

光学学报

光学元件污染对 X 射线自由电子激光光束质量的影响

佟亚军^{1*}, 刘芳¹, 范家东¹, 金利民², 董晓浩², 余小江³, 江怀东¹, 刘志¹

¹上海科技大学大科学中心, 上海 201210;

²中国科学院上海高等研究院上海光源中心, 上海 201204;

³新加坡国立大学新加坡同步加速器光源中心, 新加坡 新加坡 117603

摘要 光学元件污染对 X 射线传输有很大的影响, 尤其是高亮度、高相干 X 射线自由电子激光的传输。然而, 目前针对 X 射线自由电子激光光学元件污染问题的相关研究非常少。首先, 给出了 X 射线自由电子激光的特性。然后, 总结了同步辐射中碳污染问题的影响、控制和清洁方案。接着, 分析了在 X 射线自由电子激光光束线中碳污染对光束品质影响的特殊之处。最后, 分析了颗粒污染在 X 射线自由电子激光光束线中可能发生的损伤、熔化和遮挡三种情况对光束品质的影响。

关键词 X 射线光学; X 射线自由电子激光; 光束线; 相干光; 碳污染; 颗粒污染

中图分类号 O434

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS202242.1134006

Effect of Optics Contamination on X-ray Free-Electron Laser Beam Quality

Tong Yajun¹, Liu Fang¹, Fan Jiadong¹, Jin Limin², Dong Xiaohao², Yu Xiaojiang³, Jiang Huaidong¹, Liu Zhi¹

¹Center for Transformative Science, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China;

²Shanghai Synchrotron Radiation Facility, Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China;

³Singapore Synchrotron Light Source, National University of Singapore, Singapore 117603, Singapore

Abstract Optics contamination has a great impact on X-ray transportation, especially in high-brightness, high-coherence X-ray free-electron lasers. However, there are very few related studies on the optics contamination of X-ray free-electron lasers. First, the characteristics of the X-ray free-electron laser are given. Then, the effects, control, and cleaning schemes of carbon contamination in synchrotron radiation are summarized. Moreover, the special effects of carbon contamination on the beam quality in X-ray free-electron laser beamlines are analyzed. Finally, the damage, melting, and blocking that particle contamination may occur on X-ray free-electron laser mirrors are analyzed, and the effects of the three conditions on the beam quality are given.

Key words X-ray optics; X-ray free-electron laser; beamline; coherent beam; carbon contamination; particle contamination

1 引言

X 射线自由电子激光 (XFEL) 具有高亮度、高

相干性和超短脉冲的特性, 这些特性为科学研究提供了前所未有的探测手段^[1-2]。因此, 近 20 年内世界上先后建成了 7 台 XFEL 装置, 分别是位于德国

收稿日期: 2022-04-02; 修回日期: 2022-04-26; 录用日期: 2022-05-06

基金项目: 国家重点研发计划(2017YFA0504802)、上海市科技创新行动计划(19142202800)、上海市科技重大专项资助课题(2017SHZDZX02)

通信作者: *tongyj@shanghaitech.edu.cn

的 FLASH、位于意大利的 Fermi、位于美国的 LCLS、位于日本的 SACLA、位于韩国的 PAL-XFEL、位于德国的 European-XFEL 和位于瑞士的 Swiss-FEL。另外,还有正在建设的美国的 LCLS-II 和中国的 SHINE(上海硬 X 射线自由电子激光),以及即将开放运行的 SXFEL(上海软 X 射线自由电子激光)。从波段角度来看,FLASH、Fermi 和 SXFEL 是从紫外到软 X 射线波段的装置,其余的为硬 X 射线自由电子激光。从重复频率角度来看,European-XFEL、LCLS-II 和 SHINE 是高重复频率 X 射线自由电子激光。XFEL 的优异特性给光束传输系统的建设提出了极大的挑战。首先是高亮度带来的损伤问题,XFEL 单个脉冲的能量可以达到毫焦量级,这种情况下单个脉冲就可以引起光学元件的损伤。为了解决这个问题,会选择损伤阈值高的镀层,同时光束线的光学元件普遍放置在远离光源点的位置,进而降低光学元件上的峰值功率密度,以进一步避免单脉冲和多脉冲引起的损伤问题。其次是相干光波前保持问题,高相干光的传输要求波前保持以充分利用 XFEL 的高亮度、高相干性的特点。这对光学元件的加工、夹持和冷却都提出了很高的要求。在上述问题的前提下,需要考虑一个非常重要的会引起上述问题的因素,那就是光学元件的污染问题,污染问题会直接造成光学元件损伤,引起波前畸变,导致相干度和通量的降低。光学元件的污染问题在高功率激光的传输中非常重要,尤其是颗粒污染对光学元件损伤阈值和激光传输的影响^[3-10]。在同步辐射的传输中光学元件的污染问题也不可忽视。特别是,软 X 射线光束传输中光学元件的碳污染是一直存在且没有解决的问题。在同步辐射的光束线建设过程中通常会通过提高真空度、等离子体抛光、引出电流和加入洁净的屏蔽罩等方法降低碳污染的速度,在运行过程中还会利用在线清洁方式去除碳污染。在同步辐射中通常提到的碳污染影响包括:碳边附近的通量损失;在 800~1600 eV 能量范围内的反射率振荡和散射损失。XFEL 是 X 射线波段的激光,因此它兼具常规激光和同步辐射 X 射线的双重特性,但由于 XFEL 仅仅发展了十几年,特别是高重复频率 XFEL 的发展才刚刚起步,故 XFEL 光束传输中的污染问题还没有得到充分研究。例如,碳污染在 XFEL 的相干光传输中引起的问题会更加广泛和严重。在同步辐射中没有提及的颗粒污染,在 XFEL 中类似于常规激光会有非常严重的影响。当 XFEL 的光学元件暴露

在大气中时会有灰尘污染、人源污染,在真空腔中会有金属颗粒随高速气流落在镜面而产生的污染。这样的颗粒在光束传输中会对波前带来非常严重的影响。首先,本文给出了 XFEL 的特点和对光学元件的需求,并总结了同步辐射光束线中的碳污染问题和清洁方法。然后,从 XFEL 特点和需求出发给出了光学元件污染对 XFEL 光束传输的影响分析和可能的解决方案。

2 XFEL 的特点及对光学元件的要求

XFEL 具有高亮度的特点,如图 1 所示,它的亮度是第三代同步辐射光源亮度的 $10^8 \sim 10^{10}$ 倍。单脉冲的光子数可以达到 $10^{10} \sim 10^{12}$,而兆赫兹高重复频率的 XFEL 每秒的光子数还要再提高 6 个量级,此时 XFEL 的通量比同步辐射白光通量还要高。XFEL 具有高相干性的特点,通常自放大自发辐射(SASE)模式的 XFEL 在软 X 射线波段的空间相干性可以达到 80% 以上,在硬 X 射线波段中可以达到 50% 以上^[11]。XFEL 具有超短脉冲的特点,脉冲长度小于 100 fs,目前正在向阿秒尺度发展。此外,XFEL 除了具有上面的特性外还有高准直性的特点,以 SHINE 的光源为例,在 0.2~25.0 keV 能量范围内的半峰全宽发散角仅为 1.3~28.0 μrad ,此时即使光学元件在 200 m 位置处,光斑的半峰全宽尺寸也仅有 0.26~5.60 mm。

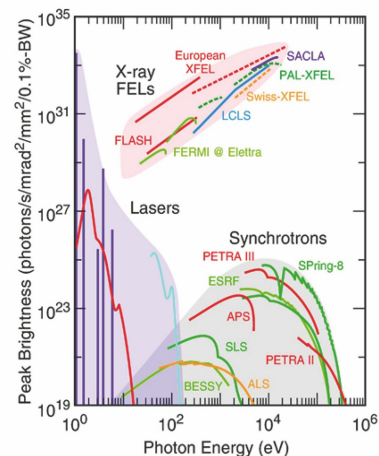


图 1 不同光源的亮度对比^[12]

