

激光蒸发的脉冲原子束及其光谱应用

张延平 胡企铨 舒海珍 林福成

(中国科学院上海光机所)

提要: 实验上从原子束的角度系统地研究了激光蒸发的原子蒸气。利用这种脉冲原子束实现了难熔金属原子的多光子光电离实验, 并讨论了光电离信号探测的问题。

Laser-evaporated pulsed atomic beams and its application

Zhang Yanping, Hu Qiquan, Su Haizheng, Lin Fucheng

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

Abstract: The laser-evaporated atomic vapor was studied experimentally with a view to obtain an atomic beam. The signals of multiphoton ionization of refractory metal atoms obtained with the pulsed atomic beam were observed and their detection was discussed.

一、引言

在非线形激光光谱领域, 人们采用多束激光对原子进行选择激发及光电离, 实现了原子的高激发态(特别是里德拜态、自电离态)光谱研究。应用这些研究成果, 实现激光原子法分离同位素及物质中痕量元素的测定。对于这些研究及应用工作, 原子束装置是必要的。传统上采用加热的方法(例如欧姆加热、电子枪轰击等)来获得原子束源, 对于难熔金属, 这种加热法对原子束装置的材料及工艺要求高, 使得装置复杂并且造价高。如果样品是放射性元素, 在防护上也较困难。为此, 我们在实验室的规模上设计一种小型的激光蒸发的脉冲原子束装置。利用它在实

验室里可以开展对难熔金属高激发态的光谱研究, 它进一步可以发展成为激光质谱仪。本文介绍我们对激光蒸发的脉冲原子束的实验研究及利用该原子束实现难熔金属原子的非共振多光子光电离实验。

二、脉冲原子束的研究

整个装置由玻璃封闭系统构成, 图1为原理图。蒸发激光设计与靶面成 45° 角入射, 一方面, 为了装置设计上的方便; 另一方面则为减少蒸发物对入射窗口的沾污以及激光与光羽的相互作用。调Q YAG 激光振荡输出的 $1.06\ \mu\text{m}$ 激光脉冲作为蒸发光, 经透镜聚焦于靶面上蒸发产生中性原子蒸气, 焦

收稿日期: 1985年9月13日。

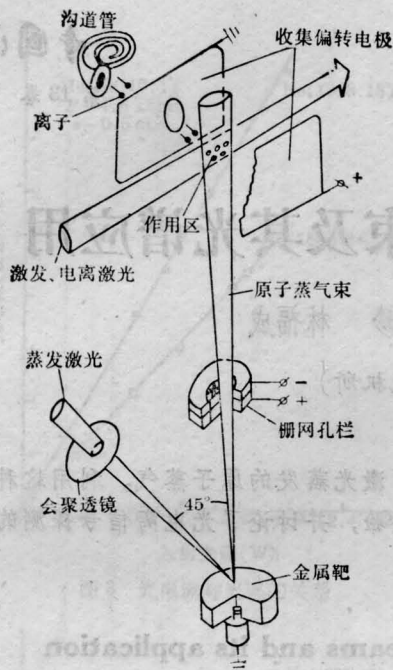


图1 激光蒸发的脉冲原子束装置原理图

斑功率密度 $10^8 \sim 10^9 \text{ W/cm}^2$ 。作用区距靶约 200 mm, 并有两块 0.5 mm 厚纯铜板制成的平行平板电极做为偏转和收集带电粒子用, 其中一块电极板上钻有一小孔, 电极板加一定的偏转电压可以使在作用区产生的信号离子穿过小孔进入沟道管放大。沟道管设计在垂直于扩散方向上, 是为了避免受到蒸气中带电粒子的迎面轰击。放大后的信号送到装置外的检测系统进行测量。

实验采用激光蒸发沉积的方法测量蒸气的角分布。蒸发室的真空度约 $5 \times 10^{-3} \text{ Torr}$, 样品靶为黄铜。在靶垂直上方 11 mm 处悬一块光学玻片来沉积激光蒸发的金属蒸气。在激光脉冲蒸发 100 次后, 玻片上已经明显地镀上一层黄铜膜。通过对膜片的透射率分布的测量, 得到相对膜厚度分布, 由此得到扩散蒸气的角分布(典型的结果如图 2), 图中虚线是外推的。根据角分布得到平均半强度角 $\bar{\theta}_{1/2} = 37.12^\circ$ 。与一般加热方法得到的原子蒸气通过厚度为 l 、宽度为 d 的狭缝准直后的角分布^[2]相比较发现: 激光蒸发的蒸

