

高重频硬 X 射线自由电子激光脉冲 到达时间诊断方法研究*

张少军¹⁾ 郭智^{2)†} 成加皿¹⁾ 王勇²⁾ 陈家华²⁾ 刘志^{1)‡}

1) (上海科技大学物质科学与技术学院, 上海 201210)

2) (中国科学院上海高等研究院, 上海光源科学中心, 上海 201204)

(2022 年 12 月 22 日收到; 2023 年 2 月 22 日收到修改稿)

X 射线自由电子激光 (XFEL) 脉冲时间诊断技术常用于实验站附近 XFEL 脉冲和配套激光的相对到达时间探测, 是飞秒级 XFEL 泵浦探测实验的重要辅助技术, 为 XFEL 和激光泵浦探测实验中两种脉冲对准提供参考信号. 随着 XFEL 向高重频、短脉冲发展, 对时间诊断中的诊断频率、泵浦样品和分辨率提出了更高的要求. 该技术通过泵浦探测和光学互相关实现, 当 XFEL 脉冲入射高带宽半导体样品瞬间, 导致样品复折射率突变, 使 XFEL 到达时间编码于突变空间. 本文基于空间编码和光谱编码两种方法, 研发设计了 XFEL 单脉冲到达时间诊断装置; 并通过 Beer's 吸收理论和原子散射理论对 X 射线与样品作用过程进行模拟, 研究了该过程中 X 射线吸收与折射率突变的响应程度, 完善了样品的分析选择模型; 对光谱编码中的啁啾脉冲调制进行分析, 得到色散介质和脉冲本征参数对诊断分辨率的影响. 该研究对 XFEL 脉冲到达时间诊断装置的应用具有指导意义.

关键词: 时间诊断, 光学互相关, X 射线自由电子激光, 泵浦探测

PACS: 52.70.La, 52.59.Px, 07.85.Fv, 41.50.+h

DOI: 10.7498/aps.72.20222424

1 引言

X 射线自由电子激光 (X-ray free electron laser, XFEL) 具有高峰值功率 (约 GW)、全相干、超短脉冲 (约 10 fs) 等特性, 已成为分子和原子尺度上探测与认识物质内部微观构造与动态过程不可替代的尖端装备^[1]. 21 世纪初, 基于电子直线加速器的 XFEL 在美国 SLAC 实验室研制成功^[2,3], 开辟了 X 射线光源及其应用的全新时代. XFEL 装置可以为用户提供高相干性的 X 射线脉冲激光, 为研究纳米甚至更小尺度的原子、分子等超快动力学过程带来了更多的研究视角和方法^[4]. 物理、化学、材

料、生物等领域的科学家一直在寻求基于 XFEL 飞秒脉冲的泵浦探测技术来研究实验中的超快动力学过程, 但该类技术中 XFEL 脉冲与配套光源之间的时间同步水平依然是限制实验时间分辨率的主要因素^[5,6], 而控制两种光源时间同步的难点主要来自于 XFEL 脉冲的不定时抖动 (root mean square, $\text{RMS} \geq 100$ fs)^[7], 短时 (< 10 min) 漂移 (RMS 200—300 fs) 和长时 (> 10 min) 热漂移 (RMS 10 ps)^[4]. 短时漂移和长时热漂移相对来说容易控制和预测. 其中不定时抖动主要源于波荡器中 XFEL 产生时的自放大自发辐射 (self amplified spontaneous radiation, SASE) 过程的电子随机特性和电子束噪声的扰动, 所以相对到达时间存在无

* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFB3503904) 和国家自然科学基金 (批准号: 12075304) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: guoz@sari.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: liuzhi@shanghaitech.edu.cn

法忽略的涨落和抖动,而且这种随机因素很难控制.加速器与配套光源的同步虽然可以通过连锁来控制,但同步的时间不确定尺度只能达到几百飞秒^[8].目前为了进一步提高 XFEL 泵浦探测实验的时间分辨率,通常以 X 射线到达时间诊断装置提供的到达时间 T_0 为依据,对实验数据后验排序,可以进一步实现几十飞秒到几飞秒的时间分辨率.

基于时间分辨率的需求,开发一种在线、无损、单脉冲的相对到达时间诊断设备成为了 XFEL 大科学装置的刚需^[9].目前单脉冲的到达时间诊断主要基于泵浦探测和光学互相关的理论,通过空间编码^[10]和光谱编码^[11]两种方法实现.空间编码于 2008 年 Maltezopoulos 等^[12]在 FLASH 中首次用于到达时间诊断,通过将 EUV 与激光以一定角度交叉入射到 GaAs 晶体上实现了空间编码,诊断分辨率可达 40 fs (RMS); Schorb 等^[13]和 Beye 等^[14]分别于 2012 年在 LCLS 装置上,在软 X 射线波段实现了 22 fs (RMS) 的诊断分辨率; Katayama 等^[15]2016 年在 SACLA 上实现了硬 X 射线的到达时间诊断,诊断分辨率达到 7 fs (RMS);最新进展是 2020 年 Droste 等^[16]在 LCLS 上利用多层膜技术将时间分辨率进一步提高到 2.2 fs (RMS).光谱编码最早于 2011 年由 Bionta 等^[17]首次提出并应用于 FLASH 诊断试验,实现了诊断分辨率小于 50 fs (RMS) 的诊断分辨率;2013 年 Harmand 等^[4]继续在 LCLS 上使用该技术,结合空间编码实现了时间分辨率小于 10 fs (RMS) 的硬 X 射线波段的到达时间诊断;最近 Kirkwood 等^[18]和 Diez 等^[19]先后于 2019 年和 2021 年在 Europe-FEL 上实现了更高重频的 XFEL 脉冲到达时间的诊断.

目前国际上同类型设备主要集中在低重频和软 X 射线范围,对泵浦探测和光学互相关门控在高重频、硬 X 射线波段的理论研究较少,缺少样品选择分析模型.当前高重频硬 X 射线 XFEL 正在大量建设,该方面的研究对于这些大科学装置变得极为需要.本文基于泵浦探测和光学互相关原理,研发设计了一套适用于高重频 (10 kHz),可以兼容软硬 X 射线波段 (0.4—25 keV) 的 XFEL 单脉冲到达时间诊断设备,实现了空间编码与光谱编码互相校验,该设备预计可以达到 X 射线脉冲和激光脉冲相对到达时间诊断分辨率小于 15 fs (RMS) 的尺度.针对脉冲到达时间诊断中存在的光谱调制、样品选择以及高重频下样品突变等重要物理问

题进行了深入研究,分析了啁啾超连续谱 (chirp super continuum, SC) 产生及调制对光谱编码分辨率的影响.根据 Beer's 吸收和 Drude 模型分析了硬 X 射线和半导体样品的作用原理及其过程,根据结果阐述了各波段适用的样品种类和厚度,为 XFEL 脉冲到达时间诊断提供完整的样品研究模型和 SC 调制方法.

2 原理和设计

2.1 物理模型

XFEL 单脉冲诊断基于泵浦探测和光学互相关原理,该过程发生在 XFEL 脉冲辐照在高带宽半导体薄膜样品 (GaAs, Si_3N_4 或金刚石膜) 时,处于基态的电子被 X 射线脉冲轰击,在几飞秒到十几飞秒的时间内大量的电子从束缚态泵浦到导带的高能态,薄膜特定区域的电介质常量被改变,致使该区域的复折射率突变^[20].折射率突变反映的 X 射线到达样品的时间,通过空间编码或光谱编码两种方法编码于探测激光的光斑空间变化或光谱变化.光谱编码相对于空间编码有更高的调节范围、更宽的时间窗口和高稳定性且不受光斑的影响,而空间编码则有布局简单的优点,但其时间窗口范围受样品上光斑覆盖区域限制,并且诊断精度受 CCD 像素影响.