Fig. 1 Brightness comparison of different light sources^[12]

XFEL 需要通过接近完美的光学系统传输到实验站,这样才能充分发挥它的特性。在 XFEL 光束线中通常使用斯特列尔比来定义光束传输系统的质量,斯特列尔比定义为聚焦后在焦点位置处的实际峰值功率密度与理想情况下峰值功率密度的比值,

其表达式为

$$S_R = |\langle \exp(i\phi) \rangle|^2 = |\langle \exp(i2\pi\tau/\lambda) \rangle|^2, \quad (1)$$

式中: $\phi = 2\pi\tau/\lambda$ 是在波长为 λ 时, 孔径内的相位误差; τ 是孔径内的光程误差; $\langle \cdot \rangle$ 表示加权平均。 S_R 也可以由相位误差 ϕ 的统计结果来表示^[13], 即

$$S_R \approx \exp(-\sigma^2) \approx 1 - \sigma^2, \quad (2)$$

式中: σ 是相位误差 ϕ 的均方根(RMS)值, 其表达式为

$$\sigma^2 = \sum_i \sigma_i^2, \quad (3)$$

式中: σ_i 是第 i 个光学元件引入的相位误差, 对于反射式光学元件, 其表达式为

$$\sigma_i = 2\pi \times 2h_i \times \sin \theta_i / \lambda, \quad (4)$$

式中: h_i 为第 i 个元件的高度误差的均方根值; θ_i 为掠入射角。由式(2)~(4)可以推导出 S_R 的表达式^[14-15], 即

$$S_R = 1 - \sum_i (2\pi \times 2h_i \times \sin \theta_i / \lambda)^2, \quad (5)$$

进而可以推导出

$$h_i = \frac{\lambda \sqrt{1 - S_R}}{2\pi \times 2 \times \sin \theta_i \times \sqrt{N}}, \quad (6)$$

式中: N 为光学元件数量。当要求 $S_R > 0.80$ 时, 光束的波前均方根误差需要小于 $\lambda/14$ (RMS), 则要求每个光学元件的高度误差为

$$h_i \approx \frac{\lambda}{14 \times 2 \times \sin \theta_i \times \sqrt{N}}, \quad (7)$$

以光学元件数量 N 为 6, 能量为 7 keV, 也就是波长 λ 为 0.177 nm, 掠入射角 θ_i 为 4 mrad 计算, 光学元件的高度误差要求小于 0.68 nm (RMS), 这是接近于理想的光学元件才可以实现的。目前, 从光学元件加工的角度可以达到 0.5 nm (RMS), 但是考虑到夹持、冷却等, 目前技术难以达到这样的要求。

由于 XFEL 的高亮度特性, 故需要使用耐损伤镀层, 常用的镀层有 B_4C 、 C 和 SiC 等, 这类镀层的全反射角比金属镀层小, 反射率比金属镀层高, 这是与大部分同步辐射光束线中显著不同的。在实验站附近已经远离光源点时, 也可以使用高熔点的金属镀层如 Ru ^[16], 增大掠入射角, 降低光学元件的长度需求。综合以上的因素, XFEL 的光束线普遍较长, 光学元件的精度要求和长度要求都达到了目前技术水平的上限。

3 光学元件污染及影响

第 2 节提到了 XFEL 对光学元件的极限要求,

即使从加工、夹持和冷却等角度实现了上述要求, 还不能保证 XFEL 高品质的传输, 还要考虑一个非常重要的因素, 即光学元件污染。光学元件污染会在光束线安装和运行过程中降低光学元件的面形精度。在 XFEL 光束线中污染可以分为两种, 一种是碳污染, 另一种是颗粒污染, 下面详细分析一下两种污染对光学元件的影响和对 XFEL 光束质量的影响。

3.1 碳污染

碳污染是同步辐射中极紫外(EUV)到软 X 射线波段光束线中普遍存在的问题, 一直都没有被完全解决。在光束线中即使真空度达到 1×10^{-8} Pa 量级以上, 在运行一段时间后也会发现碳污染, 这方面的研究非常多。碳污染是吸附解离碳氢分子造成的, 会因为残余气压、光子能量和剂量等的不同而产生类石墨或类金刚石结构^[17]。在同步辐射软 X 光束线中碳污染^[18]的影响(以下反射率曲线通过 CXRO 网站计算)有三方面:

1) 碳边吸收会在碳边 280 eV 能量附近产生严重的通量损失, 如图 2(a) 所示。可以看出, 反射率在 280 eV 能量附近降低至 10% 以下;

2) 碳污染层的密度通常在 $1.8 \sim 2.0$ g/cm³ 范围内^[19-20], 在 800 eV 能量以后光学元件金属镀层的反射和碳污染层会造成反射率振荡。当碳污染层密度为 1.8 g/cm³, 粗糙度(r)为 0.3 nm (RMS) 时, 不同厚度和不同掠入射角下造成的反射率振荡情况如图 2(a) 所示。可以看出, 当反射率振荡, 甚至其影响超过碳边吸收的影响时, 反射率严重下降;

3) 表面粗糙度变差也会引起反射率下降, 如图 2(b) 所示。可以看出, 相对前两种影响, 表面粗糙度对反射率影响较小。

在同步辐射的硬 X 射线波段中镜面也会产生明显碳污染, 但是相关研究极少, 这主要是因为同步辐射光束线中, 硬 X 射线波段的反射率受到污染的影响相对较小^[21]。图 3(a)、(b) 分别是当镜子使用 Ru 镀层, 掠入射角为 4 mrad 时, 不同厚度的碳污染层和同一厚度不同粗糙度的碳污染层在硬 X 射线波段的反射率曲线。在低能端(7000 eV 以下)时(由密度和掠入射角决定), 碳被当作反射层, 故反射率有所提高。在 20~50 nm 厚碳污染层情况下, 7000~15000 eV 能量范围内的反射率在 75%~95% 范围内振荡, 但相对软 X 射线影响较小。从图 3(b) 可以看出, 在这种情况下粗糙度对反射率的影响较小。

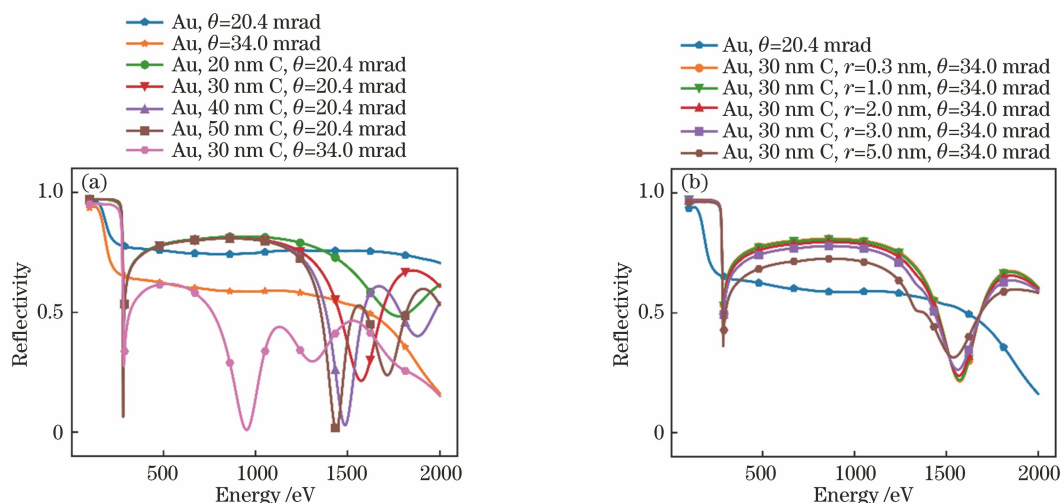


图 2 碳污染在软 X 射线波段中的影响。(a)不同碳污染厚度、不同掠入射角下的反射率曲线；
(b)不同粗糙度的碳污染情况下的反射率曲线

Fig. 2 Effect of carbon contamination in soft X-ray range. (a) Reflectivity curves under different carbon contamination thicknesses and grazing angles; (b) reflectivity curves of carbon contamination with different roughness

