

电子脉冲在飞秒电子衍射系统中的传输特性^{*}

田进寿^{1)†} 赵宝升¹⁾ 吴建军¹⁾ 赵卫¹⁾ 侯洵¹⁾ 刘运全²⁾ 张杰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 11 月 28 日收到, 2006 年 5 月 21 日收到修改稿)

优化设计了一套超快电子衍射系统. 用轨迹追踪法讨论了光电子在阴极上有 150 fs 的时间弥散量, 及其静态、动态特性(电子束斑、时间弥散、方位角、倾角)在超快电子衍射系统中的传输情况. 用 Monte Carlo 方法对光电子的初始状态进行抽样、用有限差分法计算二维、三维空间电场分布, 用有限元法计算磁场分布.

关键词: 时间弥散, 空间弥散, 偏转板

PACC: 0781

1. 引言

物质状态、结构的变化, 化学或生物反应, 以及一些表面动力学过程等, 均来源于原子、分子、或离子的瞬态重组等. 例如, 厚度为 20 nm 的铝膜在光强度为 70 MJ/cm² 的激光照射下, 丧失长程有序到转化为只有短程原子之间相关的过程所需要的时间大概是 3.5 ps^[1], 单个原子的振动周期在 100 fs 到 1 ps 之间, 原子在这个时间段内的运动基本上就决定了固体中新相的形成、化学反应中动能的转移以及生物功能过程的完成. 所有这些变化过程, 包含着非常丰富的信息, 这些信息是在更深入的层次认识微观世界, 掌握微观过程的运动规律所必须的. 实时地反映这些变化过程, 已经成为当前科学研究的重要前沿之一. 超快电子衍射技术越来越多地应用于上述现象的研究工作, 是目前探测物质的状态、物质瞬态结构变化, 以及一些化学或生物学反应的不可或缺的实验手段^[2,3]. 主要特点是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. 理论上, 飞秒电子衍射系统的空间分辨率可以达到 0.001 nm^[4], 而实际的时间分辨率已经达到 300 fs^[4], 而且时间分辨能力可望进一步提高, 因为目前时间分辨能力为 200 fs 的条纹相机已有报道. 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、测量电子脉宽的同时扫描电路、图像读出系统及超高真空系统等. 本文是以前工作的继续和深入^[5], 对具有一定初时间弥散的电子脉冲(电子脉冲时间分布的峰值半宽度 FWHM 取 150 fs)在飞秒电子衍射系统中运行情况进行了分析, 即分析其到达最佳像面时的静态空间分布、时间分布、方位角以及仰角的分布情况, 同时分析了在扫描状态下(动态), 电子束斑的展宽情况, 最后给出了飞秒电子衍射系统的时间分辨能力以及在不同扫描速度下电子脉冲的展宽情况.

2. 基本原理、计算模型及方法

如图 1, 掺钽蓝宝石激光脉冲经过三倍频以后照射光电阴极(光脉冲的 FWHM 为 δ_1), 从光电阴极上发射出来的光电子, 其初始能量、方位角、仰角、初始位置以及初始时间弥散(此时电子脉冲的 FWHM 为 δ_2)都满足一定的统计分布. 光电子经栅网(栅极电压为 50 kV)加速后, 再由阳极小孔准直, 经过磁透镜聚焦轰击样品(此时电子脉冲的 FWHM 进一步展宽为 δ_3), 位于样品后面的双微通道板(MCP)增强器记录电子轰击样品时形成的电子衍射图样, 如果扫描偏转板处于直流偏置状态, 整个系统记录的是电子的静态衍射图像, 如果扫描偏转板上加有扫描

^{*} 国家自然科学基金重点项目(批准号: 10527002)资助的课题.

[†] E-mail: tianjs@hotmail.com

电压,此时不同时刻的电子衍射图将记录在荧光屏的不同位置上,可以根据不同时刻记录电子衍射图,利用布拉格方程反推样品在相变过程中晶格常数等参数的变化情况,这就是飞秒电子衍射系统的基本原理.光电子的初始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),光电子的初始能量一般认为服从 β 分布,当给定光电子的初能量、初位置、以及初始倾斜角分布

时,可以利用 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达到无穷大,因此 M-C 抽样结果是否可靠,必须得到验证.为了计算简便,不考虑光子与光阴极复杂的相互作用过程,而是认为由激光脉冲激发的光电子脉冲其时间弥散近似服从正态分布,且跟踪电子轨迹的计算是基于以下假设:

