飞秒电子衍射系统中调制传递函数的理论计算*

田进 f^{1} ; 赵宝 f^{1}) 吴建 f^{1}) 赵 D^{1}) 刘运 f^{2}) 张 A^{2})

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

2)(中国科学院物理研究所,北京 100080)

(2005年9月12日收到,2005年10月17日收到修改稿)

主要介绍了飞秒电子衍射系统的组成及设计指标.包括光电阴极、电子聚焦系统、电子偏转系统、双微通道板 (MCP)电子探测器等,并给出了基本的设计思路、设计结果.光电阴极是由位于蓝宝石晶体上面的银膜构成,为了 获得足够小的电子束斑以及减小电子上靶时的角度,紧贴栅极后放置一个 100µm 的小孔,对电子束的形状和大小 进行限制.采用磁电子透镜进行聚焦,电子衍射图样由放置在样品后面的双 MCP 像增强器进行探测.在设计计算 时,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,用有限元法计算磁透镜周围的磁场分 布,用有限差分法计算阴极和栅极之间以及偏转板之间的电场分布,用四阶龙格-库塔法模拟跟踪大量光电子(3000 个)的运行轨迹.统计分析了 3000 个电子在最佳像面的时间分布、位置分布、方位角以及倾角分布,计算了飞秒电 子衍射系统的空间、时间调制传递函数.

关键词:飞秒电子枪,有限元法,Monte Carlo 模拟,调制传递函数 PACC:0781

1.引 言

以前人们多采用 X 射线衍射技术来开展这方 面的研究工作,但和电子衍射相比,电子束的准直、 聚焦比较容易,单色性也较好,而且成本低廉,不需 要大型加速器和存储环 更重要的是电子衍射强度 比 X 射线强度要大得多,时间分辨可以达到飞秒量 级、是研究微晶、表面、以及薄膜晶体动力学和空间 结构的先进手段1-31,且节约实验时间和降低实验 成本,脉冲电子衍射近年已经在晶格膨胀,表面分 子的振动 物质的结构相变 以及化学键断裂的动力 学过程等方面取得许多重大研究成果、主要特点是 可以在非常短的时间尺度上(ps 或 fs 量级)显示热、 光、电,以及化学反应等对物质结构变化的影响。一 个完整的飞秒电子衍射系统包括超短脉冲激光器、 短磁透镜聚焦电子枪、样品室、探测衍射图案的双 MCP 电子探测器、测量电子脉宽的同步扫描电路、 图像读出系统及超高真空系统等.产生定向发射高 能电子除了用飞秒电子枪方法获得外,物理所张杰 的研究小组用激光激发金属等离子体也成功获得了

定向发射的超热电子束[4].

2. 计算模型及方法

飞秒电子衍射系统和条纹相机在电子光学设计 方面是极其相似的(如图1).目前条纹相机的加速 电压都在 10kV 以下,多采用静电聚焦,但往往会使 电子在电子透镜区域处于一种减速电场中,这有利 于提高偏转灵敏度和扫描速度。而飞秒电子衍射系 统 对不要求高的偏转灵敏度 其在样品位置的偏转 范围一般在 5mm 以内 但要求电子能量加速到 50-60keV 显然用静电透镜是不现实的, 如果采用磁透 镜 磁场只会改变电子的运动方向而不会改变电子 的动能. 在加速栅网后面设置了一个 $\Phi 100 \mu m$ 大小 的阳极小孔作为电子光阑,那些大角度以及离轴较 远的电子将被阻止,所有通过光阑的电子将较好地 满足旁轴电子轨迹的理想条件,其聚焦成像的像差 (球差、色差、场曲和慧差),以及调制传递函数 (MTF),空间分辨率等性能指数显然会比条纹相机 的要高一些.

飞秒电子衍射系统中既有旋转对称系统(阴极、

^{*}国家重点基础研究专项基金(批准号码:10527002)资助的课题.

