

激光致等离子体中离子引出的空间分布特性研究

曹宗亮, 张微啸, 包成玉

(清华大学工程物理系, 北京 100084)

摘要:对于原子法激光分离同位素(AVLIS), 离子引出的特性研究具有十分重要的意义。采用 YAG 脉冲激光的四倍频输出与两平行平面极板间空气相互作用产生等离子体。极板间加几百伏电压, 使离子从极板间的等离子体中引出。采用特殊设计的极板结构和实验装置, 研究了电荷收集量在极板上的分布。通过对数据的分析, 总结了离子引出过程中等离子体扩散效应, 并发现离子引出的空间分布与极板间距有关, 而与极板间电压基本无关。

关键词:等离子体; 离子引出; 原子蒸气法激光分离同位素(AVLIS)

中图分类号: O532; O562; O657. 63 文献标识码: A 文章编号: 1004-2997(2007)01-05-07

Distribution Characteristics of Ion Collection during Ion Extraction from Laser-Induced Plasma

CAO Zong-liang, ZHANG Wei-xiao, BAO Cheng-yu

(Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: Study on ion extraction characteristics is of great significance for Atomic Vapor Laser Isotope Separation (AVLIS). Plasma was instantly produced after the interaction between the air and the YAG laser pulse quadruple output in the interspace of parallel-plate electrodes in the vacuum chamber. Ion was extracted from the plasma by a few hundreds of volts applied over the parallel-plate electrodes. With special electrodes configuration and experimental devices, further study was developed about ion collection distribution on the negative plate. Through the analysis of the signals under different conditions, diffusion effect of plasma was discussed. It is concluded that distribution of ion collection depends on the distance between electrodes and has little to do with the voltage over the electrodes.

Key words: plasma; ion extraction; atomic vapor laser isotope separation (AVLIS)

由于激光分离同位素具有高分离系数, 在过去的三十多年时间内, 人们在此领域进行了大量的研究工作。离子引出技术是激光分离同位素中十分重要的一个环节。由于减少离子引出时

间可以减少粒子间的相互碰撞, 减少逃逸出收集板的离子数, 从而提高离子引出效率, 因此人们进行了大量的工作来尽可能的缩短离子引出时间。首先 Francis, F. Chen^[1]做了有关等离子体

理论的初步研究。Okano^[2]在 Chen 的研究基础上,对离子引出时间进行了更加深入的分析,得到了估算离子引出时间的公式。Yamada^[3-5]等在关于平行极板引出的一系列实验基础上,发现有关平行板收集离子的实验结果与前人的理论分析结果基本吻合。人们还通过改变极板形状(线状阳极法、Π 状电极法和 M 状电极法),改变所加电压的方式(交替偏压法、射频电压法),射频共振法和 $j \times B$ 电磁力驱动法等,达到进一步缩短离子引出时间的目的^[6]。

虽然平行极板离子引出法不是最好的离子引出方法,但是其结构的简单性使人们能够更好的分析等离子体在电场下的运动。张云兴^[7],迟涛^[8],宋晓鹏^[9]等已经从不同的角度分析了平行板的离子引出情况,但是目前还没有人对离子引出的电荷收集量在极板上的空间分布进行研究。本工作采用新的实验手段和特殊的极板结构,在对其他实验装置和实验参数不产生影响的情况下,改变极板电压和极板间距,得到离子引出的电荷收集量在极板上的空间分布与极板电压和极板间距的变化关系。

1 实验描述

1.1 主要仪器与装置

平行板法离子引出的实验装置示于图 1。对于光致瞬态等离子体,采用一对平行板产生的均匀电场作为离子收集场。选用 YAG 四倍频脉冲激光,通过真空室外壁上的石英窗口垂直入射,并将激光路径上气压约为 1 Pa 的空气电离。石英窗口贴近极板间区域,使等离子体只在极板区域间产生。通过外接高压电源在两极板间产生平行电场,离子在电场的作用下从等离子体中被引出,被收集到负极板上。长方形电极采用镍板制成,防止散射光打在极板上产生光电效应。通过反复实验可以确定激光对空气进行多光子电离,在两电极之间产生了空气等离子体。离子在收集板上产生的电流信号通过串联在电路中的 10 kΩ 电阻转换为电压信号,由数字示波器(泰克 TPS2014)采集并存储。通过分析收集信号可以得到离子的引出时间和离子的收集量。由于离子引出过程中电流为毫安量级,而外加电场通常在几百伏,因此实验中忽略了串联电阻分压对极板间电压的影响。

