



## 极紫外飞秒光学频率梳的产生与研究进展

郑立 刘寒 汪会波 王阁阳 蒋建旺 韩海年 朱江峰 魏志义

### Generation and research progress of femtosecond optical frequency combs in extreme ultraviolet

Zheng Li Liu Han Wang Hui-Bo Wang Ge-Yang Jiang Jian-Wang Han Hai-Nian Zhu Jiang-Feng Wei Zhi-Yi

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 224203 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200851

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200851>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

基于高次谐波产生的极紫外偏振涡旋光

Extreme ultraviolet polarization vortex beam based on high harmonic generation

物理学报. 2020, 69(4): 044203 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190834>

基于飞秒锁模光纤激光脉冲基频光的差频产生红外光梳

Fiber-type difference frequency generation infrared optical frequency comb based on the femtosecond pulses generated by a mode-locked fiber laser

物理学报. 2018, 67(9): 094207 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172503>

飞秒脉冲非对称互相关绝对测距

Absolute distance measurement based on asymmetric cross-correlation of femtosecond pulse

物理学报. 2018, 67(21): 210601 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181274>

光频链接的双光梳气体吸收光谱测量

Optical frequency linked dual-comb absorption spectrum measurement

物理学报. 2018, 67(9): 090701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180150>

基于固体薄片超连续飞秒光源驱动的高次谐波产生实验

High harmonic generation experiments based on solid-state supercontinuum

物理学报. 2017, 66(13): 134207 <https://doi.org/10.7498/aps.66.134207>

光频梳频域干涉测距主要参数分析及一种改进的数据处理方法

Analysis of main parameters of spectral interferometry ranging using optical frequency comb and an improved data processing method

物理学报. 2019, 68(19): 190602 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190836>

综述

## 极紫外飞秒光学频率梳的产生与研究进展\*

郑立<sup>1)</sup> 刘寒<sup>1)</sup> 汪会波<sup>1)2)</sup> 王阁阳<sup>1)</sup> 蒋建旺<sup>1)2)</sup>  
 韩海年<sup>2)†</sup> 朱江峰<sup>1)‡</sup> 魏志义<sup>1)2)</sup>

1) (西安电子科技大学物理与光电工程学院, 西安 710071)

2) (中国科学院物理研究所北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190)

(2020年6月5日收到; 2020年6月29日收到修改稿)

飞秒光学频率梳对光学频率精密测量和超快科学的发展起到了至关重要的作用, 而将其拓展至极紫外波段, 即可作为阿秒脉冲、紫外非线性光学、电子跃迁光谱探测以及量子电动力学等研究的有力工具. 极紫外飞秒光学频率梳需要通过高重复频率、高峰值功率的飞秒激光驱动高次谐波间接产生. 本文从极紫外飞秒光学频率梳的产生原理出发, 首先对其驱动源参数要求以及获取方式进行了介绍, 分别对比了啁啾脉冲放大技术、光参量啁啾脉冲放大技术、光纤放大技术和飞秒共振增强放大技术用于驱动极紫外飞秒光学频率梳产生的优缺点及适用性. 其次, 针对共线和非共线产生高次谐波的两种方式, 详细阐述了国际上常用的几种极紫外飞秒光学频率梳的耦合输出方法. 最后, 从基于飞秒共振增强腔、光参量啁啾脉冲放大器 and 由振荡器直接产生的极紫外飞秒光学频率梳三个角度出发, 对其研究进展进行了综述, 并对目前尚待优化的问题进行了总结.

**关键词:** 光学频率梳, 极紫外, 高次谐波产生, 飞秒激光共振增强腔

**PACS:** 42.62.Eh, 61.80.Ba, 42.65.Ky, 42.60.Da

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200851

## 1 引言

光学频率梳的概念可追溯到 20 世纪 70 年代<sup>[1]</sup>, 传统的光学频率是由复杂的精密电子设备和多台激光器组成的光学谐波频率链来进行测量的, 再通过外差方法对待测频率进行探测<sup>[2-5]</sup>. 这种谐波频率链测量方式不仅技术难度大、转换效率低, 而且极其复杂的系统设计和多次的频率转换过程会积累更多的系统误差, 增加了光频测量结果的不确定性. 飞秒光学频率梳概念的提出则大大简化了光学频率测量的装置, 从十几台甚至几十台设备组成的复杂测量系统简化成了“桌面型”装置, 并且可以实现多台频率标准的同步和比对<sup>[6]</sup>. 飞秒光学频率梳

的发明使人们实现了对光场时-频域的同时精确控制, J. L. Hall 和 T. W. Hänsch 也因此获得了 2005 年的诺贝尔物理学奖.

目前固态飞秒频率梳以及光纤飞秒频率梳的中心波长几乎都集中在可见光与近红外波段, 相比于可见光和近红外波段, 位于 10—121 nm 光谱区的极紫外光 (extreme ultraviolet, XUV) 将光学频率提高了 1—2 个数量级, 可支持更短时间的脉冲输出, 提供更加精确的时间和频率分辨. 同时, 也有着诸多应用需要以 XUV 飞秒光学频率梳为媒介, 比如, 电子内壳层的跃迁产生的原子特征辐射均处于紫外波段, 而对这些光频测量的精密程度决定着对原子结构的认识水平. 当然, 除了分子中电子跃迁的光谱探测<sup>[7]</sup>, 诸如离子态氦和中性氦的束

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11774277, 60808007)、中央高校基本科研业务费 (批准号: JB190501, ZD2006) 和陕西省自然科学基金研究计划 (批准号: 2019JCW-03) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [hmhan@iphy.ac.cn](mailto:hmhan@iphy.ac.cn)

‡ 通信作者. E-mail: [jfzhu@xidian.edu.cn](mailto:jfzhu@xidian.edu.cn)

缚态以及多体量子电动力学的实验研究<sup>[8-10]</sup>、下一代“核时钟”的研制<sup>[11-13]</sup>以及利用高电荷态离子的高灵敏度探索基本常数的变化<sup>[14,15]</sup>均需要以XUV飞秒光学频率梳为桥梁。

本文从产生XUV飞秒光学频率梳的驱动源开始,详细介绍了其产生原理以及相应的实验方案,同时总结了近年来国际上XUV飞秒光学频率梳的研究进展以及亟待解决的科学问题,最后对其进一步的发展方向进行了展望。

## 2 XUV飞秒光学频率梳的产生

### 2.1 高次谐波驱动XUV产生

由于缺乏直接产生XUV波段的激光增益介质,因此无法直接从谐振腔中输出XUV相干辐射,只能通过频率变换的方式产生.1987年,McPherson等<sup>[16]</sup>首次在实验上观测到的高次谐波现象为获取XUV波段激光提供了思路,随后不少研究者都在此方面进行了大量研究<sup>[17-19]</sup>.从实验上观测到的气体高次谐波在频谱上有以下几个特点:1)高次谐波的频谱覆盖了从紫外到XUV波段甚至软X射线范围;2)光谱结构中只有奇次谐波存在,相邻阶次之间的频率间隔为基频频率的2倍.因为高次谐波在激光脉冲电场的每半个周期产生一次辐射,从而导致相邻谐波阶次间的频率间隔为基频频率的2倍,同时也只能观察到基频光奇数倍的谐波;3)在低阶次谐波区,高次谐波的强度随着谐波阶次的增加急剧减小,被称为“微扰区”,紧接着,在一定的阶次范围内,高次谐波的强度几乎不随着谐波阶次的增加而减弱,这一部分被称为“平台区”,随后,在平台区末端,高次谐波的强度迅速下降,称为“截止区”.1993年,Corkum等<sup>[20]</sup>提出了“三步模型”理论,给出了电子运动的直观物理图像,对高次谐波出现平台区和截止区进行了合理解释.而高次谐波中平台区可覆盖很宽的频谱范围,其截至能量可达到keV<sup>[21]</sup>,同时平台区相邻谐波阶次以基频频率2倍的形式等间隔分布.利用峰值功率密度高于 $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>的强激光场可以使惰性气体发生阈上电离,进而辐射出高次谐波,产生的谐波结构如图1所示,横轴表示光波频率,纵轴表示谐波强度,每根不同颜色的竖线表示不同的谐波阶次,产生的高次谐波光谱依次由微扰区、平台区以及截止区组成,而如果驱动激光为重复频率和载波包络

相移频率锁定的光学频率梳,那么在产生的每一阶谐波中也会形成和驱动激光相同的梳状结构,如图1中插图所示,相邻梳齿的频率间隔与驱动激光重复频率相同.因此利用时频锁定的极高峰值功率密度的飞秒激光驱动高次谐波产生是获得XUV飞秒光学频率梳的主要途径.

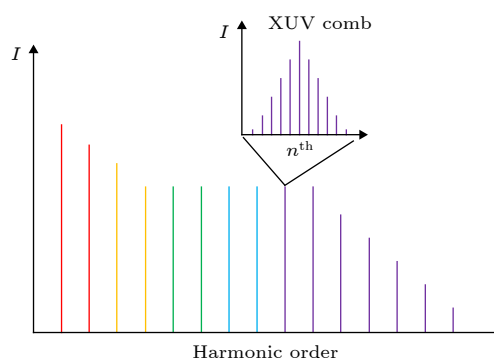


图1 高次谐波与XUV飞秒光学频率梳光谱

Fig. 1. Spectrum of High-Harmonic generation and XUV optical frequency comb.

