

飞秒电子衍射系统的静态特性研究^{*}

刘运全¹⁾ 梁文锡¹⁾ 张 杰¹⁾ 吴建军²⁾
田进寿²⁾ 王俊峰²⁾ 赵宝升²⁾

1) 中国科学院物理研究所, 北京 100080)

2) 中国科学院西安光学精密机械研究所瞬态光学国家重点实验室, 西安 710068)

(2005 年 12 月 8 日收到, 2006 年 7 月 26 日收到修改稿)

超快电子衍射系统是认识超快物理、化学及生物过程的重要工具之一. 介绍了自主研制的一套飞秒电子衍射系统, 调试并测量了该系统的电子束斑特性、X-Y 偏转板的偏转灵敏度等. 在该系统上进行了金膜的静态电子衍射图像的测量.

关键词: 飞秒电子衍射, 偏转灵敏度, 时间分辨, 空间分辨

PACC: 6110F

1. 引 言

自 1927 年实现电子衍射^[1-3]以来, 电子衍射作为具有高空间分辨能力的实验工具, 为物理学的发展提供了很大的推动力. 电子衍射和 X 射线衍射方法为人们认识物质结构做出了重要的贡献, 但传统电子衍射的方法不具有时间分辨能力, 对于高时间分辨的动态物理化学过程研究无能为力. 目前电子学探测器响应速度可以实现纳秒或皮秒量级. 超短脉冲激光技术已经可以实现脉冲宽度为光周期量级的激光脉冲^[4]. 脉冲宽度为数飞秒的激光脉冲可以实现许多超快过程的时间分辨特性测量, 飞秒化学正是采用飞秒激光抽运-飞秒激光探测的实验方法^[5]而开创的新学科. 这种基于飞秒激光技术的探测办法, 在微观超快的物质运动过程中, 通常采用激光光谱学和非线性光学的理论进行分析. 由于可见的激光波长太长, 而且可见光一般只对原子外层的价电子和自由电子敏感, 因此激光在与物质相互作用过程中几乎不带有空间分辨的信息. 这种飞秒激光抽运-飞秒激光探测的方法, 只能研究特定能级的跃迁, 从而限制了该方法在超快物质结构动力学研究中的应用. 因此, 电子衍射或 X 射线衍射的高空间分辨特性与飞秒激光的高时间分辨特性的结合必然可以大大推动超快物理学、超快化学和超快生物

学的发展.

时间分辨能力为皮秒、飞秒量级的电子衍射^[6, 7]和 X 射线衍射等^[8-10]可以实时提供物质的物理学、化学或生物学特性的超快反应过程信息, 引起了科研工作者越来越多的重视. 电子衍射较 X 射线衍射具有以下突出优点: 电子源成本低、不需要大尺寸的加速器、电子束的准直和聚焦比较简单、电子束的单色性好. 物质对电子束的散射较强(约为 X 射线的 100 万倍), 电子衍射特别适用于微晶、表面以及薄膜的晶体结构等方面的研究. 电子衍射强度大, 所需的曝光时间只有几秒钟, 而 X 射线的曝光时间则以小时计, 这也是它的突出优点. 因此, 具有高时间分辨和空间分辨能力的电子衍射是一种重要的研究方法.

自 2000 年起, 中国科学院物理研究所光物理实验室就逐步开展了超快电子衍射和高时间分辨电子显微镜的探索性工作. 陈黎明等^[11]发现聚焦的飞秒强激光与固体靶相互作用可以产生定向发射的超短脉冲高能电子, 并且通过调节预脉冲的延迟和强度控制电子束的发射方向. 在此基础上, 张军等^[12]研究了利用超短脉冲的高能超热电子进行衍射实验的可行性. 与此同时, 我们还研究了飞秒激光与光阴极相互作用的特点^[13], 并提出利用飞秒激光与阴极相互作用产生的超短脉冲电子束, 经过加速和聚焦后可以得到相干性非常好的超短电子脉冲, 这样的电子

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 60321003, 10575129)资助的课题.

