

密级 _____



中国科学院大学
University of Chinese Academy of Sciences

博士学位论文

离子在绝缘微孔中的导向实验和理论模拟研究

作者姓名 刘世东

指导教师 徐瑚珊 赵永涛 研究员

中国科学院近代物理研究所

学位类别 理学博士

学科专业 粒子物理与原子核物理

培养单位 中国科学院近代物理研究所

二〇一六年五月十七日

This page intentionally left blank

A PhD thesis
written by S. Liu at May 17, 2016.

The typesetting system:

L^AT_EX 2 ε with package **CASthesis** v0.2 of C^TE_X.ORG

The Studies of Experiments and Theoretical Simulations on Guiding of Ions through Insulating Capillaries

By
Shidong Liu

A Dissertation Submitted to
the University of Chinese Academy of Sciences
In partial fulfillment of the requirement
For the degree of
Doctor of Particle Physics and Nuclear Physics

Institute of Modern Physics
Chinese Academy of Sciences

May, 2016

This page intentionally left blank

关于学位论文使用授权的声明

本人在导师指导下完成的论文及相关的职务作品，知识产权归属中国科学院近代物理研究所。本人完全了解中国科学院近代物理研究所有关保存、使用学位论文的规定，同意研究所保存或向国家有关部门或机构送交论文的纸制版和电子版，允许论文被查阅和借阅；本人授权中国科学院近代物理研究所可以将本学位论文的全部或部分内容编入有关数据库进行检索，可以采用任何复制手段保存和汇编本学位论文。本人离所后发表、使用学位论文或与该论文直接相关的学术论文或成果时，第一署名单位仍然为中国科学院近代物理研究所。

本人同意《中国优秀博硕士学位论文全文数据库》出版章程的内容，愿意将学位论文提交《中国学术期刊（光盘版）》电子杂志社，编入 CNKI 学位论文全文数据库并充实到“学位论文学术不端行为检测系统”比对资源库，同意按章程规定享受相关权益。

保密论文在解密后遵守此规定。

作者签名: 王伟 导师签名: 赵洋 日期: 2016.5.17

原创性声明

本人郑重声明：本人所呈交的学位论文，是在导师的指导下独立进行研究所取得的成果。学位论文中凡引用他人已经发表或未发表的成果、数据、观点等，均已明确注明出处。除文中已经注明引用的内容外，不包含任何其他个人或集体已经发表或撰写过的科研成果。对本文的研究成果做出重要贡献的个人和集体，均已在文中以明确方式标明。

本声明的法律责任由本人承担。

论文作者签名: 苏东 日期: 2015.5.17

摘要

近十几年来，低速高电荷态离子在绝缘微孔中的导向研究受到广泛关注，这主要得益于纳米技术的发展和微孔导向在实际应用中的潜在价值。因为金属微孔的电导率比较大，所以导向效应是绝缘微孔特有的一种物理现象。当离子进入倾斜的绝缘微孔后，离子会与微孔内壁碰撞而沉积电荷产生库仑场；当库仑场足够强时，离子不能与微孔内壁发生近碰撞，从而抑制离子与内壁上的原子发生电荷交换；离子经过多次偏转后，失去方向记忆，并以初始电荷态沿轴孔轴线出射，这就是所谓的自组织充电机制。本文主要从实验、理论分析和理论模拟三个方面研究了绝缘微孔对离子的导向效应。

本文的实验是在中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态离子综合实验平台完成的上完成的。主要测量了 7–200 keV 的 H_2^+ 离子穿过多孔锥形 PC 孔膜的透射角分布。实验中证明了锥孔对离子的聚焦效应；此外，我们还发现 7–50 keV H_2^+ 离子穿过 PC 微孔后的角分布具有双肩峰结构—离子出射强度在 0° 有一个低谷 (dip)；这些双肩峰结构在能量升高后消失。因为随着能量的增加，双肩峰之间的距离随着离子能量的增加而增大，这与导向机制的预言违背，并且实验中也没有观察到离子对 PC 微孔的充电效应，所以双肩峰现象是由区别于导向的其他机制引起的。通过与他人的实验比较，我们认为双肩峰现象可能是由离子在锥孔内受到小角度的散射引起的。

根据电荷守恒和 Frenkel-Poole 机制，对微孔导向进行了理论分析。通过渐近分析，发现，入射电流对微孔的充电时间近似等于由平衡沉积电荷量和 Frenkel-Poole 机制共同决定的放电时间，证明了充电时间和微孔的本征放电时间之间的关系；由于引入 Frenkel-Poole 机制，沉积电荷随入射电流的增大变化非常缓慢，从而可以解释实验中观察到的现象—离子出射率随入射电流轻微增大；另外还提出了一个解析表达式描述微孔导向出射率的时间演化，这个表达式既可以描述平衡导向出射，也可以描述阻塞出射。

最后，模拟了低能离子在绝缘微孔中的导向过程。模拟程序重现了自组织充电机制，离子完成导向之前会在微孔内形成 2–3 个电荷斑。由于沉积电荷在微孔材料表面的运输过程，在达到导向平衡时，只有一个电荷斑位于微孔的入射口处。微孔内部电场的最大值与微孔的倾斜角和离子的能量几乎无关。微孔

对离子的导向主要通过改变微孔电场的有效长度来完成，而不是通过改变电场强度。模拟结果还表明能量高的离子达到平衡出射的时间小于能量低的离子，这与实验结果符合；并且实验中观察到的导向效应的质量无关性也在模拟中得到证实，这说明微孔在操纵离子时不需要考虑离子的质量。我们也对 MeV 离子微束的导向进行了初步探讨，发现束流的电流和发散度对 MeV 离子微束导向有重要的影响。

关键词： 导向，绝缘微孔，双肩峰透射，数值计算，理论模拟

Abstract

Studies of Experiments and Theoretical Simulations on Guiding of Ions through Insulating Capillaries

Shidong Liu (Particle Physics and Nuclear Physics)

Directed by Prof. Hushan Xu

In the past decades, the interactions of the ions with the insulating capillaries have attracted considerable attention, which is mainly benefited from the great development of the nanotechnology and the high application value of the capillary guiding. Due to the higher conductivities of the metallic capillaries, the guiding effect is a unique feature of the insulating capillaries. The guiding phenomenon can be attributed to the self-organizing charge-up mechanism. Ion entering into the capillary tilted by a large angle with respect to the direction of the incident beam hit the surface, leaving their charges on the inner wall. As a result, a repulsive field is produced within the capillary. When the field is so strong that the close collisions between subsequent ions and the capillary wall cannot happen, and in turn, the charge exchange is inhibited. After several deflections, the ions will lose the memory of the direction and pass along the capillary axis with their initial charge state. In this work, the capillary guiding is studied in terms of the experiments, theoretical analysis, and simulations.