[†] E-mail:tianjs@hotmail.com



图 1 飞秒电子衍射系统的基本组成部分

栅极、阳极、荧光屏等),也具有非旋转对称单元(扫 描偏转单元),在追踪电子轨迹的时候,既存在稳定 的电场、磁场、也存在随时间变化的电场(扫描偏转 场).在计算过程中,主要用到如下一些方法:当给 定飞秒电子衍射系统的电(磁)极的结构参数时,所 有电场(静电或变化场)采用有限差分法计算,磁聚 焦透镜周围的磁场采用有限元法计算,电子轨迹追 踪则用四阶 Runge-Kutta 法计算.

从光电阴极上发射出来的电子,其初能量、方位 角、仰角、初位置都是满足一定的统计分布.光电子 的初位置分布可以是均匀分布(均匀光照射时)或近 于高斯分布(激光近距离照射),光电子的初能量一 般认为服从 β 分布,这里提到的一些计算方法以及 分布在相关的专业书籍中可以查到,在此不再赘述, 只以余弦分布的抽样过程为例加以说明.当给定光 电子的初能量、初位置、以及初始倾斜角分布后,利 用 Monte Carlo(M-C)方法进行抽样.根据概率论中 的大数定理,只有当抽样次数达到无穷大时,抽样分 布才能接近实际分布,而实际又很难做到抽样次数 无穷大,因此M-C抽样结果是否可靠,必须加以验 证.图2是0°—90°范围内余弦分布的M-C抽样结 果和实际余弦分布的比较,其中*点图是抽取 20000个电子后做直方图统计分布得到的结果,而



图 2 余弦分布的 M-C 抽样和余弦函数的比较

图中的曲线则是利用余弦函数绘制出来的一条曲 线,可见二者符合得比较好.

2.1. 光电子初始状态的 M-C 抽样^{5]}

方位角余弦分布函数 $y = \cos x$ 如果遵从如下分 布函数:

$$f(y) = \begin{cases} 1/2 & -1 \le y \le 1 \\ 0 & \text{ 其他点处} \end{cases},$$

则其积分抽样方法如下:

$$\zeta_{1}^{2} + \zeta_{2}^{2} \leq \lambda \frac{2\zeta_{1}\zeta_{2}}{\zeta_{1}^{2} + \zeta_{2}^{2}} ? - > \\ cos x = \frac{\zeta_{1}^{2} - \zeta_{2}^{2}}{\zeta_{1}^{2} + \zeta_{2}^{2}} \checkmark sin x = \frac{2\zeta_{1}\zeta_{2}}{\zeta_{1}^{2} + \zeta_{2}^{2}}$$

其中 $\lambda = 8/3\sqrt{3}$, ξ_1 , ξ_2 分别为在 0,1 区间服从均匀 分布的两个随机数. 正态分布的 M-C 抽样采用乘抽 样法,正态分布的方差可以在抽样过程中引入一个 参数 σ 来调整, β 分布的 M-C 抽样采用直接抽样 法.图 3 是 20000 个电子采用乘抽样法得到的电子 的位置正态分布曲线(横轴代表电子离轴距离,而纵 轴表示电子分布归一化强度),图 4 是初能量满足 β (1 *A*)分布的 M-C 统计抽样结果.

2.2. 基本参数的确定

抽取 3000 个初能量在(0—0.6eV)满足 β (1 A) 分布、初位置在 $Φ75\mu$ m(大于该范围内的电子会被 阳极孔挡住)范围内,且强度服从正态分布、仰角服 从(0°—90°)的余弦分布,方位角服从(0—2π)范围内 的均匀分布的电子,追踪这 3000 个电子的运行轨迹 以及到达最佳像面的时间分布,就可以最终确定飞 秒电子衍射系统的时间点扩展函数、时间分辨率,时



图 3 正态分布的 M-C 抽样结果



图 4 β 分布的 M-C 抽样结果

间调制传递函数,空间点扩展函数、空间分辨率、空间调制传递函数、电子会聚以后的束斑大小等参数.

最佳像面的确定:从图 4 可以看到,初能量在 (0—0.6eV)满足 β(1 A)分布的光电子其平均能量 约为 0.15eV. 取初能量为 0.15eV 的电子来确定飞 秒电子衍射系统的最佳像面、高斯像面以及极限像 面.最佳像面的定义为初能量为 ε,以仰角为 72.525°从阴极面光轴位置发射的电子和旋转对称 轴的交点所在的像面.电子束斑大小的确定:3000 个电子到达最佳像面时,电子离轴距离分布函数的 峰值半宽度.