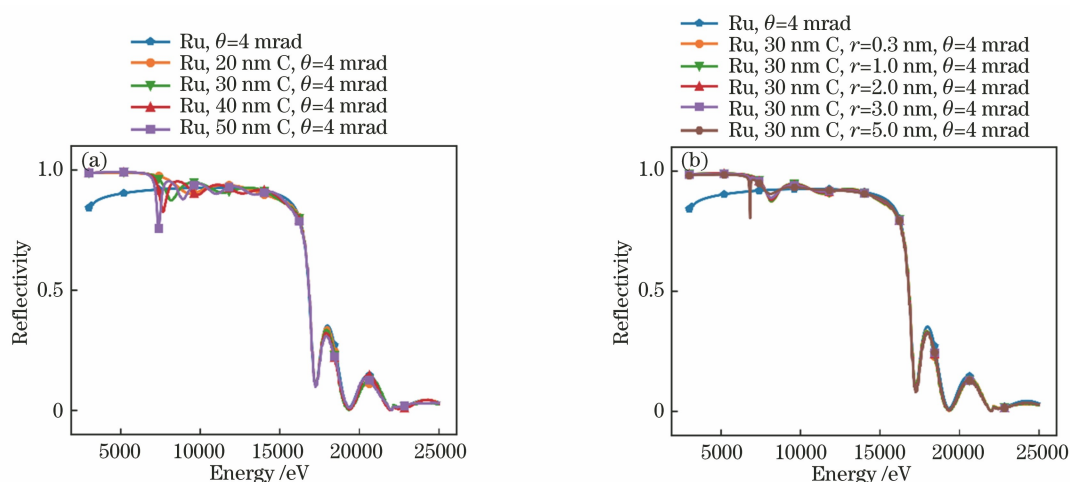


图 3 碳污染在硬 X 射线波段中的影响。(a)不同碳污染厚度下的反射率曲线；(b)不同粗糙度的碳污染情况下的反射率曲线
Fig. 3 Effect of carbon contamination in hard X-ray range. (a) Reflectivity curves under different carbon contamination thicknesses; (b) reflectivity curves of carbon contamination with different roughness

在 XFEL 光束线中,如第 2 节所述,镀层以低原子序数镀层为主,部分采用高原子序数镀层。因此,碳污染的影响可以分为低原子序数和高原子序数镀层两种情况。

首先是光学元件使用低原子序数镀层,例如 B_4C 镀层,这种情况下镀层与碳污染层的密度差异相对较小。按照 B_4C 密度为 2.52 g/cm^3 ,碳污染层密度为 1.8 g/cm^3 ^[19-20],图 4 给出了在软 X 射线波段和硬 X 射线波段中, B_4C 镀层与碳污染层在相同掠入射角下的反射率曲线。可以看出,两者的截止能量接近,此时在主要能量范围内当污染层达到一定的厚度时反射率调制现象较弱。在自由电子激光

中 B_4C 不能工作在碳边,故不需要考虑碳边吸收问题。此时,重点考虑的是粗糙度和面形变差对光束质量的影响。从美国 LCLS 的相关研究测试结果^[22-24]可以知道,碳污染会因为光束强度的高斯分布而引起照射范围内产生不同厚度的碳污染。图 5 是 LCLS AMO 实验站的 Kirkpatrick-Baez(KB)镜在运行了 9 个月后碳污染的情况,有 $15 \sim 38 \text{ nm}$ 厚的碳污染,污染的形状与光斑强度分布形状相同,这是指低频的高度误差变化。德国 FLASH^[25] 的研究测试结果表明在紫外到软 X 射线波段中当掠入射角在 3° 时会产生 $30 \sim 40 \text{ nm}$ 直径的碳纳米点,如图 6 所示,其余区域的粗糙度在 1.2 nm (RMS)左右。

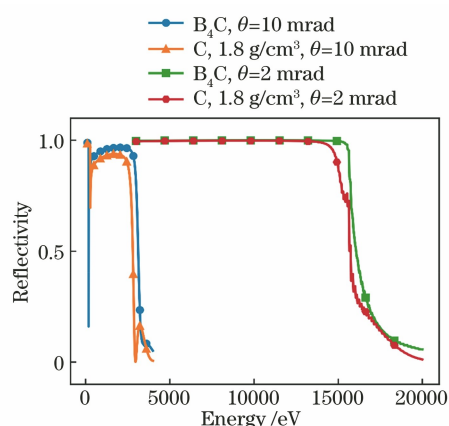


图 4 在软 X 射线波段和硬 X 射线波段中, B_4C 镀层与碳污染层在相同掠入射角下的反射率曲线
Fig. 4 Reflectivity curves of B_4C coating layer and carbon contamination layer at same grazing angle in soft X-ray band and hard X-ray range

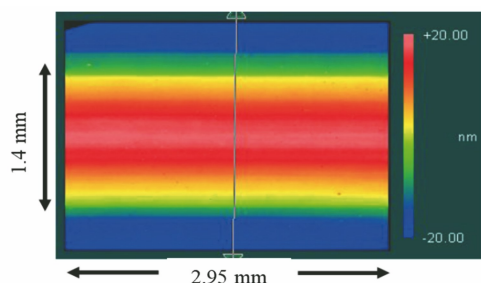


图 5 LCLS AMO 实验站 KB 镜碳污染情况^[24]
Fig. 5 Carbon contamination of KB mirror at LCLS AMO end station^[24]

这种纳米点在掠入射角小到 $1^\circ \sim 2^\circ$ 时就不会产生。

在 XFEL 光束线中关于碳污染的研究仅限于上述信息。从同步辐射的碳污染研究中可以看到, 碳污染产生的粗糙度可以达到 5 nm (RMS) 以上。

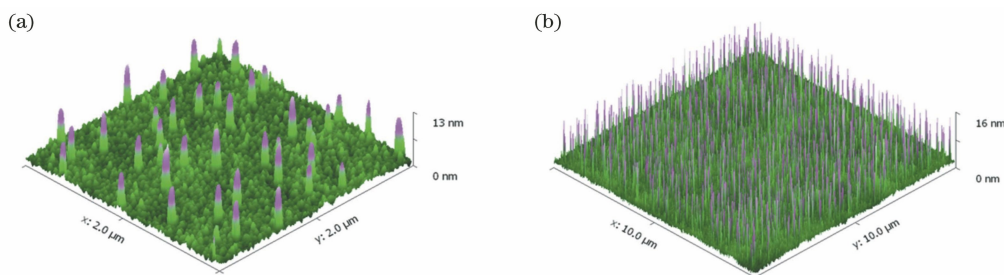


图 6 FLASH 的光学元件因自由电子激光照射产生的纳米点的原子力显微镜扫描图^[25]。
(a) 扫描区域大小为 $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$; (b) 扫描区域大小为 $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$
Fig. 6 Atomic force microscope scanning images of nanodots generated by FLASH optics irradiated by free-electron laser^[25]. (a) Scanning area size is $2 \mu\text{m} \times 2 \mu\text{m}$; (b) scanning area size is $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$