束与样品相互作用,可以得到超高时间分辨和空间分辨的信息,进一步提出了一种时间分辨电子显微镜的设计^[14]。为了能够测量超短脉冲电子束的脉冲宽度,还提出了一种采用聚焦的飞秒激光脉冲与超短脉冲电子束进行有质动力散射的互相关方法^[15]。

2. 超快电子衍射系统

近些年来,超快电子衍射逐渐成为研究微观结构超快动力学过程的重要研究工具。从时间分辨反射式电子衍射、时间分辨气相电子衍射和超快电子衍射,逐步发展到超快电子显微镜,都代表了人们对超快物理过程研究的努力。这些装置都是将超短脉冲激光技术的高时间分辨特性和电子衍射高空间分辨特性相结合,从而达到极其优越的诊断能力。人们利用具有时间分辨能力的电子衍射装置研究了激光引起的 Si、Au、GaAs 等的晶格膨胀和晶格动力学过程,还进一步提出了超快电子结晶学的分析和诊断。Zewail 的实验室在超快电子衍射装置进行了许多超快化学的研究,包括化学键的断裂、化学反应中的暗结构等过程^[16,17]。加拿大渥太华大学 Dwayne Miller 研究组利用 30 keV, 600 fs 的电子脉冲,研究了 Al 的溶化动力学过程,即 Al 在超快激光脉冲的作用下从固相到液相的转变过程^[7]。

图 1 是中国科学院物理研究所与西安光学精密机械研究所合作研制的飞秒电子衍射系统。该系统

主要由光阴极、阳极、磁透镜、X-Y 偏转板、单电子探测系统(包括双微通道板(MCP)、荧光屏、成像镜头、电荷耦合探测器(CCD))、高精度样品调节架和真空系统组成。这里我们使用了中国科学院物理研究所钛宝石激光装置,该激光器单脉冲的输出能量为 5 mJ,中心波长为 798 nm,脉冲宽度为 150 fs,重复频率为 10 Hz。实验中,采用的激光能量为 0.5 mJ,分别通过倍频晶体(相位匹配角为 $\theta = 29.2^\circ$, $\varphi = 0^\circ$,厚度为 0.80 mm)和与频晶体(II 类相位匹配,相位匹配角为 $\theta = 55.5^\circ$, $\varphi = 30^\circ$,厚度为 0.80 mm)得到波长为 266 nm 的紫外超短脉冲光源。然后经过一个石英三棱镜进行分光,再经过反射后,由一个 $f/5$ 的透镜收集,到达光阴极表面产生光电子。这种产生紫外光源的方法相对于我们以前采用 I 类相位匹配和频的方法结构更加简单^[18]。

金属光电阴极由于其具有相对较高的量子效率和稳定性以及容易制作等优点而被许多系统采用,诸如光阴极注入的加速器和超快电子衍射系统等。这里我们采用金属银作为光阴极材料。金属银具有比较好的化学稳定性和热稳定性,其表面逸出功($\phi = 4.26$ eV)小于波长 266 nm 的紫外光所对应的光子能量($h\nu = 4.67$ eV)。光阴极是镀在石英玻璃表面的厚度为 40 nm 银膜。超短脉冲激光与光阴极相互作用后产生的光电子脉冲,经过场强为 10 kV/mm 直流电场加速到 50 keV,经过 100 μm 的阳极孔,然后经过磁透镜聚焦,进入 X-Y 偏转板,最后到达样