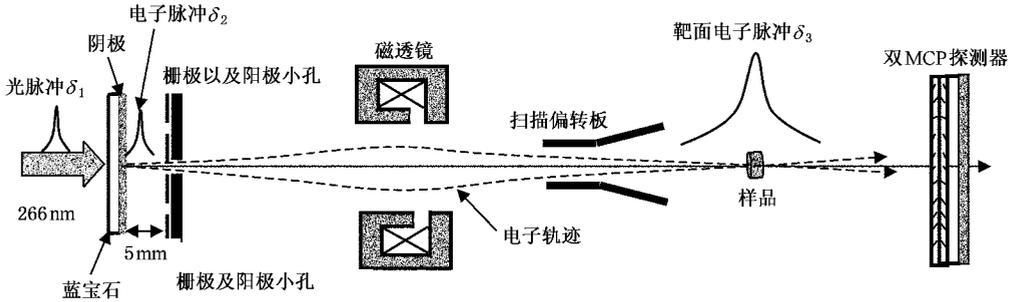


图 1 超快电子衍射系统

- 1) 光电子的初能量满足在(0—0.6 eV)上的 β (1/4)分布,该分布的 M-C 抽样采用直接抽样法.
- 2) 光电子的初位置满足在阴极上 $\Phi 75 \mu\text{m}$ (峰值半高宽 FWHM,同时也受限于直径为 $\Phi 100 \mu\text{m}$ 的阳极小孔)范围内的正态分布,正态分布的 M-C 抽样采用乘抽样法.方差可以在抽样过程中引入一个参数 σ_1 进行调整.
- 3) 光电子的初时间弥散认为满足脉冲宽度为 150 fs 的正态分布,正态分布的 M-C 抽样采用乘抽样法.方差可以在抽样过程中引入一个参数 σ_2 进行调整.
- 4) 光电子仰角服从(0—90°)的余弦分布,方位角服从(0—2 π)范围内的均匀分布的电子,余弦分布的 M-C 抽样采用积分抽样法.

在直角坐标系下,三维空间的 Laplace 方程有如下形式:

$$\frac{\partial^2 U}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} = 0. \quad (2)$$

上述方程的求解,如图 2,对于旋转对称场,采用 5 点差分公式($P_{\text{new}}, P_1, P_2, P_3, P_4$),而三维空间场(偏转场)的计算,采用 7 点差分公式($P_{\text{new}}, P_1, P_2, P_3, P_4, P_5, P_6$).

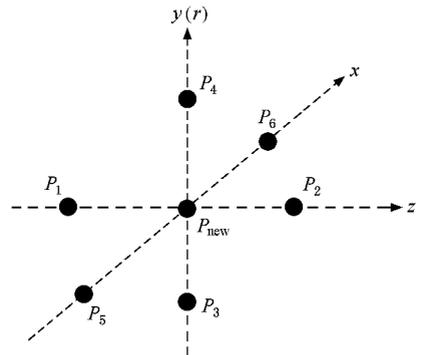


图 2 有限差分法网格点分布图

有限差分法是应用最早的一种电磁场数值分析方法,具有简单、直观等优点.有限差分法的基本原理是将连续区域内的点集用离散的点阵来代替,从而将求解电场的泊松方程(拉普拉斯方程)中的偏微商用相邻点之间的差分代替,经过这样的处理,就可利用数值方法迭代求解由差分方程组建的方程组而得到电场场强分布.

当区域的边界(电极或磁极表面)不规则时,或要求区域的不同部分的网格有不同密度或剖分方法时,有限差分法处理起来相当困难,有限元素法的网格划分有很大的灵活性,便于处理复杂的不规则边界问题、不规则网格划分问题、非齐次方程(空间电

当不考虑空间电荷分布时,旋转对称静电场中的拉普拉斯方程为^[6]

$$\frac{\partial^2 U}{\partial r^2} + \frac{\partial U}{r \cdot \partial r} + \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} = 0. \quad (1)$$

荷)问题和非线性介质(铁磁和铁电体)问题.磁透镜作为超快电子衍射系统中一个核心的部分,必须对其周围的磁场有较高精度的计算,采用有限元法计算磁透镜磁场分布.