The experiments were conducted with the 14.5 GHz electron cyclotron resonance (ECR) ion source at the 320 kV experimental platform in the Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences. The angular transmission of the 7–200 keV H_2^+ through the conical multicapillaries etched in PC polymers were measured. It is shown that the ions can be focused by the conical capillaries. Moreover, for 7–50 keV H_2^+ the shoulder-peak structures with a dip at angle of 0° in the angular transmission were observed. As the ion energy increases, the shoulder-peak structures are found to vanish leaving one peak at 0°. A further finding is that the distance between the shoulder peaks increases with ion energy,

which causes a broader distribution. These results are in disagreement with the guiding principle which implies that the high-energy ions are less guided, which in turn leads to a narrower distribution. Hence, it can be assumed that the shoulder peaks observed with conical capillaries are produced by other mechanism rather than the ion guiding, e.g., by small angle scattering.

An analytical description for guiding of ions through the capillary is given based on the charge conservation and the Frenkel-Poole mechanism. According to the asymptotic analysis, it is found that the charging time of the incident current on the capillary wall is governed by the equilibrium charge and the Frenkel-Poole mechanism, which indicates the relation between the charging and discharging times. Furthermore, the number of charges deposited on the capillary wall are found to be nearly independent of the incident current. We also present an analytical formula to describe the blocked transmission as well as the equilibrium transmission as a function of time.

Finally, the guiding process occurring within the capillary is simulated. The self-organizing charge-up is reproduced. It indicates that 2–3 charge patches are created before the achievement of the guiding equilibrium, and due to the conductivities of the capillary only one charge patch is kept near the capillary entrance at equilibrium. On the other hand, the simulations provide direct evidence that the transmission of ions guided through the insulating capillary is independent of ion mass. This implies that the insulating capillary has pretty promising future in manipulating various charged particles regardless of their mass. Most importantly, the maximum of the field is found to be nearly unchanged by varying the ion energy as well as the tilt angle. Hence, to guide ions with high vertical energy caused by the increasing of the tilt angle or incident energy, the effective length of the field should be extended in a self-organized manner.

Keywords: Guiding, Insulating capillaries, Shoulder-peak transmission, Numerical calculations, Theoretical simulations

目 录

摘要	iii
Abstract	v
目录	vii
插图	xi
前言	1
第一章 研究背景介绍	3
1.1 HCIs 与金属微孔的作用	3
1.2 HCIs 在绝缘微孔中的导向效应	4
1.2.1 绝缘微孔导向的发现	4
1.2.2 自组织充电机制的实验验证和完善	6
1.2.3 自组织充电机制的理论模拟验证	8
1.2.4 导向效应的现象规律	11
1.2.5 其他有趣的效应	17
1.3 锥形玻璃管对离子束的聚焦效应	19
1.4 负离子和电子的导向	21
1.5 本章注记	22
第二章 实验研究：氢分子离子穿过多孔锥形孔的透射	25
2.1 实验平台简介	25
2.1.1 电子回旋共振离子源	25
2.1.2 电荷态的选择	27
2.1.3 束流的准直与聚焦	27

2.1.4 真空靶室	29
2.2 实验方法简介	30
2.3 实验结果讨论与分析	31
2.3.1 200 keV H ₂ ⁺ 离子的透射与聚焦	31
2.3.2 7-200 keV H ₂ ⁺ 离子的双肩峰角分布	34
2.3.3 峰谷差与能量的关系	35
2.4 本章注记	36
第三章 离子在绝缘微孔中导向效应的理论分析	37
3.1 线性沉积模型	37
3.2 非线性沉积模型	38
3.2.1 (准) 指数放电	38
3.2.2 双曲放电	39
3.2.3 渐近行为的理论分析	40
3.2.4 数值计算讨论	42
3.2.5 离子出射率的解析讨论	44
3.2.6 阻塞出射的拟合	47
3.3 附: 根据实验结果估算微孔内部的电场	48
3.3.1 电场大小估算	48
3.3.2 电势的估算	48
3.4 本章注记	49
第四章 低能离子在绝缘微孔中导向的模拟	51
4.1 模拟方法介绍	51
4.1.1 基本考虑	51
4.1.2 沉积电荷的输运过程	52
4.1.3 电荷漂移 Vs 双曲衰减	53
4.2 模拟结果	55
4.2.1 不考虑电荷输运过程—库仑阻塞	55

4.2.2 迁移率的选择 ······	58
4.2.3 考虑电荷输运过程—导向出射 ······	60
4.2.4 导向效应的质量无关性 ······	62
4.2.5 微孔内的平衡电场—导向机制探索 ······	63
4.3 本章注记 ······	65
第五章 结论与展望 ······	67
5.1 结论 ······	67
5.1.1 实验研究 ······	67
5.1.2 理论分析 ······	67
5.1.3 模拟研究 ······	68
5.2 展望 ······	69
附录 A MeV 离子导向探索 ······	71
A.1 序 ······	71
A.2 初步的模拟结果 ······	72
A.2.1 Rajta 实验条件 ······	72
A.2.2 初步模拟结果 ······	72
参考文献 ······	75
发表文章目录 ······	87
简历 ······	89
致谢 ······	91

插 图

1.1 HCIs 与金属微孔相互作用的示意图	4
1.2 3 keV Ne ⁷⁺ 离子穿过长 $10 \mu\text{m}$, 直径 100 nm 的 PET 孔膜后的电荷态谱 (ChargeState Spectra, 左) 和角分布 (Angular Distribution, 右; 作为对比, 金属银孔的情况也包含在图中)	5
1.3 3 keV Ne ⁷⁺ 离子穿过长 $10 \mu\text{m}$, 直径 100 nm 的 PET 孔膜后出射离子强度与充放电之间的关系; 实验中的束流强度为 $\sim 0.74 \text{ nA/mm}^2$	5
1.4 Stolterfoht 等人提出的自组织充电模型示意图	6
1.5 7 keV Ne ⁷⁺ 离子穿过 SiO ₂ 微孔后, 出射离子在探测器上的位置的时间演化; 下方为假设的电荷斑分布示意图	7
1.6 微孔内壁上的电荷斑的时间演化过程示意图, 从 a→e, 时间依次递增	7
1.7 模拟结果: 3 keV Ne ⁷⁺ 离子穿过 PET 微孔后的出射率随时间的变化关系 (左) 以及离子在微孔内的轨迹和内壁上的电荷分布 ..	8
1.8 模拟结果: 3 keV Ne ⁷⁺ 离子穿过 PET 微孔后的出射率、观测角震荡随时间的变化关系 (左) 以及微孔内部的电场电势分布	9
1.9 3 keV Ne ⁷⁺ 离子导向穿过微孔后的强度的时间演化	12
1.10 模拟结果: 3 keV Ne ⁷⁺ 离子导向穿过 PET 微孔 ($\psi = 3^\circ$, $d = 200 \text{ nm}$, $L = 10 \mu\text{m}$) 后的时间演化过程: 左上—峰位置, 左下—出射率, 右—沉积电荷线密度	13
1.11 离子穿过微孔后角分布宽度的时间演化: 左—7 keV Ne ⁷⁺ → SiO ₂ ($d = 100 \text{ nm}$, $L = 25 \mu\text{m}$); 右—12 keV Ar ⁸⁺ → PET ($d = 200 \text{ nm}$, $L = 10 \mu\text{m}$)	14
1.12 3 keV Ne ⁷⁺ 离子穿过 PET 微孔后角分布宽度与能荷比 E/q 之间的关系: 几何开口角为 1° , □ ($n = 4 \times 10^6/\text{cm}^2$) 和 ■ ($n = 4 \times 10^8/\text{cm}^2$) 为实验数据, △ (单孔) 和 ● (包含平均场) 为模拟数据	14

