有望为阿秒科学的发展 带来新突破。

2.3 发射度破坏

在 SASE 过程中 FEL 增益对电子束的横向发射度极为敏感,通过选择性地破坏大部分电子的横向发射度,抑制其辐射增益过程,只留下很短的一个电子切片维持原有的低发射度,将能够产生远远短于电子束团长度的 X 射线脉冲。2004年,Emma 等人首先提出了利用开槽箔片破坏电子束团横向发射度的方案^[52]。通过对直线加速器中射频场的加速相位进行调整,可在电子束中产生能量啁啾。电子束在经过磁压缩结构时会由于色散产生相对纵轴的大角度倾斜,从而使电子束的横向位置与时间关联起来。如图 5 所示,在磁压缩结构的中间装有垂直方向开有窄槽的金属箔片,当电子束团打在金属箔上时,由于库仑散射会大大增加其横向发射度,而穿过狭缝的电子发射度

不会受到破坏,能够继续在波荡器中产生辐射脉冲。更窄的 狭缝宽度可用于产生更短的辐射脉冲,但为了使未破坏部分 的电子束达到一定的峰值电流,狭缝宽度受到电子束初始横 向 RMS 尺寸和固有能散的限制。此外,使用开有双槽的箔 片还允许连续产生2个非常短的脉冲,脉冲之间的时间间隔 可由双槽的距离决定。



在 Emma 等人的模拟当中^[52],使用 250 μm 宽的狭缝对初始电荷量 1 nC、束长 200 fs 的电子束团进行整形,得到 未被破坏的电子切片长为 8 fs,最终模拟产生了光子能量 8 keV、脉宽 2 fs 的 X 射线脉冲,峰值功率可达 10 GW。 开槽箔片的方法操作简单、易于实施,自 2010 年以来就在 LCLS 上得到了广泛使用^[53]。但由于当时缺乏适当的飞 秒诊断技术,FEL 脉冲持续时间只能根据公式估算。2015 年,丁原涛等人利用 X 波段偏转腔 (XTCAV)^[54]对开槽箔 片的电子束破坏效果和产生的 X 射线脉冲持续时间进行了测量^[55]。实验中 X 射线波长为 1.1 nm,当束团电荷量 为 180 pC 时,使用 270 μm 宽的狭缝对电子束整形,产生的 X 射线脉冲持续时间为 10 fs,峰值功率可达 10 GW。当 束团电荷量为 20 pC 时,对电子束进行更强的压缩,此时能量啁啾和压缩因子更大,产生的脉冲持续时间更短,可 小于 4 fs,峰值功率大于 2.5 GW。LCLS 在产生软 X 射线时电子束电流通常运行在 1 kA 左右,而产生硬 X 射线时 电子束电流通常超过 3~4 kA,具有更强的啁啾和压缩,可产生更短的 X 射线脉冲。2017 年, Marinelli 等人在 LCLS 上使用开槽箔片的方法进行实验^[56],通过对束流传输进行优化,使得电子束在开槽箔片位置处具有最小的 *β* 函数,同时在 20 pC 的低电量模式下运行,产生了光子能量 5.6 keV、脉冲持续时间 420 as 的单尖峰硬 X 射线,且 单尖峰的重复率可达 65%。值得注意的是,由于滑移效应的限制,开槽箔片的方法难以在软 X 射线范围内产生阿 秒脉冲。

除了对电子束的横向发射度进行破坏外,对电子束的纵向发射度进行破坏也能起到相同的作用。在直线加速器中,注入器出口处通常安装有激光加热器(Laser Heater)^[57-58],用于适量增加电子束的能散以抑制电子在加速器中的微群聚等集体效应。2016年,Marinelli等人报告了基于激光加热器使用光学方法对电子束团纵向发射度进行选择性破坏的实验^[59]。在激光加热器中使用经过时间整形后带有时间缺口的红外激光脉冲与电子束相互作用,缺口部分的电子能散保持不变;而其余与激光相互作用的电子束能散增大到超过 FEL 增益阈值,增益过程被抑制。最终产生了光子能量 1.5 keV、脉宽约 10 fs、峰值功率超过 30 GW 的软 X 射线脉冲。使用光学方法对电子束整形具有很大的灵活性,同时相较于开槽箔片的方法,光学整形克服了其对平均束流功率的限制,为下一代更高重复频率和更高平均功率的 FEL 脉冲时间整形提供了可能的方法。

2.4 轨道控制

电子在通过波荡器产生 FEL 增益时,运动轨迹应该在波荡器轴线附近,远离轴线的电子 FEL 增益被抑制。由此可对电子束团的初始横向相空间(包括位置和角度)进行操控,从而控制电子在波荡器中的横向轨道位置,操控电子束团的局部发光过程。改变电子束团的初始横向相空间可以通过射频偏转腔、激光调制、横向尾场、基于色散等多种方法来实现,以下将分别进行介绍。

调整射频偏转腔的相位,可使电子在波荡器入口处仅产生横向位置偏移或角度偏移。2004年,Emma等人提出了利用偏转腔对电子束团进行轨道控制的方案^[60],使电子在波荡器入口处具有时间—横向位移关联或时间—横向偏角关联,其模拟表明FEL输出功率对这种空间啁啾和角度啁啾同样敏感。通过调节偏转腔使电子束团的啁

啾幅度最大化,最终可产生波长为 0.15 nm、峰值功率 12 GW、脉宽 12.5 fs(RMS 值)的辐射输出。此方法中 X 射线脉冲自然地与偏转腔锁相,可与外部信号实现较好的时间同步。

使用少周期激光脉冲同样可对电子束团进行角度调制。2008年, Zholents 提出了利用激光调制控制电子束团 轨道的方案^[6],使用具有初始角度偏移的电子束团进入扭摆器。经激光调制后,调制幅度最大处电子的角度偏移 正好与电子束团初始角度偏移抵消,再进入波荡器中则只有角度调制峰值处的一小部分电子产生辐射。将这种由 角度调制产生的轨道控制与能量调制结合起来,最终模拟产生了波长 0.15 nm,脉冲持续时间 115 as 的 X 射线脉 冲,峰值功率可达 100 GW。