然而,直接由时频稳定的振荡器输出的激光脉冲能量较低,一般为纳焦耳量级,很难满足高次谐波的产生要求.为了得到更高峰值功率的激光输出,一般需要借助激光放大技术,如啁啾脉冲放大技术(chirped pulse amplification, CPA)、光学参量啁啾脉冲放大技术(optical parametric chirped pulse amplification, OPCPA)、光纤放大技术以及飞秒共振增强腔(femtosecond enhancement cavity, fsEC)放大技术等,使得高次谐波的产生变得容易,也为获得XUV飞秒光学频率梳提供了途径.同时重复频率是光学频率梳的重要特性之一,即使对于波长拓展至XUV波段的飞秒光学频率梳,也应保证其具有高重复频率(10 MHz以上)的特性,以确保其应用范围和时频测量精度.因此在提高驱动激光的峰值功率密度的同时,保证其高重复频率的特性,对产生XUV飞秒光学频率梳极为重要.接下来将分别对几种XUV飞秒光学频率梳驱动源的获取方案及其适用性进行介绍.

### 2.2 XUV飞秒光学频率梳驱动源的获得

#### 2.2.1 啁啾脉冲放大技术

自1960年激光问世以来,人们对更高功率的激光输出的追求就从未停止过,而在激光放大过程中,光学元件的损伤成为了限制激光功率进一步提

升的壁垒, 而这样的限制对于飞秒量级的脉冲激光放大显得更为严重, 因此激光的功率和强度提升缓慢, 进入瓶颈. 直到 1985 年 CPA 技术的提出 [22], 使得激光的功率和强度迅速增长, 在不到十年时间里, 科研人员将激光强度提高了 6—7 个数量级, G. Mourou 和 D. Strickland 也因为发明 CPA 技术而获得了 2018 年诺贝尔物理学奖. 如图 2 所示, CPA 技术对飞秒脉冲功率和能量进行放大的过程可分为三步: 1) 通过色散介质将需要放大的飞秒脉冲在时域上展宽, 使脉冲的峰值功率不超过系统各元件的损伤阈值; 2) 将展宽后的脉冲通过再生放大或者多通放大获得足够高的能量增益; 3) 最后通过压缩器将能量放大后的脉冲在时域上压缩, 得到更高峰值功率的飞秒脉冲. 然而, 由于放大时增益介质中的无辐射跃迁导致的热积累问题以及可获得的平均功率的限制, 使其不得不以牺牲重复频率为代价来获得足以驱动高次谐波产生的峰值功率, 因此得到的飞秒脉冲的重复频率常常被限制在 1 MHz 以下, 很难用于产生 XUV 飞秒光学频率梳.

### 2.2.2 光参量啁啾脉冲放大技术

1992 年, Dubietis 等 [23] 首次使用了 OPCPA 技术的实验方案, 即将 CPA 中基于增益介质的放大器替换为基于非线性过程的参量放大器. 1997 年, Ross [24] 将 CPA 技术与 OPA 技术相结

合, 正式提出了 OPCPA 的概念. 图 3 为 OPCPA 技术的原理示意图, 与传统的 CPA 技术不同, OPCPA 技术通过使用非线性晶体 (例如 BBO、KTP 等) 对展宽后的脉冲进行放大, 最后在输出端对放大后的脉冲进行压缩以获得高能量的飞秒激光. OPCPA 是参量放大过程, 可以理解为采用虚拟能级放大, 因此不存在以增益介质为基础的放大器必然伴随的自发辐射放大, 使得增益介质内没有能量积累, 免去了复杂的冷却系统, 更重要的是不需要以牺牲重复频率为代价来获得高能量的脉冲. 因此通过 OPCPA 技术获得足以驱动高次谐波产生的飞秒光源, 进而获得 XUV 飞秒光学频率梳的方案是可行的.

### 2.2.3 光纤放大技术

1985 年, Mears 等 [25] 制成了世界上第一根低损耗掺铒光纤, 才使得增益光纤得以实现, 而在此之前, 光纤中实现光信号传输甚至是能量放大, 都始终停滞在理论阶段. 1987 年, 几个课题组几乎同时发明了掺铒光纤放大器 [26–29], 为光纤放大器带来了一次技术革新. 但是光纤激光器最初的泵浦方式是纤芯泵浦, 因此对泵浦激光及其耦合方式的要求非常严格, 大大限制了激光的放大效率. 双包层光纤结构以及包层泵浦技术的提出大大改善了光纤放大器放大效率低下的问题 [30,31]. 其基本原理如下: 利用两个拥有不同折射率的包层将光纤纤芯包

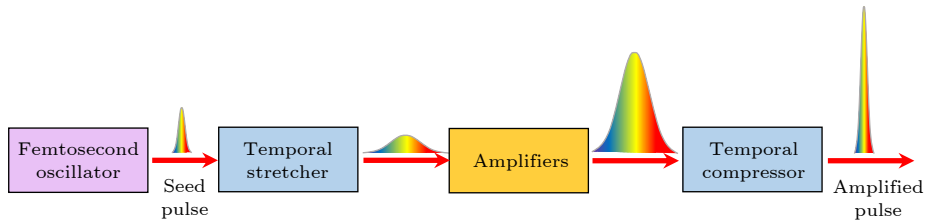


图 2 啁啾脉冲放大技术  
Fig. 2. Chirped pulse amplification.

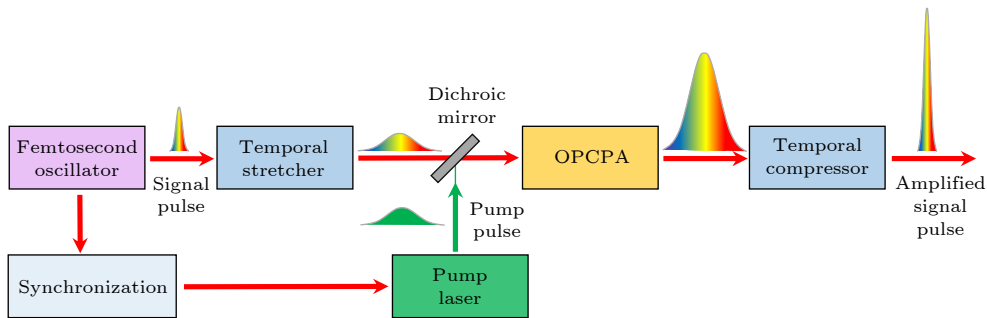


图 3 光参量啁啾脉冲放大技术  
Fig. 3. Optical parametric chirped pulse amplification.

裹, 其中第一层包层针对信号源进行设计, 以满足信号光源在光纤纤芯中的全反射传输, 于是信号光就可以在纤芯中以基模传输; 而内包层通常直径较宽, 于是即便是多模的泵浦光, 也可以在内包层中高效传输, 同时折射率从纤芯到外包层依次递减, 因此泵浦光在内包层传输时, 以折射方式反复穿越纤芯, 被掺杂离子吸收, 大大提高了耦合效率. 得益于光纤良好的散热特性, 双包层泵浦技术与 CPA 技术基本原理相结合, 可获得高功率、高重复频率、高光束质量的飞秒激光输出, 因此可作为 XUV 飞秒光学频率梳的优质光源.

### 2.2.4 飞秒共振增强放大技术

fsEC 放大技术是利用激光的相干干涉增强原理, 将激光能量在谐振腔内增强的技术, 是一种无源激光放大技术<sup>[32]</sup>, 因此 fsEC 腔内没有增益介质提供损耗补偿, 完全依靠激光本身的多次相干干涉叠加进行能量积累, 早期常被用于连续激光的功率放大以提高倍频转换效率, 在连续光倍频和稳频中有着广泛应用<sup>[33–35]</sup>. 将其应用于飞秒激光的放大以获取 XUV 飞秒光学频率梳驱动源的最大优势在于腔内没有任何增益介质, 可以有效规避高重复频率飞秒激光放大过程中带来的热积累问题, 因此是目前国际上获得 XUV 飞秒光学频率梳最常用的技术手段.

但是用于飞秒激光的放大则需要满足共振增强条件: 首先, 需要保证入射飞秒激光在增强腔内循环一次后, 脉冲形状不变; 其次, 在时域上, 增强腔需要和飞秒激光种子源进行同步锁定<sup>[36]</sup>, 使第一个飞秒脉冲在增强腔内循环一次后与下一个飞秒脉冲重合; 在频域上, 入射飞秒激光的载波包络相位频移需要精密锁定, 使重合的两个脉冲具有相同的电场相位<sup>[37]</sup>. 要满足以上条件, 即要求入射飞秒光源为一台稳定的飞秒光学频率梳, 同时腔内色散为零.

图 4 所示的法布里-珀罗谐振腔 (F-P 腔) 为最简单的共振增强腔, 图 4(a), (b) 分别表示理想状态下时域中脉冲的重合和频域中腔模与梳齿的匹配情况. 当然实际实验中, 色散不可能为零, 因为空气的色散不能忽略, 即使将共振增强腔放在真空中消除空气的色散, 但是镜片镀膜引入的色散也无法消除<sup>[38]</sup>. 同时腔镜的镀膜会导致不同的波长具有不同的自由光谱程, 使得飞秒激光中心波长短波

方向和长波方向的自由光谱程减小<sup>[39]</sup>, 进而导致 fsEC 的腔模间距逐渐减小, 影响最终的增强效果. 而除了腔内色散, fsEC 本身的精细度也是影响增强倍数的重要因素, 腔的精细度越高, 入射到腔内的能量越低, 但是激光在腔内的循环次数增多, 因此干涉叠加达到稳态时腔内激光的能量得到更大增强. 对于图 4 中的 F-P 腔, 若设两个腔镜的反射率均为  $R$ , 则精细度  $F$  的表达式可简写为:  $F \approx \pi/(1 - R)$ , 因此理论上可通过提高腔的精细度以获得更高的增强倍数. 而正如上所述, 增强倍数也受腔内色散的影响, 因为腔内的色散决定了入射飞秒脉冲可起振的纵模数量, 即共振增强带宽  $\Delta\omega$ , 若设  $\phi''(\omega_c)$  为中心波长处的群速度色散, 则色散与精细度之间的关系可表示为

$$\phi''(\omega_c) = \frac{8\pi}{F(\Delta\omega)^2}. \quad (1)$$

(1) 式表明, 精细度较高时, 若不能将色散控制到最小, 共振增强带宽将会越窄; 而想要通过增大精细度的方式提高增强倍数, 对色散的控制要求又极为严苛<sup>[40]</sup>. 因此色散与精细度相互制约, 共同决定着增强倍数.