1.13 离子穿过绝缘微孔后的角分布宽度与倾斜角和微孔密度之间的关系	15
1.14 不同温度下, 4.5 keV Ar^{7+} 离子穿过直玻璃管后的出射率与倾斜角的关系	17
1.15 阻塞效应的实验结果: 左—3 keV Ne^{7+} 离子, 右—3 keV Ar^{7+} 离子	18
1.16 塑形效应的实验结果 (a) 和 (c) 和模拟结果 (b) 和 (d)	19
1.17 不同能量的质子束通过锥形玻璃管的出射率	20
1.18 10 keV 的 O^- 离子穿过倾斜角为 0.8° 的 Al_2O_3 (长 $10 \mu\text{m}$, 直径 20 nm) 纳米孔后出射位置的时间演化	21
1.19 800 eV 的电子穿过玻璃管后出射强度、能量和出射谱半高宽的时间演化	22
2.1 兰州重离子国家实验室ECR离子源 1# 表面物理实验平台示意图 ..	25
2.2 兰州重离子国家实验室 14.5 GHz ECR 离子源实物图	26
2.3 束流线上的两个四极透镜的实物图	28
2.4 1# 表面物理实验平台球形靶室	29
2.5 离子在微孔中的导向实验示意图	30
2.6 PC 锥孔膜的 SEM 扫描图	31
2.7 不同倾斜角下, 200 keV H_2^+ 离子的出射计数与时间的关系	31
2.8 200 keV H_2^+ 离子穿过锥形微孔后的透射分布	32
2.9 200 keV H_2^+ 离子穿过锥形微孔后归一化产额与倾斜角的关系	33
2.10 不同能量的 H_2^+ 离子的出射角分布	34
2.11 峰谷差与能量的关系	35
3.1 $t \rightarrow \infty$ 时, 平衡沉积电荷量 Q_∞ 与 τ_d 的关系。	42
3.2 不同放电时间对应的沉积电荷量 $Q_{dep}(t)$ 与导向离子出射率 $f_{tr}(t)$ 的时间演化。	44
3.3 不同电流强度对应的沉积电荷量 $Q_{dep}(t)$ 与导向离子出射率 $f_{tr}(t)$ 的时间演化。	45
3.4 不同放电时间常数对应的导向离子出射率 $f_{tr}(t)$ 的时间演化。	46

3.5 公式 (3.23) 对实验阻塞出射的拟合。	47
4.1 微孔的尺寸和坐标系图示	51
4.2 薄膜材料的坐标示意图	53
4.3 漂移过程决定的电荷衰减	54
4.4 对应图 4.3 的数据的倒数图	55
4.5 不同放电时间后的表面电荷分布图	56
4.6 不考虑电导率时, 3 keV Ne^{7+} 离子穿过 PET 纳米孔的离子径迹 和电荷分布	57
4.7 不考虑导电率时, 微孔内的电场分布	58
4.8 极端迁移率对应的离子出射率的时间演化	58
4.9 (Color online) $\mu_0 = 1 \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 时微孔内的电场分布和对应的电 荷分布	59
4.10 (Color online) 不同的 μ_0 对应的离子出射率的时间演化	60
4.11 3 (a) 和 7 (b) keV Ne^{7+} 离子穿过 PET 孔的轨迹和电荷分布	61
4.12 3 和 7 keV Ne^{7+} 离子穿过 PET 孔的出射率时间演化	62
4.13 不同质量的离子穿过 PET 孔的出射率时间演化	63
4.14 导向平衡时, 微孔内的电场分布	64
A.1 1 MeV 质子微束穿过倾斜角 $\psi = 1^\circ$ 的玻璃管后出射离子的时间 演化	71
A.2 模拟: 不同电流强度的 1 MeV 质子微束穿过倾斜角 $\psi = 1^\circ$ 的玻 璃管后出射离子的时间演化	73
A.3 模拟: 不同电流强度的 1 MeV 质子微束穿过倾斜角 $\psi = 1^\circ$ 的玻 璃管后发射角 θ 时间演化	73
A.4 模拟: $N_0 = 10^6$ 且不考虑发散度, 1 MeV 质子微束穿过倾斜角 $\psi = 1^\circ$ 的玻璃管后离子出射率的时间演化	74

前言

纳米结构（Nanostructure，也作奈米结构）是尺寸介于分子和微米尺度间的物体结构，只要物体的某个维度在 0.1–100 nm 范围内，即可说此物体具有纳米结构。纳米结构的维度的分类与传统的三维（ x , y , z 空间三维）不一样，分为零维，一维和二维。零维纳米结构是指物体的空间三维尺度都在纳米范围内（如原子团簇），因此一维和二维纳米结构分别对应物体的空间三维尺度中有一维和二维不在纳米范围（如纳米线和纳米薄膜）。纳米结构学科的发展使得在薄膜上（厚度通常大于 10 μm ）制作纳米孔成为可能，其中高能重离子径迹蚀刻是制作高精度纳米孔的有效手段之一 [1, 2]。

在薄膜材料上制作一维纳米孔是特别难的，因此通常的纳米孔薄膜都是一维纳米孔结构的排列体系。为了讨论方便且无特别说明，我们将纳米孔、微米孔甚至毫米量级的玻璃管统称为微孔。离子在绝缘微孔中的导向效应研究是讨论一束动能为 T_p ，电荷态为 q 的离子以倾斜角（Tilt Angle, ψ ）入射到一片含有微孔的薄膜上后发生的相互作用现象和物理过程。

从作用特点看，离子导向（Ion Guiding，有时也称之为微孔导向，Capillary Guiding）也属于高电荷态离子（Highly Charged Ions, HCIs）与固体表面相互作用范畴，然而导向效应研究的重点不是碰撞过程的作用特征，而是许多离子连续与微孔内壁碰撞后对后续离子的影响。因此在导向研究中，一般不对碰撞的细节做过多的描述和讨论。微孔导向的物理解释是基于自组织充电（Self-organizing Charge-up）模型。目前，已有大量的实验和理论模拟支持这一模型。