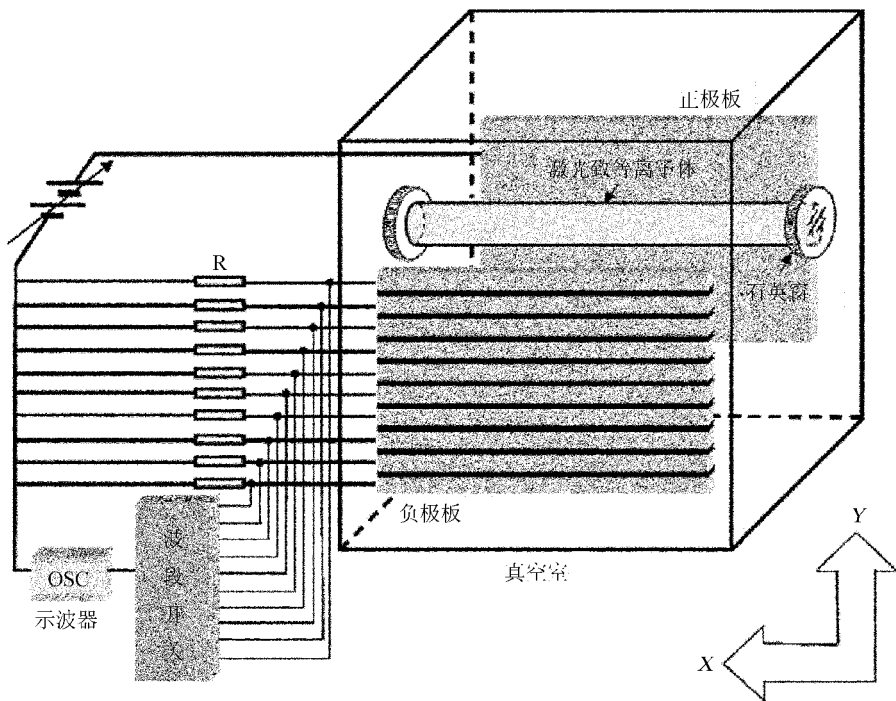


图 1 平行板法离子引出实验装置图

Fig. 1 Diagram of the ion extraction experiment unit of parallel plate method

在离子引出过程中,带有正电荷的离子主要是从负极板(收集板)引出。把负极板分成水平的十等份,相互之间用绝缘材料隔开,收集板由上至下编号为 1~10,其中激光束中心轴在纵向(即 Y 方向上)处于 3 号、4 号收集板之间的位置。通过比较不同序号收集板上的收集信号,研究离子收集量在负极板上的纵向分布。由于激光功率和真空室内的气压值基本稳定,可以认为各信号的等离子体初始密度是相同的。把示波器设置为外触发,并与激光器的触发信号端相连,这样能够保证得到完整的记录数据,并使所有的信号都从坐标零点开始。

1.2 实验条件

表 1 离子引出的实验条件
Table 1 Typical experimental condition for ion extraction

参量名称	参量数值
激光	波长 266 nm
	工作频率 2 Hz
	脉冲持续时间 10 ns
正极板尺寸	80 mm×120 mm×1 mm
小收集板尺寸	7 mm×120 mm×1 mm
极板间距	3~6 cm
等离子体尺寸	$\pi/4 \times 9^2 \text{ m}^2 \times 120 \text{ mm}$
真空室气体密度	$10^{13} \sim 10^{14} \text{ cm}^{-3}$
等离子体密度	$10^8 \sim 10^9 \text{ cm}^{-3}$