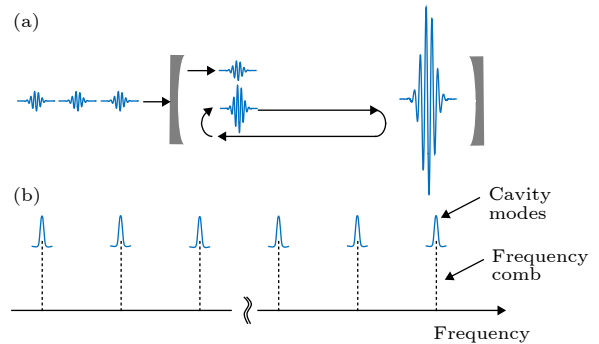


图 4 F-P 腔的相干脉冲放大: (a) 时域中; (b) 频域中  
Fig. 4. Coherent pulse amplification in F-P cavity: (a) Time domain; (b) frequency domain.

## 3 XUV 飞秒光学频率梳的耦合输出

无论是无源放大还是有源放大, 当获得了足以激发高次谐波的驱动光源后, 科研人员又不得不面对另一个难题——如何高效导出 XUV 光. 通常产生高次谐波的方式有两种, 一种是与驱动激光共线产生, 另一种则是非共线的. 对于共线产生方式: 产生的 XUV 与驱动激光混合在一起, 基频光可以通过滤波片将其滤除, 但是在 XUV 波段, 还没有

足够透明的材料可以使其低损耗通过, 因此无法直接通过腔镜将 XUV 脉冲耦合出腔外, 需要设计一种高效率的 XUV 输出耦合器. 对于非共线产生方式: 产生的 XUV 与驱动激光可自然分离, 因此不需要额外的输出耦合器件, 但是也存在一些缺点, 比如额外的光路折叠次数造成更多的损耗等等. 本节中将以 fsEC 中产生的 XUV 飞秒光学频率梳为例, 分别对 XUV 共线耦合输出和非共线耦合输出方案进行详细介绍.

### 3.1 共线产生 XUV 的耦合输出

共线产生的 XUV 与驱动激光混合, 同时处于增强腔内焦点附近, 所以对输出耦合器件的技术要求非常高, 因为除了必须有效地将 XUV 耦合到腔外, 还必须承受 fsEC 腔内焦点附近的高平均功率和高峰值功率; 同时输出耦合器引入的损耗、色散以及高强度激光下产生的非线性必须可以忽略不计<sup>[41,42]</sup>. 目前国际上有三种常用的方法用于耦合输出共线产生的 XUV: 1) 在 fsEC 腔内焦点附近引入一片相对于基频光布儒斯特角放置的反射介质(如蓝宝石片或者石英片)将产生的 XUV 部分反射出腔外; 2) 在 fsEC 腔内引入一块特殊设计的衍射光栅镜, 通过衍射将产生的 XUV 耦合出腔外; 3) 在 fsEC 腔内 XUV 产生后方的一片凹面镜上加工一个贯穿小孔, 使 XUV 通过小孔耦合出腔外.

2005 年, Jones 等<sup>[43]</sup>和 Gohle 等<sup>[44]</sup>首次在实验中利用布儒斯特窗口片从 fsEC 中耦合出产生的 XUV. 图 5(a) 为该方案的耦合输出示意图, 为了消除菲涅尔反射, 窗口片相对基频光成布儒斯特角放置在焦点后方不远处, 腔内焦点处与基频光共线产生的 XUV 由于与基频光波长的差异, 会有不同的折射率, 因而会将基频光与 XUV 分开, 使部分 XUV 耦合出腔外, 而为了尽可能减少引入的色散, 需要选用尽可能薄的窗口片. 有研究表明对于中等精细度的飞秒增强腔 ( $F < 500$ ), 可以在不使用啁啾镜的情况下使引入的色散得到补偿<sup>[45]</sup>, 一般来说, 选用的窗口片厚度在百微米量级. 另一个可能存在的问题是激光强度过高的 fsEC 腔中的窗口片可能会引发一些负面的非线性效应, 造成光谱畸变, 降低将整个飞秒光梳齿耦合进 fsEC 腔内的可能性. 同时, 这种方案的耦合输出效率与 XUV 波长和所用窗口片的材料有关, 例如, 对于蓝宝石片而言, 当谐波波长小于 40 nm 时, 其反射

率会急剧下降, 限制了可以耦合输出的谐波阶次, 使其输出效率降低. 但总体而言, 该方案的耦合输出效率大约为 5%—15%.

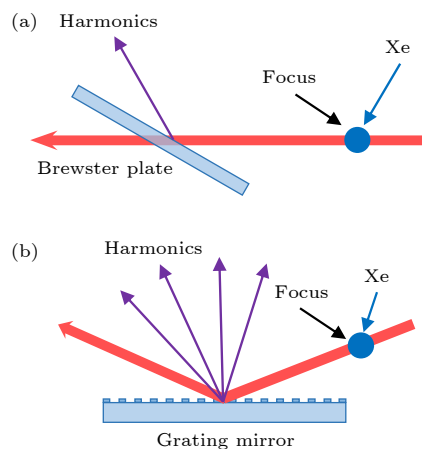


图 5 布儒斯特片以及衍射光栅镜耦合输出 XUV: (a) 布儒斯特片; (b) 衍射光栅镜

Fig. 5. XUV output coupling by Brewster plate and grating mirror: (a) Brewster plate; (b) grating mirror.

使用窗口片导出的 XUV 光束由多阶谐波叠加而成, 对于一些需要分辨出每阶谐波的应用来说, 需要使用额外的衍射光栅分开 XUV 光束中的各阶谐波, 这就会对 XUV 造成附加损耗. 因此, 2008 年, Yos 等<sup>[46]</sup>提出使用 XUV 衍射光栅作为输出耦合器的方案, 实验方案示意图如图 5(b) 所示. 该方法利用在介电镜膜层的最外层蚀刻的小周期衍射光栅将 XUV 耦合出腔外, 而对于基频光则相当于一块近乎完美的高反镜, 因此光栅结构的引入并不会在腔内引入过多的额外损耗. 同时, 研究人员在实验中也通过对基频光透过光谱的探测, 发现对腔内的色散影响也可以忽略不计, 而且亚波长光栅结构使得谐振腔模式和由电介质叠层产生的平板波导模式之间可能发生的耦合现象也可以在不降低使用性能的情况下, 通过增加顶层的刻写深度来消除<sup>[47]</sup>. 该方案的整体耦合输出效率接近 10%, Yang 等<sup>[48]</sup>研制出的闪耀光栅在 35—80 nm 的波长范围内衍射效率已达到了 15%—20%.

和前两种方案不同, 第三种方案并不需要在腔内插入额外的耦合输出器件, 而是利用波长越短, 发散角越小的原理, 使 XUV 光束通过 fsEC 腔中一片凹面镜上的小孔输出<sup>[49]</sup>, 图 6 为利用腔镜中的小孔耦合输出 XUV 的原理示意图. 然而由于 fsEC 高精细度的要求, 小孔尺寸必须足够小以降

低损耗,从而使通过孔的谐波对准变得困难.同时为了使基频光尽可能少的从小孔漏出,于是提出以高阶模运转的方式使基频光沿光轴附近的场振幅可忽略不计,从而避免小孔导致的基频光泄漏,然而高阶模会使光斑尺寸变大,同时增加 Gouy 相移,导致高次谐波产生效率下降.于是又提出腔内模式裁剪的方法来弥补这些缺陷<sup>[50]</sup>,通过仔细调节聚焦镜之间的距离使腔模处于简并态,从而使小孔尺寸可以在一定程度上加大而不会对基频光造成太多的损耗,而沿光轴方向的光场在焦点附近也可以保持最大.

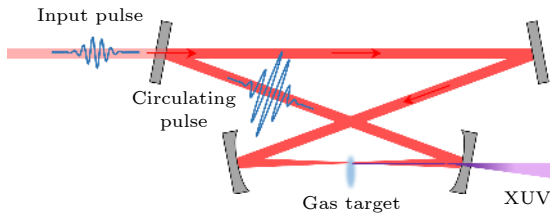


图 6 高次谐波通过腔镜中的一个小孔耦合输出

Fig. 6. The output coupling of high-harmonic light from a small aperture in one of the cavity mirrors.