实验和理论模拟中涉及的入射离子主要是能量较低（keV 量级）的高电荷态离子。实验中高能（MeV 量级）的质子或者 α 粒子也有涉及，但是通常认为高能离子的出射不是由导向造成的，而是散射。采用的微孔的纵横比（微孔的长度与其直径之比）在 50–100 之间。

微孔导向的最主要特征是，离子沿微孔轴线出射，并保持初始电荷态和入射能量不变。因此，微孔导向在操控离子，产生微束甚至纳米束方面具有重要的研究价值，同时这也促进了微孔研究的快速发展，催生了大量的基础研究和应用研究。本文作者的工作主要是离子在绝缘微孔中导向的基础研究。

全文共分五章，第一章介绍微孔导向的研究背景，着重介绍了自组织充电模型以及微孔导向的现象规律。随后的三章介绍了作者在攻读博士研究生期间做的主要工作，包括实验、理论分析和蒙卡模拟三部分：实验主要讨论了 7–200 keV 的氢分子离子穿过具有多孔锥形孔高分子 PC 膜后的双肩峰分布现象；理论部分主要讨论了离子导向出射率的时间演化过程，这样的分析对于深入理解离子导向机制具有重要的意义；本文的模拟是依据“漂移模型”，主要探讨了离子在绝缘纳米孔中的导向机制。最后一章是本文的结论和展望。

在本文的附录中，作者初步探讨了离子在宏观玻璃管中的导向。这个模拟时基于最近 Rajta 等人的实验—当 1 MeV 的质子以大角度（大于玻璃管的几何透射角）进入玻璃管，一段时间后，绝大多数的质子不会发生电荷态变化，并且沿玻璃管轴线出射，即质子是被导向出射，而非散射出射。这是实验上首次发现 MeV 的离子被导向。作者就此进行了初步探讨。

第一章 研究背景介绍

近十几年来，低速高电荷态离子在绝缘微孔中的导向研究受到广泛关注，有许多相关的文章和著作发表，这主要得益于微孔导向机制的研究以及在实际应用中的潜在价值。本章主要讨论绝缘微孔对低速 HCIs 导向的物理原理以及研究进展。作为开始，我们首先简要介绍 HCIs 与金属微孔的作用过程和特点，也是为了体现 HCIs 在绝缘微孔和金属微孔中的不同现象；然后详细介绍离子在绝缘微孔中的导向过程，并用表达式和图表等形式描述微孔导向的特点；最后附带介绍了离子在玻璃管中的导向和聚焦效应以及负离子、电子的导向。

1.1 HCIs 与金属微孔的作用

根据经典过垒模型（Classical Over-the-Barrier Model, COBM）[3]，当一个 HCI 接近靶表面至临界距离时，靶表面原子的价电子被共振捕获到 HCI 的高激发态而形成空心原子（Hollow Atom, HA，有时候称为第一代空心原子）。HCI 发生共振捕获（Resonant Capture）的临界距离（Critical Distance） $d_c \simeq \sqrt{2q}/W$ ，而发生共振捕获的靶原子的轨道主量子数 $n_c \simeq q/\sqrt{2W(1 + \sqrt{q/8})}$ ，其中 q 是离子的电荷态， W 是金属的功函数。这样的一个空心原子一般处于不稳定的多激发态或者高激发态。由于 HCI 受到镜像加速(Image Acceleration)，HA 从临界距离到达靶表面的时间一般小于 10–100 fs。这个时间小于 HA 的寿命，因此实验上无法研究上表面 HA 的基本性质，也就无法研究 HCI 与靶上表面的相互作用过程。

为了研究上表面空心原子的性质，1996 年，Yamazaki 等人 [4, 5] 研究了 HCIs (N^{6+} 离子) 与金属微孔薄膜 (Ni 膜， $1.5 \mu\text{m}$ 厚， $\sim 250 \text{ nm}$) 为靶，当 HCIs 沿轴线 (傍轴) 进入金属微孔后 (HCIs 不会与微孔内壁发生剧烈碰撞)，因受到镜像引力而接近表面。当 HCIs 与表面的距离小于临界距离 d_c 时，HCIs 就可以共振捕获电子形成 HA。如果 HA 产生的位置接近微孔出口处，那么 HA 就不与微孔内表面碰撞而直接出射。这样就能在真空中研究 HA 的电荷态或者其衰变后产生的 X 射线、可见光以及俄歇电子等，从而可以研究 HCIs 与金属上表面的相互作用过程。根据几何条件，我们可以估计产生 HA 的 HCIs 占总

入射 HCIs 的 $4d_c/d$, 其中 d 是微孔的直径。图 1.1 给出了 HCIs 沿金属微孔轴线入射时 3 种不同的路径示意图: (1) → HCl 与微孔内壁间的距离始终大于临界距离 d_c 时, HCl 保持初始电荷态出射; (2) → HCl 与微孔内壁距离小于 d_c , 但是位置远离微孔的出口, 这时形成的 HA 会与微孔内壁发生碰撞而被破坏; (3) → 如果 HA 在接近微孔出口的位置形成, 那么它就可以保持其高激发态而进入真空。详细的研究结果和相关讨论可以参看 [4, 5]。

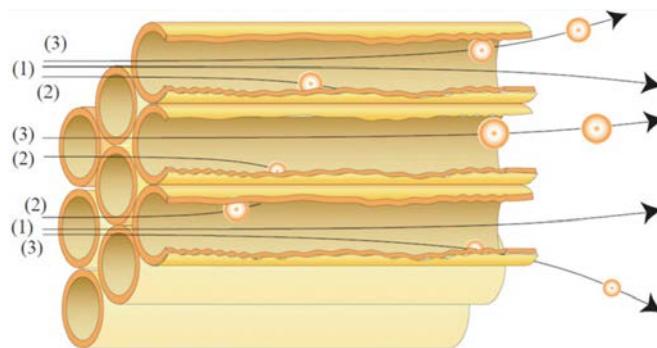


图 1.1: HCIs 与金属微孔相互作用的示意图

1.2 HCIs 在绝缘微孔中的导向效应

1.2.1 绝缘微孔导向的发现

2002 年, Stolterfoht 等人 [6] 在研究 3 keV Ne^{7+} 离子与 PET (Polyethylene Terephthalate 或者 Mylar) 孔膜的相互作用过程时, 发现当 PET 孔膜倾斜 20° 时, 仍有离子出射, 并且绝大多数出射离子的电荷态保持不变 (见图 1.2 左)。另外, 他们还发现, 出射离子基本上都是沿着微孔轴线出射, 且角分布的半高全宽 (FWHM, Full Width at Half Maximum) 与倾斜角无关 (见图 1.2 右)。这与金属微孔的情况完全不同。