1.3 离子收集量测量

打在每个小收集板上的电流信号将在电阻 R 上产生电压脉冲 $V(t)$ 。假定每个小收集板接收的离子数为 N ,则

$$N = \frac{\int V(t) dt}{Re} \quad (1)$$

其中 $\int V(t) dt$ 为离子脉冲波形的面积,可直接由示波器采集并分析得出; e 为单位电荷量;实验中 $R=10 \text{ k}\Omega$ 。

2 实验结果与讨论

2.1 信号的基本特性

2.1.1 稳态鞘层建立 极板间电压 $U_0=300 \text{ V}$,极板间距 $d=6 \text{ cm}$ 时,第 3 号收集板的电压信号随时间的变化关系示于图 2,由于电压信号正比于电流信号,所以图 2 也反映了第 3 号收集板上收集到的离子引出电流信号随时间的变化。

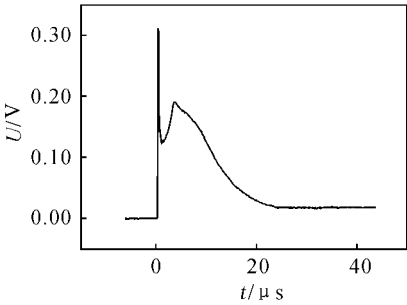


图 2 第 3 号收集板离子引出信号
Fig. 2 Signals on No. 3 collection plates during ion extraction

等离子体中的电子在极板间电场的作用下迅速向正极板方向移动,从而使等离子体产生极化,极化电场与极板间电场共同作用,使等离子体内部电场为零。这段时间只有几纳秒,可以认为在这段时间内,离子是静止不动的。此时在等离子体靠近负极板区域,由于电子的移动产生了由正离子充满的区域,正离子区域的宽度 δ_0 由(2)式确定。其中 e 是单位电荷, U_0 是极板间电压, n_{i0} 是等离子体初始密度(实验中的等离子体初始密度可以由最终的实验结果反向求出)。

$$\delta_0 = \sqrt{\frac{2\epsilon_0 U_0}{en_{i0}}} \quad (2)$$

将实验条件 $U_0=300 \text{ V}$, $n_{i0}=8 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$ 代入(2),得 $\delta_0 \approx 4.1 \text{ mm}$ 。

随后正离子区域内的离子在电场的加速下快速移动,在很短时间内,离子在等离子体与负极板之间的区域内完成稳态分布,形成鞘层。鞘层建立的时间可以用(3)式估算。其中 $V_m = \sqrt{2eU_0/M_i}$,代表离子在鞘层中加速可以达到的最大速度; M_i 是离子质量; X_0 代表等离子体产生时,它与正极板之间的距离,也代表着鞘层的宽度。如果 $X_0 < \delta_0$,则 $X_0 = \delta_0$ 。

$$t_0 \approx 3X_0/V_m \quad (3)$$

当极板间距 $d=6 \text{ cm}$ 时, $X_0=2.5 \text{ cm}$,远大于 δ_0 。如果考虑 M_i 是氮气分子的质量,则得到 $t_0 \approx 1.66 \mu\text{s}$,即稳态鞘层建立的时间是 $1.66 \mu\text{s}$ 。

图 2 的离子引出信号由两组峰组成,第一组峰为正,峰宽很窄,在 $1 \sim 2 \mu\text{s}$ 。这两组峰在第 1 号收集板到第 8 号收集板都可以观察到。第一组峰就是稳态鞘层建立之前电荷运动产生的信号。这部分信号由于时间很短,示波器此时测量的时间分辨率仅有 $0.02 \mu\text{s}$,有可能导致采集的

信号与实际信号不一致。另外信号在 $1 \sim 2 \mu\text{s}$ 时间内有扰动,这是脉冲激光器闸流管放电所产生的空间干扰峰叠加到收集信号的原因。

2.1.2 离子引出过程 稳态鞘层建立后,离子引出运动由 Langmuir 机制和 Bohm 机制共同描述。极限离子电流密度(Langmuir 电流)由(4)式决定,代表向负极板方向流动的离子电流大小与鞘层厚度的关系,其中 s 是鞘层厚度。

$$\text{Langmuir 电流 } j_L = \frac{4\epsilon_0}{9} \sqrt{\frac{2e}{M_i}} \frac{U_0^{3/2}}{s^2} \quad (4)$$