其次是高原子序数镀层, 比如 Ni、Rh 等, 这类镀层的影响与同步辐射光束线类似, 存在碳边吸收、

图 7 为 B_4C 的碳污染层在掠入射角为 2 mrad 和 10 mrad 时, 在硬 X 射线和软 X 射线波段中不同粗糙度的反射率曲线, 其中碳污染层的密度按照 1.8 g/cm^3 计算。可以看出, 粗糙度对反射率的影响不大, 需要指出的是反射率的影响与污染层实际密度相关, XFEL 中的碳污染层密度没有相关报道。文献[26]中指出粗糙度会成倍增加 X 射线的吸收, 同样散射损失也是如此。这样粗糙度一方面会增加光学元件的热负载, 另一方面会增加光束周围的散射背景。粗糙度是光学元件面形的高频部分。从 LCLS 的结果来看, 碳污染会产生低频的高度误差, 导致严重的波前畸变, 影响焦点处的亮度, 即 S_R 下降。Reddy 等^[27]指出 LCLS AMO 实验站因碳污染问题直接导致焦点处的通量密度仅为理论值的 1/10, 这是碳污染带来的粗糙度引起的反射率下降和光学元件面形变差引起波前畸变造成的。图 8 为在 SHINE 的 FEL-I 和 FEL-II 的两个工作状态下, 光学元件为 4 块时 S_R 随高度误差的变化曲线。从结果中可以看出: 当光子能量为 7 keV, 掠入射角为 4 mrad 时, 2 nm 的高度误差使 S_R 降低到 0.27, 5 nm 高度误差会使 S_R 有三个量级以上的降低; 当光子能量为 1.5 keV, 掠入射角为 10 mrad 时, 2 nm 的高度误差使 S_R 降低到 0.69, 5 nm 高度误差会使 S_R 降低一个量级。这个计算结果与 LCLS 的实际情况是符合的。 S_R 的降低和光斑尺寸的变大是比较宏观的影响。表面质量的变差还会引起聚焦光斑周围的散射背景和旁瓣峰增强, 这对一些实验是不可接受的。例如, 对于相干衍射实验, 当旁瓣峰强到可以损伤焦点前的清洁狭缝时, 就会对实验造成严重的影响。

反射率振荡、散射损失和吸收增加问题。不同的是, 如低原子序数镀层一样, 需要考虑 S_R 的下降, 因此

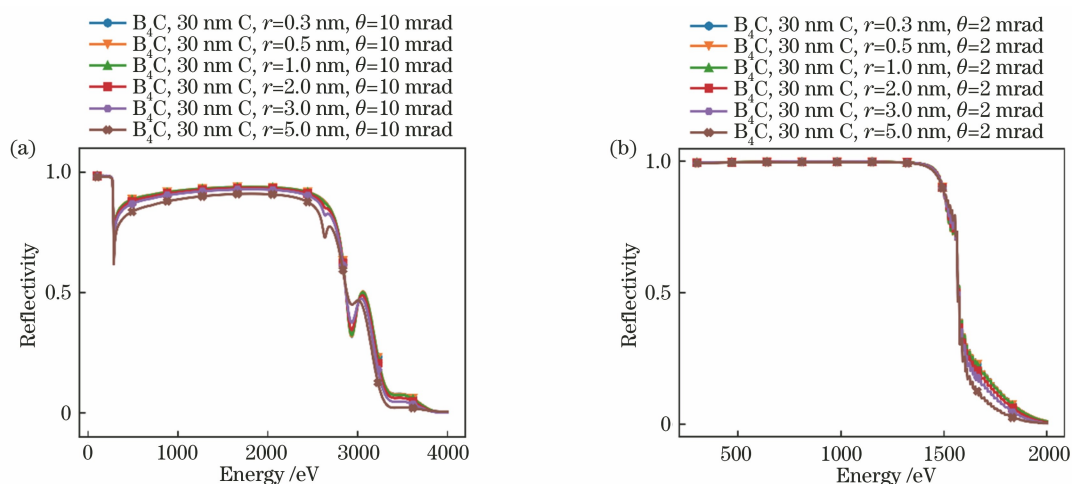


图 7 在硬 X 射线波段和软 X 射线波段中不同粗糙度情况下 B₄C 的碳污染反射率曲线。(a)硬 X 射线波段;(b)软 X 射线波段
Fig. 7 Reflectivity curves of carbon contamination of B₄C under different roughness in hard X-ray range and soft X-ray range. (a) Hard X-ray range; (b) soft X-ray range

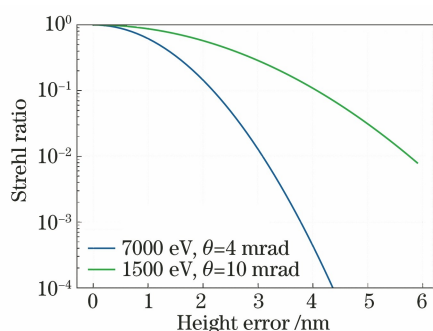


图 8 S_R 随高度误差的变化曲线
Fig. 8 S_R varying with height error

这里不再赘述。

综上所述,相比同步辐射光束线,在 XFEL 的光束线上的光学元件不论是高原子序数镀层还是低原子序数镀层,碳污染的影响除了要考虑同步辐射类似的问题外,重点要考虑碳污染对散射背景和 S_R 的影响,尤其是考虑的能量范围应从软 X 射线波段扩展到硬 X 射线波段中。高重复频率的 XFEL 更是把碳污染的速度提高了 3~4 个量级。当实验方法的需求为峰值亮度时,碳污染的影响就更加突出。对于高重复频率的 XFEL,碳污染会引起 X 射线吸收增加,造成光学元件热负载成倍增加。此时,一方面可能会损坏光学元件,另一方面可能会因热负载而增加光学元件的面形误差。由于还没有真正运行的高重复频率、高热负载 XFEL,进而没有这方面的研究。

关于碳污染的控制与清洁有许多相关的研究^[17, 28-43],但还没有完全解决问题。从控制的角度来看,包括提高真空度、控制残余气体种类、使用低

污染的腔体材料和光学元件附近遮挡等^[38-39]。从光学元件在线清洁的角度来看,包括射频等离子体、紫外光照射和零级光照射等清洁方法^[17, 40-41],用于清洁 Pt、Au 和 Rh 等镀层上的碳污染。然而,对于 Ni 这种活性较高的镀层材料无法使用射频等离子体的方法,故 Heya 等^[42-43]采用原子氢退火的方法来清洁 Ni 镀层表面的碳污染。

在 XFEL 光束线中,镀层是 B₄C、C、SiC,采用与金属镀层同样的清洁条件会对这类镀层产生破坏。CELLS-ALBA 光源 Moreno 等^[22]对 B₄C 的污染清洁进行了深入的研究,采用了纯 O₂ 产生射频等离子体的方法,相比采用 O₂/Ar 和 H₂/Ar 气体更适合 B₄C 的清洁,清洁速度合理并且对 B₄C 镀层没有明显破坏。虽然 LCLS 在刚运行时就发现了碳污染问题,但是直到 2020 年,Stefana 等^[23]才基于 CELLS-ALBA 方案对 AMO 实验站的 KB 聚焦镜进行了在线清洁,并对反射率进行了测试,结果如表 1 所示。结果表明,反射率提升明显,尤其是 1560 eV 能量处的反射率提升了 167%。

表 1 LCLS AMO 实验站 KB 镜清洁后反射率提升结果^[23]

Table 1 Reflectivity improvement results of KB mirror after cleaning at LCLS AMO end station^[23]

Photon energy /eV	350	550	1000	1560
Reflectivity improvement /%	51	19	77	167

3.2 颗粒污染

颗粒污染在强激光领域中已经得到了充分考虑^[3-10]。由于 XFEL 同样是强激光,故可以借鉴强激光领域的相关研究结果,如产生散射、发生熔融和等离子体等过程。然而,在 XFEL 领域中的要求要

更加特殊。从第 2 节中也可以看出, XFEL 的发散角小, 传输过程中光束尺寸都比较小。由于整个光路系统是在真空中的, 因此通常光路中不会出现颗粒, 进而主要关注光学元件上的颗粒污染。颗粒污染的影响非常明显, 包括颗粒衍射引起的散斑和附带的通量损失、颗粒引起的光学元件破坏等。下面针对这些影响进行详细分析。

当 XFEL 脉冲入射到颗粒上时, 可能会发生单脉冲损伤, 这也就意味着颗粒会直接发生离子化。这个过程虽然会因为颗粒离子化而消失, 但是离子化的过程可能会导致镀层损伤, 并且会有材料沉积在光学元件表面。由离子化而产生的镀层损伤会引