本文耦合两种方法于同一泵浦设备,可实现诊断时间的相互校验,提高诊断准确性.如图 1 所示,探测激光分为两束,当 XFEL 与半导体样品成一定角度入射时,在 XFEL 光斑覆盖范围内,一束探测激光整形聚焦于此,通过探测激光透射突变的二维空间位置标定 XFEL 脉冲相对于探测激光的到达时间.同时另一束探测激光由透镜聚焦到 C 型蓝宝石上,通过多重非线性效应产生 300—1200 nm 范围的连续谱.经滤光片和火石玻璃 SF11 或 SF57 色散,形成带宽 400—600 nm、脉宽约 3 ps 的 SC,SC 经过突变点时将到达时间编码在对应波长,由光谱仪解析到达时间.

两种编码方式的结合可以有效地提高高重频 XFEL 到达时间诊断的准确率,但诊断过程还有一些物理问题急需解决,比如 X 射线泵浦过程中的热量累积导致样品寿命的过度损耗,载流子迁移的非均匀性会扩大时间分辨率解析的不确定范围.通过选择样品种类和厚度来控制 X 射线吸收和光电

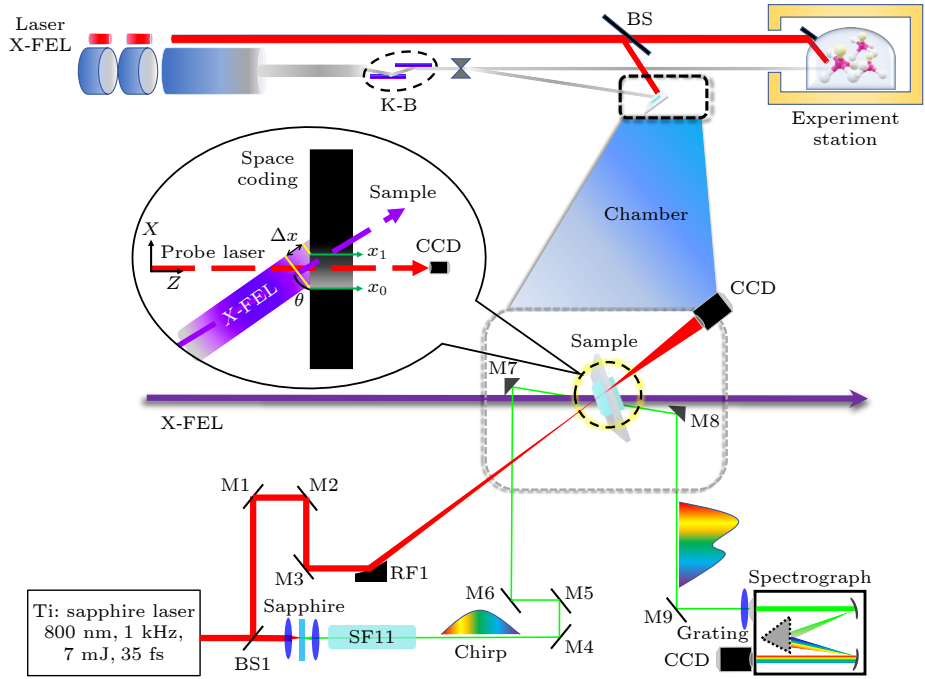


图1 XFEL脉冲到达时间诊断系统光路示意图, 诊断系统位于XFEL束线末端, 实验线站之前. 其中红色光束为空间编码, 绿色光束为光谱编码光路, 插图是为空间编码示意图

Fig. 1. Optical layout of PAM (XFEL pulse arrival time monitor), PAM is located before the experimental station, at the end of the XFEL beam line. Red optical layout is spatial coding, green optical layout is spectral coding, illustration is a spatial coding diagram.

子弛豫时间, 可以有效抑制样品载流子扩散和温度升高. 除此之外, 光斑探测 CCD 的分辨率和光谱仪分辨率要实现诊断与数据传输的平衡, 样品内部的标准具效应, 光谱编码啁啾连续谱产生过程中的非线性变化对光谱编码的时间非均匀映射都需要进一步研究.

2.2 诊断光路设计

基于空间编码和光谱编码原理的同一性, 光路设计见图1. 掺钛蓝宝石激光器 (Ti: sapphire, 800 nm, 30 fs, 1 kHz) 通过分光镜 BS1 分为两束, 一束用于光谱编码, 通过透镜聚焦于 C 型蓝宝石 (厚度 1 mm) 产生 400—1200 nm 的宽谱脉冲, 滤光后的宽谱脉冲可用 SF11 玻璃 (厚度 5 cm) 经群速度色散形成约 3 ps 的 SC, 由 M4, M5 反射镜组成的延时线 (分辨率 1 fs) 调节 SC 到达样品的时间. XFEL (0.2—500 W/mm², 0.2—15 keV, ≤10 kHz) 和探测激光同时入射到样品架上的二极管 (Thorlabs/FDS015) 或 SAM 天线, 产生的模拟信号通过示波器反馈后调节相对延时进行预对准, 使 XFEL 脉冲与探测激光脉冲相对到达时间接近 20—30 ps, 尽可能使每个 X 射线脉冲都被探测激光所覆盖 [21].

预对准是实现高重频 XFEL 单脉冲到达诊断的关键步骤. 激光经过延迟线后聚焦并馈入样品腔, 通过内部高精度真空反射镜调节机构 (Attocube AMC100 纳米压电电机系统) 将焦点对准到 XFEL 在样品的入射区域, 编码后的探测激光通过馈出窗口引入光谱仪 (HRS-300SS NI) 经面阵 CCD 相机 (BLZ-400B, 1340 pixel×400 pixel, 50—150 kHz) 读出编码后光谱数据, 根据光谱仪光栅实现波长-时间映射并结合参考光解析到达时间.

另一束激光用于空间编码, 探测激光通过另一延时光路后由长焦 (230 mm) 离轴抛物面镜反射馈入腔体并聚焦于样品表面. 如图1插图所示, X 射线 (0.2—500 W/mm², 0.2—15 keV, ≤10 kHz) 以 θ 角沿 z 方向入射, 脉冲前沿与峰值的光程差 Δx 形成到达时间窗口 Δt , 编码后的光斑摄入腔体上安装的高分辨率线阵 CCD (ML-HM-16 K30 H-00, 10000 pixel×2 pixel, 300 kHz). Δx 和时间的关系如下:

$$\Delta t = \frac{\Delta x \cdot \cos(\theta)}{c}, \quad (1)$$

其中 c 为真空光速, 光斑强度变化通过 CCD 像素实现了空间-时间映射. 强度突变位置的确定是空

间编码诊断分辨率大小的关键, 通过光斑大小和入射角度即可调节时间窗口。

2.3 机械布局

图 2 展示了 XFEL 单脉冲到达时间诊断装置的机械设计, 包括整体结构、激光光路和腔体设计, 该装置放置于 K-B 聚焦系统和实验站之间, 用以诊断靠近样品点的 XFEL 脉冲和探测激光的相对到达时间. 如图 2(a) 所示, 脉冲到达时间机械结构包括实验腔体、光学平台、激光真空外调节机构、光谱仪、探测器等. 其中实验腔体包含激光反射镜及压电调节机构、样品杆及其馈入机构、激光馈入馈出和观察视窗、电机控制线缆馈入法兰等. 如图 2(b) 所示, XFEL 脉冲进入诊断腔体, 通过并激发样品后进入实验线站. 探测激光引入设备后通过分束镜分为两路: 用于空间编码的一路探测激光通过爬高架入射到腔体下方的离轴抛物面镜, 反射聚焦于样品表面, 通过样品后经腔体上方法兰进入 CCD 探测器窗口; 另一路直接引入高层平台经过蓝宝石和色散玻璃以及延时光路后聚焦馈入样品腔, 通过腔内光机结构实现探测后射出腔体并引入同侧的光谱仪解码光谱. 光学平台沿 XFEL, 光路