同时等离子体内部的离子以 Bohm 电流不断的被引出,从而加速了离子引出过程,如(5)式。其中 k 是波耳兹曼常量, T_e 是电子温度。

$$\text{Bohm 电流 } j_B = 0.6en_i \sqrt{\frac{kT_e}{M_i}} \quad (5)$$

等离子体与鞘层交界面的移动速度由 Langmuir 电流和 Bohm 电流共同决定,如(6)式

$$s = \frac{j_L - j_B}{en_i} \quad (6)$$

在本实验中,由于鞘层建立后的宽度 X_0 很大,导致 $j_L < j_B$,使得交界面先向负极板运动,然后由于鞘层的宽度变窄, j_L 变大。而等离子体的离子密度由于 Bohm 机制的原因而不断减小,所以 Bohm 电流也不断减小,必然有一个时刻 $j_L = j_B$,这时鞘层宽度最窄, j_L 最大。然后 $j_B < j_L$,等离子体开始向正极板运动,这个过程将一直持续到离子引出结束。

图 2 中,离子引出信号在 $3.7 \mu\text{s}$ 时到达引出信号的峰值,此时 $j_L = j_B$ 。在大约 $20 \mu\text{s}$ 时,离子引出基本结束,这验证了前面的分析。在 $20 \mu\text{s}$ 后,离子引出信号又经历很长的时间才为零。通过调节示波器的时间尺度,发现大约在 $100 \sim 200 \mu\text{s}$ 时信号才彻底消失。这主要是由于离子引出的最后阶段,离子密度很低导致 Bohm 电流比较小,使离子引出过程十分缓慢。这种现象在第 1 号收集板到第 8 号收集板也都可以观察到。

2.2 边缘信号的特殊现象

第 1 号收集板的离子引出信号示于图 3。信号在 $20 \mu\text{s}$ 附近时,经历了一次下降再上升的过程,这是边缘效应引起的。所谓的边缘效应指的是在极板边界处,电场并不是均匀的,而产生图 3 所示的信号形状。

第 9 号和第 10 号收集板的信号示于图 4。

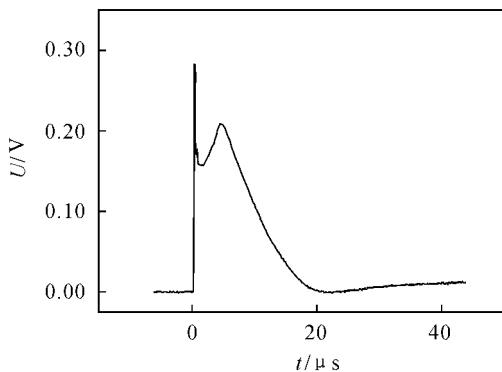


图 3 第 1 号收集板离子引出信号

Fig. 3 Signals on No. 1 collection plates during ion extraction

它们与其他极板的离子引出信号都不一样,这是由于当等离子体扩散到 9、10 号收集板前方的区域时,离子密度已经很低,导致 Bohm 电流很小, j_L 将一直大于 j_B ,所以等离子体与鞘层的交界面将一直向正极板方向运动,引出信号应如 9 号收集板的信号一样,为单调下降的信号,且引出过程很快。第 10 号收集板的信号应与第 9 号收集板信号类似,但是由于边缘效应,在 $10 \mu\text{s}$ 附近也出现了下冲到负电压的过程。

另外 9、10 号收集板在一开始就有很大的信号,这是由于当激光致等离子体在极板之间产生时,改变了极板间的电场分布,使极板电荷重新分布,从而产生电流,并不是离子被极板收集产生的信号。1~8 号收集板在收集到电子和离子之前也将出现这样的信号,所以 1~10 号收集板都在等离子体出现的瞬间收集到信号。信号的结束时间在 $20 \mu\text{s}$ 附近,这与其他极板的信号一致。说明当等离子体经历扩散和引出过程时,极板间的电场不断改变,9、10 号收集板的电荷分