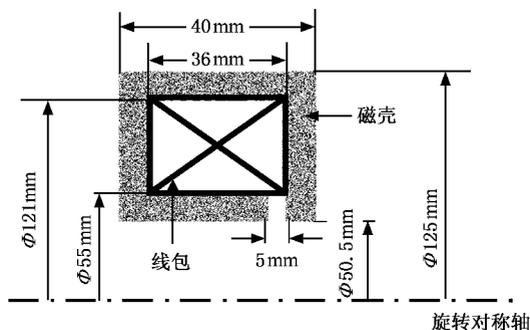


图3 磁透镜结构示意图

有限单元法选用磁矢量 A 计算磁场的分布,磁矢量 A 和磁感应强度 B 的关系为 $B = \nabla \times A$, 又由于 $B = \mu H$, 在旋转对称系统中, 矢量 A 和电流密度 J 都只有方位角方向的分量 A_θ, J_θ , 所以, 在圆柱坐标系中, 它的变分问题的泛函为

$$F = \iint_{\Omega} \left\{ \frac{1}{2\mu} \left[\left(\frac{\partial A_\theta}{\partial z} \right)^2 + \left(\frac{\partial A_\theta}{\partial r} + \frac{A_\theta}{r} \right)^2 \right] - J_\theta A_\theta \right\} 2\pi r dz dr. \quad (3)$$

在子午面内, 取 86 mm (r 方向) $\times 203 \text{ mm}$ (z 方向) 的矩形区域剖分单元格, 依据距离磁隙远近的不同, 取三种不同的剖分步长, 距离磁隙越近, 剖分越精细, 用有限元法计算磁透镜周围的磁场分布. 图4为当激磁电流为 $NI = 1193.66$ 安匝时, 磁透镜在轴上产生的磁感应强度分布.

当分别用有限差分法和有限元素法计算得到空间电场和磁场分布以后, 就可以用四阶 Runge-Kutta 法^[2]求解电子运动方程、追踪电子束的运动轨迹.

3. 设计结果

设计的电极结构参数为: 阴极到透镜中心(磁极隙缝中心)的距离为 239 mm , 聚焦磁透镜的磁隙为 5 mm , 安匝数为 1154 安匝, 阴极到最佳像面的距离为 503 mm , 磁透镜磁极的内径为 $\Phi 50 \text{ mm}$, 对 3000 个光电子进行了轨迹追踪, 计算得到的结果为: 图5是电子在最佳像面上的分布图. 表1为像面上不同区域范围内电子数占总跟踪电子数的百分比, 如果以占总电子数 50% 的区域来定义电子束斑的大小, 可

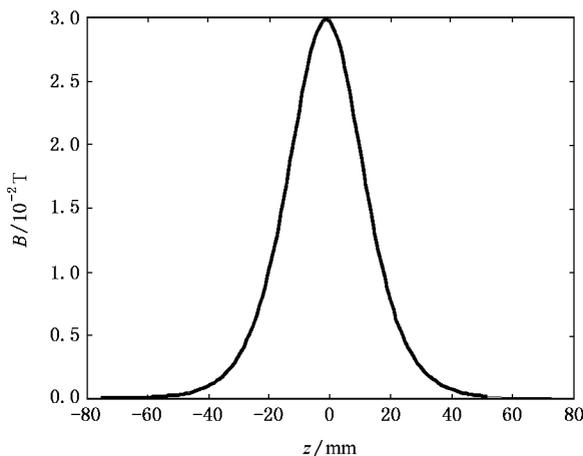


图4 磁透镜在轴上产生的磁感应强度分布($NI = 1193.66$)

以得到具有初时间弥散为 150 fs 、经过阳极小孔约束的电子束到达靶面的束斑分布在长度为 $25 \mu\text{m}$ 的方形区域内. 当采用同样的方法来确定没有初时间弥散的电子束斑在最佳像面的大小的时候, 发现 50% 的电子分布在边长为 $24 \mu\text{m}$ 的方形区域内. 说明电子初时间弥散对电子在空间上的展宽效应也不明显. 图6和图7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 -0.085° — 0.089° , 而倾角分布范围为 -0.08241° — 0.08241° , 这两个角度的大小直接关系到测量系统的空间分辨率. 因此, 电子束斑尽可能小不是我们追求的唯一指标. 图8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, 在阴极上具有 150 fs 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 300 fs 的电子脉冲, 这跟没有初时间弥散的结果相当, 只是时间分布变得更对称, 出现这种现象的主要原因是电子脉冲的脉宽由电子发射位置、时间、方向、空间电荷效应以及整个电子光学系统共同决定的, 那些发射相对较早的电子不一定总是平行于旋转对称轴运行, 如果它是以较大的角度发射, 它到达最佳像面的时间也不一定比那些发射较晚但沿轴线运行的电子早, 所有上述因素综合作用的结果, 导致光电子时间弥散并没有明显的展宽效应(和无初时间弥散情况相比). 然而人们往往更关心超快电子衍射系统的动态特性, 即电子束通过扫描偏转板以后, 其空间弥散以及时间弥散情况. 这就要求扫描偏转板具有良好的偏转线性(偏转距离与偏转电压的关系)和扫描线性(偏转距离与