电子束团的横向倾斜还可以利用横向尾场产生,尾场源可以来自射频腔结构,也可以是一些更有效的无源 结构,如带有电介质层或波纹结构的金属管和金属板^[62-64]。LCLS 在波荡器入口的上游安装有带波纹的平行金属 板作为去啁啾器(dechirper)^[65-67],当电子束离轴入射时其激发的横向尾场会对电子束施加横向冲击,且波纹板间 距可调以对尾场进行控制。利用去啁啾器横向尾场选择性地控制电子束团切片发光的新鲜束技术已在 2016 年 得到实验验证^[39]。2018 年,Lutman 等人又把这一技术应用于高功率的超快 XFEL 脉冲产生上^[68],在图 6 所示实验 中,将束团的尾部、中部和头部的轨道依次修正到轴线上,段间使用延迟结构使辐射脉冲与轴线上的电子束对 齐,中部和头部的电子分别放大尾部产生的辐射,产生了光子能量为 670 eV 的软 X 射线脉冲,脉冲持续时间为 几 fs,脉冲能量高达 705 μJ。



Fig. 6 Fresh-slice technique based on the transverse wakefields of a dechirper^[68] 图 6 基于去啁啾器横向尾场的新鲜束技术^[68]

通过对具有能量啁啾的电子束团引入横向色散也可实现对电子的轨道控制^[69-70]。横向色散是指电子横向位置 与能量之间的相关性。2018年, Guetg和Lutman等人在实验上对这一想法进行了验证^[71]。首先在直线加速器部分 使电子束产生较大的能量啁啾,具有能量啁啾的电子束在通过 dogleg 色散段时,不同能量的电子在不同的横向轨 道上运动。色散段中安装有一对四极磁铁,不同横向位置的电子束会受到不同的横向踢偏,即引入与时间相关的 横向踢偏。通过色散段后电子束将产生与时间相关的横向轨道偏移。这种方法不需要引入额外的插入件,便于 在 FEL 装置上使用。

2.5 低电量束团压缩

束团压缩可以从根源上减小辐射脉冲的持续时间。实际上在电子束团进入到波荡器之前会经过多次束团压 缩,提高峰值流强。但由于加速器中的束团集体效应和空间电荷力等影响,FEL中电子束的峰值流强受到限制。 因此为了达到极短的脉冲宽度,需要降低束团电荷量,以允许强压缩。

最初人们提出了利用极低电荷量进行束团压缩的想法,当电子束长度极短,与协作长度在同一量级时,可以产 生单尖峰 SASE 辐射。2008年, Reiche 等人模拟了对 1 pC 电子束团的强压缩^[72],经波荡器可得到中心波长为 0.15 nm、 脉冲持续时间短至 300 as 的 X 射线脉冲,峰值功率超过 10 GW。这类方案中几乎所有的电子束都用于辐射输出。 但考虑到实际运行,这种极低电荷量的束团会给束流诊断带来挑战。

LCLS 低电量运行的电荷量通常为 20 pC。2009 年, 丁原涛等人对此模式下的超短电子束进行了测量^[73], 并模 拟了 20 pC 电子束的 FEL 辐射, 在辐射波长为 1.5 nm 和 0.15 nm 两种模式下产生的辐射脉宽均为 2 fs。其中由于长 波辐射的协作长度更长, 1.5 nm 的辐射为单尖峰, 而 0.15 nm 的辐射为多尖峰。2014 年, Behrens 等人利用 X 波段偏 转腔对低电量运行模式下产生的超短 X 射线脉冲进行了实验测量^[74]。在光子能量为 1 keV 时, 测得了脉宽为 2.6 fs 峰值功率大于 10 GW 的单尖峰 X 射线脉冲。此外, Swiss FEL, European XFEL 的研究人员也对低电量运行模式进 行了研究^[75-76], Marchetti 等人针对 European XFEL 的参数模拟了在 20 pC 运行模式下, 可产生中心波长 0.26 nm 的亚 飞秒单尖峰 XFEL 脉冲。

以上方案中束团在压缩之前具有线性的能量啁啾,可以通过高次谐波射频腔线性化电子束的纵向相空间来实现,从而使压缩后的束团具有相对均匀的电流分布,为线性束团压缩。这种方案在对电子束完全压缩时峰值电流

对主加速器的相位抖动十分敏感,对FEL的稳定性造成了很大限制。2014年,黄森林等人提出了非线性束团压缩的方案^[77],非线性束团压缩方案是通过优化高次谐波射频腔的幅度和相位,同时调整主加速器的参数,使电子束在压缩后实现如图7所示的非线性"牛角状"纵向相空间分布,电流分布由高电流尖峰头部和低电流尾部组成。这种运行状态下,初始电子束团的中间部分被完全压缩,而头部和尾部分别处于过压缩和欠压缩状态,即使主加速器的相位抖动较大,也能够产生稳定的电流尖峰,因为靠近中心的电子束团的不同部分总能被完全压缩。同时非线性束团压缩方法也不需要加入额外的硬件,可直接在任何现有的XFEL装置上使用。之后LCLS完成了非线性束团压缩的实验^[78],实验中对 20 pC 的电子束进行非线性束团压缩,峰值电流为线性压缩下的两倍。使用 X 射线光谱仪测量输出脉冲的光谱并根据公式对脉宽进行计算,在光子能量为 5.6 keV 和 9 keV 的情况下均能产生约 200 as 的 X 射线脉冲,其中光子能量为 5.6 keV 时,8400 发的实验结果中有 50% 为单尖峰脉冲,脉冲平均能量为 10 µJ。2020年, Malyzhenkov等人也报告了在 Swiss FEL 上使用非线性束团压缩进行的实验^[79],在 7.36 keV 的光子能量下产生了平均脉宽 326 as 的硬 X 射线脉冲,其中单尖峰脉冲的平均脉冲能量为 1.3 μJ。