电子脉宽的确定:3000 个电子到达最佳像面时,渡越时间分布函数的峰值半全宽度;或根据其调制传递函数来定义,当调制传递函数(MTF)的对比度降低到0.1 时所对应的时间频率的倒数.

调制传递函数的计算:调制传递函数是评价一 个成像系统整体性能的很好指标.在电子光学成像 器件中,当阴极上某一点发出的光电子由于其初始 发射角度以及初能量的不同,经过电子光学系统后, 不再会聚于一点,而是在空间弥散开来,形成一个弥散的圆斑,描述这个空间弥散的函数,就称为点扩展函数(PSF).其定义为从阴极面上一点发出的光电子达到像面时的二维分布函数.空间线扩展函数(LSF):从阴极面上一点发出的光电子达到像面时的一维分布函数(即点扩展函数沿某一积分维度积分,可以分为子午线扩展函数和弧矢线扩展函数),调制传递函数(MTF)和相位传递函数(PTF)计算方法为

$$\begin{split} \text{MTF} &= \sqrt{A_1^2 + A_2^2} \text{, PTF} = \text{tg}^{-1} (A_2/A_1) \\ A_1 &= \frac{\int\limits_{-\infty}^{+\infty} \text{LSFcos} (2\pi f \cdot \xi) \mathrm{d}\xi}{\int\limits_{-\infty}^{+\infty} \text{LSFd}\xi} \text{,} \\ A_2 &= \frac{\int\limits_{-\infty}^{+\infty} \text{LSFsin} (2\pi f \cdot \xi) \mathrm{d}\xi}{\int\limits_{-\infty}^{+\infty} \text{LSFd}\xi} \text{,} \end{split}$$

其中 f 为空间频率 , c 为子午或弧矢坐标 ,当计算时 间调制传递函数(TMTF)时则 f表示时间频率 而 ε 表示时间. 在带有时间分辨的成像系统中,既要考 察系统的空间调制传递函数(SMTF)又要考察系统 的 TMTF ,当需要考察扫描偏转以后成像质量时 ,还 需要计算成像系统的动态空间调制传递函数 (DSMTF)以及动态时间调制传递函数(DTMTF).动 态空间分辨率 :在一定的偏转电压下 从阴极轴线一 个理想点上发射出来的多个电子到达荧光屏上构成 一个弥散的圆斑,该圆斑的中心点为 γ₀,此时按照 静态 SMTF 的计算方法得到的调制传递函数就是 γ_{0} 点处的 DSMTF. 动态时间调制传递函数 DTMTF:在 给定的扫描速度 V 下 从阴极轴线一个理想点上发 射出来的多个电子到达荧光屏上时构成一个弥散的 小区域(假设沿扫描方向的长度是从 $\gamma_1 - \gamma_2$),则时 间线扩展函数 LSF_T 就是空间线扩展函数 LSF_s 的转 换,即LSF_r(t)=LSF_s(γ/V),即将沿扫描方向从 $y_1 - y_2$ 的坐标变量转化为从 $t_1 - t_2$ 的时间变量然 后再计算动态时间调制传递函数,

电子仰角分布(电子仰角分布也是一个关键参数,从电子衍射的角度来看,希望电子能够平行上靶最为理想),但实际上电子到达最佳像面上时,仰角有一定的分布,我们取3000个电子仰角分布的峰值半宽度作为角度分布范围.