扫描电压随时间变化斜率的关系)扫描偏转线性的好坏直接关系到偏转板以后的电子图像是否存在信息缺失或扭曲.图9和图10分别是利用轨迹追踪法得到的偏转线性性和扫描线性曲线,可以看出,无论是扫描线性还是偏转线性都是非常理想的.另外用两种方法计算了平折板的偏转灵敏度,一种是用平折板偏转灵敏度公式计算^[5],得到的偏转灵敏度为 $P = 1.8375 \times 10^{-5} \text{ m/V}$,而利用轨迹追踪法得到的偏转灵敏度为 $P = 1.97796 \times 10^{-5} \text{ m/V}$,公式计算并没有考虑偏转板入口和出口处电场的外溢,因此轨迹追踪法得到的结果更准确一些.图12是加扫描电压以后,计算得到最佳像面处离轴不同偏转距离的动态空间调制传递函数.表2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11和表2的结果可以看出,初时间弥散使得飞秒电子衍射系统的

空间分辨率有微弱的下降.尽管如此,即使电子束偏转到离轴 19.3 mm 的距离,其动态空间分辨率还可以保持在 20 lp/mm.图12是电子脉冲宽度的倒数与扫描速度的关系曲线图(对比度降低到 10% 时的频率),可见脉冲宽度为 150 fs 而在阴极上无空间弥散的光电子脉冲,在不同的扫描速度下,电子脉冲宽度分布在 220 fs—435 fs 之间,在最佳扫描速度 $3.96 \times 10^7 \text{ m/s}$ 下,使动态电子脉冲宽度被压缩到 220 fs.因为在偏转板入口处,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大于空间分辨能力变坏的速度时,电子脉冲的宽度将得到压缩.从表3中可以看出当扫描速度增大到 $1.19 \times 10^8 \text{ m/s}$ 时,电子脉冲宽度增大到 435 fs,不过在这样高的扫描速度下,电子束斑在最佳像面上会偏离光轴 19.3 mm,这在实际实验中很少用到.

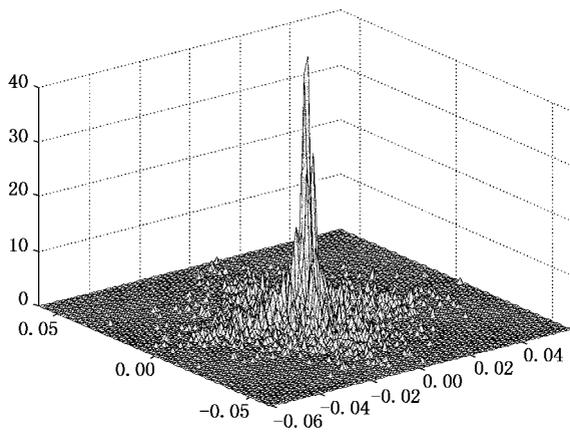


图5 电子束斑在靶面上分布的三维图像

表1 电子束斑大小的确定

位置范围/ μm	± 0.72	± 12	± 13.2	± 19.2	± 25.2	± 31.2
百分比/%	30	49.13	53.4375	70	82	90

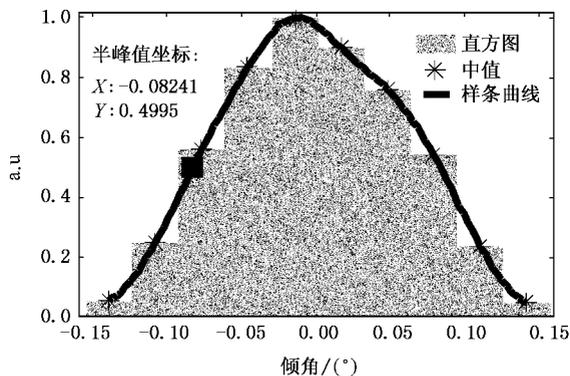


图6 电子上靶倾角分布图(-0.08241° — 0.08241°)