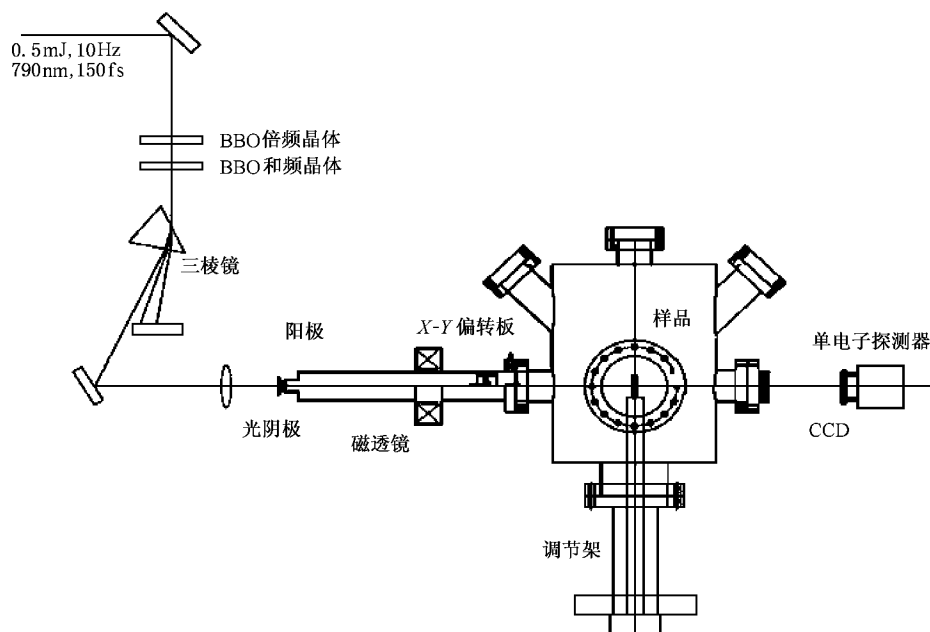


图 1 超快电子衍射系统及静态实验装置图

品.衍射信号由双 MCP 探测器接收测量.经过双 MCP 后,增益放大的衍射信号到达荧光屏,采用 CCD 进行图像采集测量.

3. 实验结果及讨论

飞秒电子衍射系统设计的电极结构参数如下:阴极到透镜中心(磁极缝隙中心)的距离为 239 mm,

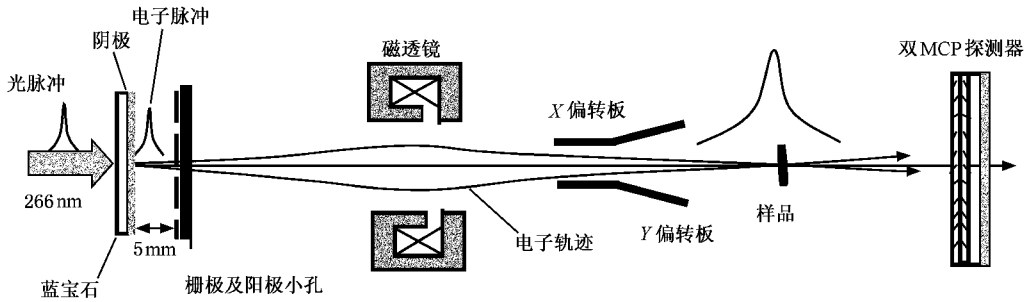


图2 电子枪的基本结构

电子束斑的尺寸是影响系统空间分辨率的一个重要参数,这里我们首先测量了电子束直径,结果如图3所示.考虑成像系统的放大倍数和 CCD 的实际像素参数,测量到电子束斑直径为 200 μm.我们通过调节入射激光的聚焦情况,可以调节电子束的大小.电子束的大小与磁透镜的安匝数也有很大的关系.磁透镜的线圈匝数为 1070 时,图3中的电子束束斑所对应的线圈电流为 1.01 A,此时电子束在荧光屏中聚的束斑最小.

系统的偏转灵敏度是一个极为重要的参数,它影响着系统动态扫描速度,实验对 X-Y 偏转系统的灵敏度进行了标定.系统 X 方向的偏转板是一

聚焦磁透镜的磁隙为 5 mm,安匝数为 1154,阴极到最佳像面的距离为 503 mm,磁透镜磁极的内径为 50 mm.在加速栅网后面设置了一个直径为 100 μm 的阳极小孔作为电子光阑,那些大角度以及离轴比较远的电子不能通过,通过光阑的电子较好地满足傍轴电子轨迹的理想条件,同时对从光阴极产生的电子束有整形的作用.系统的相机常数为 180 mm.图2所示为电子枪的基本结构.

