



·强激光物理与技术·

激光驱动的多层膜复合靶 M 带辐射光谱研究*

谭伯仲, 李英华, 张 林, 李建明, 阳庆国

(中国工程物理研究院 流体物理研究所, 四川 绵阳 621900)

摘 要: 时间分辨 X 射线吸收精细结构谱技术需要产生高亮度、均匀、宽光谱的 X 射线源。单一靶材产生的 M 带辐射源亮度高, 但均匀性较差, 因此提出了一种使用多种金属材料制备的多层膜复合靶产生 M 带辐射的方案。针对 Si 的 K 边 X 射线吸收谱实验, 根据前期单一靶材 M 带光谱实验数据理论计算了最优的材料比例, 制备了 Au、Yb、Dy 三种材料组成的多层膜复合靶, 并在神光 II 激光装置上开展了脉冲激光驱动的多层膜复合靶辐射光谱测量, 实验结果和理论计算基本一致。相比单一靶材, 多层膜复合靶产生的 M 带辐射源具有光谱宽、整体亮度均匀的优点, 在时间分辨 X 射线吸收精细结构谱中具有较大的应用潜力。

关键词: 光谱学; X 射线吸收精细结构; 多层膜; 复合靶; M 带辐射

中图分类号: 0436

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202335.230018

Study on M-band radiation spectrum of laser driven multilayer composite target

Tan Bozhong, Li Yinghua, Zhang Lin, Li Jianming, Yang Qingguo

(Institute of Fluid Physics, CAEP, Mianyang 621900, China)

Abstract: Time-resolved X-ray absorption fine structure spectrum technology needs to produce X-ray source with high brightness, uniform and wide spectrum. The M-band radiation source generated by an elementary target has high brightness, but poor uniformity. Therefore, this paper proposes a scheme to generate M-band radiation using a multilayer composite target prepared by a variety of metallic materials. For the K edge X-ray absorption spectroscopy experiment of Si, the optimal material ratio was theoretically calculated according to the previous elementary target M-band spectrum experiment data, and the multilayer composite target composed of Au, Yb, Dy was prepared. The radiation spectrum measurement of the multilayer composite target driven by pulse laser was carried out on the Shenguang II laser facility, and the experimental results were basically consistent with the theoretical calculation. Compared with an elementary target, the M-band radiation source generated by multilayer composite target has the advantages of wide spectrum and uniform overall brightness, and has great application potential in time-resolved X-ray absorption fine structure spectroscopy experiments.

Key words: spectroscopy, X-ray absorption fine structure, multilayer, composite target, M-band radiation

时间分辨 X 射线吸收精细结构 (TXAFS) 是研究电子-晶格非平衡动力学、晶体结构相变、稠密物质电离等过程的重要微观诊断手段, 在高压物态方程、温稠密物质、激光惯性约束聚变等研究领域具有广泛的应用前景。

TXAFS 实验需要高光子数 (样品处大于 10^5 photon/eV)、短脉宽 (小于 1 ns)、宽光谱 (约 500 eV)、光谱亮度均匀的 X 射线源, 产生满足要求的光源十分困难, 是当前制约 TXAFS 技术应用的主要瓶颈^[1]。当前用于 TXAFS 实验的主要有以下几种 X 射线源: (1) 高重频 X 射线源: 利用桌面式飞秒激光器产生的高次谐波^[2]、热辐射/韧致辐射^[3]以及时间切片的同步辐射技术^[4], 获得的 X 射线源具有超快时间分辨, 但是单发光子数极低, 需要重频实验积分才能得到高信噪比的 TXAFS。激光惯性约束聚变等研究领域的动态实验成本高、时间间隔长、重复精度低, 高重频 X 射线源难以应用于这类实验; (2) 同步辐射 TXAFS 线站: 最近欧洲同步辐射装置升级了用于 TXAFS 实验的

* 收稿日期: 2023-02-03; 修订日期: 2023-05-11
基金项目: 国家自然科学基金项目 (12004354)
联系方式: 谭伯仲, tan0814@163.com。
通信作者: 阳庆国, yungore@163.com。