图 7 为文献<sup>[51]</sup>中所使用的 XUV 输出耦合器照片,以其为例对这种开孔的输出耦合器的制作方法进行介绍,同时简单计算引入小孔后,基频光的损耗以及高次谐波的输出效率.一般会在熔石英镜片基板上利用激光进行反向钻孔来制作这种输出耦合器,激光光束被聚焦到基片底部的表面并横向扫描,以锥形逐层钻出.图 7(a)所示为带有小孔的镜片背面,放大后的小孔呈锥形,图 7(b)为近距离小孔尺寸示意图,其外半径约为 80  $\mu\text{m}$ ,内半径约为 40  $\mu\text{m}$ ,其中外半径的大小基本决定了基频光的往返损耗,内半径的大小则决定高次谐波的输出效率.小孔会影响腔内基频光的横向模式分布,导致基横模和高阶横模的相干耦合,进而对腔内光场造成横向畸变<sup>[52]</sup>.最终光场  $E(x, y)$  的分布可以根据没有孔的腔的 Hermite-Gaussian 本征模进行分解,分解系数取决于小孔的孔径函数  $t(x, y)$  以及衍射损耗和各个模式的相对相位.如果横向畸变的尺寸小于带有小孔的镜片上光场  $E(x, y)$  的分布范围,那么光场可分解为许多幅度系数很小的高阶模,而其中很多高阶模都会由于腔镜的尺寸有限而被抑制,因此可以忽略高阶模对腔内循环光场的影响,因而可以利用没有小孔时基模运转的腔对光场分

布进行近似模拟.对于束腰半径为  $w$  的高斯光束而言,半径为  $r_h$  的小孔对基频光引入的往返损耗可表示为  $1 - \exp[-4(r_h/w)^2]$ .

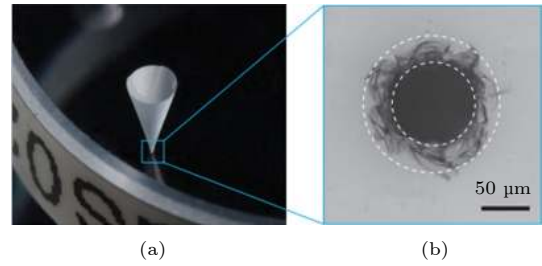


图 7 (a)XUV 输出耦合器照片; (b) 镜子表面小孔的近距离照片<sup>[51]</sup>

Fig. 7. (a)Photograph of a XUV output coupler; (b)close-up photograph of aperture in the mirror surface<sup>[51]</sup>.

小孔对腔内高次谐波耦合输出效率的影响可以利用强场模型进行估算<sup>[53]</sup>,偶极矩  $p$  随着基频激光场的强度变化,一般而言,偶极矩小于谐波阶数  $q$ ,即  $p < q$ .高次谐波的发散角大小随谐波阶数变化,对于  $q$  阶谐波,其发散角近似为  $\theta_q = \lambda\sqrt{p}/(\pi w q)$ ,因此输出耦合镜上的谐波光斑大小记为  $w_q = d\theta_q$ ,其中  $\lambda$  为基频光波长,  $w$  为基频光的束腰半径,  $d$  为腔内焦点到输出耦合镜的距离.通过径向积分得到  $q$  阶谐波耦合输出效率为  $\eta_q = 1 - \exp[-2(r_{hc}/w_q)^2]$ ,  $r_{hc}$  代表小孔的内半径.

### 3.2 非共线产生 XUV 的耦合输出

除了以上三种用于共线产生 XUV 的耦合输出方式,还有一种用于耦合输出非共线产生 XUV 的方法<sup>[49,54,55]</sup>.传统的高次谐波由一个方向上传播的光束进行驱动,因此满足共线相位匹配条件,而对于非共线产生 XUV,基频光在飞秒增强腔内从两个方向同时汇聚于同一焦点,以一定的夹角相互作用,有数值模拟表明相位匹配也可以是非共线的,但是取决于两束基频光的交叉角、驱动强度以及相互作用区域的初始原子密度<sup>[54,56]</sup>.

图 8 为 fsEC 中 XUV 非共线产生的实验原理图,为了保证两个方向的基频光同时在腔内的同一焦点处汇合,需要使增强腔的腔长为种子光源腔长的 2 倍,同时对腔长进行精密控制.也正因为如此,腔内会有两束脉冲同时增强,因此当两束激光从两个方向同时汇聚时,产生的激光强度更高,有利于更高阶次谐波的产生,当然腔长增长意味着光束折叠次数的变多,所以附加损耗的引入也不可避免.

焦点处产生的高次谐波会由图 8 中两片凹面镜之间的缝隙从腔内输出, 产生的高次谐波的辐射方向与两束驱动光的激光强度以及到达交点处的时间重合度有关, 并且用于输出惰性气体的喷嘴的内径大小也会对产生谐波的强度和光束轮廓产生影响<sup>[55]</sup>, 因此需要合理设计两束驱动光之间的夹角以及精确控制 fsEC 腔长和焦点位置.

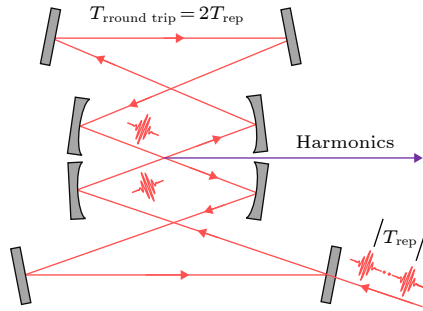


图 8 飞秒共振增强腔中的非共线高次谐波产生

Fig. 8. Non-collinear high harmonic generation in femto-second enhancement cavity.

#### 4 XUV 飞秒光学频率梳的研究进展

如上所述, 目前已有多种手段获得峰值功率密度大于  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> 的飞秒驱动激光用于高次谐波的产生, 使激光波长拓展至 XUV 波段, 而为了同时将激光精密光谱学应用拓展到该波段, 必须使产生 XUV 激光具备光学频率梳的特性, 即载波包络相位和重复频率稳定. 因此要求用于放大的飞秒激光种子源首先是一台稳定的飞秒光学频率梳; 其次, 在将种子源峰值功率密度放大至可激发高次谐波的过程中依旧要保持其高重复频率的特性. 国际上使用最普遍的方案就是利用 fsEC 技术对集高重复频率、短脉冲宽度、载波包络相位稳定三种特性于一身的近红外飞秒光学频率梳进行能量放大, 并在 fsEC 内激发惰性气体辐射高次谐波, 从而获得 XUV 飞秒光学频率梳. 除了主流的 fsEC 放大技术, 利用 OPCPA 技术获取高次谐波驱动源, 甚至直接在振荡器腔内产生 XUV 飞秒光学频率梳的研究也都有报道. 本节中将针对不同的驱动光源产生方式以及不同的种子光源类型对国际上 XUV 飞秒光学频率梳的研究进展进行总结.

##### 4.1 基于 fsEC 的 XUV 飞秒光学频率梳产生

2005 年, Jones 和 Ye<sup>[43]</sup> 率先将 fsEC 技术应

用于产生高重复频率的 XUV 飞秒光学频率梳. 用于能量增强的种子光源为重复频率 100 MHz、单脉冲能量 8 nJ、脉冲宽度 48 fs、载波包络相位稳定的 Ti:Sapphire 振荡器, 图 9 为 fsEC 腔内产生 XUV 飞秒光学频率梳的实验装置示意图. fsEC 中除了输入耦合镜的透过率为 0.1%, 其余腔镜均为高反镜, 对应的腔精细度大于 1000, 为了进一步保证增强效果, 在以 800 nm 为中心的 100 nm 带宽内, 将腔内的净色散精确控制在 10 fs<sup>2</sup> 以下. 最终实现了约 600 倍的能量增强, 对应的腔内单脉冲能量为 4.8  $\mu$ J, 脉冲宽度为 60 fs, 将光斑大小聚焦至 25  $\mu$ m, 得到了大于  $3 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> 的峰值功率密度, 使焦点处的氙气 (Xe) 发生电离, 产生的高次谐波被一片与基频光呈布儒斯特角放置的蓝宝石片部分反射出腔外, 以镀有 MgF<sub>2</sub> 的铝制光栅对反射出的高次谐波进行探测, 由于元件的探测效率较低, 因此只观察到 7 次谐波, 对应的波长为 114 nm.

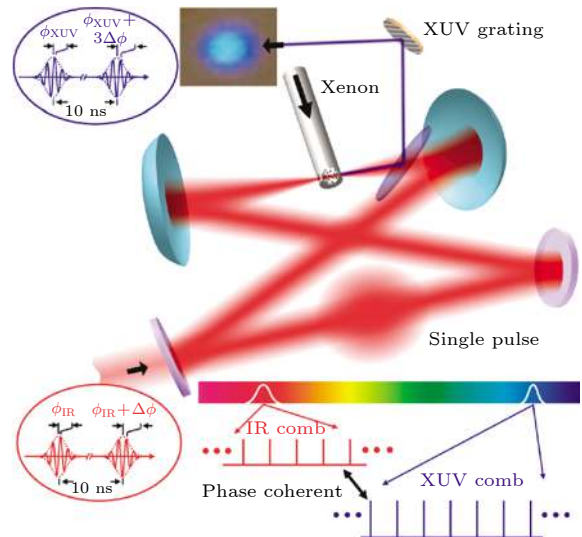


图 9 fsEC 腔内高次谐波产生实验装置<sup>[43]</sup>

Fig. 9. Schematic setup of high-harmonic generation in fsEC<sup>[43]</sup>.