对平行板,其偏转灵敏度可以由下式计算得到:

$$S_x \approx \frac{lL}{2dV_0} \tag{1}$$

这里, $l = 20 \text{ mm}$, $d = 3 \text{ mm}$, $L = 60 \text{ mm} + 335 \text{ mm} = 395 \text{ mm}$, $V_0 = 50 \text{ kV}$, 理论计算得到系统 X 方向的偏转灵敏度为 26.3 mm/kV. Y 方向采用平折板结构,如图4所示.平折板的偏转灵敏度为

$$S_y = \frac{a_2}{2V_0(h_2 - h_1)} \left[\left(\frac{a_2 h_2}{h_2 - h_1} + L \right) \ln \frac{h_2}{h_1} - a_2 \right] + \frac{a_1}{2V_0 h_1} \left(\frac{a_1}{2} + a_2 + L \right) \tag{2}$$

系统设计的 $a_2 = 20 \text{ mm}$, $h_1 = 3 \text{ mm}$, $h_2 = 7 \text{ mm}$, a_1

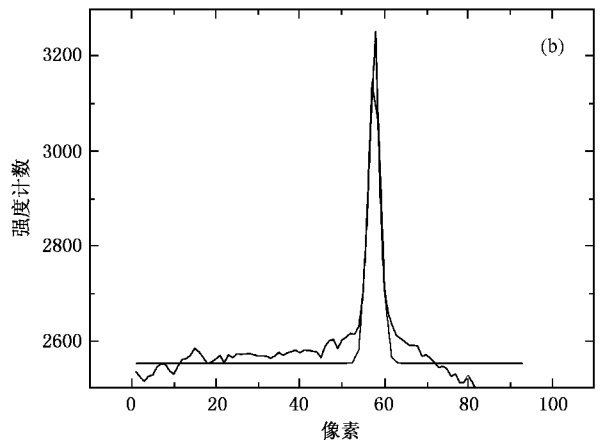
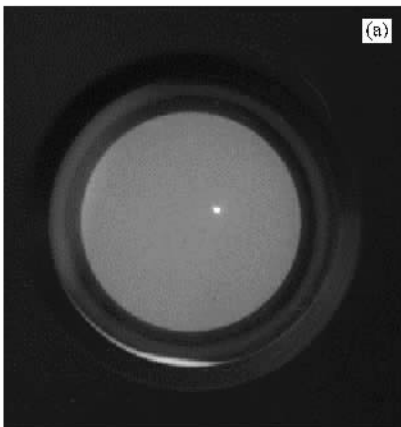


图3 电子束斑的测量 (a)电子束斑图像 (b)电子束直径

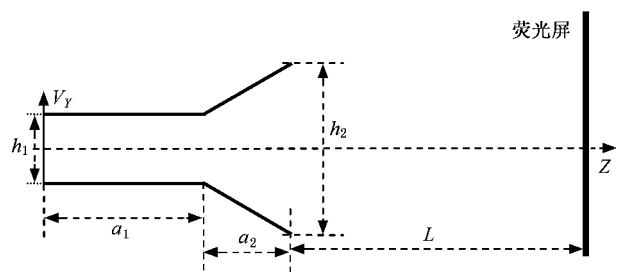
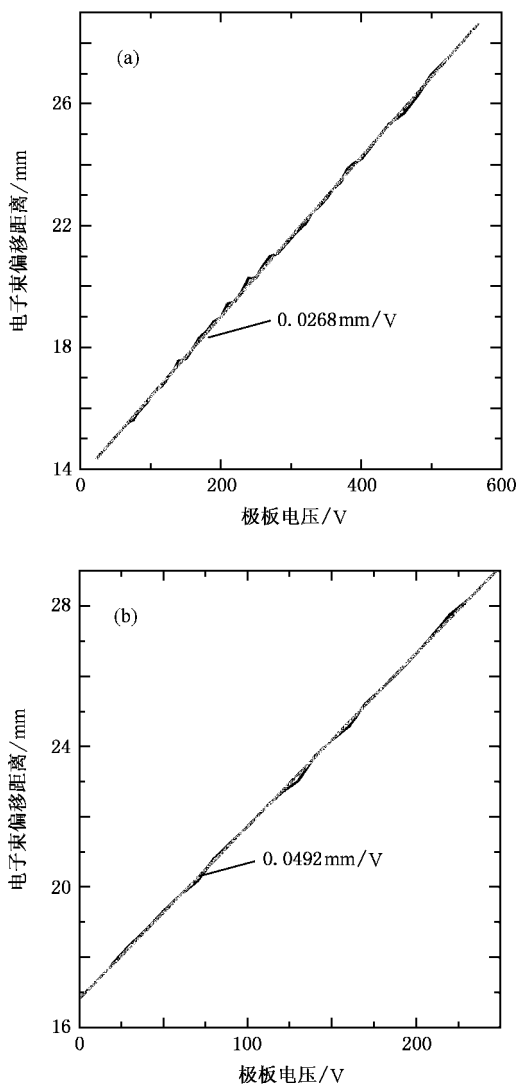