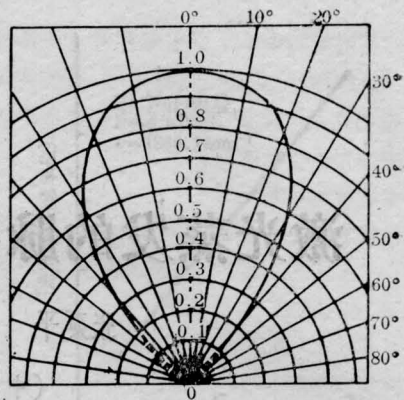


图2 激光蒸发的蒸气扩散角分布

气扩散角分布相当于经过 $l/d = 0.5 \sim 1$ 狭缝准直后的一般原子束的角分布, 这说明激光蒸发的蒸气在扩散中本身具有一定的方向性。因此, 它可以做为一种粒子束。根据 Knudsen 余弦定律^[2]

$$dm = \frac{m}{\pi} \cdot \cos \theta \cdot d\omega \quad (1)$$

式中 m 是单位时间蒸发质量, θ 为立体角 $d\omega$ 与靶面法线所成的夹角。这样, 在与靶面平行的玻片上沉积膜厚度的角分布为

$$z(\theta) \propto \cos^2 \theta \quad (2)$$

比较实验测得的结果(其中每一个值都是在四个不同方向上的平均结果), 参见表 1 可以看出, 在 θ 角度较小时, 实验结果与(2)式符合得很好; 当 θ 角度较大时, 实验值偏小。这是由于固定在一块上的蒸发形成凹陷而使得蒸镀分布图形发生收缩^[3]。这说明激光蒸发在靶上形成一个瞬态的蒸气面源。根据蒸发量推算在作用区原子蒸气密度下限为 $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ 。

表1 实验测得沉积黄铜膜平均厚度分布(归一化)

θ	0°	10°	20°	30°	40°
平均厚度	1	0.97	0.88	0.68	0.43
$\cos^2 \theta$	1	0.97	0.88	0.75	0.58

实验上利用电信号的测量并考虑位移电流效应, 获得带电粒子从靶至作用区的渡越时间, 推算带电粒子的飞行速度为 3×10^6

cm/s。这与文献[4]用飞行时间测得的离子速度基本上一致,也与文献[4]给出的光羽前沿扩散速度基本一致。这说明带电粒子速度较快,集中分布在蒸气脉冲的前部。

为了获得更多脉冲原子束的特性,实验研究蒸发光羽的时间空间分辨发射谱。蒸发室的真空度保持在 10^{-5} Torr 以上,样品靶为黄铜。蒸发光羽用焦距 $f=140$ mm 的透镜成象于半米的光栅单色仪的入口狭缝上。透镜固定在带有刻度的平移滑块上,可精确地改变光羽象的位置,精度达 0.1 mm。图 3 给出典型的时间空间分辨发射谱。由图 3 可见,波形(a)具有较明显的双峰结构,其中第一个峰来自光羽的连续背景发射,第二个脉冲来自 CuI521.8 nm 谱线的发射。随着光羽向外扩散,连续背景很快消失,它一般只存在于靶面附近 1.0 mm 范围。第二个脉冲波形所围的面积即表示在空间某一点处光羽(对时间积分)的谱线强度,其单调地减少意味着在真空下脉冲原子束中粒子在扩散中没有发生非弹性碰撞的激发过程。因此,认为第一个连续背景峰来自于炽热光羽的热辐射,第二个脉冲波形在扩散中后沿逐渐地拉长,这是由于蒸气中粒子的速度分布引起的。由脉冲波形的上升时间变长推算激发态粒子的最可几速度为 2×10^5 cm/s 左右,这与文献[5]用激光感生荧光法获得中性自由原子密度分布时间特性而推算出的基态中性原子最可几速