同年, Gohle 等<sup>[44]</sup> 同样利用 fsEC 技术对相位稳定的钛宝石振荡器进行能量放大. 重复频率为 112 MHz、脉冲宽度为 20 fs 的种子光通过望远系统进行模式整形, 使其光束直径和聚焦位置与增强腔腔模匹配, 并通过一个棱镜压缩器补偿输入耦合镜的基片色散, 最后通过透过率约为 1% 的入射耦合镜进入 fsEC 腔内. 放大后腔内循环脉冲平均功率约为 38 W, 对应约 54 倍的放大倍数, 腔内激光的脉冲宽度为 28 fs. 两片焦距为 50 mm 的凹面镜



使腔内激光的聚焦光斑直径约为  $5.3 \mu\text{m}$ , 焦点处峰值功率密度为  $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , 为了避免焦点处空气在高强度激光下产生的非线性, 氙气喷嘴被放置在真空腔室内. 产生的 XUV 频率梳同样由蓝宝石片导出, 最终获得的高次谐波最高阶次为 15 阶, 波长小于  $60 \text{ nm}$ , 对应的光子能量为  $23 \text{ eV}$ .

2010 年, Ozawa 等<sup>[57]</sup> 为获得较高的脉冲能量用于产生高次谐波, 选用重复频率低至  $10.8 \text{ MHz}$  的钛宝石振荡器作为种子源, fsEC 腔长为  $28 \text{ m}$ , 和振荡器的重复频率相同, 并放置在真空腔室内. 注入的  $38 \text{ fs}$ 、 $1.5 \text{ W}$  种子光被放大至约  $100 \text{ W}$ , 在束腰直径约为  $13 \mu\text{m}$  的焦点处产生的激光峰值功率密度超过  $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , 激发氙气, 获得了 19 阶高次谐波, 对应的 XUV 波长约为  $42 \text{ nm}$ .

相对于基于 fsEC 的高次谐波产生系统, 传统的单通高次谐波产生装置通常使用重复频率和平均功率都小几个数量级的激光器作为种子源, 因此原则上来说, fsEC 中产生的高次谐波应该具有更高的平均光子通量. 然而, 由于高重复频率 fsEC 腔内焦点处等离子体导致的非线性响应限制了平均通量的提高, 也会产生其它一些不利影响, 如光学双稳态、自相位调制以及脉冲畸变等<sup>[58,59]</sup>, 而这些不利效应又会被窄线宽的 fsEC 继续放大. 因此为了使这些不利影响不被过度放大, 降低腔的精细度是一种有效方法, 然而低精细度的 fsEC 又不利于放大倍数的提高, 所以需要功率更高的种子源来继续保持腔内脉冲能量处于较高水平. 于是 Lee 等<sup>[45]</sup> 在 2011 年并没有直接将钛宝石振荡器输出的百毫瓦量级的种子光注入飞秒增强腔中, 而是先利用环形腔钛宝石 CPA 系统放大其输出功率和能量, 放大后的激光脉冲经一对 SF11 三棱镜压缩, 获得了平均功率为  $6 \text{ W}$ 、脉冲宽度为  $80 \text{ fs}$ 、重复频率为  $50 \text{ MHz}$  的种子光源, 可入射进飞秒增强腔的单脉冲能量超过  $100 \text{ nJ}$ . 同时他们通过数值模拟, 发现与更高精细度的 fsEC 相比, 该系统对等离子体引起的相位偏移的敏感度有所下降<sup>[58,59]</sup>, 这则是因为较高的种子光脉冲能量降低了对腔精细度的要求, 而低精细度的腔减弱了光谱滤波的限制<sup>[32]</sup>. 由于输入脉冲的能量较大, 因此即使在较低精细度的腔内也得到了约  $20 \mu\text{J}$  的放大能量, 在  $30 \mu\text{m}$  的较大焦点处产生的峰值功率密度足以使 Xe 发生电离, 同时较大的聚焦光斑不仅增加了相互作用区

域的体积, 而且对基频光和谐波之间的相位匹配也有所改善, 最终观察到了 15 阶谐波, 对应波长为  $53 \text{ nm}$ , 并且探测到的第 11 阶谐波功率约为  $77 \mu\text{W}$ , 使获得的 XUV 飞秒频率梳更有潜力应用于精密光谱学、时间分辨实验等.

通过 CPA 技术对钛宝石振荡器的输出脉冲进行初次放大, 再导入 fsEC, 的确可以避免以上提到的一些不利影响, 但是受限于钛宝石激光器平均功率的限制, 想继续获得高重复频率且具有极高峰值功率的钛宝石飞秒光源显得有些困难. 于是集高重复频率、高平均功率于一身的掺镱 (Yb) 飞秒光纤激光器<sup>[60–65]</sup> 引起了科研人员的注意, 利用 fsEC 对 Yb 光纤飞秒激光器进行能量放大并进一步驱动高次谐波产生获得 XUV 飞秒光学频率梳的工作被相继报道.

2011 年, Bernhardt 等<sup>[66]</sup> 使用 Menlo Systems 公司的 Yb 光纤光学频率梳 (重复频率  $130 \text{ MHz}$ 、压缩后脉冲宽度  $100 \text{ fs}$ 、平均输出功率  $14 \text{ W}$ ) 进行了绿光增强腔实验. 有研究表明在保持其它实验参数不变的情况下, 使用倍频光作为种子源与直接使用基频光作为种子源相比, 高次谐波产生效率可提高 3 个数量级<sup>[67]</sup>. 因此, 他们首先利用 LBO 晶体对种子光源的输出激光进行倍频, 得到了脉冲宽度为  $80 \text{ fs}$ 、输出功率为  $5 \text{ W}$  的  $517 \text{ nm}$  绿光. 然后将其注入增强腔内, 得到了 80 倍的增强结果, 腔内焦点处的峰值功率密度大于  $2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , 在此功率密度下, 足以使 Xe 电离并辐射出高次谐波.

2012 年, Cingöz 等<sup>[68]</sup> 将脉冲宽度为  $120 \text{ fs}$ 、重复频率为  $154 \text{ MHz}$ 、输出功率为  $30 \text{ W}$  的 Yb 光纤光学频率梳注入 fsEC 中, 稳定运行时, 腔内平均功率约为  $8 \text{ kW}$ , 焦点处的峰值功率高达  $9 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , 并利用如此高的峰值功率密度分别激发氙气 (Xe) 和氩气 (Ar), 得到了 15 阶和 27 阶的高次谐波, XUV 波长短至  $40 \text{ nm}$ , 产生的 XUV 脉冲由自制的衍射光栅进行导出, XUV 梳齿结构由一台连续光激光器进行稳定, 并利用得到的 XUV 飞秒光学频率梳测定了 Ar 原子的绝对跃迁谱线.

2013 年, Pupeza 等<sup>[69]</sup> 利用 Yb 光纤飞秒激光器作为种子源, 从 fsEC 中获得了波长小于  $20 \text{ nm}$  的 XUV 脉冲. 重复频率  $78 \text{ MHz}$ 、平均输出功率  $50 \text{ W}$  的  $1040 \text{ nm}$  光纤激光器首先经非线性压缩使脉冲宽度由  $200 \text{ fs}$  降至  $50 \text{ fs}$ , 之后注入 fsEC

中, 在没有稀有气体的空腔中稳定运行时, 腔内循环功率高达 3000 W. 利用气体喷嘴注入 Xe 后, 腔内平均功率为 1900 W, 焦点处产生了 37 阶谐波. 将稀有气体换为 Ar 后, 腔内循环功率可达 2200 W, 焦点处峰值功率密度量级达到  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, 产生了 53 阶高次谐波. 同样的装置内, 稀有气体为 Ne 时, 最高得到 59 阶高次谐波, 对应 XUV 波长为 17.6 nm. 腔内产生的高次谐波均从焦点后方凹面镜上的小孔耦合输出. 同年, 他们继续利用相似的实验装置, 以相同的开有小孔的凹面镜作为输出耦合镜, 获得了 91 阶高次谐波, 对应波长为 11.45 nm. 然而, 通常电离强度会影响 fsEC 腔内所能达到的峰值功率, 他们在实验中发现较短的脉冲宽度会减弱电离强度对峰值功率的增强限制, 于是又利用不同脉冲宽度的种子源验证了共振增强腔内峰值功率与种子光源脉冲宽度的依赖关系<sup>[51]</sup>. 首先利用光纤 CPA 技术对重复频率为 78 MHz 的 Yb 固态振荡器进行功率放大后, 平均输出功率为 60 W, 脉冲宽度为 172 fs. 为了对比不同脉冲宽度种子源对腔内峰值功率和产生高次谐波光子能量的影响, 对 CPA 输出的脉冲又进行非线性压缩, 使其脉冲宽度降至 51 fs, 此时对应的平均输出功率为 43 W. 之后将未压缩和压缩后的脉冲分别注入 fsEC 中, 在空腔运行时, 腔内峰值功率的增长趋势基本一致, 说明不同脉冲宽度的种子源几乎没有影响. 然而当在腔内焦点处通过气体喷嘴注入 Ar 时, 短脉冲宽度的驱动激光所能达到的腔内峰值功率更高, 说明脉冲宽度的缩短的确减轻了电离对增强能力的限制. 当稀有气体被换为电离潜力更大的 Ne 时, 直径为 12  $\mu$ m 的聚焦焦点处产生的高次谐波阶数高达 91 阶, XUV 波长为 11.45 nm, 极有可能将其拓展至软 X 射线波段.