图4 平折板的结构示意图

$= 27 \text{ mm}$, $L = 331 \text{ mm}$, 理论计算得到系统 Y 方向的偏转灵敏度为 48.2 mm/V . 实验测量结果如图 5 所示, 其中图 5(a) 为 X 方向的偏转灵敏度, 图 5(b) 为 Y 方向的偏转灵敏度. X 方向偏转板的偏转灵敏度实验测量值为 27.3 mm/kV , Y 方向为 49.3 mm/kV .

图5 系统偏转灵敏度 (a) X 方向偏转灵敏度 (b) Y 方向偏转灵敏度

(2) 式的计算是相当粗略的, 没有考虑边缘场效应以及相对论效应.

测量电子束的束斑和系统的偏转灵敏度与系统扫描电路的设计有着紧密的联系. 在该系统中, 我们把平折板 Y 同时作为系统的电子束脉冲宽度测量的扫描板, 因此对系统的偏转灵敏度进行测量和标定是十分必要的. 扫描速度

$$v = KS_Y,$$

这里 K 表示加在偏转系统上的扫描电压随时间变化的斜率, S_Y 为偏转灵敏度. $K(t - t_0)$ 为加在偏转板上的扫描电压, t_0 为扫描电压加在偏转板上的起始时间. 在计算过程中, t_0 的取值一般在电子到达偏转板入口处前方 5 mm 的时刻. 这一方面能充分体现偏转板的边缘场效应, 同时不会使电子过早地偏转. 扫描电路的时间分辨能力可以表示为

$$\tau_t = 1(\sigma v).$$

这里 σ 为系统扫描方向的空间分辨能力. 系统设计的 K^* 为 5.5 kV/ns , 设计扫描速度为 $2.65 \times 10^8 \text{ m/s}$ (约为 0.883 倍光速), 大于文献 [6] 的值.

为了确定系统的空间分辨能力, 我们采用了 300 nm 厚的多晶金膜作为样品, 金膜是镀在碳支撑膜的铜网上, 如图 6 所示. 图 6(a) 采用的积分时间为 5 \AA (即 50 个电子脉冲), 图 6(b) 采用的积分时间为 100 \AA (即 1000 个电子脉冲). 金是面心立方结构, 从图 6(b) 中可以明显观察到 $\text{Au}(111)$, (220) 和 (311) 面的衍射环, 对应的晶面间距分别为 0.2358 , 0.2429 和 0.1236 nm . 随着积分时间更长, 可以得到更多的衍射环.

关于飞秒电子衍射系统的电子光学设计, 在文献 [19] 中有所讨论, 这里我们仅简单分析系统的时间分辨能力. 在设计时, 我们采用 Monte Carlo 方法对光电子的初能量、初角度以及初位置分布进行抽样, 采用有限元法计算磁透镜周围的磁场分布, 并用有限差分法计算阴极与栅极以及偏转板之间的电场分布. 模拟跟踪大量 (3000 个) 光电子的运行轨迹. 统计分析了 3000 个电子在最佳像面处, 电子束到达样品时电子束斑的理论空间分布, 如图 7 所示. 此时电子束斑大约为 150 \mu m . 若考虑电子束的发散角, 到达荧光屏的电子束斑约为 206 \mu m , 这与测量结果相当. 模拟得到的电子束脉冲宽度如图 8 所示, 到达样品处的电子束脉冲宽度约为 250 fs (假设初始的激光脉冲宽度为 150 fs). 实际上飞秒电子衍射系统也是一台复杂的条纹相机, 系统的时间分辨率为物