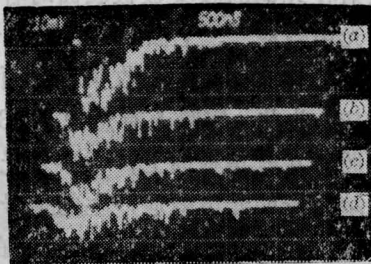


图 3 真空下光羽 521.8 nm 发射波形的空间变化规律

各波形离靶距离: (a) 0; (b) 0.5 mm; (c) 1.0 mm; (d) 1.5 mm

度完全一致。可见在脉冲原子束中大多数中性自由原子的速度比带电粒子的速度小。由于存在级联过程及辐射俘获过程,由图 3 光羽的时间分辨发射谱可见光羽中激发态粒子的存在时间延长了。进一步在蒸发室里充入一定气压的某种缓冲气体(例如 He、Ne 或 Ar),实验发现此时在光羽外围有发光云产生。对缓冲气体原子的激发谱波形的空间变化规律研究表明,激光照射靶时,在产生原子蒸气之前热发射产生一个快电子脉冲,这些快电子碰撞激发了缓冲气体原子从而形成了光羽外围的发光云。在缓冲气体原子发射谱中对应较高激发电位的谱线有: Ne I 585.2 nm (激发电位 18.96 eV), He I 587.6 nm (激发电位 23.07 eV)。如果认为这些谱线的上能级粒子都通过相应的亚稳态 (Ne $1S_5$ 、 $1S_3$, He 2^1S_0 , 2^3S_1) 级联激发,而 Ne $1S_5$ 、 $1S_3$ 和 He 2^1S_0 , 2^3S_1 等亚稳态的激发电位约为 17 eV,因此,这些快电子至少应具有 17 eV 的能量。

以上的实验研究表明,激光照射金属靶时,首先由热发射产生一个较高能量的快电子脉冲,然后激光蒸发产生一个面源提供脉冲原子束。由于束中带电粒子速度较大而大部分集中在脉冲原子束的前部;而大多数中性自由原子速度较慢,它们与带电粒子的密度分布并不相同(见下文)。文献[7]曾经根据实验测得的激光单脉冲产生的电子发射脉冲波形认为在蒸气束之前有一快电子脉冲产生,并且用减速势的方法测得快电子具有 14.5 eV 的能量。显然,两种方法得到的结论大体一致。

因为在激光蒸发产生脉冲原子束的同时,伴随着部分带电粒子产生。要利用脉冲原子束研究原子的多光子光电离,带电粒子的存在必然要干扰光电离信号的检测。要充分抑制掉蒸气中带电粒子,只有适当地减少蒸发激光的功率密度。这意味着要抑制掉带电粒子势必要减少原子蒸气的密度。

三、脉冲原子束的应用: 难熔金属原子的多光子光电离

蒸发激光仍然用调 Q YAG 激光振荡输出的 $1.06 \mu\text{m}$ 激光脉冲, 用焦距 $f=110 \text{ mm}$ 透镜聚焦于难熔金属 (Cu、Al) 靶面上, 焦斑功率密度约 10^9 W/cm^2 。让脉冲原子束在 10^{-5} Torr 的真空中飞行。用于光电离的激光是另一调 Q YAG 激光振荡两次放大后经 KDP 晶体倍频产生的 $0.53 \mu\text{m}$ 激光脉冲, 脉宽 15 ns , 它相对蒸发光有一可调延时 (范围 $200 \text{ ns} \sim 16 \mu\text{s}$)。延时的 $0.53 \mu\text{m}$ 激光垂直于原子束飞行的方向入射, 并由焦距 $f=100 \text{ mm}$ 透镜聚焦于作用区, 焦斑功率密度为 $3 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 。用收集平板电极直接收集光电离产生的光电子, 此时收集板极只加少量偏转直流电压 ($\sim 1.2 \text{ V}$) 或不加电压, 接收到的信号直接由宽带示波器显示。图 4 给出典型的多光子光电离信号的观察情况。图中 (d) 迹信号是光二极管接收 $1.06 \mu\text{m}$ 和 $0.53 \mu\text{m}$ 激光的散射光产生的, 用来监视 $1.06 \mu\text{m}$ 激光与 $0.53 \mu\text{m}$ 激光间的延时。在蒸发激光稍后出现的 (b) 迹信号是快电子脉冲引起的, 空间电荷效应使信号变得杂乱。(c) 迹信号是在 $1.06 \mu\text{m}$ 激光产生脉冲原子束后照入 $0.53 \mu\text{m}$ 激光得到的信号。与 $0.53 \mu\text{m}$ 激光同步出现的小峰就是要观察的多光子光电离信号。(a) 迹信号则是在没有原子蒸