长度要求小于 1 m, 所以对激光探测光路做了相应的空间堆叠设计, 通过架高将延时线和部分光路放置在高层用于光谱编码, 底层主要用于空间编码. 图 2(b) 中腔体透视图主要展示了腔体内部真空环境中的样品传递与光路调节, 腔体为超高真空设计 (静态真空 5×10^{-10} Torr (1 Torr = 133 Pa)). 腔体内用于光谱编码的激光反射三角棱镜 (含 XFEL 通光孔) 调节机构采用压电纳米电机组合 (4 台/组, 共 2 组), 包括二维平移和二维转动调节, 反射棱镜不仅需要调节真空内探测激光 (图 2(b) 中黄色光路) 精确入射到 XFEL 在样品点的作用区域, 还需使 XFEL 无损通过棱镜并实现 XFEL 和探测激光共线 ($< 4^\circ$), 然后调节携带光谱编码信号的激光馈出真空腔体至光谱仪, 这是光谱编码的核心调节机构. 空间编码激光 (图 2(b) 中红色光路) 通过抛物面镜倾斜 45° 向上馈入真空腔体, 并以 45° 角穿过样品区域, 通过馈出窗口入射到一维线阵或二维面阵 CCD, 用以进行空间编码信号的读取, 线阵和面阵相机的最大连续采集读出频率分别为 300 kHz 和 20 kHz, 满足高重频数据采集的需求, 二维面阵 CCD 同时可用于低重频下透射率变化的二维图像采集.

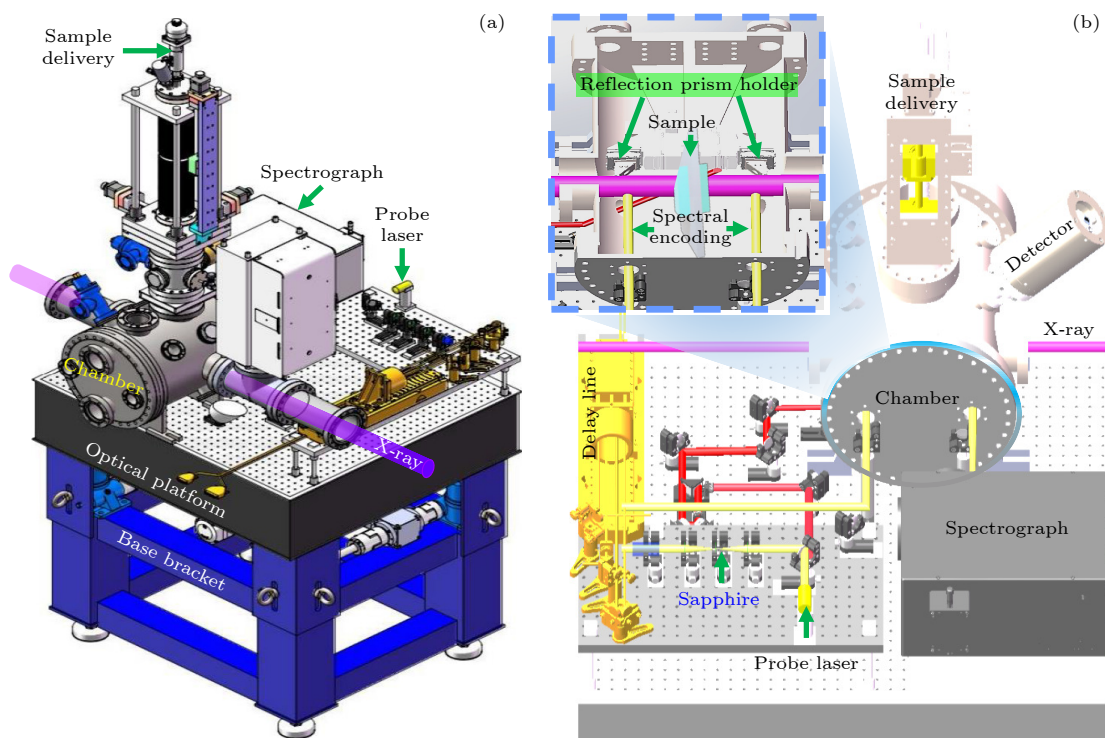


图 2 诊断设备机械设计和光学布局 (a) 诊断设备整体设计图; (b) 空间编码、光谱编码在腔体外的光路布局和腔体内部透视图
Fig. 2. Mechanical design and optical layout: (a) Overall design drawing of diagnostic equipment; (b) optical layout design of spatial coding, spectral coding and chamber fluoroscopy.

3 仿真与分析

3.1 折射率突变过程分析

XFEL 泵浦薄膜样品过程的物理变化是到达时间诊断的决定性因素. XFEL 脉冲到达薄膜样品的几飞秒内引起自由载流子突变, 随后自由电子的碰撞电离、电子的弹性散射、深壳层的俄歇衰变等二次电子成为载流子的主要来源. 二次电子发生时间通常晚于直接电离的电子, 所以会较大范围地增加载流子的弛豫时间, 使得折射率突变时间从几百飞秒延续到几十皮秒, 弛豫时间的增加会影响诊断的连续性. 载流子突增的前几飞秒, 可以假设光生载流子密度在该时间尺度上遵循 XFEL 脉冲强度包络, 随着持续时间增加, 次级过程的贡献成为主导. 如果载流子上升时间延长, 到达时间 T_0 的分辨率也会降低到几十飞秒. 所以可以从载流子的变化出发, 分析样品折射率突变编码到达时间的物理过程. 根据 Beer's 吸收定律, 光生载流子的密度可以由被吸收光子数得到, 即

$$\Delta n_{\text{photon}} = \frac{I_0 (1 - e^{-\alpha z})}{h\nu}, \quad (2)$$

其中 I_0 为入射 X 射线的光强; α 是与 X 射线相关的样品吸收系数; z 是 X 射线在样品中的透射深度; Δn_{photon} 为光生载流子数量; $h\nu$ 为 XFEL 光子能量. 光生载流子的生成过程, 包括弹性散射 (无损耗过程) 和非弹性散射 (损耗过程), 后者比例的增加是样品温度升高的主要原因. 这里以 XFEL 对多电子原子的散射为模型, 研究 XFEL 脉冲透过样品时的吸收、扰动和光生载流子的产生机制. 从麦克斯韦方程组得到电磁波在介质中传播的矢量波动方程, 那么入射的 X 射线电场 $E(r, t)$ 可以用多电子原子介质中电流密度的横向分量来表示 [22]:

$$E(r, t) = -\frac{r_e}{r} \left[\sum_{s=1}^Z \frac{\omega^2 e^{-i\Delta k \cdot \Delta r_s}}{\omega^2 - \omega_s^2 + i\gamma\omega} \right] E_i \sin\theta \cdot e^{-i\omega(t-r/c)}, \quad (3)$$