时间分辨率是一个可分辨单元图像移动的时

3371

间,即一个对时间呈阶跃函数的光信号经过一个飞 秒电子衍射系统后,将会不可避免地具有一个有限 的上升时间.这个时间称为飞秒电子衍射系统的物 理时间分辨率 τ_1 ,它是辐射信号在电子衍射系统中 的转换和传输过程决定的.随着变相管技术的发展, 人们将时间分辨率分为物理时间分辨率和技术时间 分辨率两个部分,物理时间分辨率定义为电子在电 子衍射系统各个部分渡越时间弥散的总效果^[6],即 $\tau_{物理} = \sqrt{\sum_{i} \tau_i^2}$,而技术时间分辨率定义为 $\tau_{tkt} =$ ($v\sigma$)⁻¹,式中, σ 为扫描方向的静态空间分辨率, $v = K \cdot P$ 为扫描速度,K表示加在偏转系统上的扫描电 压随时间变化的斜率,P表示偏转系统的偏转灵敏 度,假定电子进入偏转板时能量为 $eV_a(V_a)$ 为阴极和 阳极的电位差),而平折板的偏转灵敏度为

$$\begin{split} P &= \frac{a_2}{2 V_{\rm a} (h_2 - h_1)} \bigg[\left(\frac{a_2 h_2}{h_2 - h_1} + L \right) \ln \frac{h_2}{h_1} - a_2 \\ &+ \frac{a_1}{2 V_{\rm a} h_1} \bigg(\frac{a_1}{2} + a_2 + L \bigg) \end{split}, \end{split}$$

这种公式的计算方法是相当粗略的,没有考虑边缘 场效应以及相对论效应. 通过追踪电子在加不同偏 转电压情况下在最佳像面处的偏转距离,该距离与 所加电压的比值就是偏转板的偏转灵敏度. 计算得 到的偏转灵敏度为 $1.97796 \times 10^{-5} \text{ m/V}$,图 5 是一个 平折板的结构示意图,其中 V_0 为加在偏转板的预 偏电压,而 $K(t - t_0)$ 为加在偏转板上的扫描电压, K 为斜坡电压的斜率, t_0 则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 5mm 的时刻,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.





总的时间分辨率为 $\tau_2 = \sqrt{\tau_{物理}^2 + \tau_{fxt}^2}$,对时间 分辨率的这种定义使我们能明显地看到飞秒电子衍 射系统各个组成部分对总的时间分辨率的影响程 度 上述的时间分辨率定义没有考虑空间电荷效应 引起的时间弥散,时间分辨率的最完美的定义为能 够分辨的两个事件的最小时间间隔为极限时间分辨 率 τ 对两个事件的分辨程度用瑞利判据来判断. 对于两个强度相同、时间间隔为 τ 的辐射脉冲,当 其调制度为 $C = V_m/V_n = 20\%$ 时, τ 为系统对这两个 脉冲可分辨的时间,这种定义体现了电子枪各组成 部分时间分辨特性的总体效果 ,为飞秒电子衍射系 统给出了一个统一的判别标准,在实验时,当输入 的脉冲宽度为 τ_0 时 ,荧光屏上输出的脉冲宽度 τ_{m} 可表示为 $\tau_m = \sqrt{\tau_0^2 + \tau^2}$,因此, $\tau = \sqrt{\tau_m^2 - \tau_0^2}$,就是 时间分辨率. 所以,测量飞秒电子衍射系统时间分 辨率最简单的方法是用与时间分辨率相比很窄的输 入脉冲(可近似视为 δ 脉冲),在输出屏上所测得的 脉宽即为时间分辨率,由于技术时间分辨率与探测 器的实际空间分辨率有关系 这里给出的是电子光 学系统的物理时间分辨率.

3. 设计结果

设计结果是诸多综合因素优化平衡的结果,首 先要考虑飞秒电子衍射系统的时间和空间分辨能 力、电子上靶时的角度分布 同时还要考虑现实的工 艺水准 磁透镜的磁饱和 并且给实验留有较大的调 整余地 例如既可以改变磁透镜的激磁电流 又可以 使得磁透镜前后有很大的调整空间 便于系统的优 化. 最后取阴极到透镜中心(磁极的隙缝中心)的距 离为 239mm 聚焦磁透镜的极间间隙取为 5mm 安匝 数为 1154 安匝, 阴极到最佳像面的距离为 503mm, 磁透镜磁极的内径为 Φ_{50mm} ,则计算得到的结果 为 图 6 和图 7 是电子到达最佳像面时在子午面和 弧矢面内的电子束斑大小,分别为 17.3µm 和 17.6µm. 图 8 是选择跟踪其中 11 个具有代表性的 电子的轨迹,在最佳像面前后移动 20mm 时,电子束 斑大小不超过 Φ 0.068mm. 图 9 和图 10 则为电子到 达最佳像面时方位角和倾角分布 其中方位角分布 范围为 - 0.089°---0.089°, 而倾角分布范围为 -0.082°--0.083° ,图 11 是电子到达最佳像面时的 时间分布,从图中可以看出,当不加扫描偏转板时, 在阴极上没有时间弥散的光电子由于初方位角、初 能量以及初位置的不同,经过电子光学系统以后到 达最佳像面 展宽为脉冲宽度为 300fs 的电子脉冲. 此时计算得到的电子脉宽以及电子束斑代表了飞秒