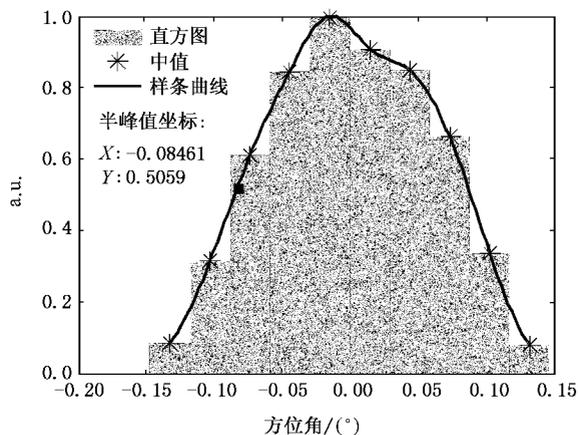


图7 电子上靶时方位角分布(-0.085° — 0.089°)

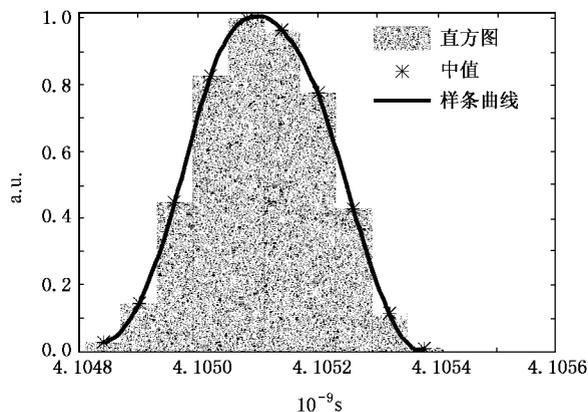


图8 宽度为 150 fs 电子脉冲上靶时的脉冲宽度($\tau = 300 \text{ fs}$)