起连锁反应导致光学元件的破坏区域不断扩大, 而材料沉积会造成表面粗糙度变差。下面采用 SHINE 的参数来分析不同材料在 XFEL 光束线中是否会发生单脉冲损伤, 参数如表 2 所示。图 9 计算了不同材料 (B_4C 、 SiO_2 、 Si 、 Fe 、 Cu 、 Al) 的吸收剂量和单脉冲损伤的阈值。从结果可以看出: 对于 Cu 和 Fe 在 $400\sim 4000$ eV 能量范围内极易发生单脉冲损伤; Si 和 Al 在 2000 eV 能量附近会发生单脉冲损伤; 在 4000 eV 以上不会发生单脉冲损伤。因此, 从损伤角度来看, 金属颗粒容易发生损伤, 并且它沉积在镜面时更容易散射 X 射线。

表 2 单脉冲损伤计算中采用的光源参数

Table 2 Source parameters used in single-pulse damage calculation

Energy /keV	0.2	0.4	0.9	2.0	3.0	7.0	12.4	15.0	20.0	25.0
Divergence / μ rad	28.2	14.7	11.6	6.3	4.5	2.5	1.7	1.3	1.3	1.3
Pulse energy /mJ	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	0.5	0.5	0.3	0.3
Position /m	150	150	150	150	150	228	228	228	270	270

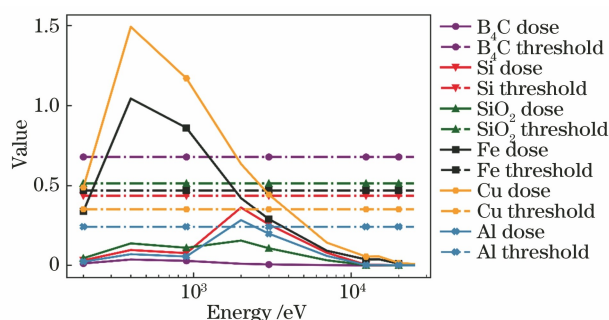


图 9 不同材料颗粒的损伤阈值和吸收剂量
Fig. 9 Damage threshold and absorbed dose of different material particles

在高重复频率 XFEL 的光束线中, 即使不发生单脉冲损伤, 颗粒与光学元件表面之间导热差所引起的升温也可能造成颗粒发生熔化。图 10(a) 为 FEL 正入射情况下, 当重复频率为 1 MHz 时, 不同

材料颗粒中单位体积的吸收功率。可以发现, 吸收功率密度非常高。假设颗粒为边长是 $50\ \mu\text{m}$ 的立方体, 与镜面的接触面积为立方体单个面面积的 $1/4$, 界面热传导率为 $3000\ \text{W}/(\text{m}^2 \cdot ^\circ\text{C})$, 重复频率为 $10\ \text{kHz}$ (因为 $10\ \text{kHz}$ 以上的温度计算结果远超熔点, 所以选取了 $10\ \text{kHz}$ 来计算, 此时的功率密度是 $1\ \text{MHz}$ 时的 $1/100$), 此时根据热传导和热辐射原理计算出的不同材料颗粒在不同光子能量下的温度如 10(b) 所示。计算结果表明, 即使在 $10\ \text{kHz}$ 重复频率下, 所有材料也会达到熔点。实际过程非常复杂, 比如随着材料的熔化, 材料与镀层的接触会逐渐变好, 进而改变热传导率, 同时吸收热负载会因为形状的变化而减小, 最终材料会停止熔化。然而, 这也意味着熔化后的物质会破坏光学表面, 引起波前畸变, 影响光束的传输。

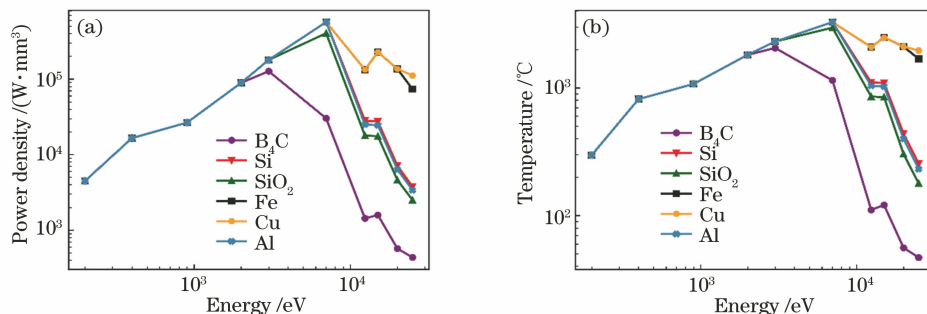


图 10 不同材料颗粒污染下熔化情况分析。(a) $1\ \text{MHz}$ 下的体功率密度; (b) $10\ \text{kHz}$ 下的温度
Fig. 10 Analysis of melting situation of different material particle contamination. (a) Power density at $1\ \text{MHz}$; (b) temperature at $10\ \text{kHz}$

在低重复频率 X 射线自由电子激光中,颗粒可能既不发生单脉冲损伤也不会发生熔化,它会成为光路中的遮挡物。如图 11 所示,在掠入射的情况下,不同形状的颗粒会产生不同的遮挡效果:一个球状颗粒可以近似认为会在光路中出现两倍的截面积遮挡光束的效果;一个片状颗粒则会根据其三维尺寸产生相应的遮挡效果;在软 X 射线波段中微米级的颗粒会将照射的光束几乎全部吸收,在硬 X 射线波段中可以将颗粒当作一个相位物体。其中, D 为颗粒的直径, W 为颗粒在光学元件表面上的遮挡宽度, L 为颗粒在光学元件表面上的遮挡宽度。图 12(a)展示了当一个半峰全宽为 $250\ \mu\text{m}$ 的高斯光束被直径为 $50\ \mu\text{m}$ 的单个球状颗粒遮挡的效果。图 12(b)为不同颗粒尺寸在中心附近遮挡高斯光束后透过率的变化。对于高能端,颗粒的遮挡引起的通量损失是非常明显的。图 13 是直径为 $50\ \mu\text{m}$ 的球状颗粒经过 $100\ \text{m}$ 传输聚焦后的结果模拟。此

处的模拟是利用开源的自由电子激光光束传输模块 WPG^[44-45] 来编写 python 脚本实现的, WPG 是欧洲自由电子激光 Liubov 等基于欧洲同步辐射的 SRW 模块改编而成的。模拟条件为采用 SHINE 的 FEL-I 光束线, 能量在 $7000\ \text{eV}$ 下, 发散角为 $2.5\ \mu\text{rad}$, 光学元件在 $230\ \text{m}$ 位置处, 颗粒在光学元件中心, 并当作遮挡处理。结果表明, 光学元件上单个直径为 $50\ \mu\text{m}$ 的颗粒就会对波前产生严重的调制。此外, 这些颗粒会在光束中形成散斑, 在传输一定距离时散斑会产生衍射增强效果。如图 14 所示, 同样是在上述条件下模拟, 直径为 $50\ \mu\text{m}$ 的球状颗粒经过 $3.5\ \text{m}$ 传输聚焦后, 峰值功率密度会增加一倍。如果在增强的位置存在光学元件或诊断元件, 就可能会造成原本安全的器件发生单脉冲损伤。需要指出的是, 当光束传输到颗粒处产生的艾里斑大于光束尺寸时, 主光束波前会恢复, 此时会观察到因衍射而产生的最终通量损失。