图 6 子午面内电子束斑的大小(d = 17.3µm)







图 8 11 条电子轨迹(x 为旋转对称轴,x = 0-504mm)

电子系统的静态空间分辨能力和物理时间分辨能 力. 然而人们往往更关心的是飞秒电子衍射系统的 动态特性:图 12 是加扫描电压以后,计算得到最佳



图 9 电子上靶方位角分布图(-0.089°--0.089°)







图 11 电子上靶倾角分布图(-0.082°-0.083°)

像面处离轴不同偏转距离的动态空间调制传递函数.表1是最佳像面处离轴不同偏转距离处得到的空间分辨率.从图12和表1的结果可以看出:尽管随着离轴距离的增加其 DSMTF 和空间分辨能力变得越来越差,但飞秒电子衍射系统中电子束很细,接



图 12 DSMTF 与偏转距离的关系



图 13 DTMTF 与扫描速度的关系

近满足理想电子光学的成像条件,就电子光学本身 来讲 不考虑探测器实际能达到的空间分辨率)其 动态空间分辨率比条纹相机的要高出许多,即使电 子束偏转到离轴 19.3mm 的距离时,其动态空间分 辨率还可以保持在 21 lp/mm. 图 13 是动态时间调制 传递函数与扫描速度的关系曲线图(对比度降低到 10%时的频率). 和 DSMTF 不同,动态时间调制传 递函数 DTMTF 并不是一味地随着扫描速度的增大 而变差,而是存在一个最佳的扫描速度 $V = 3.96 \times$ 10⁷ m/s,在该扫描速度下,电子枪具有最佳 DTMTF 和动态时间分辨率 图 13 和表 2 就反映了这种变化 关系,牛憨笨⁷¹曾经给出了很好的解释:在偏转板入 口处 电压梯度以及边缘场效应随时间的变化非常 快 电子脉冲时间弥散增大导致电子空间分辨能力 的降低 当扫描速度的增加速度低于空间分辨能力 变坏的速度时 技术时间分辨能力将不可避免地要 低于某一最佳值(比如 207fs),从表 2 中可以看出当 扫描速度增大到 1.19 × 10⁸ m/s 时,其技术时间分辨 能力下降到 400fs. 因此,该飞秒电子衍射系统能达 到的最高的总的时间分辨能力为 $au_2 = \sqrt{ au_{ extsf{hpt}}^2 + au_{ extsf{hpt}}^2}$

 $=\sqrt{300^2+207^2}=363$ fs.

表 1 动态空间分辨率与偏转距离的关系 (对比度降低到 10%的空间频率)

偏转距离 y/mm	2.24	3.2	6.4	9.6	19.3
空间分辨率(lp/mm)	> 200	168	81	52	21

表 2 动态时间分辨率与扫描速度的关系 (对比度降低到 10%时的频率)

扫描速度 v/(10 ⁷ m/s)	1.386	1.98	3.96	11.9
时间分辨率 $/ps^{-1}$	3.175	3.325	4.825	2.5
对应的物理时间分辨/fs	315	301	207	400

4.结 论

飞秒电子衍射系统的研制属于国内首次开展的 工作,从目前的设计指标来看,各项指标都优于或接 近美国的最新报道:电子上靶的角度小于 0.1°,电子 束斑大小为 17.5μm 左右,整个系统的物理时间分 辨能力达到 300f(阳极孔限制),技术时间分辨能力 可以达到 207fs,而动态空间分辨能力远高于探测器 本身的空间分辨能力,一般都在 50lp/mm 以上. 尽 管如此,该系统还可以做如下的改进:

1. 现在的磁透镜内径比较大,要在轴上产生较高的磁感应强度,激磁电流需要较大的安匝数,容易造成磁饱和以及发热等现象.可以缩小磁透镜的内径,增大轴上磁感应强度,减小磁透镜的焦距,使得整个电子光学系统的长度缩短,减小空间电荷效应,以进一步提高电子光学系统的时间、空间分辨率.

2. 整个设计并没有考虑光电子初始发射时的 时间弥散以及空间电荷效应,光电阴极由激光脉冲 激发,激光本身有一定的脉宽,光电子发射时会有一 定的时间弥散,同时空间电荷效应对时间展宽以及 空间展宽都有一定的影响,下一步可以在这方面做 更多的工作.不过我们现在的设计不管是时间或空 间分辨率都留有一定的裕量,即使考虑这两方面的 影响,也可以满足用户的需求,因为飞秒电子衍射系 统总体上属于弱流电子束范围,空间电荷效应不会 太明显.

感谢西安交通大学唐天同老师的悉心指导,也感谢光电 子学室工艺组的老师们.

- [1] Bradley J S , Jason R D , Robert E J et al 2003 Science 302 1382
- [2] Cao J , Hao Z , Park H et al 2003 Appli. Phys. Lett. 83 1044
- [3] Williamson J C , Cao J , Ihee H et al 1997 Nature 386 159
- [4] 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]
- [5] Pei L C Zhang X Z 1980 Monte Carlo Method and the application in the transport of particles (Beijing , Science Press) 100–114 (in

Chinese)[裴鹿成、张孝泽 1980 蒙特卡罗方法及其在粒子输运问题中的应用(北京 科学出版社)100—114]

- [6] Liao H 2000 Doctorial Dissertation (Xi'an Institute of Optics and Precition Mechanics) (in Chinese) [廖 华 2000 博士论文(西安 光机所)]
- [7] Niu H, Sibbett W, Baggs M R 1982 Rev. Sci. Instrum 53 563

Theoretical calculation of the modulation transfer function in a femoto-second electron diffraction system *

Tian Jin-Shou^{1)†} Zhao Bao-Sheng¹⁾ Wu Jian-Jun¹⁾ Zhao Wei¹⁾ Liu Yun-Quan²⁾ Zhang Jie²⁾

1 Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710068, China)

2 X Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China)

(Received 12 September 2005; revised manuscript received 17 October 2005)

Abstract

This article has introduces the basic components and characteristics of a femoto-second electron diffraction system , i.e. the photo-cathode , magnetic lens , deflector and detector with doubled MCP etc. , and demonstrated our design method and results. The photo-cathode is an Ag film deposition on a sapphire disk and the femtosecond electron pulses are accelerated to 50 keV through an extraction electric field of 10kV/mm between the photocathode and the extraction mesh. After extraction , the electron pulses are reshaped in size by a 100 μ m pinhole , which screens out electrons with larger elevation angle and makes the passed electrons flying almost parallel to the axis , which results in a reduced electron beam spot. The beam is collimated with a magnetic lens and positioned to the sample by a pair of deflection plates for diffraction measurements. The electron diffraction images are recorded with a two-dimensional imaging system composed of a Chevron-type microchannel plate and a P20 phosphor screen on an optical-fiber faceplate. The initial position , kinetic energy and angle distribution of the photoelectrons is sampled with finite elements methods , and the electron trajectory is traced with Runge-Kutta method. We analysized the temporal and spatial distribution of 3000 electrons when they reached the prime plane and give out the temporal and spatial modulation transfer function of the femoto-diffraction system.

Keywords : femotosecond electron gun , finite difference method , Monte-Carlo method , modulation transfer function PACC : 0781

^{*} Project supported by the Special Foundation for State Major Basic Research Program of China (Grant No. 10527002).

[†] E-mail:tianjs@hotmail.com