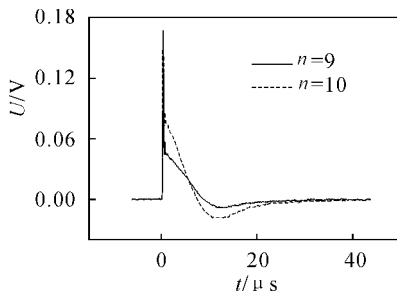


图 4 第 9~10 号收集板离子引出信号

Fig. 4 Signals on No. 9~10 collection plates during ion extraction

布也不断改变而产生电流,这个过程将一直持续到等离子体中的离子引出结束。

2.3 等离子体扩散效应

由于离激光很远处的收集板仍然可以收集到离子信号,说明等离子体在引出的过程中有很强的扩散效应。第 4 号收集板到第 7 号收集板的信号变化示于图 5,因此可以计算等离子体横向扩散的扩散系数。这对研究离子引出具有重要的意义。

前面已经讨论过,当信号达到第二组峰的峰值 $j_{\max}$ 时,有 $j_B = j_L$,所以有(7)式。

$$j_{\max} = j_B = 0.6en_i V_B \quad (7)$$

由于距离等离子体产生位置(3 号收集板附近)越远的极板信号到达 $j_{\max}$ 的时间越久,那么扩散机制产生的等离子体密度下降幅度越大,根据(7)式可知峰值 $j_{\max}$ 将越来越小。如图 5 所示,4~7 号收集板的第二组峰的信号峰值是递减的。假设等离子体满足双极扩散,可以求得扩散系数 D 。

假定扩散系数 D 是常数,与衰减时间常数 τ 的关系如(8)式:

$$D = \left(\frac{d}{\pi} \right)^2 / \tau \quad (8)$$

这里, d 是极板间距。

衰减常数与等离子体密度的关系如(9)式。

$$\lg n_i = \lg n_{i0} - t/\tau \quad (9)$$

n_{i0} 为等离子体初始密度。

根据(7)式,由于等离子体密度 n_i 与 $j_{\max}$ 成正比,所以衰减常数 τ 可以由各级板信号 $j_{\max}$ 值

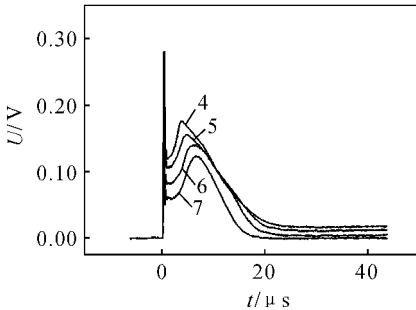


图 5 第 4~7 收集板离子引出信号

Fig. 5 Signals on No. 4~7 collection plates during ion extraction

的对数坐标与其对应时刻拟合求出。由于第 4~7 号极板位于收集板的中部,受边缘效应干扰很小,所以根据 $U_0 = 300$ V, $d = 6$ cm 时第 4~7 号收集板的数据,线性拟合的结果示于图 6,由图 6 可得到衰减常数 $\tau = 20$ μ s,根据(8)式得出 $D \approx (18 \pm 2)$ $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 。由于实验中两极板之间区域的等离子体扩散是一个比较复杂的过程,采用上述模型对扩散进行分析存在不确定度。

2.4 收集离子数空间分布随实验条件的变化

通过分析各个收集板的信号,可以得到各个收集板收集的离子数占总收集离子数的百分比。为了得到离子分布随电压和间距的变化,反复进行了不同实验条件下的信号测量,结果列于表 2。

可以看出离子运动轨迹是向着负极板发散地飞行。根据表 2,作出各收集板离子收集量分布随实验条件变化的曲线图。当极板间距不变,电压改变时,各收集板离子收集量分布示于图 7。当极板电压不变,极板间距改变时,各收集板离子收集量分布示于图 8。