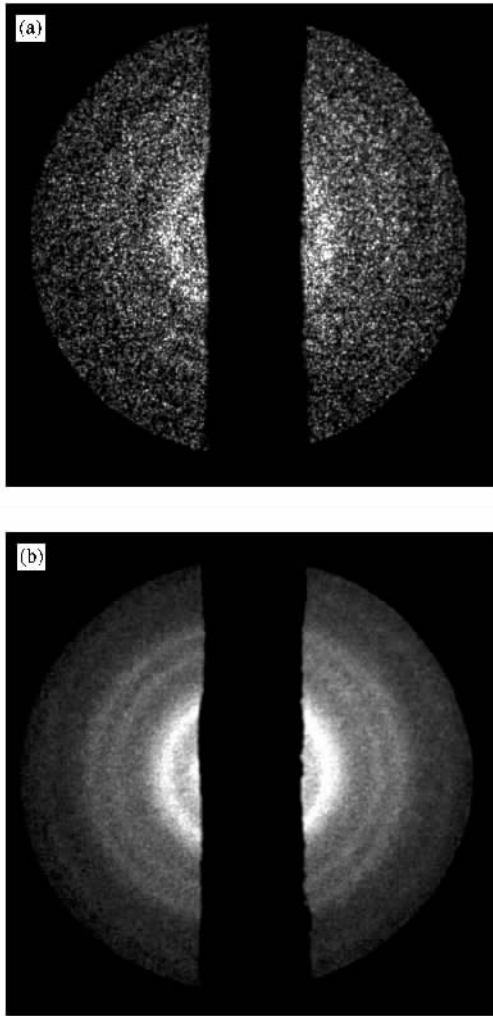


图6 测量得到 300 nm 厚金膜的衍射花样 (a)50 个电子脉冲的衍射图像 (b)1000 个电子脉冲的衍射图像

理时间分辨率和技术时间分辨率两个部分. 物理时间分辨率 τ_p 定义为电子在电子衍射系统各部分渡越时间弥散的总效果, 它由超短电子束在电子光学系统中的产生和传输过程决定, 即

$$\tau_p = \sqrt{\sum_i \tau_i^2}.$$

技术时间分辨率定义为

$$\tau_t = (\sigma v)^{-1},$$

式中 σ 为扫描方向的静态空间分辨率. 这样, 扫描系统可以实现的电子束脉冲宽度测量的总时间分辨率可由

$$\tau_2 = \sqrt{\tau_p^2 + \tau_t^2}$$

得到. 综合考虑这些因素, 该系统的时间分辨能力可达到 300 fs 左右.

我们研制的这套超快电子衍射系统具有高空间

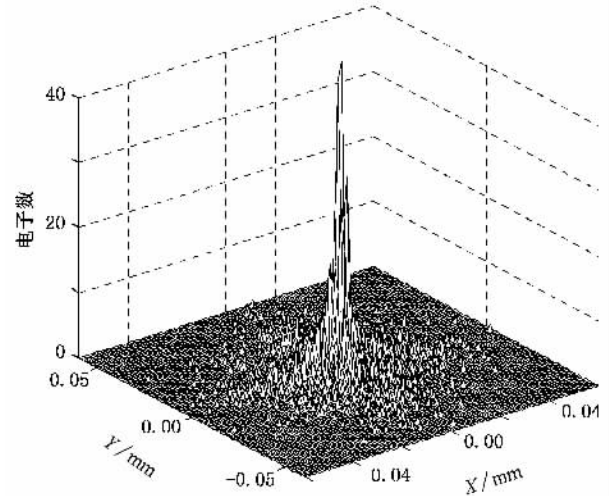


图7 理论模拟电子束到达样品处的空间分布

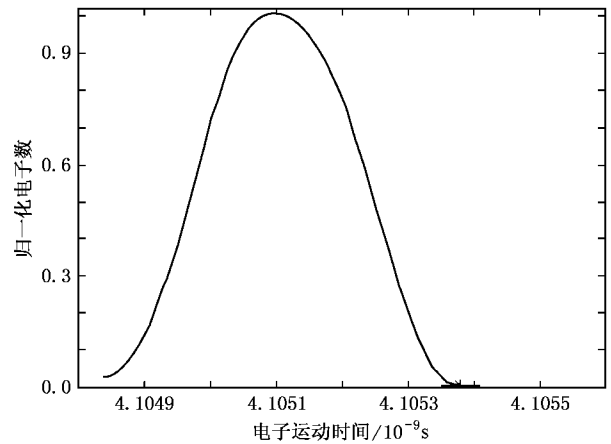


图8 采用初始为 150 fs 的脉冲模拟电子束到达样品处的脉冲宽度

分辨和时间分辨能力, 在该系统上, 我们拟进行一些材料结构动力学和半导体载流子运动特征等方面研究, 也将进行超导体条纹相 (stripe-phase) 动力学方面的研究.