2.6 锁模 FEL

2008年, Thompson等人把激光器中锁模的概念应用于 FEL 当中^[80], 以产生阿秒脉冲串。其方案原理如图 8 所示, 通过在波荡器之间引入磁延迟结构(chicane), 对经过能量调制的电子束施加周期性延迟, 从而使每个波荡器中发射的辐射波前产生重叠, 引起辐射的相长干涉。最终模拟产生了波长为 0.15 nm、脉宽为 23 as、脉冲间隔 150 as 的阿秒脉冲串, 峰值功率为 6 GW。

2013年, Dunning等人对上述方法做了调整, 使脉宽 RMS 值缩短至约 700 zs, 仅覆盖几个辐射波长^[81]。该方法的原理示意图如图 9 所示, 在 FEL 波荡器之后增加一些紧凑的 afterburner 装置, 该装置由几个少周期波荡器组成, 且少周期波荡器之间装有磁延迟结构对电子束进行延迟。首先, 经过能量调制的电子束在常规的 FEL 波荡器中



Fig. 9 Schematic diagram of the mode-locked FEL scheme proposed by Dunning et al.^[81] 图 9 Dunning 等人提出的锁模 FEL 方案示意图^[81]

产生 SASE 辐射,并在调制后能量最小值附近由电子微聚束形成梳装结构。在 FEL 增益饱和之前,电子束和辐射一起进入 afterburner 当中,短波荡器和磁延迟结构使得辐射脉冲不断增益并沿电子束移动到下一个强微聚束区域。此方案在 afterburner 中使用了 5 周期的波荡器,模拟可得到中心波长 0.1 nm, RMS 持续时间为 700 zs、脉冲间隔 10 as、峰值功率 1.5 GW 的脉冲串输出。这种方法可以在现有的 FEL 装置后加入 afterburner 装置来进行相对容易的升级,以生产具有 GW 峰值功率的阿秒脉冲串。

2.7 级联放大

为了进一步提高脉冲峰值功率, 缩短脉冲持续时间, 多种级联放大的方案相继被提出, 以产生孤立的太瓦阿 秒 X 射线脉冲。在开槽箔片、轨道控制、ESASE等方案的基础上, 利用延迟结构让处在不同时间切片的电子分别 与目标辐射脉冲相互作用, 使辐射脉冲不断放大到 TW 量级。由于辐射过程中辐射脉冲不断地与新的电子束切片 作用产生超辐射放大, 在脉冲功率放大的同时脉冲持续时间能够进一步减小, 突破协作长度的限制。

在开槽箔片方法中,同一箔片上使用多个狭缝可产生多个用于 FEL 发光的电子切片。之后在波荡器段间使用 延迟结构,让目标辐射脉冲从电子束团尾部到头部依次与保留发射度的电子切片重合,从而实现目标辐射脉冲的 级联放大。2015年, Prat 使用带有不等间距狭缝的铝箔进行脉冲级联放大^[82]。在依次对齐过程中,由于间隔不规则,初始的其他辐射无法与目标电子束区域对齐,可形成较好的单尖峰脉冲。针对 0.1 nm 和 0.5 nm 的辐射输出分 别进行了模拟,在 0.1 nm 的情况下平均脉宽为 228 as, 0.5 nm 的情况下平均脉宽为 142 as,峰值功率均可达到 TW 量级。

利用轨道控制也可实现级联放大的效果,其中与目标辐射脉冲相互作用的电子切片为在波荡器中心轴线附近的电子,基于去啁啾器尾场的超快方案^[69]就利用了级联放大的方法。此外 2015 年, Prat 也利用倾斜电子束模拟了辐射脉冲级联放大的过程^[83]。通过在每一段波荡器前把未作用过的电子切片移动到波荡器轴线上并与辐射脉冲 对齐,最终可以使整个电子束团都参与辐射过程,产生的辐射脉冲中心波长为 0.1 nm,脉冲持续时间约 500 as,峰值 功率约 1 TW。

基于 ESASE 方案人们提出了多种级联放大方案,最早的是由 Tanaka 在 2013 年提出的使用常规 ESASE 后形成 的等间隔电流尖峰的方案^[84],电流峰首先在波荡器中各自产生辐射峰,后引入光延迟器使辐射脉冲头部的辐射峰 与电子束尾部的电流峰对齐发生相互作用,之后在磁延迟结构的作用下辐射峰依次向前与下一个电流峰对齐。最 终脉冲头部的辐射峰被显著放大,模拟可得到光子能量 10 keV、脉宽 53 as 的辐射输出,峰值功率可达 6.6 TW。但 由于初始的电流峰是等间隔的,这种方案产生的辐射输出除了头部的辐射峰作为主峰外,其他辐射峰也会被电流 峰一定程度地放大,形成伴随的一系列小峰。为了解决这一问题,Kumar 等人提出了使用单个电流尖峰来代替多 电流尖峰的级联放大方案^[85]。该方案在常规的 ESASE 后面增加了若干个小辐射段和光延迟器,在每个小辐射段 X 射线脉冲从电流尖峰滑移出去后,使用光延迟器重新使辐射峰和电流峰对齐产生放大,最终模拟得到了中心波 长 0.1 nm、脉宽 100 as 的辐射输出, 饱和功率达 0.3 TW。上述两方案中均加入了对 X 射线的延迟单元, X 射线反射 镜的振动及反射对功率的损耗均会降低最终的辐射脉冲性能。2017年, 王震等人提出使用带有频率啁啾的激光 对电子束进行调制的方案^[86], 调制后形成的电流峰具有不同大小的间距。模拟中把尾部的辐射峰作为目标辐射 峰, 使用磁延迟结构让电流峰从尾部至头部依次与主峰对齐。由于电流峰间距不等, 其他辐射峰不能与电流峰对 准并发生放大, 最终可得到孤立的单脉冲输出, 脉冲峰值功率可达 1.7 TW, 脉宽为 80 as, 辐射波长为 0.15 nm。