式中, r_e 是经典模型的原子半径; r 是观察点的距离; E_i 是入射脉冲电场; θ 是入射波与散射波的夹角; ω 是入射脉冲频率; t 是入射波作用时间; c 是真空中光速; 其中 $\sum_{s=1}^Z \frac{\omega^2 e^{-i\Delta k \cdot \Delta r_s}}{\omega^2 - \omega_s^2 + i\gamma\omega}$ 是原子的复散射因子 $f(\Delta k, \omega) = f_1 - if_2$, Z 为原子内电子数, ω_s 是原子中束缚电子的共振频率, $\Delta k \cdot \Delta r_s$ 是

不同电子离散位置产生的相位, γ 是能量损耗项. 由于入射材料原子中的电子主要分布在波尔半径内, 故 X 射线与原子中电子的作用可近似为前向散射, 根据散射因子计算微分散射截面和总散射截面, 化简得到 X 射线在样品中的折射率 $n(\omega)$:

$$n(\omega) = 1 - \delta + i\beta = 1 - \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} [f_1^0(\omega) - f_2^0(\omega)]. \quad (4)$$

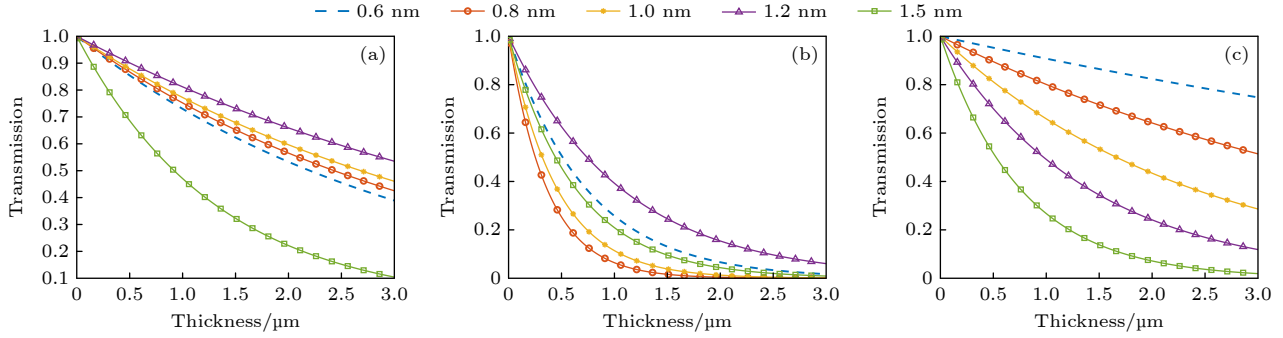
(4) 式描述了单光子的吸收和散射过程, 用于 X 射线在薄膜半导体样品中的透射分析. 其中 δ, β 分别对应 X 射线的色散项和吸收项, 但是对于几十纳米到几微米的薄膜色散项可以忽略, n_a, r_e 分别是样品中原子密度和原子半径, λ 为 X 射线波长, f_1 为散射因子实部与相速度变化有关, f_2 为虚部与吸收引起的振幅衰减有关. 根据 (4) 式可得样品对 X 射线的吸收和透过率 $T(\lambda, z) = e^{\frac{4\pi \cdot (n(\lambda) - 1)z}{\lambda}}$, 其中 z 是透射样品厚度, λ 是入射 X 射线波长. 结合 (2) 式可得到样品中载流子的变化, 以此选择样品及其厚度, 使样品在改变探测激光折射率的同时减少 X 射线的吸收, 防止样品因吸收超过阈值而减少寿命或损毁. 这里以时间诊断常用的三种高带宽半导体 GaAs, Si_3N_4 和金刚石膜为例, 根据 X 射线数据库 (来自 Center for X-ray Optics and Advanced Light Source-Lawrence Berkeley National Laboratory) 提供的原子散射因子 f_2 分析样品对 X 射线的吸收以及诊断过程受到的影响, 三种材料的参数在表 1 列出.

取 X 射线波长为 1.5, 1.2, 1, 0.8 和 0.6 nm, 不同厚度下三种样品的 X 射线透射率如图 3 所示. 可知, 相同厚度下 Si_3N_4 比 GaAs 有更高的透过率, 但是在 1.5 nm 吸收边附近的 X 射线会导致折射率阶跃型突变, 致使诊断分辨率下降以及样品吸收太高容易击穿, 所以 Si_3N_4 不适用该波长附近的 XFEL. GaAs 响应范围较广, 恰好可以补偿 Si_3N_4 吸收边的不适用范围, 但是吸收较高, 对于高重频硬 XFEL 的诊断, 样品温度可能会超过阈值, 寿命急剧下降, 由此导致频繁的更换样品也会降低系统稳定性. 金刚石因为原子结构特殊, 散射因子明显小于其余两种材料, 对各波段 XFEL 的响应较为离散, 并且对硬 X 射线波段有明显优势, 另外其良好的导热性也会成为高能量波段的优先选择. 所以金刚石对于高重频硬 X 射线波段适应性较好, 使用寿命和使用范围都有优势. 样品种类和厚度直接

表 1 GaAs, Si₃N₄ 和金刚石膜三种半导体材料用于到达时间诊断的相关参数Table 1. Parameters for GaAs, Si₃N₄ and diamond film semiconductor materials for arriving time diagnosis.

种类	规格	带宽	吸收长度*	密度	熔点	导热系数
	mm ²	eV	nm	g/cm ³	℃	W/(cm·K)
Si ₃ N ₄	10 ²	5	360—4431	3.19	1800	1.369
GaAs	10 ²	1.43	321—2166	5.31	1238	0.46
Diamond	10 ²	5.5	367—3714	3.515	3550	23

* X射线波长范围0.4—2 nm

图 3 不同厚度样品下的 X 射线透射率 (a) Si₃N₄; (b) GaAs; (c) 金刚石膜Fig. 3. Transmittance of X-ray in samples with different thicknesses: (a) Si₃N₄; (b) GaAs; (c) diamond film.

决定了折射率突变的情况和诊断过程中温度的控制, 对于高重频硬 XFEL 诊断中的难度不只是折射率的突变程度, 另外对 X 射线脉冲的低损和对高温的抑制也是诊断必须考虑的因素.

为了进一步研究 XFEL 吸收产生的热量对样品的影响, 本文通过 Ansys(美国 ANSYS 公司研制的通用有限元分析 (FEA) 软件) 分别对 Si₃N₄ 和金刚石薄膜在诊断中的温度进行了有限元分析仿真. 对于平均功率密度小于 0.3 mW/mm², 1 kHz 或更低脉冲频率的 X 射线入射 500 nm 厚的 Si₃N₄ 时, Si₃N₄ 表面最高温度可达 165.47 ℃, 如图 4(a). 当 X 射线脉冲功率密度增加至 10—300 mW/mm², 达到 10 kHz 或更高频率时, Si₃N₄ 样品表面温度会升高至 3000—5000 ℃, 显然会超出温度阈值. 金刚石则会从减少吸收, 增加热量传递速率两方面抑制温度的升高, 相同情况下 50 nm 的金刚石就可以把温度控制在 100 ℃ 内, 如图 4(b). 所以对于高重频、硬 X 射线金刚石是更好的诊断样品.