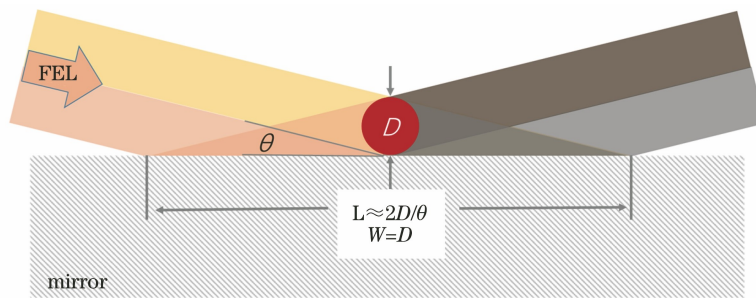


图 11 圆形颗粒遮挡示意图

Fig. 11 Schematic diagram of circular particle blocking

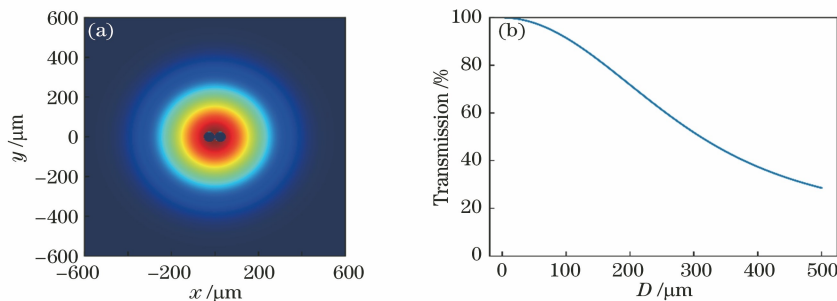


图 12 颗粒遮挡的影响。(a)直径为 $50\ \mu\text{m}$ 的颗粒在半峰全宽为 $250\ \mu\text{m}$ 的光束中的遮挡效果;
(b)不同尺寸颗粒遮挡直接引起的透射率变化

Fig. 12 Effect of particle blocking. (a) Blocking effect of particles with diameter of $50\ \mu\text{m}$ in beam with full width at half maximum of $250\ \mu\text{m}$; (b) transmission change directly caused by blocking of particles with different sizes

上面分析的是非常特殊的一种情况,实际情况颗粒会随机分布在光学元件上,颗粒的尺寸也各不相同。下面对另一种情况进行模拟,即 100 个直径为 $5\ \mu\text{m}$ 的颗粒。这些颗粒随机分布在 $400\ \mu\text{m} \times 400\ \mu\text{m}$ 的截面范围内(当以 $4\ \text{mrad}$ 为掠入射角时,

颗粒分布在镜面投影的 $100\ \text{mm} \times 0.4\ \text{mm}$ 范围内),颗粒材质按照 Fe 的物理性质来设置。Fe 颗粒在 $7000\ \text{eV}$ 能量下的线衰减系数 μ 为 $419.043\ \text{cm}^{-1}$, 折射率中的相位部分 δ 为 2.62428×10^{-5} 。图 15 为光学元件上有 100 个直径

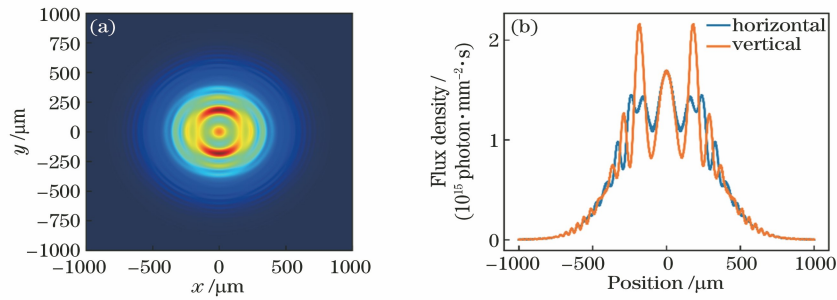


图 13 光学元件上有一个直径为 $50 \mu\text{m}$ 的颗粒时光束传输 100 m 后的效果。(a) 二维光斑分布图; (b) 截面分布图
 Fig. 13 Effect of beam propagation after 100 m under situation of particle with diameter of $50 \mu\text{m}$ on optics.

(a) Two-dimensional beam distribution; (b) profile of beam

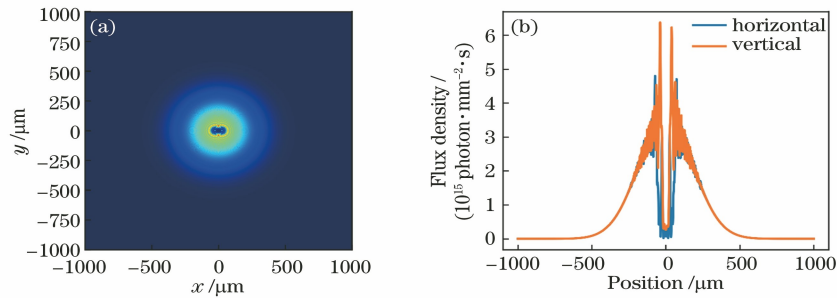


图 14 光学元件上有一个直径为 $50 \mu\text{m}$ 的颗粒时光束传输 3.5 m 后产生的散斑增强效果。

(a) 二维光斑分布图; (b) 截面分布图

Fig. 14 Speckle enhancement of beam propagation after 3.5 m under situation of particle with diameter of $50 \mu\text{m}$ on optics. (a) Two-dimensional beam distribution; (b) profile of beam

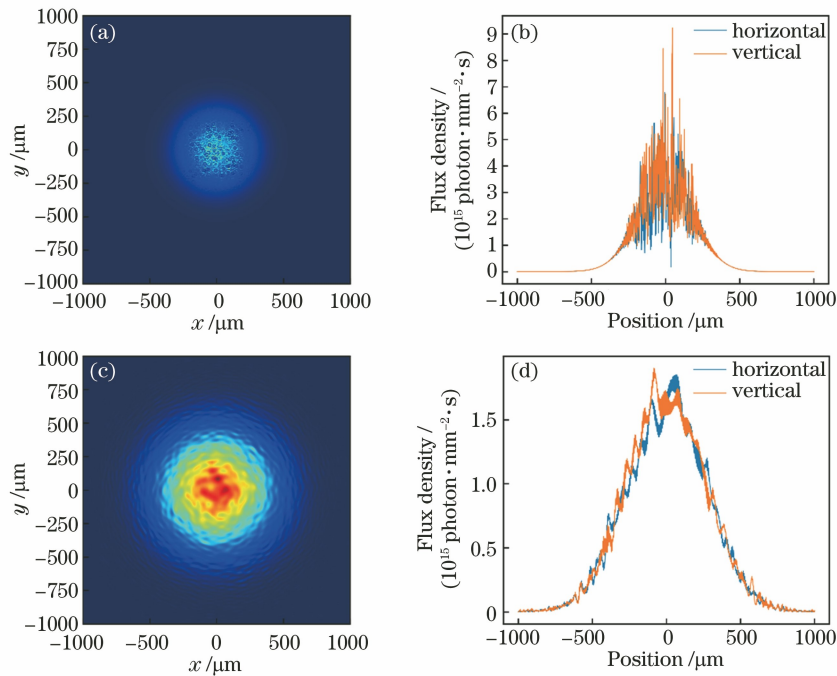


图 15 光学元件上有 100 个直径为 $5 \mu\text{m}$ 的颗粒时光束传输不同距离后的效果。(a) 传输 1.5 m 后的二维光斑分布图; (b) 传输 1.5 m 后的截面分布图; (c) 传输 100 m 后的二维光斑分布图; (d) 传输 100 m 后的截面分布图

Fig. 15 Effect of beam propagation at different distances under situation of 100 particles with diameter of $5 \mu\text{m}$ on optics. (a) Two-dimensional beam distribution after 1.5 m propagation; (b) profile of beam after 1.5 m propagation; (c) two-dimensional beam distribution after 100 m propagation; (d) profile of beam after 100 m propagation

为 $5\ \mu\text{m}$ 的颗粒时光束传输到 $1.5\ \text{m}$ 、 $100\ \text{m}$ 位置时的光斑情况。从模拟结果可以看出,虽然颗粒比较小,但是数量较多,故其对光斑分布的影响同样非常明显,尤其是会产生大量的散斑,这可能会给后面的元件带来损伤。图 16 给出了上述情况下采用 KB 聚焦系统聚焦后在焦点位置的聚焦光斑与无颗粒情况的聚焦对比[这里对图 16(b)、(d)中的数据取了