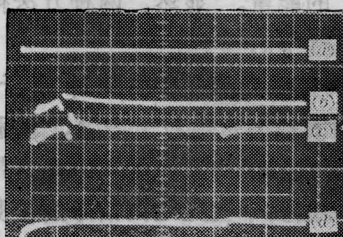


图 4 非共振多光子光电离信号的观察
(a) $0.53 \mu\text{m}$; (b) $1.06 \mu\text{m}$; (c) $1.06 \mu\text{m}$ 、 $0.53 \mu\text{m}$; (d) 延时监视 ($1.06 \mu\text{m}$ 和 $0.53 \mu\text{m}$ 表示入射激光波长)。(a)、(b)、(c) 的标尺为 10 mV/div , (d) 为 20 mV/div

气时单独照入 $0.53 \mu\text{m}$ 激光, 没有信号说明背景气体 (10^{-5} Torr 惰性气体) 的多光子光电离在现在的实验条件下可以忽略。观察到的光电离信号属于非共振多光子光电离信号, 因为不论 Cu 还是 Al 的原子能级和多光子的能量间最小的能量差 (失谐量) 都远大于 $0.53 \mu\text{m}$ 激发光的线宽。

改变 $0.53 \mu\text{m}$ 激光的延时实验发现: 直至最大延时 $16 \mu\text{s}$, 光电离信号的幅值始终不变。显然, 光电离信号不可能来自 Cu 或 Al 的高激发态原子单光子或双光子电离, 因为以上研究已表明: 即使存在级联过程及辐射俘获, 高激发态的存在时间也不会超过 $1 \mu\text{s}$ (见图 3)。对于 Cu 的光电离信号是否可能来自亚稳态 ($3d^9 4s^{22} D_{5/2, 3/2}$) 原子的三光子光电离? 为此, 实验上把 $0.53 \mu\text{m}$ 激光分为两束, 其中一束用来泵浦染料获得波长为 578.2 nm 的激光, 功率 $\sim 10^5 \text{ W}$, 线宽为 0.02 nm , 它的波长由空心阴极 Ne-Cu 灯的脉冲光电流效应定标。把 578.2 nm 激光与另一束 $0.53 \mu\text{m}$ 激光共束后照射 Cu 原子束, 结果未发现信号增强。这表明 Cu 的光电离信号主要不是来自 Cu $3d^9 4s^{22} D_{5/2, 3/2}$ 亚稳态原子的三光子光电离。再者, Cu 和 Al 的第二电离势 (Cu, 20.29 eV ; Al, 18.82 eV) 都远高于各自的第一电离势, 光电离信号来自一价基态离子的可能性极小。另一方面, 由于 Cu 的脱出功为 $4.47 \text{ eV}^{[6]}$, 当 $0.53 \mu\text{m}$ 激光照射在纯铜的收集板极表面时容易产生多光子光电效应^[7]。上面观察到的信号是否可能来自 $0.53 \mu\text{m}$ 激光在收集板表面引起的光电效应? 为此, 实验上有意把 $0.53 \mu\text{m}$ 激光直接照射在收集板面上, 考察多光子光电效应, 结果表明光电效应产生的信号幅值远比光电离信号的大。两者根本的区别在于: 当没有原子蒸气时, 光电效应可由 $0.53 \mu\text{m}$ 激光单独产生, 而光电离信号则不可能, 图 4(a) 迹无信号也证实了这一点。总之, 多光子光电离信号来自 Cu 或 Al 的基态原子的光电