Yb 光纤飞秒激光器解决了 fsEC 种子源功率不足的问题, 但是产生的高次谐波功率却一直处于较低水平, 通过不断的实验和多次的理论模拟, 研究人员发现高重复频率的腔内焦点处稳态等离子体的积累会阻碍相位匹配<sup>[42,47,58,59]</sup>, 严重限制了可获得的谐波功率, 而且重复频率越高, 越难兼顾谐波功率, 极大地限制了 XUV 光源的应用范围. 2016 年, Carstens 等<sup>[70]</sup> 针对高重复频率下高次谐波功率的限制因素展开了实验研究. 由于产生高次谐波要求聚焦焦点处有足够高的峰值功率密度, 因此对 fsEC 内的单脉冲能量提出了要求, 进而

限制了重复频率的提高. 于是他们采用重复频率为 250 MHz、脉冲宽度为 250 fs 的光纤放大器作为驱动源<sup>[71]</sup>, 在注入 fsEC 之前, 利用棒状光纤对其光谱展宽至 120 nm, 脉冲宽度通过啁啾镜压缩至 30 fs, 此时平均输出功率为 170 W, 因此尽管重复频率很高, 但是依旧有足够的单脉冲能量. 脉冲在空腔内稳定运转时, 平均功率高达 20 kW, 当聚焦面积为 180  $\mu$ m<sup>2</sup> 时, Ne 喷嘴处的峰值功率密度为  $3 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, 探测到的 79 阶谐波功率为 1.3 nW. 稀有气体换为 Ar 或 Xe 时, 波长为 30 nm 的谐波功率为 2.5  $\mu$ W. 尽管使用了脉冲宽度更窄、平均功率更高的驱动源, 但是获得的谐波功率却与之前的研究结果接近<sup>[69]</sup>. 而造成这种结果的原因就是刚刚提到的腔内稳态等离子体的积累, 因为重复频率过高, 使得只有少部分相互作用的等离子体在下一个脉冲到达之前离开焦点处. 因此研究人员选择混合两种气体 (如 Xe 和 He 混合) 来提高其流速<sup>[42]</sup>, 从而减弱这种累积效应. 对比仅有 Xe 产生的高次谐波的光子通量, 混合气体产生的 61 nm 谐波的光子通量提高了约 30%, 功率为 3.6  $\mu$ W, 实验结果的确证明了累积效应会限制高重复频率谐波的光子通量.

为了继续提高产生谐波的功率, 2017 年, Porat 等<sup>[72]</sup> 使用高温下的气体混合物来增加其平均速度, 从而减少激光焦点处的稳态等离子体, 减弱了累积效应对增强腔中相位匹配的影响, 产生的高次谐波由自制的光栅元件导出, 首次获得了谐波功率为毫瓦量级的结果, 使得由 fsEC 中获得 XUV 亮度达到由同步加速器源获得的类似水平<sup>[58]</sup>. 而重复频率为 77 MHz, 谐波功率大于 1 mW 的 XUV 光源已经足以胜任一些少电子原子和离子的直接频梳谱探测<sup>[9,68]</sup> 或者基本物理常数的精确测定<sup>[8,9,73-77]</sup>. 2019 年, 他们继续使用加热的 He、Xe 混合气体来减弱累积效应的影响, 共振增强腔中的高次谐波非共线产生, 与基频光自然分离, 从两块凹面镜之间的缝隙出射, 耦合输出效率达 60%, 探测到的谐波平均功率大于 600  $\mu$ W, 对应的 XUV 波长为 97 nm<sup>[78]</sup>.

#### 4.2 基于 OPCPA 的 XUV 飞秒光学频率梳产生

在基于 fsEC 产生 XUV 飞秒光学频率梳快速发展的同时, 也有研究人员另辟蹊径, 通过 OPCPA

技术获得足以产生高次谐波的高峰值功率驱动激光. 2010年, Kandula 等<sup>[9]</sup>利用 OPA 系统仅对钛宝石振荡器输出的连续两个脉冲进行放大, 放大后的飞秒激光在腔外聚焦激发高次谐波产生, 进而获得了波长为 51.5 nm 的 XUV 飞秒光学频率梳, 并利用其对 <sup>4</sup>He 的电离势进行了绝对频率测量, 新的测量值的精确度较之前纳秒激光得到的最佳结果提高了一个数量级, 图 10 为 OPCPA 系统驱动高次谐波产生获得 XUV 飞秒光学频率梳的实验装置示意图. 随后, 他们继续利用非线性 OPCPA 系统对重复频率为 150 MHz 的钛宝石光学频率梳进行能量放大, 在 Xe 焦点处产生的 XUV 光谱范围覆盖 51—85 nm, 包含的梳齿数量约为  $2.8 \times 10^4$ — $8.0 \times 10^4$  个, 并且相继在 He、Ne、Ar 中进行高次谐波产生实验, 证明了基于 OPCPA 产生 XUV 飞秒光学频率梳系统的通用性<sup>[79]</sup>.

### 4.3 直接由振荡器产生 XUV 飞秒光学频率梳

无论是基于 fsEC 或是 OPCPA 系统产生 XUV 飞秒光学频率梳, 一个共同的缺点就是需要对驱动激光进行额外的腔外放大, 使得实验装置更为复杂, 操作难度更具挑战. 于是人们也在考虑是

否有更简便的方法, 比如直接从振荡器输出或者在振荡器内部产生足以驱动高次谐波产生的峰值功率密度. 2012年, Seres 等<sup>[80]</sup>利用钛宝石振荡器验证了这一理念的可行性. 在他们的实验中, 钛宝石振荡器腔长为 16 m, 对应的重复频率为 9.4 MHz, 在 18 W 的绿光泵浦下, 配合硬孔光阑, 得到了脉冲宽度为 17 fs 的锁模激光, 腔内功率为 10 W, 对应的单脉冲能量为 1  $\mu$ J. 在腔内直径为 7  $\mu$ m 的焦点处产生的峰值功率密度大于  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, 驱动 Xe 辐射高次谐波, 探测到的谐波截止能量超过 30 eV. 在此之后, Emaury 等<sup>[81]</sup>将重复频率为 2.4 MHz 的 Yb:YAG 薄片振荡器输出脉冲通过空芯光纤进行压缩, 最终获得了脉冲宽度 108 fs, 峰值功率约 105 MW 的飞秒激光, 输出光束直径在腔外被聚焦至 22  $\mu$ m, 产生的峰值功率密度约为  $5.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, 成功驱动 Xe 产生了截止波长约为 41 nm 的高次谐波, 其中 19 阶高次谐波 (54 nm) 的通量达到了  $5 \times 10^7$  photons/s. 2017年, Labaye 等<sup>[82]</sup>直接在重复频率为 17.35 MHz 的 Yb:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄片振荡器内产生了 17 阶高次谐波, 对应 XUV 波长为 60.8 nm, 第 11 阶谐波的辐射通量为  $2.6 \times 10^8$  photons/s, 图 11 为薄片振荡器腔内产生高次谐波的实验装置图.

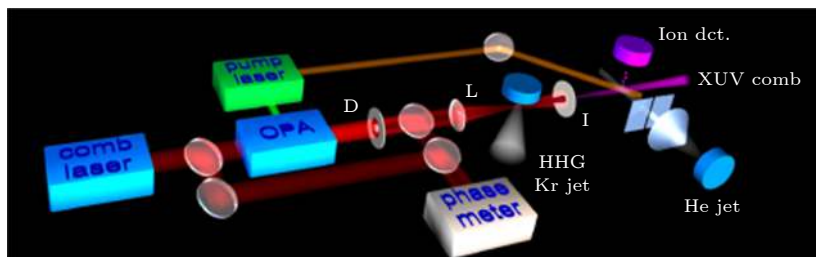


图 10 OPCPA 系统驱动 XUV 飞秒光学频率梳产生<sup>[9]</sup>

Fig. 10. XUV femtosecond optical frequency comb generation driven by OPCPA system<sup>[9]</sup>.

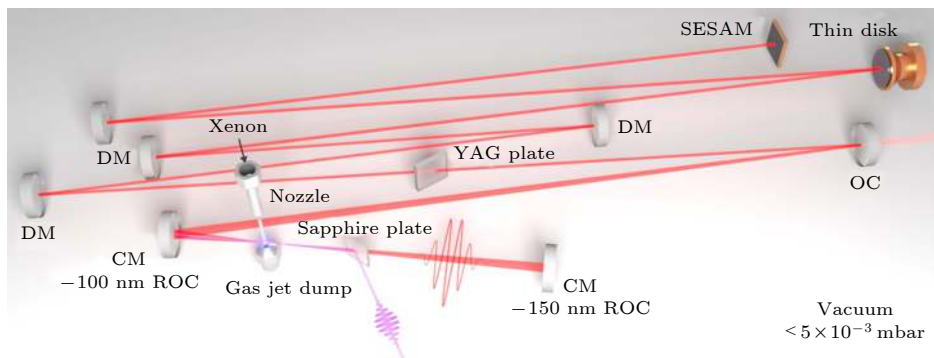


图 11 薄片振荡器内产生高次谐波实验装置<sup>[82]</sup>

Fig. 11. Experimental setup of HHG in a thin-disk laser oscillator<sup>[82]</sup>.