图 8 表明改变电压对离子收集的空间分布影响很小,而改变极板间距却可以比较明显的改变离子收集的空间分布。间距越小离子的空间分布越集中,这是由于缩短极板间距会增大等离子体的密度梯度分布,从而导致等离子体的扩散速度增大。然而改变电压对等离子体的密度梯度分布没有影响,所以基本不影响等离子体的扩散速度。

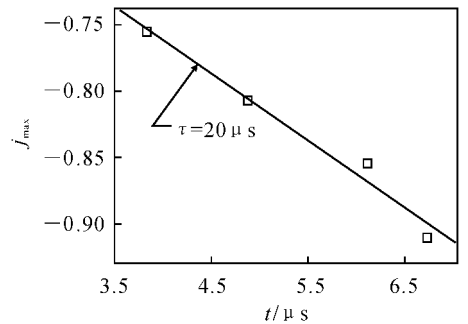


图 6 离子电流最大值与电流最大值出现时的半对数坐标,直线为最小二乘拟合所得

Fig. 6 Semilogarithmic plots of $j_{\max}$ vs the corresponding occurrence time
Solid line was obtained by least-squares fitting

表 2 不同实验条件下离子收集量的分布

Table 2 Ion collection distribution under different experimental conditions

极板位置	不同实验条件下的离子收集量/%					
	500 V,6 cm	300 V,6 cm	200 V,6 cm	500 V,4 cm	300 V,4 cm	200 V,4 cm
$n=1$	14.0	14.2	14.2	8.9	10.6	13.0
$n=2$	16.1	14.7	15.9	20.1	18.5	17.7
$n=3$	18.1	17.1	17.1	24.9	21.5	21.1
$n=4$	16.4	15.8	17.1	23.9	22.4	20.5
$n=5$	13.8	14.0	14.1	13.7	16.4	14.8
$n=6$	9.9	11.3	10.8	6.7	7.4	8.2
$n=7$	6.8	7.6	7.1	1.2	1.7	3.6
$n=8$	3.1	3.7	3.3	0.4	0.9	0.4
$n=9$	1.1	1.0	0.3	0.1	0.4	0.3
$n=10$	0.7	0.6	0.1	0.1	0.2	0.3

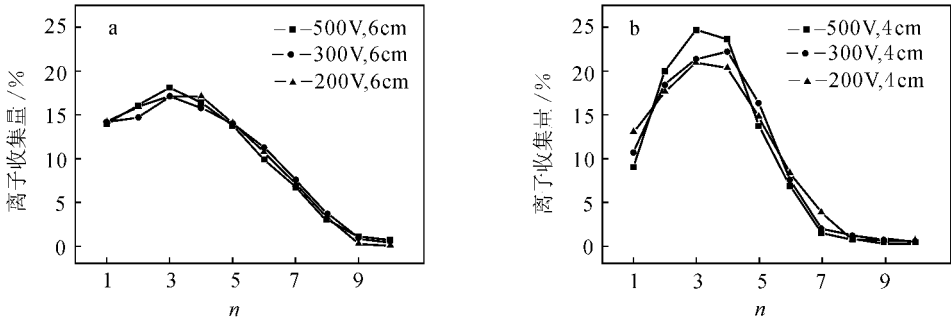


图 7 离子收集量分布随电压变化的关系

Fig. 7 Distribution profile of ion collection depends on the applied voltage

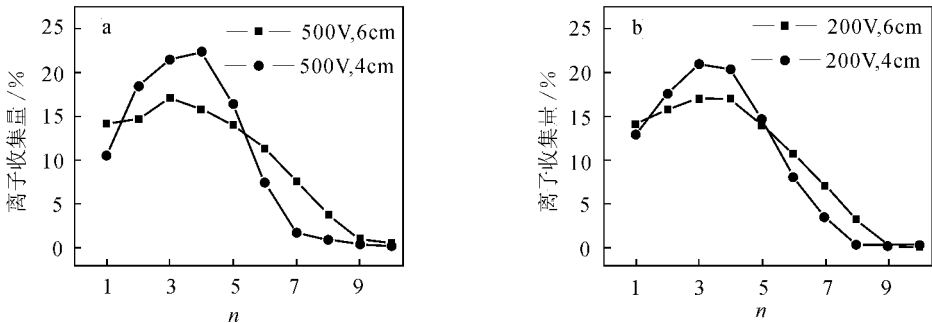


图 8 离子收集量分布随极板间距变化的关系

Fig. 8 Distribution profile of ion collection depends on the distance between parallel-plate electrodes