10 为底的对数]。从模拟情况可以看出,峰值通量密度下降约为 1.4% , 100 个直径为 $5\ \mu\text{m}$ 的颗粒的面积仅占 1.7 倍半峰全宽范围内面积的 3% ,并且厚度为 $5\ \mu\text{m}$ 的 Fe 对 $7000\ \text{eV}$ X 射线的透过率为 80% ,模拟结果是合理的。此外,在有 100 个颗粒情况下聚焦光斑周围的背景增强了 $5\sim 6$ 个量级,这对相干衍射实验来说是非常大的背景噪声。

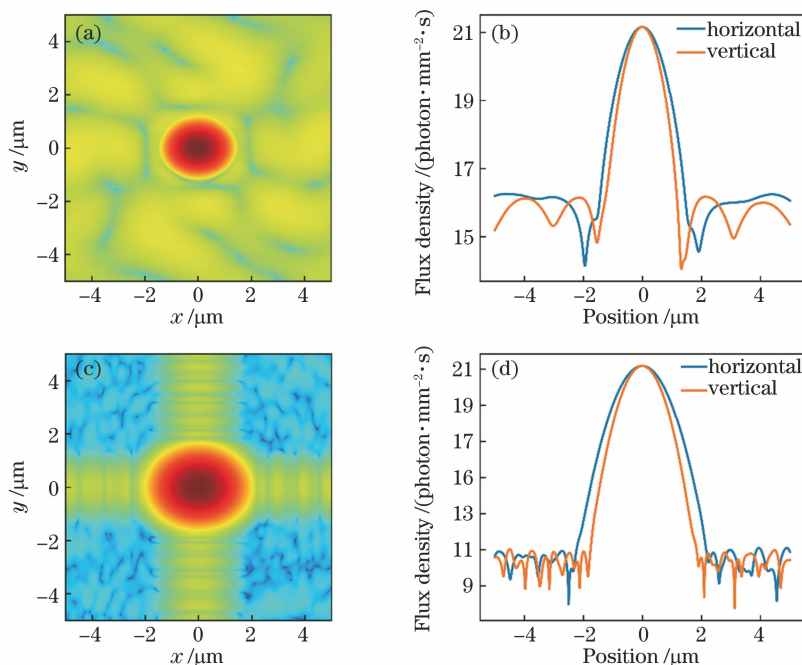


图 16 光学元件上没有颗粒和有 100 个直径为 $5\ \mu\text{m}$ 的颗粒时焦点位置处的光斑分布和光斑截面分布。(a)光学元件上有 100 个直径为 $5\ \mu\text{m}$ 的颗粒时焦点位置处的光斑分布;(b)光学元件上有 100 个直径为 $5\ \mu\text{m}$ 的颗粒时焦点位置处的光斑截面分布;(c)光学元件上没有颗粒时焦点位置处的光斑分布;(d)光学元件上没有颗粒时焦点位置处的光斑截面分布

Fig. 16 Spot distribution and profile at focal position under situations of no particles and 100 particles with diameter of $5\ \mu\text{m}$ on optics. (a) Spot distribution at focal position under situation of 100 particles with diameter of $5\ \mu\text{m}$ on optics; (b) profile at focal position under situation of 100 particles with diameter of $5\ \mu\text{m}$ on optics; (c) spot distribution at focal position under situation of no particles on optics; (d) profile at focal position under situation of no particles on optics

综上所述,在 XFEL 光束线中颗粒污染会发生三种情况:单脉冲损伤(离子化)、熔化和遮挡。分析结果显示:金属颗粒更容易发生库仑爆炸,进而损伤光学元件;在中高重复频率下所有材料的颗粒都很容易发生熔化,进而影响光学元件表面的质量;遮挡情况主要发生在低重复频率情况下,大颗粒会对波前产生严重的调制,进而产生散斑,散斑会给后面的设备带来危险,同时影响光束的传输效率。在 XFEL 光束线中如何避免颗粒污染的相关报道比较少,SACLA 报道了颗粒污染的现象和清洗方式^[38],图 17 为直径为 $5\sim 50\ \mu\text{m}$ 的颗

粒污染造成的反射光分布图和清洁后的光斑分布图。研究发现,这种污染采用气流难以清洁,需要使用超声波对镜子进行清洗。然而,对于采用 B_4C 镀层的情况,由于镀层的应力很大,故采用超声清洗可能会造成镀层破坏。因此,最好是避免发生颗粒污染,SACLA 提到光学元件安装暴露环境应达到 class-1 等级(对应国际标准 ISO3)的颗粒清洁程度。European-XFEL 对真空设备的加工、运输和装配提出了避免颗粒污染的要求^[46],其中对环境洁净度要求达到 ISO5,并要求光学元件前后 $30\ \text{m}$ 范围内按照该要求实施^[47]。

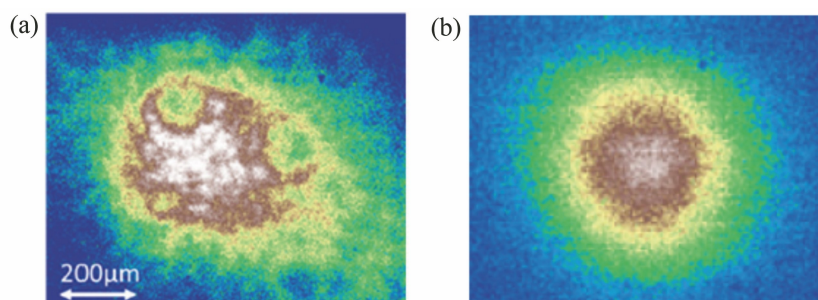


图 17 SACLA 中颗粒污染清洁前后对光斑的影响^[38]。(a)颗粒污染情况下的光斑;(b)采用超声波清洁后的光斑

Fig. 17 Effect of particle contamination on spot before and after cleaning at SACLA^[38].

(a) Spot under situation of particle contamination; (b) spot after ultrasonic cleaning

4 结论与展望

从同步辐射到 X 射线自由电子激光, X 射线的亮度、相干性有极大的提升,同时也给光束线建设提出了新的挑战。光学元件的污染问题是其中关键问题之一,本文详细讨论了碳污染和颗粒污染两种情况对光学元件的影响,表明碳污染和颗粒污染都会严重影响 X 射线自由电子激光传输到实验站的品质。XFEL 光束线中光学元件的碳污染控制与清洁、颗粒污染的控制与清洁问题,即使在低重复频率时也还没有被完全解决,高重复频率会使得问题变得更加复杂,尤其是 B_4C 镀层上的碳污染的清洁和颗粒污染的控制在国内都没有相关经验,需要进行更多的探索。

参 考 文 献

- [1] Kim K J, Huang Z R, Lindberg R. Synchrotron radiation and free-electron lasers [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2017.
- [2] Pellegrini C, Marinelli A, Reiche S. The physics of X-ray free-electron lasers [J]. Reviews of Modern Physics, 2016, 88: 015006.
- [3] Genin F Y, Michlitsch K, Furr J, et al. Laser-induced damage of fused silica at 355 and 1064 nm initiated at aluminum contamination particles on the surface[J]. Proceedings of SPIE, 1997, 2966: 126-138.
- [4] Salleo A, Genin F Y, Yoshiyama J M, et al. Laser-induced damage of fused silica at 355 nm initiated at scratches[J]. Proceedings of SPIE, 1998, 3244: 341-347.
- [5] Palmier S, Garcia S, Rullier J L. Method to characterize superficial particulate pollution and to evaluate its impact on optical components under a high power laser[J]. Optical Engineering, 2008, 47 (8): 084203.
- [6] Palmier S, Rullier J L, Capoulade J, et al. Effect of laser irradiation on silica substrate contaminated by aluminum particles [J]. Applied Optics, 2008, 47 (8): 1164-1170.
- [7] Shen N, Demos S G, Negres R A, et al. Energetic laser cleaning of metallic particles and surface damage on silica optics: investigation of the underlying mechanisms[J]. Proceedings of SPIE, 2015, 9632: 155-165.
- [8] Bude J, Carr C W, Miller P E, et al. Particle damage sources for fused silica optics and their mitigation on high energy laser systems[J]. Optics Express, 2017, 25(10): 11414-11435.
- [9] Brown A, Bernot D, Ogloza A, et al. Physical origin of early failure for contaminated optics[J]. Scientific Reports, 2019, 9: 635.
- [10] Kafka K R P, Demos S G. Interaction of short laser pulses with model contamination microparticles on a high reflector [J]. Optics Letters, 2019, 44 (7): 1844-1847.
- [11] Geloni G, Saldin E, Samoylova L, et al. Coherence properties of the European XFEL[J]. New Journal of Physics, 2010, 12(3): 035021.
- [12] Boutet S, Yabashi M. X-ray free electron lasers and their applications[M]//Boutet S, Fromme P, Hunter M S. X-ray free electron lasers: a revolution in structural biology. Cham: Springer, 2018: 1-21.
- [13] Mahajan V N. Strehl ratio for primary aberrations in terms of their aberration variance[J]. Journal of the Optical Society of America, 1983, 73(6): 860-861.
- [14] Cocco D, Spiga D. Wavefront preserving optics for diffraction-limited storage rings and free-electron lasers[J]. Proceedings of SPIE, 2019, 11111: 37-46.
- [15] Cocco D. Recent developments in UV optics for ultra-short, ultra-intense coherent light sources[J]. Photonics, 2015, 2(1): 40-49.
- [16] Bean R J, Aquila A, Samoylova L, et al. Design of the mirror optical systems for coherent diffractive