合适的泵浦样品在 X 射线脉冲到达后, 样品内光生载流子的浓度变化快速改变了该区域样品的复折射率, 通过折射率突变调制探测激光的空间强度或光谱来编码到达时间. 该过程需由 (4) 式结合 (2) 式得出的载流子浓度变化, 通过 Drude 模型建立探测光在样品中复折射率随载流子浓度变化

的过程函数:

$$n(\lambda)^2 = n_0(\lambda)^2 - \left(\frac{\omega_e}{\omega}\right)^2 \frac{1}{1 + i/(\omega\tau_e)} - \left(\frac{\omega_h}{\omega}\right)^2 \frac{1}{1 + i/(\omega\tau_h)}, \quad (5)$$

其中, $\omega_e^2 = \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m_e^*}$, $\omega_h^2 = \frac{Ne^2}{\varepsilon_0 m_h^*}$, $n_0(\lambda)$, ω 分别是探测激光初始折射率和入射频率, ω_e , ω_h , m_e^* , m_h^* , τ_e , τ_h 是电子和空穴的共振频率、有效质量和弛豫时间, N , e , ε_0 是样品中载流子浓度、电子电荷量和真空介电常数. 通过 (5) 式即可分析 X 射线引发样品中探测激光折射率 $n(\lambda)$ 的变化. 由菲涅尔关系根据折射率 $n(\lambda)$ 得到探测激光在样品中的透射率:

$$T(\omega) = \left| \frac{t_1 t_2 \exp(i\omega z \sqrt{\varepsilon(\omega)/c})}{1 + \gamma_1 \gamma_2 \exp(2i\omega z \sqrt{\varepsilon(\omega)/c})} \right|^2, \quad (6)$$

其中, $t_1 t_2$, $\gamma_1 \gamma_2$ 是菲涅尔系数; c 是真空光速; ω 是入射探测光波长; z 为样品厚度; $\varepsilon(\omega)$ 是对应波长的介电常量. 根据透射率 $T(\omega)$ 变化对时间积分即可得到 X 射线脉冲泵浦样品时形成的门控开关函数 [23]:

$$S(\Delta t) = \int_{-\infty}^{+\infty} G(t - \Delta t) I_{\text{laser}}(t) dt, \quad (7)$$

其中 $G(t - \Delta t)$ 为 X 射线入射时间范围内样品折射率引起的变化; $I_{\text{laser}}(t)$ 为探测激光强度, 根据门控

函数可判断探测激光通过门控开关后的变化 $S(\Delta t)$, 推断折射率对到达时间诊断的有效性. 如图 5 所示, 以中心波长为 800 nm 探测激光在 50 和 100 nm 厚度的 GaAs, Si_3N_4 和金刚石薄膜样品为例, 物理量见表 2, 分别计算了 100 到 3 keV 的 X 射线光子能量下的探测激光透射率的相对变化 $\Delta T(\omega)$ 和 X 射线本身的透射率.

通过图 5 可以看出, 探测激光在样品中的透射率变化与 X 射线有明显的互相关效应, 并且与样品厚度有关联关系. 三种样品的吸收边范围也有较

大区别, 可以根据探测激光透射率变化平滑稳定的区间选择不同厚度的样品, 避免吸收边突变和其他

表 2 Si_3N_4 , GaAs 和金刚石膜中载流子的有效质量和弛豫时间

Table 2. Effective mass and relaxation time of carriers in GaAs, Si_3N_4 and diamond film.

样品	m_e^*	m_h^*	τ_e/ps	τ_h/ps
Si_3N_4	$0.3 m_e$	$0.3 m_e$	0.5	0.5
GaAs	$0.067 m_e$	$0.4 m_e$	4.8	2
Diamond	$0.28 m_e$	$1.22 m_e$	1.5	1.4

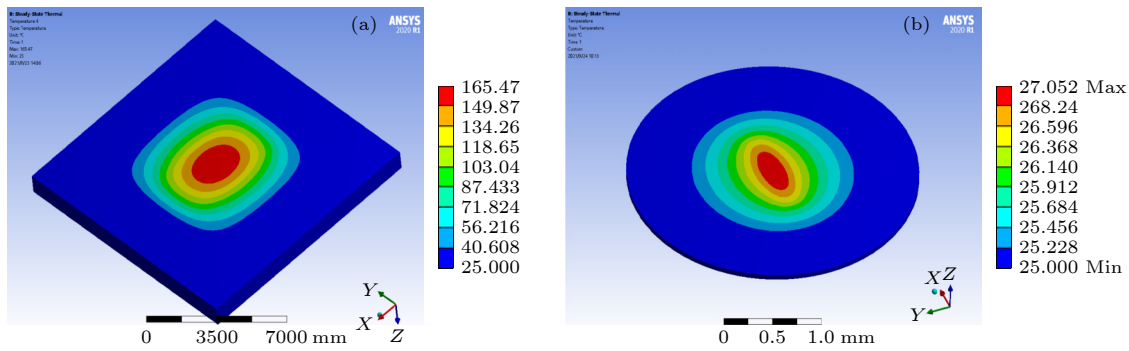


图 4 泵浦样品的有限元热分析结果 (a) Si_3N_4 ; (b) 金刚石膜

Fig. 4. Finite element thermal analysis of the pumped sample: (a) Si_3N_4 ; (b) diamond film.

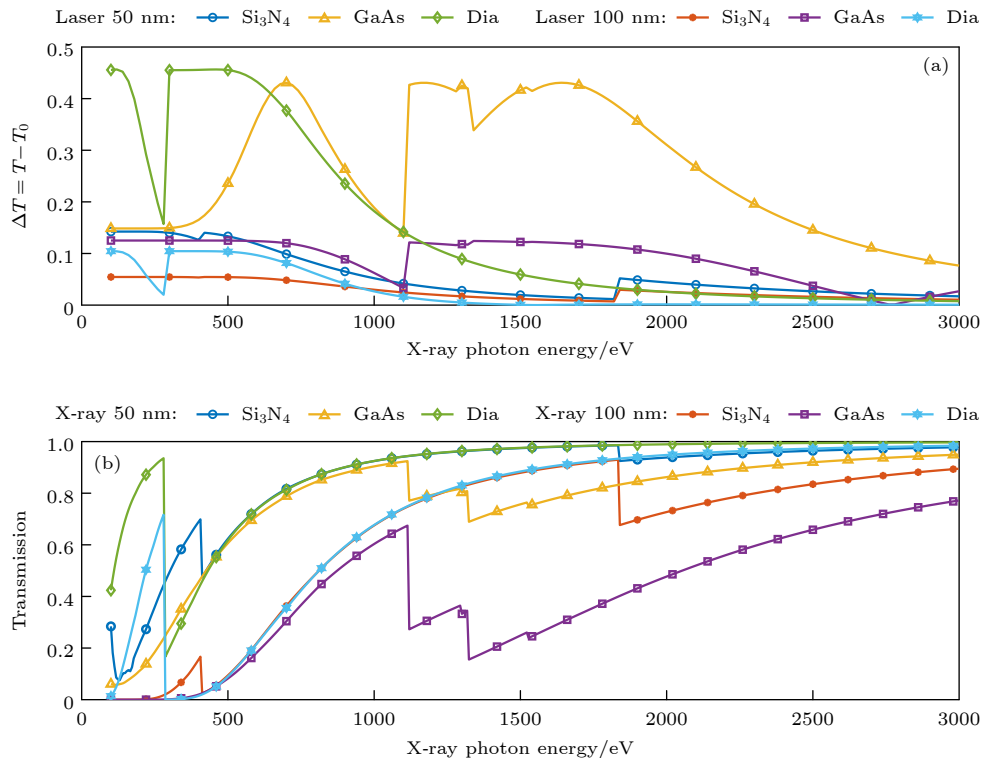


图 5 (a) X 射线泵浦后探测激光透过样品的透射变化率; (b) XFEL 脉冲入射到 GaAs, Si_3N_4 和金刚石薄膜 (diamond film) 样品靶的透射率

Fig. 5. (a) The change rate of laser transmission through the sample is detected after X-ray pump; (b) transmittance of XFEL pulses incident on GaAs, Si_3N_4 and diamond film.