Stolterfoht 等人把这种现象称之为微孔导向 (Capillary Guiding, 也作离子导向, Ion Guiding)。他们认为微孔导向是由于离子在微孔内壁上沉积电荷, 产生的库仑偏转场阻止后续离子与微孔内壁发生近碰撞 (Close Collision), 从而抑制了离子与微孔内壁上的原子之间的电荷交换 (Charge Exchange)。这样, 经过几次偏转之后, 离子将失去方向记忆, 从而沿微孔轴线出射, 并保持初始电荷态和入射能量不变。这就是自组织充电 (Self-organizing Charge-up)

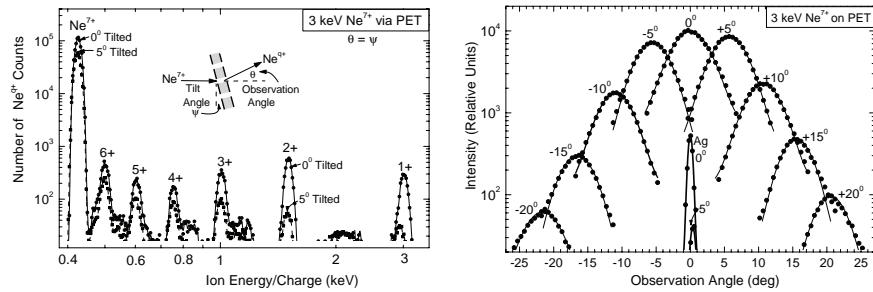


图 1.2: 3 keV Ne^{7+} 离子穿过长 $10 \mu\text{m}$, 直径 100 nm 的 PET 孔膜后的电荷态谱 (ChargeState Spectra, 左) 和角分布 (Angular Distribution, 右; 作为对比, 金属银孔的情况也包含在图中)

机制 [6]。从自组织充电机制可以看出, 沉积在微孔内壁上的电荷“长时间”的存在是离子导向的必要条件。因为金属的导电率远远大于绝缘材料的导电率, 所以沉积在金属微孔内壁上的电荷不能“长时间”的存在。这是金属微孔不能产生导向效应的根本原因。

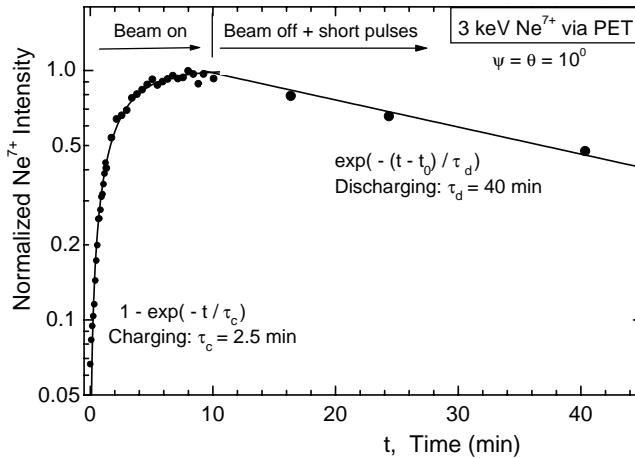


图 1.3: 3 keV Ne^{7+} 离子穿过长 $10 \mu\text{m}$, 直径 100 nm 的 PET 孔膜后出射离子强度与充放电之间的关系; 实验中的束流强度为 $\sim 0.74 \text{ nA/mm}^2$

为了证明离子对绝缘微孔的充电效应, Stolterfoht 等人测量了入射离子束流对微孔“冲放电”后出射离子强度的时间演化, 如图 1.3 所示: 出射离子强度随着辐照时间先缓慢增大, 然后趋于平衡; 当放电一段时间后, 出射离子强度开始下降。

基于一个简单的线性充放电模型 [6]，可以对微孔内壁的充电效应进行定量化描述。入射离子沉积在微孔内壁上对的电荷量可以用如下公式表示：

$$Q(t) = Q_\infty \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_c}\right) \right] \quad (1.1)$$

其中， Q_∞ 表示充放电平衡时沉积在微孔内壁上的电荷量， τ_c 为一个时间常数，表征入射离子束流对微孔内壁的充电快慢，与微孔材料的导电性质和入射束流强度的大小有关。如果出射离子的强度（电流）正比于沉积电荷量 $Q(t)$ ，那么归一化的出射离子强度可以用 $1 - \exp(-t/\tau_c)$ 描述，关于这一点可以参看后面的 1.2.4 小节。

1.2.2 自组织充电机制的实验验证和完善

自组织充电机制是建立在观测到的实验现象基础上的，即出射离子沿微孔轴线出射，且电荷态和能量保持不变；出射离子强度随辐照时间增大（这是判断存在充电效应的最有力证据，也是判断是否是导向效应的判据之一）。起初，因为实验上观察到角分布的 FWHM 与倾斜角无关，所以，Stolterfoht 等人将微孔分为散射区和导向区两部分，如图 1.4 所示。但是，现在看来导向区的存在是非必需的，因为 FWHM 与倾斜角无关似乎是一个偶然的实验结果。后来的实验表明 FWHM 与很多因素有关。

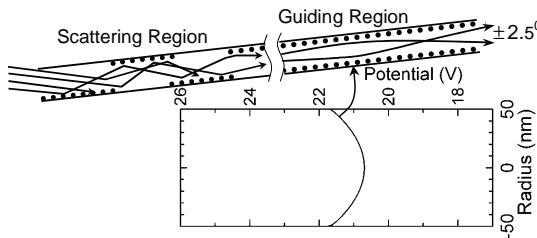


图 1.4: Stolterfoht 等人提出的自组织充电模型示意图

2008 年，Skog 等人 [7] 改进了实验技术，他们用一个二维位置灵敏探测器探测出射离子，这样出射离子束的形状、位置和时间信息都可以同时测量。他们发现在导向平衡之前，离子的出射方向在微孔轴线附近震荡（见图 1.5）；当微孔内壁上的沉积电荷“足够多”时，离子便沿微孔轴线出射。基于这样的实验事实，Skog 等人认为导向效应是由入射离子在微孔内壁上形成的两三个电荷斑（Charge Patch）造成的，没必要有 Stolterfoht 等人提出的导向区。

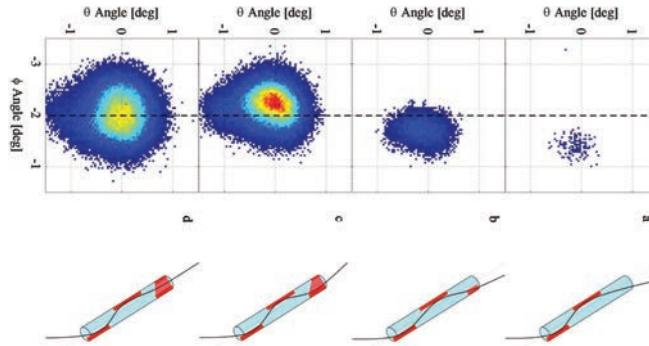


图 1.5: 7 keV Ne^{7+} 离子穿过 SiO_2 微孔后, 出射离子在探测器上的位置的时间演化; 下方为假设的电荷斑分布示意图

Skog 和 Stolterfoht 之间的主要区别是, 后者认为入射离子完成导向是在散射区完成的, 处于微孔下游的导向区负责出射离子的角分布的展宽, 使其与倾斜角无关; 前者认为完成导向只需要两三个电荷斑即可, 不需要导向区, 出射角分布的展宽是由最后一个接近出口处的非局域化电荷斑造成的, 且所有的电荷斑在微孔内壁上是长时间存在的。