ID24 线站^[5-7], 样品处的单发光子数提高到 10^{14} photon/s, 具有宽光谱、微焦斑、高稳定性、高能量分辨率等优点, 结合脉冲激光加载技术, 在极端条件下的物质研究领域具有极大潜力。目前仅有欧洲同步辐射装置具备单发 TXAFS 实验能力, 机时有限无法满足众多的实验需求; (3) 激光内爆致辐射: 利用短脉冲强激光与物质作用产生等离子体连续致辐射, 具有数百 ps 的时间分辨能力^[8-10], 这种射线源具有光子数高、光谱宽、谱亮度均匀、但光源尺寸较大导致光谱分辨率差。此外, 激光转换为致辐射的效率极低, 所需激光能量高达数百 kJ, 目前能够开展此类实验的主要装置有美国的国家点火装置(NIF)、OMEGA 和法国的兆焦耳激光装置(LMJ), 这类装置十分庞大, 建设和使用成本高昂; (4) 激光等离子体 M 带辐射: 脉冲激光与高原子序数靶作用产生的 M 带辐射具有准连续、宽光谱特征^[11], 比黑体辐射转换效率高 2~3 个数量级, 极大地降低了对激光能量的要求。F. Dorchies 等人^[11-14] 用能量仅 20 J、脉宽 3.5 ps 的激光与 Dy 靶作用产生的 M 带辐射, 获得了较高信噪比的 TXAFS 光谱; 赵阳等人^[15] 利用激光等离子体 M 带辐射源开展了 KCl、Al 的 XAFS 实验, 结合激光产生软 X 射线间接加载技术, 获得了高压压缩比下样品的 K 边 TXAFS 数据; 近年来, 本项目团队依托千焦耳脉冲激光器研究了多种高原子序数材料的 M 带辐射光谱特性, 并将其成功用于单晶 Si 薄膜的 TXAFS 实验^[16]。

单一靶材产生的 M 带辐射能谱较窄, 一般谱宽约 100 eV, 仅能得到材料的近边结构光谱, 不能用于扩展边结构光谱。此外, M 带辐射存在亮度较高的跃迁线谱, 光谱亮度不均匀。针对上述缺点, 本文提出一种复合 M 带辐射源方案, 根据待测样品吸收边能量选择多种 M 带光谱相邻的材料制作复合靶, 利用脉冲激光驱动复合靶产生 M 带辐射, 可以通过调节材料比例提高光谱整体均匀性。下文以 Si 的 K 边 TXAFS 实验为例, 介绍了材料比例的理论计算、多层膜复合靶的制备工艺、激光驱动复合靶的光谱测量实验, 并对实验结果进行了分析和讨论。

1 多层膜复合靶设计及制备

针对 Si 的 K 边 (能量 1839 eV) TXAFS 实验, 我们前期测量了多种单一金属靶材 (Lu、Yb、Dy、Au、Ta、Co) 在纳秒脉冲激光烧蚀下的等离子体光谱, 获得了激光参数脉宽 1 ns、能量 300 J、波长 351 nm 时, 六种金属靶材产生的等离子体光谱, 如图 1 所示^[15]。Lu、Yb、Dy 在 1800~2000 eV 能段内具有很强的亮度, 主要是 Lu、Yb 等离子体的 4f-3d 跃迁、Dy 等离子体的 4d-3p 跃迁产生的高亮度 M 带辐射, Au 在大于 1950 eV 能段内光谱亮度增加, 主要贡献来自于 Au 的 4p-3d 跃迁产生的 M 带辐射。根据图 1 所示光谱, 不同靶材的 M 带能量和强度分布略有差异, 如果将多种靶材的 M 带按照一定比例混合, 有望得到整体强度更为均匀的宽谱 X 射线源。考虑到 Lu 材料成本较高和复合靶制作工艺难度较大, Ta 和 Co 辐射亮度小, 我们选择 Au、Yb、Dy 三种材料来制作复合靶。