不稳定区间变化造成的误判. 由于 GaAs 本身能带较低, 在低于 800 eV 的软 X 射范围内门控开关并不稳定, 不利于到达时间的确定, 但对于 X 射线光子能量在 1000 eV 以上时, 探测激光的透射率变化稳定, 具有较好可用性. Si_3N_4 在软 X 射线区间透射率变化稳定, 但是当 X 射线光子能量超过 1.5 keV 时探测激光的透射率变化趋势减小, 效果减弱, 因此对于 1.5 keV 或更高能级的 X 射线, 50 nm 或更厚的金刚石薄膜是一个很好的选择, 它的透过率较为稳定, 而且导热性远超其余两种材料, 可以承受高频率的 X 射线脉冲轰击.

3.2 光谱编码的啁啾脉冲调制

啁啾脉冲调制是光谱编码得优势所在, 可以通过调制 SC 灵活控制诊断效果. SC 的宽谱光通常认为是由激光在介质中多种非线性效应的相互作用和竞争产生^[24]. 光谱增宽的主要过程归因于自相位调制、多光子电离、自聚焦和四波混频等因素^[25]. 宽谱脉冲通过群速度色散形成具有时间-波长映射特性的 SC 探测脉冲, 合适的色散介质成为调制 SC、时间窗口调节和诊断时间分辨率的关键. 根据蓝宝石产生的 400—1200 nm 连续谱的光谱特征, 选择其中稳定均匀的部分, 通常为 450—850 nm, 带宽在 50—200 nm. 重火石玻璃 SF11 和 SF57 长用作色散介质, 对于中心波长为 546.1 nm 附近的宽谱光, 两种玻璃的群速度色散系数分别为 $365.68 \text{ fs}^2/\text{mm}$ 和 $428.15 \text{ fs}^2/\text{mm}$. 为了方便研究最优入射脉宽, 引入临界脉宽 $T_c = 2\sqrt{\ln 2 \cdot |\varphi''|}$, φ'' 是群速度色散系数. 当入射脉宽 τ_{in} 接近临界脉宽时色散效果最为明显, 对于高斯脉冲, 两种玻璃的临界脉宽分别为 21.12 fs 和 22.85 fs. 展宽后的脉冲宽度 $\tau_{out} = \tau_{in}[1 + (T_c/\tau_{in})^4]^{1/2}$, 以 SF11 和 SF57 典型厚度为例, 对接近临界脉宽一定范围内的输入脉宽计算展宽结果 τ_{out} , 结果如图 6 所示.

通过图 6 可以看出, SF57 展宽能力要优于 SF11, 对于临界脉宽在 22 fs 附近的入射脉冲, 厚度是影响介质对脉冲展宽的主要因素. 但是输入脉宽一般很难压缩在临界脉宽附近, 且脉宽超出临界脉宽两倍达到 40 fs 时展宽会出现明显衰减, 当达到三倍临界脉宽时展宽变得十分微弱. 为了到达预计的 3 ps 理想诊断脉宽, 入射脉宽要尽可能压缩至临界脉宽, 那么 5 cm 的 SF11 基本可以满足 SC 形成需

求. 如果需要更宽的时间窗口则可以替换为更厚的 SF57 进一步展宽, 满足超出 3 ps 的需求.

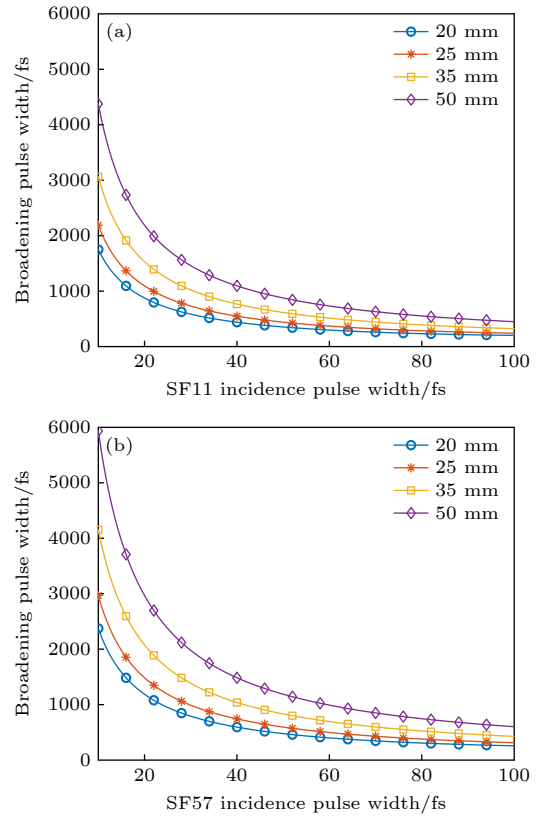


图 6 带宽为 450—650 nm 的超连续谱分别入射厚度为 20, 25, 35 和 50 mm 的色散玻璃时的脉宽调制 (a) SF11; (b) SF57

Fig. 6. Pulse width broadening of the probing laser with super-continuum bandwidth 450–650 nm, after transmitting the dispersive glass with thickness 20, 25, 35 and 50 mm: (a) SF11; (b) SF57.

到达时间的分辨率除了受脉宽约束, 还受 SC 的极限分辨率和光谱仪分辨率的约束, 而光谱仪的选择则要参考啁啾脉冲的分辨率极限. 以高斯型探测脉冲为例, 当脉冲经过群速度色散展宽至 3 ps 之后, 脉冲内时间分辨率为 $\sqrt{\tau_{FL} \cdot \tau_C}$, 其中 τ_{FL} 为傅里叶极限宽度, τ_C 为入射脉冲宽度, SC 本身的光谱分辨率极限 $\Delta\lambda = \Delta\lambda_{BW} \cdot \sqrt{\tau_{FL}/\tau_C}$, $\Delta\lambda_{BW}$ 是入射光波长范围. 根据蓝宝石产生的超连续谱滤光之后的范围, 选取 500 和 600 nm 两个中心波长, 以 80, 120 和 150 nm 的带宽为例, 计算 SC 的分辨率极限, 结果如图 7 所示.

从图 7 可以发现, 当脉宽超出 3 ps 后极限分辨率变化可以看作线性过程, 而脉宽小于 3 ps 时极限分辨率会随脉宽增加而非线性上升, 最高可到 3 nm 左右. 当超过 4 ps 时极限分辨率变化趋于

平缓, 所以将脉宽展宽至 3 ps 是一个较为理想的脉宽. 同时中心波长对极限分辨率的影响也不可忽略, 从图 7 可以看出, 500 nm 中心波长的极限分辨率明显优于 600 nm. SC 分辨率极限决定了光谱仪需求的最低分辨率, 也间接影响了最终的诊断分辨率. 另外可知更大的展宽也可以有效地提高分辨率极限, 但是受限于啁啾超连续谱生成介质的特点以及超连续谱的泵浦激光, 最终需要根据超连续谱的光谱特征选择其中平滑稳定的带宽范围.

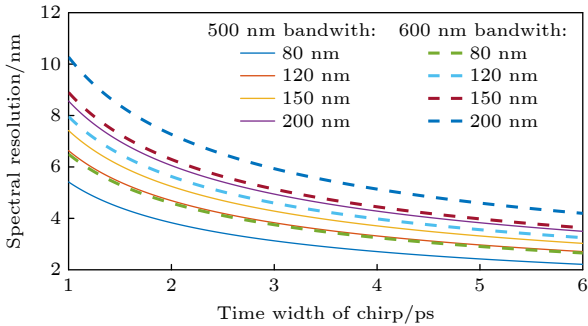


图 7 500 和 600 nm 中心波长下不同谱宽探测激光随脉冲长度展宽的分辨率极限

Fig. 7. Resolution limits of laser broadening with pulse length at 500 and 600 nm central wavelengths with different spectral widths.