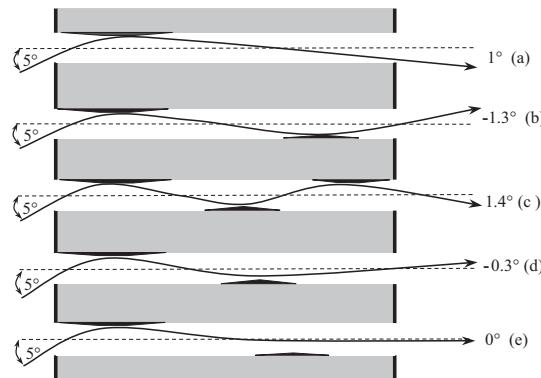


图 1.6: 微孔内壁上的电荷斑的时间演化过程示意图, 从 a→e, 时间依次递增

在 Skog 等人的实验结果发表后不久, Stolterfoht 等人 [8] 便与 2009 年完善了自组织充电机制。这次, 他也抛弃了导向区, 同 Skog 一样, 认为完成导向只需要两三个电荷斑; 但是与 Skog 不同的是, 他认为在平衡时, 除入口处的电荷斑外, 其他的电荷斑都会因为微孔材料的导电性而消失或者变弱, 如图 1.6 所示。后来的模拟表明沉积在微孔内壁上的电荷的输运过程对导向起着至关重要的作用; 若微孔材料为理想绝缘体, 微孔内壁上的电荷将不断累积, 从

而发生库仑阻塞。

1.2.3 自组织充电机制的理论模拟验证

自Stolterfoht等人发现绝缘微孔导向效应不久，国际上许多研究组对此进行了大量的实验研究，以证明绝缘微孔对低速离子的导向效应。但是，理论模拟直到2005年才由Schissel等人[9–11]开始研究。Schissel等人认为，沉积在微孔内壁上的电荷会经过无序的表面扩散和体扩散，微孔材料的电导率不会因为内建电场的存在而发生变化，并且假设沉积电荷的体扩散导致的体放电具有指数衰减形式，即

$$Q(\vec{r}, t + \Delta t) = Q(\vec{r}, t) \exp\left(-\frac{\Delta t}{\tau_d}\right) \quad (1.2)$$

τ_d 表示体放电时间常数，可以表示为 $\tau_d = \frac{l_b^2}{D_b}$ ，其中 D_b 是体扩散常数， l_b 为一个特征距离，一般为孔间距的一半[10]。

他们的模拟很好的重现了实验结果—离子出射率的时间演化显示存在充电过程（见图1.7左）。模拟结果指出，微孔导向效应与材料的导电性质密切相关：当微孔材料的电导率太高时，沉积在内壁上的电荷会迅速流失，无法产生有效电场，因此离子无法被导向出射；当电导率太低时（等同于金属微孔），电荷会在微孔内壁上不停的沉积，微孔内的电场过强，离子会经过快速的多次偏转而阻塞；只有电导率取合适的值时，离子才能导向出射；此外，绝大多数沉积电荷主要集中在入口处的电荷斑，平衡后，处于微孔内壁下游的电荷斑会变弱甚至消失（见图1.7右）。

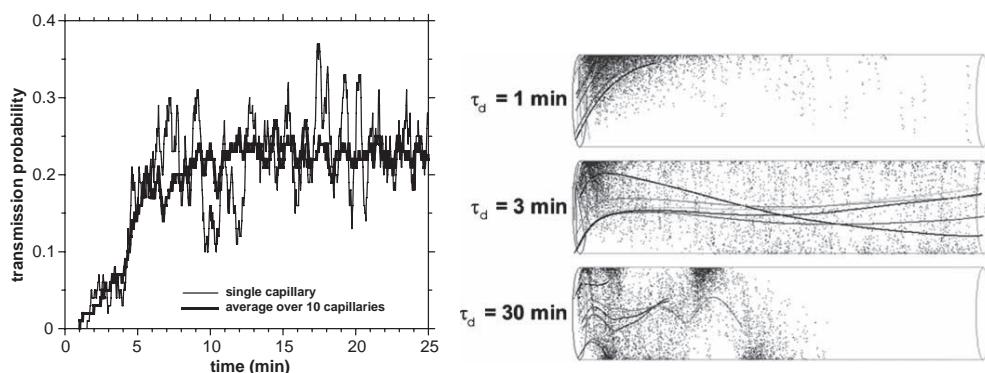


图 1.7: 模拟结果：3 keV Ne^{7+} 离子穿过 PET 微孔后的出射率随时间的变化关系（左）以及离子在微孔内的轨迹和内壁上的电荷分布

后来, Stolterfoht 用类似的方法也完成了导向模拟 [12, 13]。但是他认为, 沉积在微孔内壁上的电荷主要通过内建电场控制的漂移效应 (Drift Effect) 消耗, 并且内建电场会造成载流子的迁移率准指数增加, 即所谓的非线性效应, 他把这个现象归功于 Frenkel 效应 [14]。基于这个模拟, 可以发现在导向平衡前, 离子震荡出射, 平衡后, 离子直接由入口处的电荷斑偏转, 平行于微孔轴线出射; 微孔内部的电场分布表明绝大多数电荷沉积在微孔的入口处, 且电场的最大值几乎不随倾斜角改变; 更令人惊讶的是, 电场的有效长度 (对应于入口处电荷斑的横向尺寸) 随倾斜角的增大而增大。按直观的认识, 入口处电荷斑的横向尺寸应该随倾斜角的增大而减小, 而 Stolterfoht 的理论模拟得到的却非如此 (图 1.8), 这是自组织充电机制的一个重要的特征。