首先, 我们需要确定复合靶的材料比例。理论上通过模拟脉冲激光与靶材作用的流体动力学过程确定等离子体温度, 再根据等离子体温度计算等离子体发光光谱, 进而可以计算得到所需的靶材组成比例。但是脉冲激光与多层膜靶的流体动力学计算和高原子序数的 M 带等离子体光谱计算十分复杂、精度不高, 与实验数据差距较大, 限制了这种方式的使用, 以下我们将根据单一靶材光谱测量数据来计算复合靶的材料比例。由于三种材料只有三个膜层厚度参数可调, 为了建立约束方程将能谱划分为三个能段, 根据图 1 所示光谱分布选择三个能段分别为 1800~1850 eV、1850~2000 eV、2000~2100 eV, Au、Yb、Dy 在 1800~1850 eV 范围内的光谱亮度分别约为 7000、25000、29500, 在 1850~2000 eV 范围内光谱亮度分别为 13000、40000、23000, 在 2000~2100 eV 范围内的光谱亮度三者基本相当, 约为 20000。为了保证在 1800~2200 eV 整个能谱范围内光谱亮度基本均匀, Au、Yb、Dy 三者比例关系应满足

$$7000C_{\text{Au}} + 25000C_{\text{Yb}} + 29500C_{\text{Dy}} = 20000(C_{\text{Au}} + C_{\text{Yb}} + C_{\text{Dy}}) \quad (1)$$

$$13000C_{\text{Au}} + 40000C_{\text{Yb}} + 23000C_{\text{Dy}} = 20000(C_{\text{Au}} + C_{\text{Yb}} + C_{\text{Dy}}) \quad (2)$$

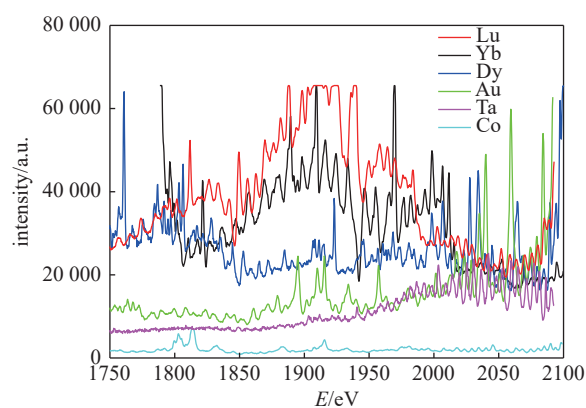


Fig. 1 Plasma spectra generated by nanosecond high power laser irradiating on elementary metal target^[15]

图 1 纳秒强激光辐照单一金属靶材产生的等离子体光谱

式中: C_{Au} 、 C_{Yb} 、 C_{Dy} 分别为 Au、Yb、Dy 材料比例, 令 $C_{Yb}=1$, 求解公式(1)和公式(2)得到

$$C_{Au} : C_{Yb} : C_{Dy} = 6.38 : 1.00 : 8.18 \quad (3)$$

确定了材料的比例后, 还需要合理设计复合靶的结构使激光作用区域内各种材料按设计比例混合。复合靶可以通过粉末混合、材料拼接、镀膜等方式制备, 但粉末混合方式均匀性难以控制, 材料拼接方式对激光打靶精度要求很高, 镀膜可以通过调节膜层厚度实现材料比例的精确调控, 因此本文采用了镀膜方式制备复合靶。脉冲强激光烧蚀深度一般为数 μm , 如果采用单个周期镀膜方式, 三种材料各自的膜层厚度大约在 μm 尺度, 由于烧蚀深度内等离子体存在温度和密度梯度, 表层和内层材料的等离子体温度、密度差别较大, 对材料的辐射亮度比例影响较大。因此我们采用了多周期重复堆叠的方式, 理论上单个镀膜周期厚度如果足够薄, 可以近似认为单个镀膜周期内三种材料等离子体温度、密度相同。经过镀膜工艺探索发现, 在镀膜过程中膜层太薄时容易产生褶皱和脱落, 膜层厚度越薄相对不确定度越大, 当单层镀膜厚度小于 10 nm 时, 相对误差可达到 2 nm, 镀膜厚度误差是随机分布的, 经过 10 个周期的重复堆叠后, 总厚度的相对不确定度可以减少到约 6.3%。当膜层厚度进一步变薄时, 相对误差会显著增大, 因此我们选择最薄的镀膜厚度为 10 nm, 根据公式(3)设计 Au/Yb/Dy 最优的膜层厚度为 65 nm/10 nm/82 nm。多层膜金属靶由激光聚变研究中心靶科学与制备部制作完成, 制备的多层膜复合靶结构如图 2 所示, 由 Au/Yb/Dy 组合成单个周期, 每个周期厚度约为 156 nm, 重复堆叠 10 个周期。多层膜复合靶选择 LiF 作为基底材料, 原因有两点, 一是 LiF 所有原子序数均小于 Si, 基底产生的激光等离子体线谱能量远低于 Si 的吸收边, 不会影响复合靶等离子体光谱测量; 二是 LiF 单晶表面十分光滑, 具有纳米尺度的粗糙度, 可以降低镀膜厚度误差。