到目前为止, 想要获得 XUV 飞秒光学频率梳, 依旧需要以高次谐波产生为桥梁, 因此需要聚焦峰值功率密度达到  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> 且时频精密控制的飞秒驱动源. 通过对国际上研究工作的总结, 发现 CPA 技术、OPCPA 技术、fsEC 技术以及具有高脉冲能量的振荡器均可成功驱动高次谐波产生, 进而获得 XUV 飞秒光学频率梳. 受限于热效应的影响, CPA 技术并不适用于高重复频率高次谐波飞秒驱动源的获得; OPCPA 技术可以在保持飞秒种子光源高重复频率特性的同时, 使其峰值功率足够高以驱动高次谐波产生, 但是对种子光源进行展宽-放大-压缩的过程较为复杂; 直接从振荡器输出或者在振荡器内部产生足以驱动高次谐波产生的峰值功率密度的确是可行的方案, 但是受限于增益介质的性质以及可得到的泵浦源功率, 仅仅只能在较低的重叠频率 (约 10 MHz) 下产生足够的峰值功率. 相比较这三种 XUV 飞秒光学频率梳产生方案, fsEC 技术可以将时频精密控制的飞秒种子源直接进行无源放大, 并在增强腔内焦点处驱动高次谐波产生, 进而获得 XUV 飞秒光学频率梳, 虽然对腔内色散、腔精细度的要求较高, 具有一定的操作难度, 但是依旧是目前将飞秒光学频率梳技术拓展至 XUV 波段最有效和最便捷的方案.

结合目前国际上使用最广泛的 fsEC 内产生 XUV 飞秒光学频率梳的方案, 本课题组近几年在 fsEC 种子源研制方面取得了系列研究成果. 2016 年, 以光纤激光器泵浦的 Yb:CaYAlO<sub>4</sub> 激光器为光源, 研制出了当时最稳定的 1  $\mu$ m 波段全固态光学频率梳, 对应的脉冲宽度为 57 fs, 重复频率为 83 MHz<sup>[83]</sup>. 虽然仅 3 nJ 的单脉冲能量提高了对 fsEC 精细度的要求, 但是载波包络相移频率稳定的光学频率梳系统非常有益于 fsEC 增强倍数的提高. 为了获得更高脉冲能量的光梳系统, 通过优化腔型结构, 并将泵浦源更换为大功率的激光二极管 (laser diode, LD), 获得了重复频率为 50 MHz, 平均功率为 6.2 W, 脉冲宽度为 59 fs 的克尔透镜锁模输出, 对应的单脉冲能量为 124 nJ, 峰值功率高达 1.85 MW<sup>[84]</sup>. 接下来只需进一步对其重复频率和载波包络相移频率进行精密控制, 即可得到一台稳定的高功率飞秒光学频率梳, 结合其超过 100 nJ 的单脉冲能量, 作为 fsEC 的种子源可以有效降低对腔精细度的要求, 同时避免高重复频率飞秒激光在高精细度 fsEC 中放大时可能产生的光学

双稳态、脉冲畸变等不利现象. 除了对高功率飞秒种子源的研究, 将重复频率提高至 GHz 范围也是我们的研究方向之一, 进而为获得 GHz 重复频率 XUV 飞秒光学频率梳打好坚实基础. 本课题组正依据现有的研究成果不断前进, 努力将飞秒光学频率梳向高重频 XUV 波段拓展, 为精密测量物理的发展提供强有力的工具.

## 5 结 论

能够直接连接微波频率和光学频率<sup>[85,86]</sup>的光学频率梳使计量学和精密光谱学的发展发生了革命性的变化, 而 XUV 波段将光学频率提高了几个数量级, 可支持更短时间的脉冲输出, 提供更加精确的时间和频率分辨. 因此科研人员结合高次谐波产生技术, 已经成功将飞秒光学频率梳拓展至 XUV 波段, 并且最短波长已拓展至 20 nm 以下, 功率也已突破毫瓦量级. 但是依旧存在一些需要继续优化的地方, 比如: 目前采用的惰性气体原子产生谐波效率较低, 需要进一步优化提高其转换效率; 飞秒增强腔内的相位匹配需要进一步优化, 继续提高 XUV 飞秒光学频率梳的功率; 无论是共线产生高次谐波还是非共线产生高次谐波, XUV 飞秒光学频率梳的耦合输出效率都有待优化; 目前还难以获得高重复频率、高峰值功率、时频域精密控制的周期量级飞秒驱动源, 需要依靠超快激光技术的发展继续优化. 作为计量学以及精密光谱学的重要工具, XUV 飞秒光学频率梳必然会朝着更短波长、更高功率的方向继续前进, 并将在更多领域发挥更加重要的作用.

## 参考文献

- [1] Eckstein J N, Ferguson A I, Hänsch T W 1978 *Phys. Rev. Lett.* **40** 847
- [2] Baird K M, Evenson K M, Hanes G R, Jennings D A, Petersen F R 1979 *Opt. Lett.* **4** 263
- [3] Layer H P, Rowley W R C, Marx B R 1981 *Opt. Lett.* **6** 188
- [4] Pollock C R, Jennings D A, Petersen F R, Wells J S, Drullinger R E, Beaty E C, Evenson K M 1983 *Opt. Lett.* **8** 133
- [5] Jennings D A, Pollock C R, Petersen F R, Drullinger R E, Evenson K M, Wells J S, Hall J L, Layer H P 1983 *Opt. Lett.* **8** 136
- [6] Ma L, Bi Z Y, Bartels A, Robertsson L, Zucco M, Windeler R S, Wilpers S, Oates C W, Hollberg L, Diddams S A 2004 *Science* **303** 1843
- [7] Merkt F, Softley T P 1992 *Chem. Phys.* **96** 4149
- [8] Herrmann M, Haas M D, Jentschura U D, Kottmann F,

- Leibfried D, Saathoff G, Gohle C, Ozawa A, Batteiger V, Knunz S, Kolachevsky N, Schuessler H A, Hänsch T W, Udem T 2009 *Phys. Rev. A* **79** 052505
- [9] Kandula D Z, Gohle C, Pinkert T J, Ubachs W, Eikema K S E 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 063001
- [10] Eyler E E, Chieda D E, Stowe M C, Thorpe M J, Rschibi T R, Ye J 2008 *Eur. Phys. J. D* **48** 43
- [11] Peik E, Tamm C 2003 *Europhys. Lett.* **61** 181
- [12] Rellergert W G, Demille D, Greco R, Hehlen M P, Torgerson, J R, Hudson E R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 200802
- [13] Campbell C J, Radnaev A G, Kuzmich A 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 223001
- [14] Murphy M T, Webb J K, Flambaum V V 2003 *Mon. Not. R. Astron. Soc.* **345** 609
- [15] Berengut J C, Dzuba V A, Flambaum V V, Ong A 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 210802
- [16] Mcpherson A, Gibson G N, Jara H, Johann U, Luk T S, Mcintyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 595
- [17] Ferray M, Lhuillier A, Li X F, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B-AT Mol. Opt.* **21** L31
- [18] Lhuillier A, Balcou P 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 774
- [19] Macklin J J, Kmetec J D, Gordon C L 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 766
- [20] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [21] Popmintchev T, Chen M, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Alisauskas S, Andriukaitis G, Balciunas T, Mucke O D, Pugzlys A, Baltuska A, Shim B, Schrauth S E, Gaeta A L, Hernandezgarcia C, Plaja L, Becker A, Jaronbecker A, Mumane M M, Kapteyn H C 2012 *Science* **336** 1287
- [22] Strickland D, Mourou G 1985 *Opt. Commun.* **55** 447
- [23] Dubietis A, Jonusauskas G, Piskarskas A 1992 *Opt. Commun.* **88** 437
- [24] Ross I N, Matousek P, Towrie M, Langley A J, Collier J L 1997 *Opt. Commun.* **144** 125
- [25] Mears R J, Reekie L, Poole S B, Payne D N 1985 *Electron. Lett.* **21** 738
- [26] Mears R J, Reekie L, Poole S B, Payne D N 1986 *Electron. Lett.* **22** 159
- [27] Mears R J, Reekie L, Jauncey I M, Payne D N 1987 *Optical Fiber Communication Conference* Reno, United States, 19 January, 1987 pW12
- [28] Mears R J, Reekie L, Jauncey I M, Payne D N 1987 *Electron. Lett.* **23** 1026
- [29] Desurvire E, Simpson J R, Becker P C 1987 *Opt. Lett.* **12** 888
- [30] Snitzer E, Po H, Hakimi F, Tumminelli R P, Mccollum B C 1988 *Optical Fiber Sensors* New Orleans, United States, 27 January, 1988 pPD5
- [31] Po H, Snitzer E, Tumminelli R P, Zenteno L, Hakimi F, Cho N M, Haw T 1989 *Optical Fiber Communication Conference* Houston, United States, 6 February, 1989 pPD7
- [32] Jones R J, Ye J 2002 *Opt. Lett.* **27** 1848
- [33] Polzik E S, Kimble H J 1991 *Opt. Lett.* **16** 1400
- [34] Zimmermann C, Vuletic V, Hemmerich A, Hänsch T W 1995 *Appl. Phys. Lett.* **66** 2318
- [35] Villa F, Chiummo A, Giacobino E, Bramati A 2007 *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 576
- [36] Jones R J, Ye J 2004 *Opt. Lett.* **29** 2812
- [37] Jones R J, Thomann I, Ye J 2004 *Phys. Rev. A* **69** 051803
- [38] Devoe R G, Fabre C, Jungmann K, Hoffnagle J A, Brewer R G 1988 *Phys. Rev. A* **37** 1802
- [39] Moll K D, Jones R J, Ye J 2005 *Opt. Express* **13** 1672
- [40] Han H N, Zhang J W, Zhang Q, Zhang L, Wei Z Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 164206 (in Chinese) [韩海年, 张金伟, 张青, 张龙, 魏志义 2012 物理学报 **61** 164206]
- [41] Pupeza I, Fill E E, Krausz F 2011 *Opt. Express* **19** 12108
- [42] Mills A K, Hammond T J, Lam M H, Jones D J 2012 *J. Phys. B* **45** 142001
- [43] Jones R J, Moll K D, Thorpe M J, Ye J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 193201
- [44] Gohle C, Udem T, Rauschenberger J, Holzwarth R, Herrmann M G, Schuessler H A, Krausz F, Hänsch T W 2005 *Nature* **436** 234
- [45] Lee J, Carlson D R, Jones R J 2011 *Opt. Express* **19** 23315
- [46] Yost D C, Schibli T R, Ye J 2008 *Opt. Lett.* **33** 1099
- [47] Yost D C, Cingoz A, Allison T K, Ruehl A, Fermann M E, Hartl I, Ye J 2011 *Opt. Express* **19** 23483
- [48] Yang Y, Susmann F, Zhrebtsov S, Pupeza I, Kaster J, Lehr D, Fuchs H J, Kley E, Fill EE, Duan X, Zhao Z S, Krausz F, Stebbings S L, Kling, M. F 2011 *Opt. Express* **19** 1954
- [49] Moll K D, Jones R J, Ye J 2006 *Opt. Express* **14** 8189
- [50] Weitenberg J, Rusbult P, Eidam T, Pupeza I 2011 *Opt. Express* **19** 9551
- [51] Pupeza I, Holzberger S, Eidam T, Carstens H, Esser D, Weitenberg J, Rusbult P, Rauschenberger J, Limpert J, Udem T, Tuennermann A, Hänsch T W, Apolonskiy A, Krausz F, Fi ll, E. E 2013 *Nat. Photonics* **7** 608
- [52] Paschotta, R 2006 *Opt. Express* **14** 6069
- [53] Lhuillier A, Balcou P, Candel S, Schafer K J, Kulander K C 1992 *Phys. Rev. A* **46** 2778
- [54] Wu J, Zeng H 2007 *Opt. Lett.* **32** 3315
- [55] Ozawa A, Vernaleken A, Schneider W, Gotlibovych I, Udem T, Hänsch T W 2008 *Opt. Express* **16** 6233
- [56] Fomichev S V, Breger P, Carre B, Agostini P, Zaretsky D F 2002 *Laser Phys.* **12** 383
- [57] Ozawa A, Vernaleken A, Gotlibovych I, Hommelhoff P, Udem T, Hänsch T W 2010 *Proceedings of Spie the International Society for Optical Engineering* Brussels, Belgium, 4 June, 2010 p7728
- [58] Allison T K, Cingoz A, Yost D C, Ye J 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 183903
- [59] Carlson D R, Lee J, Mongelli J, Wright E M, Jones R J 2011 *Opt. Lett.* **36** 2991
- [60] Ruehl A, Marcinkevicius A, Fermann M E, Hartl I 2010 *Opt. Lett.* **35** 3015
- [61] Eidam T, Hanf S, Seise E, Andersen T V, Gabler T, Wirth C, Schreiber T, Limpert J, Tunnermann A 2010 *Opt. Lett.* **35** 94
- [62] Schibli T R, Hartl I, Yost D C, Martin M J, Marcinkevicius A, Fermann M E, Ye J 2008 *Nat. Photonics* **2** 355
- [63] Hartl I, Schibli T R, Marcinkevicius A, Yost D C, Hudson D D, Fermann M E, Ye J 2007 *Opt. Lett.* **32** 2870
- [64] Pupeza I, Eidam T, Rauschenberger J, Bernhardt B, Ozawa A, Fill E E, Apolonski A, Udem T, Limpert J, Alahmed Z A, Azzeer A M, Tunnermann A, Hänsch T W, Krausz, F 2010 *Opt. Lett.* **35** 2052
- [65] Hao Q, Li W X, Zeng H P 2009 *Opt. Express* **17** 5815
- [66] Bernhardt B, Ozawa A, Pupeza I, Vernaleken A, Kobayashi Y, Holzwarth R, Fill E E, Krausz F, Hänsch T W, Udem T 2011 *Quantum Electronics and Laser Science Conference* Baltimore, United States, 1–6 May, 2011 pQTuF3
- [67] Ditmire T, Crane J K, Nguyen H, Dasilva L B, Perry 1995 *Phys. Rev. A* **51** R902
- [68] Cingöz A, Yost D C, Allison T K, Ruehl A, Fermann M E, Hartl I, Ye J 2012 *Nature* **482** 68
- [69] Pupeza I, Holzberger S, Eidam T, Esser D, Weitenberg J, Carstens H, Rusbult P, Limpert J, Udem T, Tunnermann A,