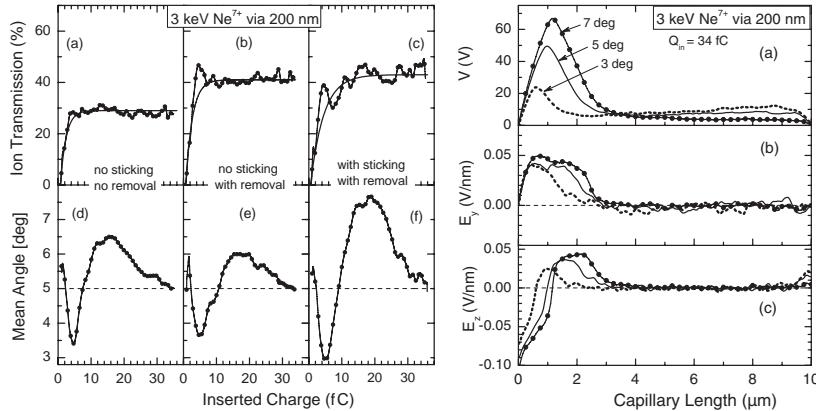


图 1.8: 模拟结果: 3 keV Ne^{7+} 离子穿过 PET 微孔后的出射率、观测角震荡随时间的变化关系 (左) 以及微孔内部的电场电势分布

附注: 模拟方法简介

微孔导向的模拟涉及到离子的沉积、离子的轨迹计算和沉积电荷的输运三个过程。离子的沉积过程的处理很简单, 当离子的轨迹与微孔内壁“相交”时, 认为离子所带的电荷全部沉积到“相交点”的位置 (即碰撞位置)。因为在实验和模拟过程中, 多数使用低能 (keV 量级) 离子, 因此不考虑碰撞引起的二次电子发射造成的额外充电效应。从数学上, 有时候为了加快计算速度, 每个沉积离子对应沉积多个离子带的电荷, 因此二次电子发射造成的充电效应在模拟过程体现不出来。沉积电荷在微孔内部产生电场, 因沉积电荷受微孔材料的屏蔽 (镜像电荷) 而造成电场减弱。电荷态为 q 的离子的镜像电荷

(Image Charge) 为

$$q_{im} = q \frac{1 - \varepsilon}{1 + \varepsilon} \quad (1.3)$$

式中, q_{im} 表示镜像电荷; ε 表示微孔材料的相对介电常数, 对于 PET 或者 PC 材料, $\varepsilon \simeq 3.2$, 对于 Al_2O_3 , $\varepsilon \simeq 9.5$ [15], 对于 SiO_2 , $\varepsilon \simeq 3.9$ [16]。模拟中忽略运动中的离子的镜像电荷, 这是因为只有在傍轴入射或者沉积电荷量特别少时, 运动离子的受到镜像力才起主要作用 [17, 18]。

离子的轨迹可以用牛顿方程 [12, 13] 或者哈密顿方程 [9, 10] 计算。每计算一次, 沉积在微孔内壁上的电荷的位置、电荷量以及微孔内的电场 (或者电势) 都要重新计算。

绝缘材料的导电性是一个非常复杂的问题 [19]。一方面是因为, 绝缘材料的电导率非常小实验上很难精确的测量, 不同的测量方法确定的数值差别很大, 另一方面是因为, 绝缘材料的导电机制非常复杂 [20]。通常情况下, 模拟的时候都将微孔材料的电导率 (或者放电时间常数) 作为一个可调参数。一般地, 对于 PET 或者 PC 孔膜材料, 面电导率 σ_s 比体电导率 σ_b 大两个数量级 [10], 按照此认识, 体电导率在模拟过程完全可以忽略, 但是 Schiessl 和 Stolterfoht 两人都加入了体电导率, 而且模拟结果显示体电导率影响着导向出射, 见图 1.8 左。

沉积电荷在微孔内壁上的放电过程主要有两个过程: 漂移 (Drift) 和扩散 (Diffusion)。2008 年, Pokhil [21] 提出沉积电荷在微孔内壁上的输运主要由漂移过程决定。假设宏观尺度为 L 的距离, 电荷漂移和扩散需要的时间分别为 t_{drift} , $t_{diffusion}$, 于是可以得到他们之间的关系

$$\begin{aligned} L &= \mu E t_{drift} \\ L &= \sqrt{D_b t_{diffusion}} \end{aligned} \quad (1.4)$$

其中, E 表示微孔内部的电场; μ 和 D_b 分别是电荷迁移率和扩散系数, 他们之间有爱因斯坦关系 (Einstein-Nernst Relationship)

$$\mu = \frac{q}{kT} D_b \quad (1.5)$$

式中的 T 表示温度; k 是玻耳兹曼常数。根据 (1.4) 和 (1.5) 两式, 可以得到

$$\frac{t_{diffusion}}{t_{drift}} = \frac{qLE}{kT} \quad (1.6)$$

若取 $L \simeq 1 \mu\text{m}$ （绝大多数电荷沉积在入口处，且入口处的电荷斑横向尺寸量级为 μm ）， $E \sim 100 \text{ V}/\mu\text{m}$ （实验测得的 PET 或者 PC 材料的击穿电压上限 [22]）， $q = 1 e$ ， $T = 300 \text{ K}$ （室温），则可以从式 (1.6) 估算 $\frac{t_{diffusion}}{t_{drift}} > 10^3$ 。由此可见，漂移过程又比扩散过程重要的多。综上所述，表面导电比体导电重要，漂移比扩散重要。因此，在模拟过程中，似乎只需要考虑电荷在表面上的漂移过程。

虽然上面的“半”定量考察显示，漂移过程对微孔放电占主导地位，但是当 Schiessl 等人只考虑扩散过程时，仍然可以得到较为理想的模拟结果，详情请参阅文献 [9–11, 15, 23, 24]。这里，必须指出，绝缘材料的导电性与很多因素（如湿度，材料表面处理过程等）有关 [19]，文献资料中给出的数值具有很大的不确定度，所以微孔材料的导电性在模拟过程中都是作为可调参数，而且放电常数和材料的电导率或者扩散系数通常也不是一一对应的（例如，文献 [10] 给出 $D_b = 2 \times 10^3 \text{ nm}^2/\text{s}$ ，根据公式 $\tau_d = l_b^2/D_b$ ，取 $l_b = 250 \text{ nm}$ ，可估算 $\tau_b \simeq 30 \text{ sec}$ ，但是模拟中使用的值却是~35 min；文献 [12] 给出的 D_b 值约为 $10^{-4} \text{ nm}^2/\text{s}$ ，这样得出的放电常数将远远大于模拟中使用的值 40 min）。

至此，我们简单介绍了导向模拟的基本方法，其中最主要的，也是最不清楚的就是沉积电荷的输运处理。不同的研究者采用的处理方法也不同，如 Schiessl 采用扩散，Stolterfoht 采用表面漂移并将体扩散过程作为微扰。但是，不同的方法实现的模拟都可以得到微孔导向的基本特征。这可能是因为，电荷的沉积和输运是一个统计过程，扩散与漂移造成的电荷分布和耗散特别相近，导致微孔壁上的电荷分布差别不大，从而微孔内部的电场或者电势分布类似，于是模拟出的导向结果没有很大的出入。因此，无论采用的是哪一种电荷输运，最后得出的微孔内壁上的电荷分布（对应电场或者电势分布）肯定是相似的。事实证明确实如此，两种模拟都指出绝大部分电荷沉积在入口处形成一个强度最强的电荷斑；平衡时，离子直接由入口电荷斑偏转离子至平行于微孔轴线。