4 分辨率影响因素和误差分析

单脉冲到达时间诊断的分辨率影响因素主要来自不同能量的 X 射线在样品中的吸收过程, 二次电子级联以及诊断方法本身. 样品在 X 射线泵浦下形成光学门控, 对于空间编码和光谱编码门控开关的效率是相同的, 但是当 X 射线脉冲光子能量高于 1 keV 时, 由于二次电子级联持续时间较长, 会影响突变位置的确定, 分辨率因此会限制在十几飞秒范围内, 所以只要 X 射线吸收过程近似线性, 并且 X 射线脉冲的持续时间长于二次电子级联时间, 门控开关就可以在脉冲持续时间内工作. 探测器上突变拐点的空间位置映射了 XFEL 脉冲与探测激光脉冲之间的时间延迟, 该位置与 XFEL 自然抖动无关, 因此 XFEL 波前到达时间对诊断的影响可以忽略不计. 综合来看诊断的误差主要来自两种诊断方式本身, 下面将分别分析两种编码方式的误差来源.

如图 1 中所示, 空间编码到达时间分辨率 $\delta\tau$ 受到最终探测器成像分辨率和探测激光持续时间的限制. 探测激光持续时间的不确定度为 ± 7 fs, 根

据 (7) 式的卷积积分中脉冲持续时间的影响可知, 探测激光在硬 X 射线到软 X 射线范围误差贡献 $\Delta\tau_{\text{laser}}$ 为 ± 7 fs— ± 16 fs. 探测器成像数据的误差贡献主要来自于数据点的统计波动, 数学模型中的假设以及等离子体折射率梯度偏差. 假定 X 射线以 45° 入射样品, 根据 (1) 式, 结合 CCD 像元 ($5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$) 和 X 射线光斑大小 ($1-10 \mu\text{m}$), 预估硬 X 射线到软 X 射线 ($15-0.2$ keV) 范围内误差 $\Delta\tau_{\text{data}}$ 为 ± 8 fs— ± 12 fs. 所以空间编码的总误差 $\Delta\tau = \sqrt{\Delta\tau_{\text{laser}}^2 + \Delta\tau_{\text{data}}^2}$ 预估为 10.25—20 fs.

相对于空间编码, 光谱编码具有更高的极限分辨率和良好的高频脉冲适应性, 可以通过更宽的 SC 和高分辨光谱仪进一步提高到达时间诊断的分辨率极限, 且几乎不受光谱外的其他因素影响, 误差主要来自不同像素单元的统计误差和 SC 光谱的不均匀分布. 这两方面的误差都可以通过拟合算法和像素校正来减小, 光谱编码的稳定性和适用性相对更好. 假设探测光谱带宽为 3 ps, 光谱仪分辨率为光谱傅里叶极限分辨率, 以 1000 pixel 探测区域为例, 可知最终分辨率约为 3 fs/pixel. 实际处理时需要引入固定的抖动, 通过多项式拟合校正到达时间敏感区域统计数据的单像素对应时间. SC 光谱的不均匀分布引入的误差源于啁啾脉冲调制过程中的非线性转化. 非线性来自连续谱通过光学介质时的非线性色散过程, 导致频域在光谱探测器上相邻像素之间产生了非线性时间映射. 这种非线性映射可以根据探测光谱和色散介质的特性, 对探测器进行逐像素纠偏或将到达时间拟合范围内对应波长的非线性时间加入拟合函数尾部纠正误差 [8]. 如图 8 所示, 为 SF11 和 SF57 玻璃在相邻波长间

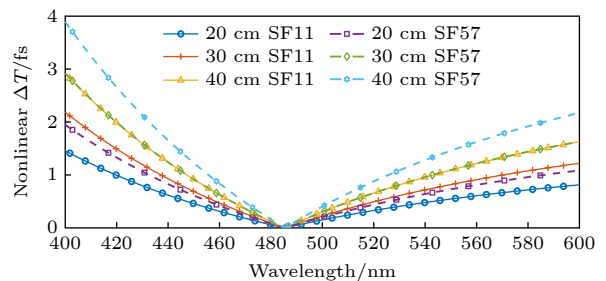


图 8 200 nm 谱宽的啁啾连续谱通过 SF11 玻璃的非线性展宽导致相邻波长之间的非线性时间差

Fig. 8. Nonlinear time difference between adjacent wavelengths due to nonlinear broadening of SF11 glass is shown for the chirp continuum spectrum with 200 nm spectrum width.

产生的时间非线性映射, 通过变化趋势发现中心波长附近非线性误差较为缓和, 在合理范围内选择波段可以从根源上减小非线性引起的误差, 另外太厚的色散介质也将不可避免的引入更大误差.

5 结 论

根据研究结果, 基于泵浦探测和光学互相光原理的 XFEL 脉冲到达时间诊断方式对于高重频 XFEL 脉冲可以达到小于 15 fs (RMS) 的诊断分辨率. 泵浦样品的选择是关系到门控开关和分辨率的决定性因素. 考虑对诊断后 X 射线脉冲的使用效率和高温对样品的损耗, 样品需要通过厚度控制来减少 X 射线的吸收, 不同种类的样品首先要考虑材料本身的吸收边, 之后根据吸收率考虑样品的厚度. 空间编码和光谱编码均可实现时间诊断, 但是光谱编码因为啁啾脉冲的可调制性, 具有更强的适应性和实现更高分辨率的可能性.

对高重频的 X 射线脉冲提高诊断分辨率以及单脉冲的诊断能力最有效的解决方案是增加光谱编码探测激光的脉宽, 最终的分辨率则取决于光谱仪的分辨率、探测器像素以及拟合算法对数据的处理. 高重频飞秒脉冲对于样品要求更高, 从初代半导体到二代半导体材料, 带宽的增加抑制了后续的电子级联发生的时间, 为飞秒级的诊断提供了可能. 但在硬 X 射线波段, 需要重新考虑材料的导热性和电子级联的影响, 以此为基础探索更适合的样品. 因为硬 X 射线引起的电子散射和深层遏歇衰变将对光学门控产生长时影响, 普通材料很难在硬 X 射线脉冲的轰击下保证门控的稳定性. 未来 X 射线诊断设备的发展也必将要面对高重频对样品的影响, 这将是 XFEL 到达时间诊断发展的重点和难点.