- imaging at the SPB/SFX instrument of the European XFEL[J]. *Journal of Optics*, 2016, 18(7): 074011.
- [17] Yadav P K, Kumar M, Gupta R K, et al. Refurbishment of an Au-coated toroidal mirror by capacitively coupled RF plasma discharge[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2019, 26(4): 1152-1160.
- [18] Yadav P K. Studies on synchrotron radiation induced contaminations and development of optics refurbishing techniques[D]. Indore: Raja Ramanna Centre for Advanced Technology, 2021.
- [19] Chauvet C, Polack F, Silly M G, et al. Carbon contamination of soft X-ray beamlines: dramatic anti-reflection coating effects observed in the 1 keV photon energy region [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2011, 18(5): 761-764.
- [20] Anazawa T, Nishiyama Y, Oizumi H, et al. Characterization of EUV-deposited carbonaceous contamination[C]//Proceedings of the International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography, September 28-October 1, 2008, Lake Tahoe, California, United States. [S. l.]: SEMATECH, 2008: 1611.
- [21] U. S. Department of Energy Office of Science. X-ray optics for BES light source facilities [R]. Washington, D. C.: Scientific User Facilities Division, Office of Basic Energy Sciences, 2013.
- [22] Fernández H M, Rogler D, Sauthier G, et al. Characterization of carbon-contaminated B_4C -coated optics after chemically selective cleaning with low-pressure RF plasma[J]. *Scientific Reports*, 2018, 8: 1293.
- [23] Stefana P M, Coccoa D, Gullikson E M, et al. Preliminary results for in situ cleaning of B_4C -coated FEL mirrors using oxygen plasma[R]. Menlo Park: SLAC, 2020.
- [24] Soufli R, Fernández-Perea M, Hau-Riege S P, et al. Lifetime and damage threshold properties of reflective X-ray coatings for the LCLS free-electron laser[J]. *Proceedings of SPIE*, 2011, 8077: 11-17.
- [25] Kozhevnikov I V, Buzmakov A V, Siewert F, et al. Growth of nano-dots on the grazing-incidence mirror surface under FEL irradiation [J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2016, 23(1): 78-90.
- [26] Wen M W, Kozhevnikov I V, Siewert F, et al. Effect of the surface roughness on X-ray absorption by mirrors operating at extremely small grazing angles[J]. *Optics Express*, 2018, 26(16): 21003-21018.
- [27] Reddy H K N, Yoon C H, Aquila A, et al. Coherent soft X-ray diffraction imaging of coliphage PR772 at the Linac coherent light source[J]. *Scientific Data*, 2017, 4: 170079.
- [28] McKinney W R, Takacs P Z. Plasma discharge cleaning of replica gratings contaminated by synchrotron radiation [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1982, 195(1/2): 371-374.
- [29] Koide T, Shidara T, Tanaka K, et al. *In situ* dc oxygen-discharge cleaning system for optical elements [J]. *Review of Scientific Instruments*, 1989, 60(7): 2034-2037.
- [30] Koide T, Sato S, Shidara T, et al. Investigation of carbon contamination of synchrotron radiation mirrors [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1986, 246(1/2/3): 215-218.
- [31] Koide T, Yanagihara M, Aiura Y, et al. Glow-discharge cleaning in oxygen of carbon-contaminated optical elements[J]. *Physica Scripta*, 1987, 35(3): 313-317.
- [32] Koide T, Yanagihara M, Aiura Y, et al. Resuscitation of carbon-contaminated mirrors and gratings by oxygen-discharge cleaning. 1: efficiency recovery in the 4–40-eV range[J]. *Applied Optics*, 1987, 26(18): 3884-3894.
- [33] Rosenberg R A, Crossley D B. Oxygen rf-discharge cleaning: plasma characterization and implementation on a grasshopper beam line[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1988, 266(1/2/3): 386-391.
- [34] Rosenberg R A, Smith J A, Wallace D J. Plasma cleaning of beamline optical components: contamination and gas composition effects [J]. *Review of Scientific Instruments*, 1992, 63(1): 1486-1489.
- [35] Pellegrin E, Šics I, Reyes-Herrera J, et al. Characterization, optimization and surface physics aspects of *in situ* plasma mirror cleaning[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2014, 21(2): 300-314.
- [36] Kumar M, Modi M H, Singhal H, et al. Restoration of absolute diffraction efficiency and blaze angle of carbon contaminated gratings by ultraviolet cleaning [J]. *Applied Optics*, 2013, 52(8): 1725-1730.
- [37] Johnson E D, Garrett R F. *In situ* reactive cleaning of X-ray optics by glow discharge [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1988, 266(1/2/3): 381-385.
- [38] Ohashi H, Senba Y, Yumoto H, et al. Development of contamination-free X-ray optics for next-generation

- light sources [C]. AIP Conference Proceedings, 2016, 1741: 040023.
- [39] Ohashi H, Senba Y, Kotani Y, et al. Effective protocol for realizing contamination-free X-ray reflective optics [J]. Review of Scientific Instruments, 2019, 90(2): 021704.
- [40] Yadav P K, Gupta R K, Modi M H. Use of zero order synchrotron radiation for *in situ* cleaning of beamline optics: results of trial experiments[C]. AIP Conference Proceedings, 2019, 2115: 030290.
- [41] Yadav P K, Gupta R K, Choubey A K, et al. Analysis of Au film surface after carbon layer removal with ultra violet radiation, RF plasma and IR laser[C]. AIP Conference Proceedings, 2020, 2265: 030253.
- [42] Heya A, Harada T, Niibe M, et al. Removal of surface contamination by atomic hydrogen annealing [J]. Journal of Photopolymer Science and Technology, 2020, 33(4): 419-426.
- [43] Niibe M, Harada T, Heya A, et al. Removal of carbon contamination on oxidation-prone metal-coated mirrors using atomic hydrogen [C]. AIP Conference Proceedings, 2019, 2054: 060010.
- [44] Samoylova L, Buzmakov A, Chubar O, et al. WavePropaGator: interactive framework for X-ray free-electron laser optics design and simulations[J]. Journal of Applied Crystallography, 2016, 49(4): 1347-1355.
- [45] Chubar O, Berman L, Chu Y S, et al. Development of partially-coherent wavefront propagation simulation methods for 3rd and 4th generation synchrotron radiation sources [J]. Proceedings of SPIE, 2011, 8141: 44-53.
- [46] Dommach M. UHV guidelines for X-ray beam transport systems[R]. Schenefeld: European XFEL, 2014.
- [47] Sinn H, Dommach M, Dickert B, et al. The SASE1 X-ray beam transport system [J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2019, 26(3): 692-699.