3 结 论

研究了平行板静电场法离子引出收集的实验规律和空间分布情况,得到以下结论:

- (1) 1~8 号收集板的信号都由两组峰组成,第一组峰产生的原因有三个:一是由于极板电荷在很短的时间内重新分布产生电流;二是电

子快速移动后产生的正离子区域完成稳态分布产生电流;三是脉冲激光器闸流管放电所产生的空间干扰信号。第二组峰是由 Bohm 机制和 Langmuir 机制共同作用产生的离子引出信号,经历了先上升后下降的过程。

(2) 边缘效应使离子引出的信号与普通的

离子引出信号不同,在第二个信号峰值过后,还会经历信号再次上升的一个过程。

(3) 等离子体具有很强的扩散效应,扩散系数为 $D \approx (18 \pm 2) \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 。

(4) 改变间距影响等离子体的扩散,而改变电压对等离子体扩散基本没有影响。

参考文献:

[1] CHEN F F. Decay of a plasma created between negatively biased walls[J]. *Physics of Fluids*, 1982, 25(12): 2 385-2 387.

[2] OKANO K. Theory of ion-extraction time from a plasma by a static electric field[J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 1992, 29(7): 601-607.

[3] YAMADA K, TETSUKA T, DEGUCHI Y. Ion extraction characteristics by an electric field on laser-produced barium plasma[J]. *Journal of Applied Physics*, 1990, 67(11): 6 734-6 741.

[4] YAMADA K, TETSUKA T, DEGUCHI Y. New

scaling relation for ion extraction by external electric field on a barium plasma produced between parallel-plate electrodes[J]. *Journal of Applied Physics*, 1991, 69(10): 6 962-6 967.

[5] YAMADA K, OKADA H, TETSUKA T, et al. Ion behavior in photoionization plasma originating from one-directional atomic vapor flow under external electric field[J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 1993, 30(2): 143-153.

[6] 王雅睿,包成玉. 原子激光同位素分离的离子引出技术[J]. *质谱学报*, 2003, 24(2): 370-376.

[7] 张云兴,朱 洪,张秀华,等. 等离子体屏蔽效应对离子取出时间影响的实验研究[J]. *原子与分子物理学报*, 1996, 13(2): 170-174.

[8] 迟 涛,包成玉,陈 戎,等. 平行板静电场法铯离子引出的实验研究[J]. *中国激光*, 2005, 32(5): 622-626.

[9] 宋晓鹏,陈 戎,包成玉,等. 平行板静电场法离子引出的对称收集[J]. *物理学报*, 2005, 54(9): 4 198-4 202.

=====

(上接第 4 页)

[9] LEASURE C S, FLEISCHER M E, ANDERSON G K, et al. Photoionization in air with ion mobility spectrometry using a hydrogen discharge lamp[J]. *Anal Chem*, 1986, 58: 2 142-2 146.

[10] SIELEMANN S, BAUMBACH J I, SCHMIDT H, et al. Detection of alcohols using UV-ion mobility spectrometers[J]. *Anal Chem Acta*, 2001, 431: 293-301.

[11] VAUTZ W, SIELEMANN S, BAUMBACH J I. Determination of terpenes in humid ambient air u-

sing ultraviolet ion mobility spectrometry[J]. *Anal Chem Acta*, 2004, 513: 393-399.

[12] ROKUSHIKA S, HATANO H, BAIM M A, et al. Resolution measurement for ion mobility spectrometry [J]. *Anal Chem*, 1985, 57: 1 902-1 907.

[13] XU B, LIU X B, YANG C X, et al. Research on performance of the monopole mass spectrometer with short electrode[J]. *Journal of Chinese Mass Spectrometry Society*, 2005, 26(2): 101-104.