除硬 X 射线外,级联放大在产生阿秒软 X 射线脉冲上也具有很大潜力。2016年,黄森林等人提出了一种使用 长脉冲激光调制带有能量啁啾电子束团的级联放大方案^[87]。如图 10 所示,调制后的电子束团经过色散段产生分 立的电流峰,不同电流峰的能量不同。电子束团在 U1 波荡器中产生 SASE 辐射,之后电子经过磁延迟结构,辐射 经过光栅单色仪。被筛选出的单色辐射峰在辐射段波荡器中依次与各个电流峰相互作用,由于电流峰能量不同, 通过改变每个辐射段波荡器的磁场强度,可使谐振波长均保持一致,且同一个波荡器中只有一个电流峰会产生强 辐射输出,其他的峰都被抑制。该方案还结合波荡器磁场渐变技术,最终模拟得到波长为 1.5 nm、脉宽为 260 as 的 软 X 射线脉冲输出,峰值功率达 550 GW。



图 10 阿秒软 X 射线级联放大方案示意图^[87]

2.8 啁啾微聚束

通过控制 FEL 中的滑移过程,抑制滑移对脉冲延长的影响,将有可能产生极短的 X 射线脉冲。2015年, Tanaka 提出了基于啁啾微聚束的单周期 X 射线脉冲产生方案^[83],方案原理如图 11 所示。电子束团与单周期种子激光进 入单周期波荡器,相互作用后在束团尾部产生一个周期的能量调制,经密度调制后形成单个的微聚束切片。之后 电子束团进入第一个渐变波荡器并产生啁啾辐射,该辐射在下一段波荡器中与电子束团的新鲜部分对齐,对电子 进行调制,产生啁啾微聚束。不同间距的微聚束切片在第二个渐变波荡器中产生不同中心波长的相干辐射,最终 各个波长的辐射经过滑移后发生相消干涉,形成单周期的 X 射线脉冲输出。该方案使用能量为 2 GeV、峰值流强 2 kA 的电子束,模拟得到了波长为 8.6 nm、功率为 1.2 GW 的辐射脉冲,脉冲持续时间为 46 as。此方案需要超短的 种子脉冲,其输出辐射的性能对种子带宽和电子束能散非常敏感,在实现上具有较大的技术挑战。





3 现存超快方案比较

前面回顾了近年来提出和发展的各类超快 XFEL 脉冲产生方案,分析了各方案的原理和特点,下面对各类方案的结果及优缺点进行总结和比较。图 12显示了各类典型方案中输出脉冲的峰值功率和脉冲持续时间,其中各数据点的具体数值参见表1。从图中可以看出,各类方案中硬 X 射线能够达到的最小脉冲持续时间相较软 X 射线



Fig. 12 Comparison of various ultrafast XFEL pulse generation schemes. The blue markers represent hard X-ray generation schemes and magenta markers represent soft X-ray generation schemes. The orange filled markers indicate the schemes have been validated on FEL facilities. The shaded blue area indicates the parameter space that can be achieved currently

图 12 各类超快 XFEL 脉冲产生方案比较:图中蓝色标记表示产生硬 X 射线的方案,品红色标记表示产生软 X 射线的方案,带有橙色 实心点标记的表示已经在 FEL 装置上成功验证的实验结果,蓝色阴影区域为当前装置能够达到的脉冲宽度和峰值功率范围

Table 1Main parameters of the schemes presented in Fig.12								
scheme	pulse duration (FWHM)/as	pulse peak power/GW	wavelength/photon energy	reference				
	100	0.005	1 nm	[29]				
energy modulation	300	1	0.1 nm	[28]				
	300	100	0.15 nm	[30]				
	200	100	0.15 nm	[31]				
	400	100	900 eV/ 1100 eV	[40]				
	400	1 000	1.22 nm/ 2.48 nm	[33]				
current modulation	250	40	0.15 nm	[42]				
	100	2.3	0.15 nm	[43]				
	146	58	0.1 nm	[45]				
	210	25	0.15 nm	[46]				
	280	100	905 eV	[47]				
	250	120	940 eV	[50]				
	1 000	39	560 eV	[51]				
emittance spoiling	2 000	10	8 keV	[52]				
	3 800	2.5	1.1 nm	[55]				
	420	30	5.6 keV	[56]				
	10 000	30	1.5 keV	[59]				
orbit control	29 000	12	0.15 nm	[60]				
	115	100	0.15 nm	[61]				
	5 000	140	670 eV	[68]				

表 1 图 12 中各数据点所代表方案的主要参数值 Fable 1 Main parameters of the schemes presented in Fig.12

scheme	pulse duration (FWHM)/as	pulse peak power/GW	wavelength/photon energy	reference	
	300	10	0.15 nm	[72]	
	2 000	20	1.5 nm	[73]	
low charge bunch compression	2 600	10	1 keV	[74]	
	140	35	0.15 nm	[77]	
	200	50	5.6 keV	[78]	
	326	4.3	7.36 keV	[79]	
	23	6	0.15 nm	[80]	
mode-locked FEL	1.5	1.5	0.1 nm	[81]	
	228	1 000	0.1 nm	[82]	
	500	1 000 0.1 nm		[83]	
1 1. 6 (53	6 600	10 keV	[84]	
cascade amplification	100	300	0.1 nm	[85]	
	80	1 700	0.15 nm	[86]	
	260	550	1.5 nm	[87]	
chirped microbunching	46	1.2	8.6 nm	[88]	

更短,这与 FEL 脉宽受限于协作长度的结论相一致。在实验方面,硬 X 射线范围内已成功运行的方案有基于低电量束团压缩和开槽箔片的方案,其中非线性束团压缩方案可实现目前报道最短的脉冲持续时间,约为 200 as。在软 X 射线范围内已成功运行的方案有 ESASE、基于去啁啾器的轨道控制、低电量束团压缩和开槽箔片的方案,其中 ESASE 方案实现了约 280 as 的最短脉宽,峰值功率达 100 GW 量级。