参考文献

- [1] Zhao Z T, Feng C 2018 *Physics* **47** 481 (in Chinese) [赵振堂, 冯超 2018 物理 **47** 481]
- [2] Bostedt C, Boutet S, Fritz D M, Huang Z, Lee H J, Lemke H T, Robert A, Schlotter W F, Turner J J, Williams G J 2016 *Rev. Mod. Phys.* **88** 18
- [3] Emma P, Akre R, Arthur J, et al. 2010 *Nat. Photonics* **4** 641
- [4] Harmand M, Coffee R, Bionta M R, Chollet M, French D, Zhu D, Fritz D M, Lemke H T, Medvedev N, Ziaja B, Toleikis S, Cammarata M 2013 *Nat. Photonics* **7** 215
- [5] Schulz S, Grguras I, Behrens C, Bromberger H, Costello J T, Czwalinna M K, Felber M, Hoffmann M C, Ilchen M, Liu H

- Y, Mazza T, Meyer M, Pfeiffer S, Predki P, Schefer S, Schmidt C, Wegner U, Schlarb H, Cavalieri A L 2015 *Nat. Commun* **6** 5938
- [6] Grychtol P, Rivas D E, Baumann T M, et al. 2021 *Opt. Express* **29** 37429
- [7] Sato T, Letrun R, Kirkwood H J, et al. 2020 *Optica* **7** 716
- [8] Nakajima K, Joti Y, Katayama T, Owada S, Togashi T, Abe T, Kameshima T, Okada K, Sugimoto T, Yamaga M, Hatsui T, Yabashi M 2018 *J. Synchrotron Radiat.* **25** 592
- [9] Dusterer S, Rehders M, Al-Shemmary A, et al. 2014 *Phys. Rev. Spec. Top. Accel. Beams* **17** 23545
- [10] Sanchez-Gonzalez A, Johnson A S, Fitzpatrick A, Hutchison C D M, Fare C, Cordon-Preciado V, Dorlhiac G, Ferreira J L, Morgan R M, Marangos J P, Owada S, Nakane T, Tanaka R, Tono K, Iwata S, van Thor J J 2017 *J. Appl. Phys.* **122** 203105
- [11] Hartmann N, Helml W, Galler A, Bionta M R, Grünert J, L. Molodtsov S, Ferguson K R, Schorb S, Swiggers M L, Carron S, Bostedt C, Castagna J C, Bozek J, Glowina J M, Kane D J, Fry A R, White W E, Hauri C P, Feurer T, Coffee R N 2014 *Nat. Photonics* **8** 706
- [12] Maltezopoulos T, Photonen D F M, Cunovic S, Wieland M, Drescher M 2008 *New J. Phys.* **10** 1218
- [13] Schorb S, Gorkhover T, Cryan J P, Glowina J M, Bionta M R, Coffee R N, Erk B, Boll R, Schmidt C, Rolles D, Rudenko A, Rouzee A, Swiggers M, Carron S, Castagna J C, Bozek J D, Messerschmidt M, Schlotter W F, Bostedt C 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 121107
- [14] Beye M, Krupin O, Hays G, Reid A H, Rupp D, Jong S d, Lee S, Lee W S, Chuang Y D, Coffee R, Cryan J P, Glowina J M, Föhlich A, Holmes M R, Fry A R, White W E, Bostedt C, Scherz A O, Durr H A, Schlotter W F 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 121108
- [15] Katayama T, Owada S, Togashi T, Ogawa K, Karvinen P, Vartiainen I, Eronen A, David C, Sato T, Nakajima K, Joti Y, Yumoto H, Ohashi H, Yabashi M 2016 *Struct. Dynam. - US* **3** 034301
- [16] Droste S, Zohar S, Shen L, White V E, Diaz-Jacobo E, Coffee R N, Reid A H, Tavella F, Minitti M P, Turner J J, Robinson J S, Fry A R, Coslovich G 2020 *Opt. Express* **28** 23545
- [17] Bionta M R, Lemke H T, Cryan J P, Glowina J M, Bostedt C, Cammarata M, Castagna J C, Ding Y, Fritz D M, Fry A R, Krzywinski J, Messerschmidt M, Schorb S, Swiggers M L, Coffee R N 2011 *Opt. Express* **19** 21855
- [18] Kirkwood H J, Letrun R, Tanikawa T, et al. 2019 *Opt. Lett.* **44** 1650
- [19] Diez M, Galler A, Schulz S, Boemer C, Coffee R N, Hartmann N, Heider R, Wagner M S, Helml W, Katayama T, Sato T, Sato T, Yabashi M, Bressler C 2021 *Sci. Rep.* **11** 3562
- [20] Owada S, Nakajima K, Togashi T, Katayama T, Yumoto H, Ohashi H, Yabashi M 2019 *J. Synchrotron Radiat.* **26** 887
- [21] Krupin O, Trigo M, Schlotter W F, et al. 2012 *Opt. Express* **20** 11396
- [22] Attwood D 1999 *Soft X-rays and Extreme Ultraviolet Radiation* (New York: Cambridge) pp98-122
- [23] Teubner U, Wagner U, Forster E 2001 *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* **34** 2993
- [24] Wang K, Qian L J, Luo H, Yuan P, Zhu H Y 2006 *Opt. Express* **14** 6366
- [25] Wang J, Zhang Y, Shen H, Jiang Y, Wang Z 2017 *Opt. Eng.* **56** 076107

Arrival time diagnosis method of high refrequency hard X-ray free electron laser^{*}

Zhang Shao-Jun¹⁾ Guo Zhi^{2)†} Cheng Jia-Min¹⁾

Wang Yong²⁾ Chen Jia-Hua²⁾ Liu Zhi^{1)‡}

1) (*School of Physical Science and Technology, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China*)

2) (*Shanghai Synchrotron Radiation Facility, Shanghai Advanced Research Institute,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China*)

(Received 22 December 2022; revised manuscript received 22 February 2023)

Abstract

X-ray free electron laser (XFEL) pulse time diagnosis technology is often used to detect the relative arrival time of XFEL pulse and auxiliary laser near the experimental station. It is an important auxiliary technology and provides a reference signal for the pump-probe pulse in the XFEL laser pump-probe experiment. With the development of XFEL towards high repetition frequency and short pulse, higher requirements are put forward for diagnostic frequency, pump sample and resolution in time diagnosis. The technology is realized by the pump-probe method and optical cross-correlation method. When the XFEL pulse is incident on the high-bandwidth semiconductor solid target instantaneously, the complex refractive index of the solid target will change, then the arrival time of XFEL will be encoded in the mutation space. In this work, we design an XFEL pulse arrival time diagnostic device based on two methods: spatial coding and spectral coding. In this framework, the interaction between X-ray and solid target is explored by Beer's absorption theory and atomic scattering theory. Therefore, the response to X-ray absorption and refractive index in this process are investigated, and the solid target selection model is developed. This model is used to analyze the influence of solid target type and thickness in diagnosis, while avoiding situations where the sample is too hot due to a lot X-ray absorption. Moreover, the influence of hard X-ray on sample temperature at high frequency is considered, and the samples suitable for different X-ray bands are given. The chirped pulse modulation in spectral coding is analyzed, and the influence of dispersion medium and pulse parameters on the diagnostic resolution of spectral coding are obtained. Finally, the error effects of X-ray, spatial coding and spectral coding on the results are analyzed, and the analysis methods and consideration factors of the two coding methods are given. This work is of great significance in using the XFEL pulse arrival time diagnostic device.

Keywords: time diagnosis, optical cross correlation, X-ray free electron laser, pump probe

PACS: 52.70.La, 52.59.Px, 07.85.Fv, 41.50.+h

DOI: 10.7498/aps.72.20222424

^{*} Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2022YFB3503904) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12075304).

[†] Corresponding author. E-mail: guoz@sari.ac.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: liuzhi@shanghaitech.edu.cn



高重频硬X射线自由电子激光脉冲到达时间诊断方法研究

张少军 郭智 成加皿 王勇 陈家华 刘志

Arrival time diagnosis method of high frequency hard X-ray free electron laser

Zhang Shao-Jun Guo Zhi Cheng Jia-Min Wang Yong Chen Jia-Hua Liu Zhi

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 105203 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222424

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222424>

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

强场X射线激光物理

High field X-ray laser physics

物理学报. 2021, 70(8): 084101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210096>

上海光源硬X射线相干衍射成像实验方法初探

Preliminary exploration of hard X-ray coherent diffraction imaging method at SSRF

物理学报. 2020, 69(3): 034102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191586>