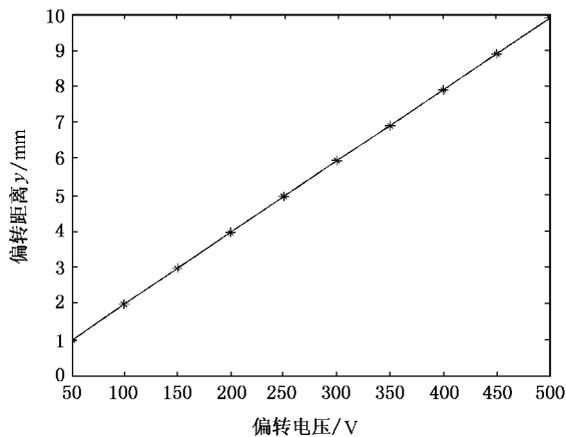


图 9 偏转距离与偏转电压的关系

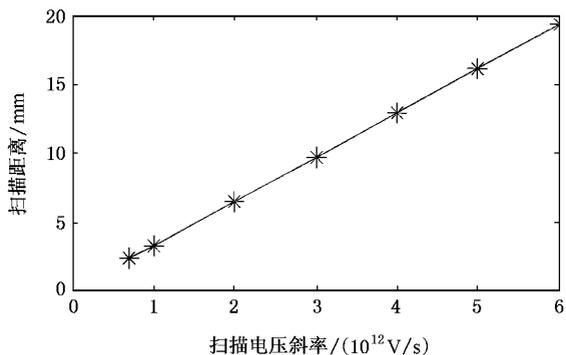


图 10 扫描距离与扫描电压斜率的关系

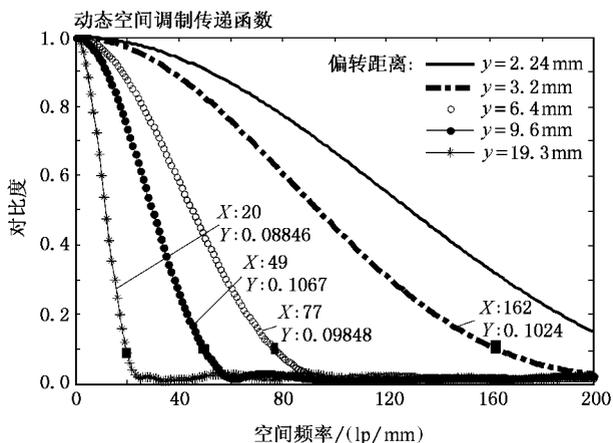


图 11 动态空间调制传递函数与偏转距离的关系

表 2 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	162	77	49	19

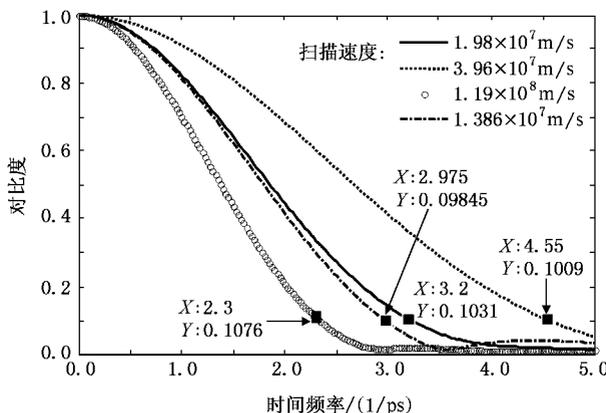


图 12 初时间弥散为 150 fs 的电子脉冲在靶面上的展宽效应

表 3 脉冲宽度与扫描速度的关系
(对比度降低到 10% 时的频率)

扫描速度 $v/(10^7 \text{ m/s})$	1.38	1.98	3.96	11.9
脉冲宽度的倒数 $/\text{ps}^{-1}$	2.975	3.2	4.55	2.3
脉冲宽度 $/\text{fs}$	336	313	220	435

4. 结 论

优化设计了一套超快电子衍射系统,用轨迹追踪法讨论了光电子在阴极上有 150 fs 的时间弥散时,其静态、动态特性(电子束斑、时间弥散、方位角、倾角)在整个飞秒电子衍射系统中的传输情况.电子脉冲的形状、脉宽是由电子发射位置、时间、方向以及空间电荷效应以及整个电子光学系统共同决定的,因此具有较小初时间弥散(比如脉宽 $\delta = 150 \text{ fs}$)的电子脉冲,无论在静态或者是动态情况下,经过超快电子衍射系统以后,能够保持较高的时间和空间分辨能力(和无初时间弥散情况相比).

感谢西安交通大学唐天同老师的热心指导,也感谢光电子学室工艺组的老师们.

- [1] Cao J , Hao Z , Park H , Tao C *et al* 2003 *Applied Physics Letters* , **83** 1044
- [2] Siwick B J , Dwyer J R , Jordan R E *et al* 2003 *Science* **302** 1382
- [3] Charles Williamson J , Cao J M , Hyotcherl Ihee *et al* 1997 *Nature* **386** 159
- [4] Ihee H , Lobastov V A , Comes U M *et al* 2001 *Science* **291** 458
- [5] Tian J S , Zhao B S , Wu J J *et al* 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 7 (in Chinese) 田进寿、赵宝升、吴建军等 2006 *物理学报* **55** 7]
- [6] Yu H S 1997 *Analysis of Engineering Electronic-magnetic Field & Compute Method* (Beijing : People 's Traffic Press) 216—405(in Chinese) 郁宏生 1997 *工程电磁场分析与计算方法*(人民交通出版社) 第 216—405 页]

Transfer property of electron pulse in a femto-second electron diffraction system

Tian Jin-Shou^{1)†} Zhao Bao-Sheng¹⁾ Wu Jian-Jun¹⁾ Zhao Wei¹⁾ Hou Xun¹⁾ Liu Yun-Quan²⁾ Zhang Jie²⁾

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

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

(Received 28 November 2005 ; revised manuscript received 21 May 2006)

Abstract

An ultra-fast electron diffraction system has been designed. The static and dynamic characters of an electron pulse with 150 fs temporal dispersion are studied during its transmission in the whole ultra-fast electron diffraction system , including the size of the electron spot , temporal dispersion , distribution of azimuths and elevation angles. The initial status of the photoelectrons are put down by Monte Carlo method , both the two dimensional and three dimensional electric fields are calculated by finite difference method and the magnetic flux are calculated by finite element method.

Keywords : temporal dispersion , spatial dispersion , deflector

PACC : 0781

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

† E-mail : tianjs@hotmail.com