从方案原理来看,能量调制、电流调制、发射度破坏、轨道控制和低电量束团压缩都利用了电子束团中的时间 切片或更短的电子束团来产生辐射脉冲。其中基于啁啾渐变和 ESASE 的方案在模拟上可容易产生百 as、百 GW 的 X 射线脉冲,同时都可以在软 X 射线频谱内产生阿秒脉冲,是现阶段发展中非常有竞争力的超快 FEL 候选方 案。发射度破坏、轨道控制和低电量束团压缩方案在硬 X 射线范围内可产生亚飞秒脉冲,但由于软 X 射线较长的 协作长度,目前还难以产生阿秒范围的软 X 射线。级联放大的方案可在开槽箔片、轨道控制、ESASE 等方案的基 础上,通过引入延迟结构使脉冲的峰值功率提高到太瓦量级,同时利用超辐射的性能可使脉冲持续时间进一步缩 短至阿秒范围,为阿秒太瓦 X 射线脉冲的产生提供了方法。锁模 FEL 和基于啁啾微聚束的方案利用了对滑移的 控制,模拟上可实现小于 100 as 的 X 射线脉冲,分别在硬 X 射线达到了 1 as 量级和在软 X 射线达到了单周期脉冲 的脉冲持续时间,在未来有很大的前景。

各类方案的其他特性及优缺点总结在表2中。基于外部激光对电子束团进行调制通常需要功率高达数十GW的激光脉冲,激光器有限的平均功率限制了其在高重复频率FEL上的使用。但使用激光调制允许FEL脉冲和外部激光的时间同步,这为进行泵浦探测实验提供了便利。从方案的复杂程度来看,对现有装置尽可能少的改动是目前实验发展阶段的首选。在方案中加入更多的激光、扭摆器、chicane、光栅等束线元件,理论上可产生具有优异性能的X射线脉冲,但在技术上还存在很多挑战,如FEL装置中子系统间有限的时间同步^[89]等。随着加速器技术的不断发展和FEL装置的升级改造,这些方案将会在实验上绽放异彩。

4 结论与展望

超快 XFEL 的发展推动着科学应用和技术的不断进步,目前在 XFEL 装置上已经能够实现几百 as 和 100 GW 量级的辐射脉冲输出,进一步缩短 XFEL 脉冲受到电子束长和协作长度的限制。本文分析比较了近年来人们提出 的各类超快方案的特性和优缺点,包括一些已经成熟应用的方法和还需验证的新思想。每一类方法都有其独特的 优势,可以考虑把不同概念的优势相结合,以进一步提高超快 XFEL 脉冲的性能。

未来超快 FEL 的发展面向更高的峰值功率和更短的脉冲时间,以实现太瓦阿秒的 X 射线脉冲,目前展现出最 大活力的方法有 ESASE 和各类让 FEL 脉冲扩展到超辐射状态的方案,可围绕这一主题继续展开深入的研究,在稳 定性、对比度和可行性方面做进一步探讨。此外,新发展的方案应适应未来高重复频率 FEL 装置的需求,这将能 够通过多条波荡器线的并行使用在相同时间内为多个实验站提供更多的光脉冲。

scheme		spectral	isolated pulse/	synchronization	high repetition	hardware requirements
		range	pulse train	to optical laser	frequency (MHz)	and feasibility
energy modulation		all (soft X-ray to hard X-ray)	isolated/train	yes	no (self- modulation method-yes)	high power external laser, need to add modulators
current n	nodulation	all	isolated/train	yes	no (self- modulation method-yes)	high power external laser, need to add modulators
emittance slo spoiling optic	slotted foil	- all	isolated	no	no	non-invasive hardware, can be used at any facilities
	optical shaping			yes	yes	no additional hardware, can be used at any facilities
orbit control	RF deflector	- - all	isolated	no	yes	no additional hardware, can be used at any facilities
	laser modulation			yes	no	high power external laser, need to add modulators
	transverse wakefield			no	yes	add dechirper before the undulator
	dispersion based			no	yes	no additional hardware, can be used at any facilities
low charge bur	nch compression	all	isolated	no	yes	no additional hardware, can be used at any facilities
cascade ar (based on slotted ESASE, the specif same a	nplification foil, orbit control, fic attributes are the s above)	all	isolated/train			add chicane between undulators, need a dedicated line
mode-lo	cked FEL	all	train	yes	no	high power external laser and chicanes, need a dedicated line
chirped mi	crobunching	soft X-ray	isolated	yes		seed laser and modulators, need a dedicated line

表 2 各类超快 XFEL 脉冲产生方案特性汇总

Table 2 A summary of various ultrafast XFEL pulse generation schemes

超快 XFEL 的发展还可与极化控制相结合产生具有特定偏振的 X 射线脉冲或者产生带有轨道角动量的超快 涡旋光束^[90-92], 以适应从基础科学到工业应用等更多领域的研究需求; 进一步精确的脉冲产生还可考虑对脉冲波 形的控制, 这将对一些超快场驱动实验有重要作用^[93-94]; 在对电子束团的调控上可以考虑更多的手段, 如通过阴极 驱动激光的特定整形从源头开始优化电子束团的时空分布等。

总之,超快 XFEL 的发展正处于一个充满活力的阶段,越来越多的新思想不断涌现,同时也伴随者各种各样技术上的挑战。相信在各位专家的持续努力下,超快 XFEL 脉冲的性能将会不断提升,为超快科学的发展带来新的突破。

参考文献:

- [1] Hettel R. DLSR design and plans: an international overview [J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2014, 21(5): 843-855.
- [2] Tavares P F, Leemann S C, Sjöström M, et al. The MAX IV storage ring project [J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2014, 21(5): 862-877.
- [3] Jiao Yi, Xu Gang, Cui Xiaohao, et al. The HEPS project [J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2018, 25(6): 1611-1618.
- [4] Öström H, Öberg H, Xin H, et al. Probing the transition state region in catalytic CO oxidation on Ru[J]. Science, 2015, 347(6225): 978-982.
- [5] Fukuzawa H, Son S K, Motomura K, et al. Deep inner-shell multiphoton ionization by intense X-ray free-electron laser pulses [J]. Physical Review Letters, 2013, 110: 173005.
- [6] Chapman H N, Barty A, Bogan M J, et al. Femtosecond diffractive imaging with a soft-X-ray free-electron laser[J]. Nature Physics, 2006, 2(12): 839-843.
- [7] Lünnemann S, Kuleff A I, Cederbaum L S. Charge migration following ionization in systems with chromophore-donor and amine-acceptor sites [J]. The Journal of Chemical Physics, 2008, 129: 104305.
- [8] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, et al. Real-time observation of valence electron motion [J]. Nature, 2010, 466(7307): 739-743.
- [9] 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.
- [10] 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.
- [11] Li Jie, Ren Xiaoming, Yin Yanchun, et al. 53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge[J]. Nature Communications, 2017, 8: 186.
- [12] Sansone G, Poletto L, Nisoli M. High-energy attosecond light sources [J]. Nature Photonics, 2011, 5(11): 655-663.

- [13] Popmintchev T, Chen Mingchang, 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.
- [14] 金光齐,黄志戎,瑞安·林德伯格. 同步辐射与自由电子激光——相干X射线产生原理[M]. 黄森林,刘克新,译. 北京:北京大学出版社, 2018. (Kim K J, Huang Zhirong, Lindberg R. Synchrotron radiation and free-electron lasers: principles of coherent X-ray generation[M]. Huang Senlin, Liu Kexin, trans. Beijing: Peking University Press, 2018)
- [15] Ackermann W, Asova G, Ayvazyan V, et al. Operation of a free-electron laser from the extreme ultraviolet to the water window [J]. Nature Photonics, 2007, 1(6): 336-342.
- [16] Emma P, Akre R, Arthur J, et al. First lasing and operation of an ångstrom-wavelength free-electron laser [J]. Nature Photonics, 2010, 4(9): 641-647.
- [17] Ishikawa T, Aoyagi H, Asaka T, et al. A compact X-ray free-electron laser emitting in the sub-ångström region [J]. Nature Photonics, 2012, 6(8): 540-544.
- [18] Allaria E, Appio R, Badano L, et al. Highly coherent and stable pulses from the FERMI seeded free-electron laser in the extreme ultraviolet[J]. Nature Photonics, 2012, 6(10): 699-704.
- [19] Allaria E, Castronovo D, Cinquegrana P, et al. Two-stage seeded soft-X-ray free-electron laser [J]. Nature Photonics, 2013, 7(11): 913-918.
- [20] Kang H S, Min C K, Heo H, et al. Hard X-ray free-electron laser with femtosecond-scale timing jitter[J]. Nature Photonics, 2017, 11(11): 708-713.
- [21] Decking W, Abeghyan S, Abramian P, et al. A MHz-repetition-rate hard X-ray free-electron laser driven by a superconducting linear accelerator[J]. Nature Photonics, 2020, 14(6): 391-397.
- [22] Prat E, Abela R, Aiba M, et al. A compact and cost-effective hard X-ray free-electron laser driven by a high-brightness and low-energy electron beam[J]. Nature Photonics, 2020, 14(12): 748-754.
- [23] Zhao Zhentang, Wang Dong, Gu Qiang, et al. SXFEL: a soft X-ray free electron laser in China [J]. Synchrotron Radiation News, 2017, 30(6): 29-33.
- [24] Galayda J N. The linac coherent light source-II project [C]//Proceedings of the 5th International Particle Accelerator Conference (IPAC 2014). 2014: 935-937.
- [25] Zhao Zhentang, Wang Dong, Yang Ziyan, et al. SCLF: an 8-GeV CW SCRF linac-based X-ray FEL facility in Shanghai[C]//Proceedings of the 38th International Free Electron Laser Conference (FEL 2017). 2017: 182-184.
- [26] Bonifacio R, De Salvo L, Pierini P, et al. Spectrum, temporal structure, and fluctuations in a high-gain free-electron laser starting from noise[J]. Physical Review Letters, 1994, 73(1): 70-73.
- [27] Coffee R N, Cryan J P, Duris J, et al. Development of ultrafast capabilities for X-ray free-electron lasers at the linac coherent light source[J]. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 2019, 377: 20180386.
- [28] Saldin E L, Schneidmiller E A, Yurkov M V. Terawatt-scale sub-10-fs laser technology key to generation of GW-level attosecond pulses in X-ray free electron laser [J]. Optics Communications, 2004, 237(1/3): 153-164.
- [29] Zholents A A, Fawley W M. Proposal for intense attosecond radiation from an X-ray free-electron laser[J]. Physical Review Letters, 2004, 92: 224801.
- [30] Saldin E L, Schneidmiller E A, Yurkov M V. A new technique to generate 100 GW-level attosecond X-ray pulses from the X-ray SASE FELs[J]. Optics Communications, 2004, 239(1/3): 161-172.
- [31] Saldin E L, Schneidmiller E A, Yurkov M V. Self-amplified spontaneous emission FEL with energy-chirped electron beam and its application for generation of attosecond X-ray pulses[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2006, 9: 050702.
- [32] Fawley W M. Production of ultrashort FEL XUV pulses via a reverse undulator taper[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2008, 593(1/2): 111-115.
- [33] Duris J, Zhang Z, MacArthur J, et al. Superradiant amplification in a chirped-tapered X-ray free-electron laser[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2020, 23: 020702.
- [34] MacArthur J P, Duris J, Zhang Zhen, et al. Phase-stable self-modulation of an electron beam in a magnetic wiggler[J]. Physical Review Letters, 2019, 123: 214801.
- [35] Bonifacio R, McNeil B W J, Pierini P. Superradiance in the high-gain free-electron laser[J]. Physical Review A, 1989, 40(8): 4467-4475.
- [36] Bonifacio R, Piovella N, McNeil B W J. Superradiant evolution of radiation pulses in a free-electron laser[J]. Physical Review A, 1991, 44(6): R3441-R3444.
- [37] Lutman A A, Coffee R, Ding Yuantao, et al. Experimental demonstration of femtosecond two-color X-ray free-electron lasers [J]. Physical Review Letters, 2013, 110: 134801.
- [38] Hara T, Inubushi Y, Katayama T, et al. Two-colour hard X-ray free-electron laser with wide tunability [J]. Nature Communications, 2013, 4: 2919.
- [39] Lutman A A, Maxwell T J, MacArthur J P, et al. Fresh-slice multicolour X-ray free-electron lasers [J]. Nature Photonics, 2016, 10(11): 745-750.
- [40] Zhang Zhen, Duris J, MacArthur J P, et al. Double chirp-taper X-ray free-electron laser for attosecond pump-probe experiments[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2019, 22: 050701.
- [41] Zholents A A. Method of an enhanced self-amplified spontaneous emission for X-ray free electron lasers [J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2005, 8: 040701.
- [42] Zholents A A, Penn G. Obtaining attosecond X-ray pulses using a self-amplified spontaneous emission free electron laser[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2005, 8: 050704.
- [43] Ding Yuantao, Huang Zhirong, Ratner D, et al. Generation of attosecond X-ray pulses with a multicycle two-color enhanced self-amplified spontaneous emission scheme[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2009, 12: 060703.
- [44] Kumar S, Kang H S, Kim D E. Generation of isolated single attosecond hard X-ray pulse in enhanced self-amplified spontaneous emission scheme[J]. Optics