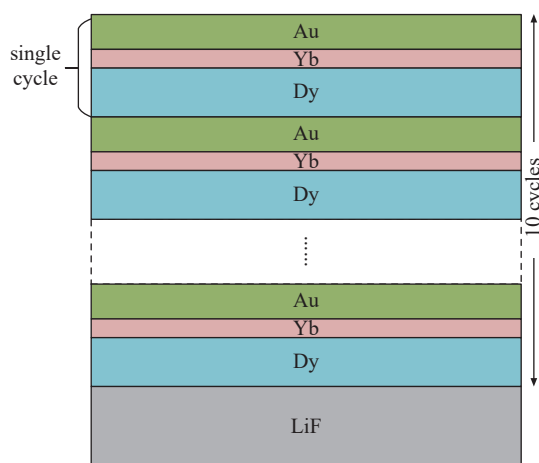


Fig. 2 Schematic diagram of multilayer composite target structure
图 2 多层膜复合靶结构示意图

2 实验

2.1 实验方案

本次多层膜复合靶激光等离子体光谱实验于 2022 年 10 月在上海神光 II 激光装置上完成, 实验布局如图 3 所示。神光 II 北四路激光聚焦打靶在复合靶上, 三倍频波长 351 nm, 每束激光能量约 100 J, 四束总能量约 400 J, 脉宽 0.5 ns, 聚焦光斑半高宽约 150 μm 。光谱测量使用球面晶体谱仪, 以 SiO_2 的(10 $\bar{1}$ 0)晶面作为衍射面, 晶面间距 $2d=0.8512$ nm, 晶体尺寸为 60 mm \times 12 mm, 半径 200 mm, 等离子体光源相对于晶体的布拉格角度范围为 43.24 $^\circ$ ~53.72 $^\circ$, 根据布拉格衍射公式可以计算, 晶体谱仪涵盖的 X 射线能量范围为 1807~2126 eV, 包含 Si 的 K 吸收边及边后共 300 eV 左右。谱仪正对光源方向安装 5 mm 厚度的钽板进行辐射屏蔽, 钽板上设置 X 射线入射窗口, 窗口覆盖 8 μm 聚酰亚胺和 25 μm 铝薄膜作为滤片, 用于滤除软 X 射线和可见光。谱仪通过针尖进行定位, 估计几何位置误差小于 200 μm 。根据上文所述, 为了使复合靶在 1800~2100 eV 范围内光谱亮度基本均匀, 选择最优的多层膜复合靶参数为: Au/Yb/Dy 的镀膜厚度为 65 nm/10 nm/82 nm, 重复堆叠 10 个周期。

2.2 结果分析及讨论

对成像板的扫描图像进行解谱、本底扣除、滤波降噪后得到复合靶的等离子体光谱, 如图 4 中实线曲线所

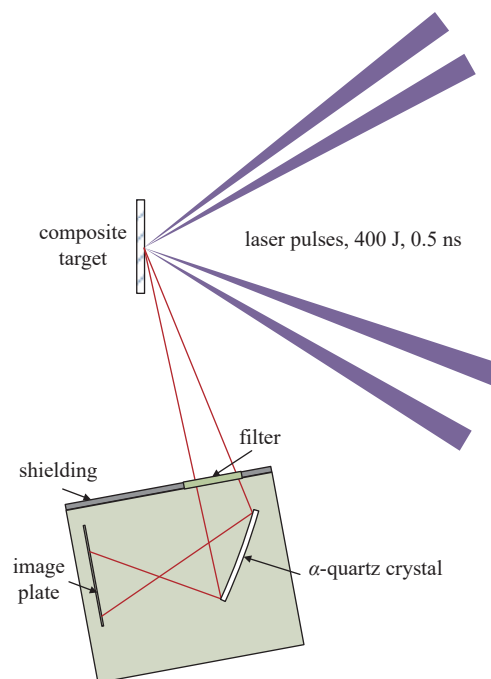


Fig. 3 Experimental layout of laser plasma spectrum measurement
图 3 激光等离子体光谱测量实验布局示意图