离,改变延时信号幅值不变,说明中性自由原子存在时间相当长($>16\mu\text{s}$),并且由于速度分布它们的密度分布变得平坦。

由于顾及原子蒸气密度而未对蒸气中带电粒子进行抑制,它们对光电离信号的探测有较大的干扰。实验上在改变收集平板电极上的偏转电压时发现,当不加偏转电压时,干扰信号主要来自热发射的快电子(见图4(b));当偏转电压为1.2V时,由于蒸气中存在的微等离子体使得干扰信号明显地增大并且在时间上拉长,此时,光电离信号迭加在干扰信号脉冲的大包络之上(见图5);当偏转电压增加至45V时,干扰信号进一步增大,把光电离信号湮没了。可见,带电粒子的存在对收集板极上信号探测有很大的影响,采用沟道管探测信号遇到了同样的问题。实验上移动会聚 $0.53\mu\text{m}$ 激光的聚焦透镜来改变作用区时发现:当作用区接近收集平板电极时,光电离信号变大;而当作用区分别靠近两块收集板极时,相应的二个光电离信号脉冲极性相反(参见图5),这与上面对信号探测的解释相符合。同时,用激发光触发一个

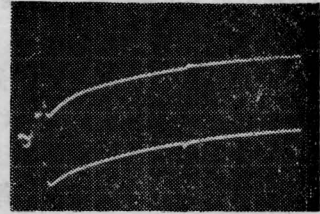


图5 作用区分别靠近两块收集板时
光电离信号脉冲的符号变化
此时加1.2V直流收集电压

脉冲电压做为收集电压加在收集板极上,这样可以减少干扰信号并增加光电子的收集。

参 考 文 献

- [1] L. Valyi; "Atom and Ion Sources", Akademiatt Kiado, Budapest, 1977, p. 85.
- [2] L. Holland; "Vacuum Deposition of Thin Films", 1956, Chap. 5, p. 141.
- [3] B. M. Дубков; "激光科学与技术", 1984, 7, 72.
- [4] J. F. Ready; *Appl. Phys. Lett.*, 1963, 3, 11.
- [5] H. C. Meng, H-J. Kune; *Phys. Fluids*, 1979, 22, 1082.
- [6] W. L. Knecht; *Appl. Phys. Lett.*, 1965, 6, 99.
- [7] "American Institute of Physics Handbook", McGraw-Hill, New York, 1975, Sect. 9.
- [8] 殷立峰等; «光学学报», 1984, 4, 994.

(上接第760页)

式(8)的计算如图4所示。在 $\frac{r}{r_1} < \frac{r_v}{r_1}$ 的区域内密度为零; V_θ 和 V_z 都不变,合成速度达到极限速度

$$\frac{V}{a_*} = \frac{(V_\theta^2 + V_z^2)^{\frac{1}{2}}}{a_*} = \left(\frac{\gamma+1}{\gamma-1}\right)^{\frac{1}{2}} = 2.45$$

结 论

1. 气旋可以大幅度地影响流经喷管的流量。在压力比 $\frac{p_1}{p_0} \leq 0.1$ 的情况下,合适的气旋可以使流量降低到无气旋时的10%以下。

2. 由于气旋建立的径向压力梯度,使流动参数沿径向有剧烈的变化。在同一截面,轴向流速沿径向的分布可以从亚音速到超音

速,这是和无气旋情况有本质区别的。

3. 由于气旋,在出口截面 $r=r_1$ 处,轴向速度有可能在一定条件下为零,在该半径处流动为之阻塞。这时在该点的压力可以达到临界值以下,这也是和无气旋情况有本质区别的。后者在收缩型喷管的情况下,即使外界压力再低,出口截面总维持在临界值,即

$$\frac{p_{\text{临界}}}{p_0} = \left(\frac{2}{\gamma+1}\right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}}$$

4. 应用气旋于大功率气体激光的气动窗口,可能可兼取二个好处:i)由于流量下降,节省了抽气功率,或在同样流量下可以扩大通道面积。ii)加快了轴向衰减,缩短了气动窗口的长度。至于中心区的低密度并沿径向参数有变化对光束通过时对光质的影响还有待进一步实验确定。