Express, 2011, 19(8): 7537-7545.

- [45] Kumar S, Kang H S, Kim D E. For the generation of an intense isolated pulse in hard X-ray region using X-ray free electron laser [J]. Laser and Particle Beams, 2012, 30(3): 397-406.
- [46] Qi Zheng, Feng Chao, Deng Haixiao, et al. Generating attosecond X-ray pulses through an angular dispersion enhanced self-amplified spontaneous emission free electron laser[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2018, 21: 120703.
- [47] Duris J, Li Siqi, Driver T, et al. Tunable isolated attosecond X-ray pulses with gigawatt peak power from a free-electron laser[J]. Nature Photonics, 2020, 14(1): 30-36.
- [48] Li Siqi, Guo Zhaoheng, Coffee R N, et al. Characterizing isolated attosecond pulses with angular streaking [J]. Optics Express, 2018, 26(4): 4531-4547.
- [49] Hartmann N, Hartmann G, Heider R, et al. Attosecond time-energy structure of X-ray free-electron laser pulses [J]. Nature Photonics, 2018, 12(4): 215-220.
- [50] Zhang Zhen, Duris J, MacArthur J P, et al. Experimental demonstration of enhanced self-amplified spontaneous emission by photocathode temporal shaping and self-compression in a magnetic wiggler[J]. New Journal of Physics, 2020, 22: 083030.
- [51] Duris J P, MacArthur J P, Glownia J M, et al. Controllable X-ray pulse trains from enhanced self-amplified spontaneous emission [J]. Physical Review Letters, 2021, 126: 104802.
- [52] Emma P, Bane K, Cornacchia M, et al. Femtosecond and subfemtosecond X-ray pulses from a self-amplified spontaneous-emission-based free-electron laser[J]. Physical Review Letters, 2004, 92: 0748011.
- [53] Serkez S, Decker F J, Cho M H, et al. Generating trains of attosecond pulses with a free-electron laser[C]//Proceedings of FEL 2019. 2019: 692-694.
- [54] Ding Yuantao, Behrens C, Emma P, et al. Femtosecond X-ray pulse temporal characterization in free-electron lasers using a transverse deflector [J]. Physical Review Special Topics Accelerators and Beams, 2011, 14: 120701.
- [55] Ding Yuantao, Behrens C, Coffee R, et al. Generating femtosecond X-ray pulses using an emittance-spoiling foil in free-electron lasers[J]. Applied Physics Letters, 2015, 107: 191104.
- [56] Marinelli A, Macarthur J, Emma P, et al. Experimental demonstration of a single-spike hard-X-ray free-electron laser starting from noise[J]. Applied Physics Letters, 2017, 111: 151101.
- [57] Huang Zhirong, Borland M, Emma P, et al. Suppression of microbunching instability in the linac coherent light source[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2004, 7: 074401.
- [58] Huang Zhirong, Brachmann A, Decker F J, et al. Measurements of the linac coherent light source laser heater and its impact on the X-ray free-electron laser performance [J]. Physical Review Special Topics. Accelerators and Beams, 2010, 13: 020703.
- [59] Marinelli A, Coffee R, Vetter S, et al. Optical shaping of X-ray free-electron lasers [J]. Physical Review Letters, 2016, 116: 254801.
- [60] Emma P, Huang Zhirong. Femtosecond X-ray pulses from a spatially chirped electron bunch in a SASE FEL[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2004, 528(1/2): 458-462.
- [61] Zholents A A, Zolotorev M S. Attosecond X-ray pulses produced by ultra short transverse slicing via laser electron beam interaction[J]. New Journal of Physics, 2008, 10: 025005.
- [62] Bane K L F, Stupakov G. Corrugated pipe as a beam dechirper[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2012, 690: 106-110.
- [63] Antipov S, Baturin S, Jing C, et al. Experimental demonstration of energy-chirp compensation by a tunable dielectric-based structure [J]. Physical Review Letters, 2014, 112: 114801.
- [64] Deng Haixiao, Zhang Meng, Feng Chao, et al. Experimental demonstration of longitudinal beam phase-space linearizer in a free-electron laser facility by corrugated structures [J]. Physical Review Letters, 2014, 113: 254802.
- [65] Emma P, Venturini M, Bane K L F, et al. Experimental demonstration of energy-chirp control in relativistic electron bunches using a corrugated pipe[J]. Physical Review Letters, 2014, 112: 034801.
- [66] Zhang Zhen, Bane K, Ding Yuantao, et al. Electron beam energy chirp control with a rectangular corrugated structure at the Linac Coherent Light Source[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2015, 18: 010702.
- [67] Zemella J, Bane K, Fisher A, et al. Measurements of wake-induced electron beam deflection in a dechirper at the Linac Coherent Light Source[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2017, 20: 104403.
- [68] Lutman A A, Guetg M W, Maxwell T J, et al. High-power femtosecond soft X rays from fresh-slice multistage free-electron lasers [J]. Physical Review Letters, 2018, 120: 264801.
- [69] Prat E, Aiba M. General and efficient dispersion-based measurement of beam slice parameters [J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2014, 17: 032801.
- [70] Prat E, Bettoni S, Reiche S. Enhanced X-ray free-electron-laser performance from tilted electron beams[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2017, 865: 1-8.
- [71] Guetg M W, Lutman A A, Ding Yuantao, et al. Dispersion-based fresh-slice scheme for free-electron lasers [J]. Physical Review Letters, 2018, 120: 264802.
- [72] Reiche S, Musumeci P, Pellegrini C, et al. Development of ultra-short pulse, single coherent spike for SASE X-ray FELs[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2008, 593(1/2): 45-48.
- [73] Ding Yuantao, Brachmann A, Decker F J, et al. Measurements and simulations of ultralow emittance and ultrashort electron beams in the linac coherent light source[J]. Physical Review Letters, 2009, 102: 254801.