- Hänsch T W, Krausz F, Fill E E 2013 *The European Physical Journal Conferences*, Brussels, Belgium, 4 June, 2013 p10023
- [70] Carstens H, Högner M, Saule T, Holzberger S, Lilienfein N, Guggenmos A, Jocher C, Eidam T, Esser D, Tosa V, Pervak V, Limpert J, Tunnermann A, Krausz F, Pupeza I 2016 *Optica* **3** 366
- [71] Jocher C, Eidam T, Hadrich S, Limpert J, Tunnermann A 2012 *Opt. Lett.* **37** 4407
- [72] Porat G, Heyl C, Schoun S B, Benko C, Dorre N, Corwin K L, Ye J 2017 *Nat. Photonics* **12** 387
- [73] Drake G W, Yan Z C 2008 *Can. J. Phys.* **86** 45
- [74] Karshenboim S G 2005 *Phys. Rep.* **422** 1
- [75] Pálffy A 2010 *Contemp. Phys.* **51** 471
- [76] Ubachs W, Salumbides E J, Eikema K S, Oliveira N D, Nahon L 2014 *Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **196** 159
- [77] Vogel M, Quint W 2013 *Ann. Phys.* **525** 505
- [78] Zhang C, Schoun S B, Heyl C, Porat G, Gaarde M B, Ye J 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 093902
- [79] Pinkert T J, Kandula D Z, Gohle C, Barmes I, Morgenweg J, Eikema K S 2011 *Opt. Lett.* **36** 2026
- [80] Seres E, Seres J, Spielmann C 2012 *Opt. Express* **20** 6185
- [81] Emaury F, Diebold A, Saraceno C J, Keller U 2015 *Optica* **2** 980
- [82] Labaye F, Gaponenko M S, Wittwer V J, Diebold A, Paradis C, Modsching N, Merceron L, Emaury F, Graumann I J, Phillips C R, Saraceno C J, Krankel C, Keller U, Sudmeyer T 2017 *Opt. Lett.* **42** 5170
- [83] Yu Z J, Han H N, Xie Y, Peng Y N, Xu X D, Wei Z Y 2016 *Opt. Express* **24** 3103
- [84] Tian W L, Yu C, Zhu J F, Zhang D C, Wei Z Y, Xu X D, Xu J 2019 *Opt. Express* **27** 21448
- [85] Udem T, Holzwarth R, Hänsch T W 2002 *Nature* **416** 233
- [86] Cundiff S T, Ye J 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 325

## REVIEW

# Generation and research progress of femtosecond optical frequency combs in extreme ultraviolet\*

Zheng Li<sup>1)</sup> Liu Han<sup>1)</sup> Wang Hui-Bo<sup>1)2)</sup> Wang Ge-Yang<sup>1)</sup> Jiang Jian-Wang<sup>1)2)</sup> Han Hai-Nian<sup>2)†</sup> Zhu Jiang-Feng<sup>1)‡</sup> Wei Zhi-Yi<sup>1)2)</sup>

1) (*School of Physics and Optoelectronic Engineering, Xidian University, Xi'an 710071, China*)

2) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

( Received 5 June 2020; revised manuscript received 29 June 2020 )

## Abstract

Femtosecond optical frequency combs have revolutionized the precision measurement of optical frequency and ultrafast science. Furthermore, the frequency combs expanded to extreme ultraviolet (XUV) wavelength could provide an effective tool in attosecond pulse generation, nonlinear optics in ultraviolet, spectroscopy of electronic transitions and experiment of quantum electrodynamics. XUV femtosecond optical frequency combs need to be indirectly obtained by means of high-harmonic generation (HHG) driven by femtosecond pulses with high-repetition rate and extremely high peak power. In this review, firstly, the generation principle and the driving laser source requirements of femtosecond pulses generation in XUV spectral range are introduced. Basing on the requirements of driving laser sources, the several femtosecond laser amplification techniques are described, such as chirped pulse amplification (CPA), optical parametric chirped pulse amplification (OPCPA), double cladding pumped fiber amplifier and femtosecond enhancement cavity (fsEC). Meanwhile, the relative merits and applicability of which for XUV femtosecond optical frequency combs generation are compared. Secondly, in the HHG process, the XUV is generated collinearly or non-collinearly with the optical driving field. For the collinear generation process, one of the fundamental challenges is the design of a high-efficiency XUV output coupler. Here, three methods for out-coupling the XUV are expounded. Also, the theory of non-collinear XUV generation is mentioned. Finally, some typical research progress of XUV femtosecond optical frequency combs generation based on fsEC, OPCPA and femtosecond oscillators are reviewed respectively, as well as the current problems that need to be optimized are summarized.

**Keywords:** optical frequency comb, extreme ultraviolet, high harmonic generation, femtosecond enhancement cavity

**PACS:** 42.62.Eh, 61.80.Ba, 42.65.Ky, 42.60.Da

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200851

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11774277, 60808007), the Fundamental Research Funds for the Central Universities (Grant Nos. JB190501, ZD2006), and the Natural Science Basic Research Program of Shaanxi, China (Grant No. 2019JCW-03).

† Corresponding author. E-mail: [hnhan@iphy.ac.cn](mailto:hnhan@iphy.ac.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [jfzhu@xidian.edu.cn](mailto:jfzhu@xidian.edu.cn)