4. 结 论

本文介绍了一套我们自主研制的飞秒电子衍射系统, 对该系统进行了调试并对其静态特征进行标定. 测量了该系统的电子束的束斑、 X 和 Y 偏转板的偏转灵敏度, 并得到 300 nm 厚金膜的静态电子衍射花样. 这为系统电子束测量的扫描电路设计提供了必要的基础, 也为下一步进行高时间分辨和高空间分辨的实验提供了研究基础.

- [1] Davisson C J ,Germer L H 1927 *Phys. Rev.* **30** 705
- [2] Davisson C J ,Germer L H 1927 *Nature* **119** 558
- [3] Thomson G P ,Reid A 1927 *Nature* **119** 890
- [4] Schenkel B ,Biegert J ,Keller U *et al* 2003 *Opt. Lett.* **28** 1987
- [5] Zewail A H 2000 *Angew. Chem. Int. Ed.* **39** 2586
- [6] Cao J ,Hao Z ,Park H *et al* 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 1044
- [7] Siwick B J ,Dwyer J R ,Jordan R E *et al* 2003 *Science* **302** 1382
- [8] Lindenberg A M , Kang I , Johnson S L *et al* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 111
- [9] Rousse A , Rischel C , Gauthier J C 2001 *Rev. Mod. Phys.* **17** 17
- [10] Ihee H , Lorenc M , Kim T K *et al* 2005 *Science* **309** 1223
- [11] Chen L M , Zhang J , Li Y T *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 225001
- [12] Zhang J ,Zhang J ,Chen Q *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1764(in Chinese)[张 军、张 杰、陈 清等 2002 物理学报 **51** 1764]
- [13] Liu Y Q ,Zhang J ,Liang W X 2005 *Chin. Phys.* **14** 1671
- [14] Liu Y Q ,Zhang J ,Zhang J *et al* 2005 *Physics* **34** 287(in Chinese) [刘运全、张 杰、张 军等 2005 物理 **34** 287]
- [15] Liu Y Q ,Zhang J ,Wu H C *et al* 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 1176 (in Chinese)[刘运全、张 杰、武慧春等 2006 物理学报 **55** 1176]
- [16] Srinivasan R , Lobastov V A , Ruan C Y *et al* 2003 *Helv. Chim. Acta* **86** 1763
- [17] Zewail A H 2005 *Trans. R. Soc. London A* **364** 315
- [18] Liu Y Q ,Zhang J ,Liang W X *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1593 (in Chinese)[刘运全、张 杰、梁文锡等 2005 物理学报 **54** 1593]
- [19] Tian J S ,Zhao B S ,Wu J J *et al* 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 3368 (in Chinese)[田进寿、赵宝升、吴建军等 2006 物理学报 **55** 3368]

Static properties of a femtosecond electron diffraction system *

Liu Yun-Quan¹⁾ Liang Wen-Xi¹⁾ Zhang Jie¹⁾ Wu Jian-Jun²⁾
Tian Jin-Shou²⁾ Wang Jun-Feng²⁾ Zhao Bao-Sheng²⁾

¹ *✉ Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China)*

² *✉ State Key Laboratory of Transient Optics Technology , Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics , Chinese Academy of Sciences , Xi'an 710068 , China)*

(Received 8 December 2005 ; revised manuscript received 26 July 2006)

Abstract

Ultrafast electron diffraction is an important technique to study the ultrafast phenomenon in physical , chemical and biological processes. This paper introduces a femtosecond electron diffractometer. The diameter of electron beam and deflection sensitivity of X-Y deflection plates are reported. We also demonstrate the static diffraction pattern of a 300 nm thick gold film taken by the femtosecond electron diffractometer.

Keywords : femtosecond electron diffraction , deflection sensitivity , time-resolve , spatial-resolve

PACC : 6110F