- [74] Behrens C, Decker F J, Ding Yuantao, et al. Few-femtosecond time-resolved measurements of X-ray free-electron lasers [J]. Nature Communications, 2014, 5: 3762.
- [75] Beutner B, Reiche S, Scherrer P. Operation modes and longitudinal layout for the SwissFEL hard X-ray facility [C]//Proceedings of FEL 2011. 2011: 235-238.
- [76] Marchetti B, Krasilnikov M, Stephan F, et al. Compression of a 20 pC e-bunch at the European XFEL for single spike operation [J]. Physics Procedia, 2014, 52: 80-89.
- [77] Huang Senlin, Ding Yuantao, Huang Zhirong, et al. Generation of stable subfemtosecond hard X-ray pulses with optimized nonlinear bunch compression[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2014, 17: 120703.
- [78] Huang Senlin, Ding Yuantao, Feng Yiping, et al. Generating single-spike hard X-ray pulses with nonlinear bunch compression in free-electron lasers[J]. Physical Review Letters, 2017, 119: 154801.
- [79] Malyzhenkov A, Arbelo Y P, Craievich P, et al. Single- and two-color attosecond hard X-ray free-electron laser pulses with nonlinear compression[J]. Physical Review Research, 2020, 2: 042018.
- [80] Thompson N R, McNeil B W J. Mode locking in a free-electron laser amplifier [J]. Physical Review Letters, 2008, 100: 203901.
- [81] Dunning D J, McNeil B W J, Thompson N R. Few-cycle pulse generation in an X-ray free-electron laser[J]. Physical Review Letters, 2013, 110: 104801.
- [82] Prat E, Reiche S. Simple method to generate terawatt-attosecond X-ray free-electron-laser pulses [J]. Physical Review Letters, 2015, 114: 244801.
- [83] Prat E, Löhl F, Reiche S. Efficient generation of short and high-power X-ray free-electron-laser pulses based on superradiance with a transversely tilted beam[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2015, 18: 100701.
- [84] Tanaka T. Proposal for a pulse-compression scheme in X-ray free-electron lasers to generate a multiterawatt, attosecond X-ray pulse[J]. Physical Review Letters, 2013, 110: 084801.
- [85] Kumar S, Parc Y W, Landsman A S, et al. Temporally-coherent terawatt attosecond XFEL synchronized with a few cycle laser[J]. Scientific Reports, 2016, 6: 37700.
- [86] Wang Zhen, Feng Chao, Zhao Zhentang. Generating isolated terawatt-attosecond X-ray pulses via a chirped-laser-enhanced high-gain free-electron laser[J]. Physical Review Accelerators and Beams. 2017. 20: 040701.
- [87] Huang Senlin, Ding Yuantao, Huang Zhirong, et al. Generation of subterawatt-attosecond pulses in a soft X-ray free-electron laser[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2016, 19: 080702.
- [88] Tanaka T. Proposal to generate an isolated monocycle X-ray pulse by counteracting the slippage effect in free-electron lasers [J]. Physical Review Letters, 2015, 114: 044801.
- [89] Schulz S, Grguraš I, Behrens C, et al. Femtosecond all-optical synchronization of an X-ray free-electron laser[J]. Nature Communications, 2015, 6: 5938.
- [90] Hemsing E, Knyazik A, Dunning M, et al. Coherent optical vortices from relativistic electron beams [J]. Nature Physics, 2013, 9(9): 549-553.
- [91] Ribič P R, Rösner B, Gauthier D, et al. Extreme-ultraviolet vortices from a free-electron laser[J]. Physical Review X, 2017, 7: 031036.
- [92] Hemsing E. Coherent photons with angular momentum in a helical afterburner [J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2020, 23: 020703.
- [93] Tibai Z, Tóth G, Mechler M I, et al. Proposal for carrier-envelope-phase stable single-cycle attosecond pulse generation in the extreme-ultraviolet range[J]. Physical Review Letters, 2014, 113: 104801.
- [94] Peng Liangyou, Starace A F. Attosecond pulse carrier-envelope phase effects on ionized electron momentum and energy distributions[J]. Physical Review A, 2007, 76: 043401.