示。同时将图 1 中 Au、Yb、Dy 的光谱按照 0.65:0.1:0.82 的权重进行叠加,得到理论计算的复合靶等离子体光谱,如图 4 中虚线曲线所示。为便于直观比较,将实验数据的光谱亮度进行了线性缩放,可以看到理论计算和实验测量的光谱整体亮度分布较为一致,表明上文所述根据单一材料光谱测量数据确定材料比例的简单方法是有效的。理论计算的光谱亮度在整个能谱范围内基本保持一致,而实验获得的光谱数据随着能量增加光谱亮度略有增加的趋势,分析可能的原因是与单一靶材实验的激光参数(能量 300 J,脉宽 1 ns)相比,本次实验的激光能量更高(400 J)、脉宽更短(0.5 ns),因此产生的等离子体温度更高,轫制辐射能谱相应向高能方向移动,同时能量较高的 Au 的 M 带辐射亮度也得到增强,复合靶等离子体较均匀的能谱宽度达到了 280 eV,相比单一靶材有显著增加,可以用于研究扩展边吸收结构。与图 1 中单一靶材的光谱相比,在 1800~2100 eV 的能谱范围内复合靶整体光谱亮度明显更加均匀,我们计算了该能谱范围内光谱亮度的相对标准差,复合靶为 26.6%, Au 为 47.0%, Yb 为 36.0%, Dy 为 28.9%,相比 Au 和 Yb,复合靶的光谱均匀性提升较明显,相比 Dy,复合靶的光谱均匀性提升较小,但理论上由于 Yb 和 Au 在能量较高时光谱亮度更强,与 Dy 相比复合靶在光谱亮度上会有较大提升,由于实验参数和测量谱仪不同,这里无法进行定量比较。此外,由于只对少数几种金属膜层厚度作为未知参数进行调节,通过调整膜层厚度来调节组分比例的复合靶,无法做到光谱亮度的细致化均匀,在某些能谱范围内会出现偏强或偏弱,但是可以使得光谱整体亮度大致均匀,对于提高 TXAFS 数据信噪比具有一定优势。后续实验可以通过增加材料种类,引入更多的膜层厚度可调参数,有望使得光谱更加均匀,但也一定程度上带来镀膜难度和成本的增加。

3 结 论

本文提出一种使用脉冲强激光烧蚀多种金属靶材制备的多层膜复合靶产生 M 带辐射源的方案,并以 Si 的 K 边 TXAFS 实验为例设计制备了多层膜复合靶,在神光 II 激光装置上开展了光谱测量实验验证,实验数据和理论计算结果基本一致。实验结果表明,相比单一靶材,多层膜复合靶产生的 M 带辐射光谱更宽、整体上更加均匀,但由于只对少数几种金属膜层厚度作为未知参数进行调节,通过调整膜层厚度来调节组分比例的复合靶,无法做到光谱亮度的细致均匀化,后续增加材料种类,可以引入更多的膜层厚度可调参数,有望使得光谱更加均匀,但也一定程度上带来镀膜难度和成本的增加。多层膜复合靶产生 M 带辐射光谱整体上更加均匀,对于提高 TXAFS 数据信噪比具有一定优势,可以预见在 TXAFS 实验中有较大的应用潜力,但是还需要更多的对比实验进行定量分析。

参考文献:

- [1] Bressler C, Chergui M. Ultrafast X-ray absorption spectroscopy[J]. *Chemical Reviews*, 2004, 104(4): 1781-812.
- [2] Pertot Y, Schmidt C, Matthews M, et al. Time-resolved X-ray absorption spectroscopy with a water window high-harmonic source[J]. *Science*, 2017, 355(6322): 264.
- [3] Forget P, Dorchie F, Kieffer J C, et al. Ultrafast broadband laser plasma X-ray source for femtosecond time-resolved EXAFS[J]. *Chemical Physics*, 2004, 299(2-3): 259-263.
- [4] Durr H A, Stamm C, Kachel T, et al. Ultrafast electron and spin dynamics in nickel probed with femtosecond X-ray pulses[J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2008, 44(7): 1957-1961.
- [5] Pascarelli S, Mathon O, Mairs T, et al. The time-resolved and extreme-conditions XAS (TEXAS) facility at the european synchrotron radiation facility: the energy-dispersive x-ray absorption spectroscopy beamline ID24[J]. *Journal of Synchrotron Radiation*, 2016, 23(1): 353-368.
- [6] Pépin C. M, Torchio R, Occelli F, et al. White-line evolution in shocked solid Ta evidenced by synchrotron X-ray absorption spectroscopy[J]. *Physical Review B*, 2020, 102(14): 144102.
- [7] Torchio R, Occelli F, Mathon O, et al. Probing local and electronic structure in warm dense matter: single pulse synchrotron X-ray absorption spectroscopy on shocked Fe[J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 26402.
- [8] Yaakobi B, Meyerhofer D D, Boehly T R, et al. Extended X-ray absorption fine structure measurements of laser shocks in Ti and V and phase transformation in Ti[J]. *Physics of Plasmas*, 2004, 11(5): 2688-2695.

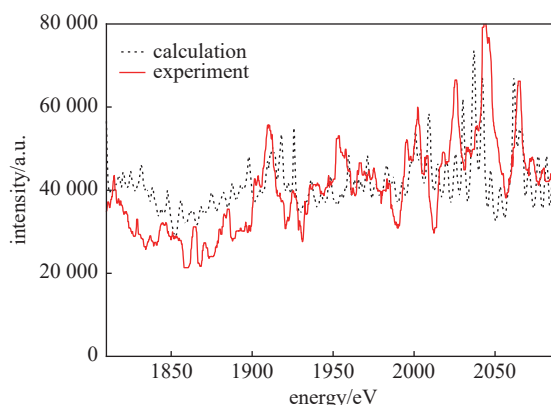


Fig. 4 Theoretical calculation and experimental measurement results of plasma spectrum of multilayer composite target

图 4 多层膜复合靶等离子体光谱理论计算及实验测量结果

- [9] Yaakobi B, Boehly T R, Meyerhofer D D, et al. Extended X-ray absorption fine structure measurement of phase transformation in iron shocked by nanosecond laser[J]. *Physics of Plasmas*, 2005, 12(9): 1052.
- [10] Coppari F, Thom D. B, Kemp G. E, et al. X-ray source development for EXAFS measurements on the National Ignition Facility.[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2017, 88(8): 083907.
- [11] Bolis R, Hernandez J-A, Recoules V, et al. X-ray absorption near edge spectroscopy study of warm dense MgO[J]. 2019, 26(11): 112703.
- [12] Benuzzi-Mounaix A, Dorchie F, Recoules V, et al. Electronic structure investigation of highly compressed aluminum with K edge absorption spectroscopy[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107(16): 165006.
- [13] Dorchie F, Lévy A, Goyon C, et al. Unraveling the solid-liquid-vapor phase transition dynamics at the atomic level with ultrafast X-ray absorption near-edge spectroscopy[J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107(24): 245006.
- [14] Dorchie F, Fedorov N, Lecherbourg L. Experimental station for laser-based picosecond time-resolved X-ray absorption near-edge spectroscopy.[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2015, 86(7): 073106.
- [15] Zhao Y, Yang J, Zhang J, et al. K-shell photoabsorption edge of strongly coupled matter driven by laser-converted radiation.[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 111(15): 155003.
- [16] 谭伯仲, 阳庆国, 刘冬兵, 等. 基于M壳层辐射的Si K边X射线吸收近边结构谱实验研究.[J]. *光学学报*, 2018, 38(3): 0330001. (Tan B Z, Yang Q G, Liu D B, et al. Experimental study on Si K-edge X-ray absorption near-edge structure with M-shell radiation[J]. *Acta Optica Sinica*, 2018, 38(3): 0330001)