1.2.4 导向效应的现象规律

绝缘微孔导向效应的发现引起了很多研究工作者兴趣，并做了大量的实验研究。目前，已经证明很多绝缘微孔材料（PET [25–27]，PC [28, 29]， Al_2O_3 [30–35]， SiO_2 [7, 16, 36]， Si_3N_4 [37]）都对低能离子有导向作用。在本节中，我

们介绍一下实验中总结出的一些半经验规律。

1) 出射离子强度的时间演化—判据之一

我们已经知道，离子要被导向出微孔，必须先在微孔内壁上形成电荷斑，因此离子开始出射是在充电一段时间之后，然后随着电荷的积累，出射离子强度慢慢增大，最后达到平衡。图 1.9 描述了不同电流强度下，离子出射强度的时间演化过程。一般地，时间演化过程可以用下面的公式描述：

$$Y(t) = Y_\infty \left[1 - \exp \left(-\frac{t - \tau_s}{\tau_c} \right) \right] \quad (1.7)$$

式中， Y_∞ 表示导向平衡时的离子产额； τ_s 和 τ_c 分别表示离子出射的延迟时间和离子束流对微孔内壁的充电时间常数。实际上，(1.7) 式可以由 (1.1) 式的线性形式得到。有时为了便于分析，我们可以将时间 t 转换成沉积电荷 $Q_{dep} = J_{in} \times t$ ，如图 1.9 所示。

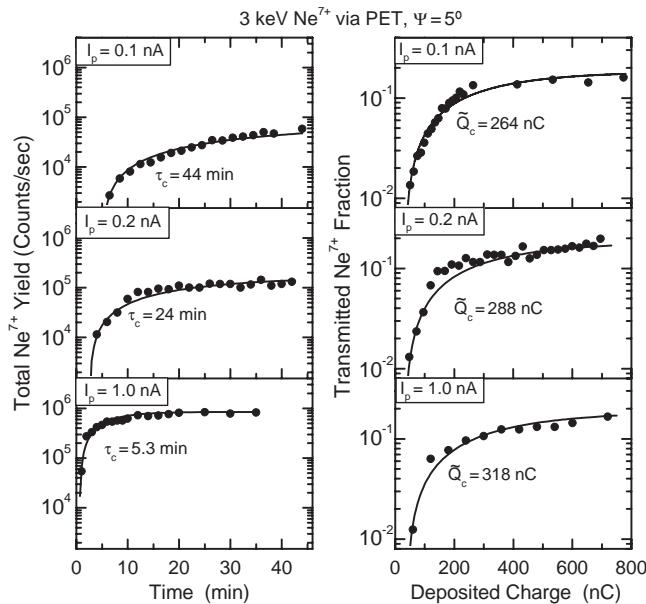


图 1.9: 3 keV Ne^{7+} 离子导向穿过微孔后的强度的时间演化

从图 1.9 可以看出，时间常数 τ_s 和 τ_c 与电流强度有关，电流增大，二者减小，反之，则相反。实验中发现， τ_c 与入射粒子的能量 [27]、束流强度 [38, 39] 和微孔的孔径尺寸 [40, 41]、倾斜角 [8, 42, 43] 有关。总结发现， τ_c 与入射束流强度 J_{in} 和微孔横截面（对应于微孔直径 d 的平方）成反比。下面我们半定量分析一下：

设入射束流强度为 J_{in} , 束斑直径为 D ; 入射进一个孔的电流强度为 J_{in}^s , 微孔直径为 d ; 完成导向需要的沉积电荷为 Q_c (沉积在微孔薄膜入射表面上的电荷量) 或者 Q_c^s (进入单个微孔内的电荷量)。因此, 有

$$\begin{aligned} J_{in}^s &= J_{in} \left(\frac{d}{D} \right)^2 \\ Q_c^s &= J_{in}^s \tau_c = J_{in} \tau_c \left(\frac{d}{D} \right)^2 = Q_c \left(\frac{d}{D} \right)^2 \end{aligned} \quad (1.8)$$

对单个微孔而言, 当能量和入射倾角一定时, 完成导向需要的沉积电荷量 Q_c^s 应该是一样的。于是, 根据式 (1.8) 可以看出, $\tau_c \propto (1/d^2)$, $\tau_c \propto (1/J_{in})$ 。

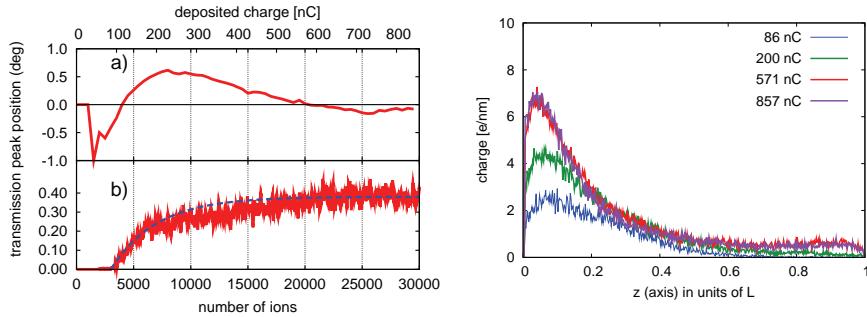


图 1.10: 模拟结果: 3 keV Ne^{7+} 离子导向穿过 PET 微孔 ($\psi = 3^\circ$, $d = 200 \text{ nm}$, $L = 10 \mu\text{m}$) 后的时间演化过程: 左上—峰位置, 左下—出射率, 右—沉积电荷线密度

表达式 (1.7) 的作用: 一是获得平衡时 ($t \rightarrow \infty$) 的出射离子产额或者离子出射率, 二是估算完成导向的平衡电荷量 $Q_\infty \simeq J_{in} (\tau_s + \tau_c)$, 这个电荷量可以用来粗略计算微孔内部的电场和电势 (参见 3.3 小节)。这里必须指出, 这种方法估算的平衡电荷量一般比实际的平衡电荷量小。这一点我们可以从 Schiessl 的模拟结果 [15] 得出, 如图 1.10 所示。出射率“平衡”的时候, 导向不一定平衡 (图 1.8 更明显), 即微孔内壁上沉积电荷分布 (对应微孔内部的电场或者电势分布) 不一定平衡。根据图 1.10, 由出射率确定的“平衡”电荷量约为 200 nC, 而实际的平衡电荷量约为 600 nC。

2) 角分布的半高全宽FWHM

出射离子的角分布的展宽 (FWHM) 表征出射束流的发散度大小, 同时也反映微孔内的电场分布。角分布的展宽由很多因素决定, 例如束流自散度、微孔的非平行度以及微孔出口处的散焦场 [6, 7, 9–11, 22, 24, 44, 45] 等。很多实

验表明, FWHM 的时间演化过程类似于离子出射率的演化过程—先缓慢增大, 随后达到一个稳定值 [7, 27, 36, 38, 43, 44, 46–52]。

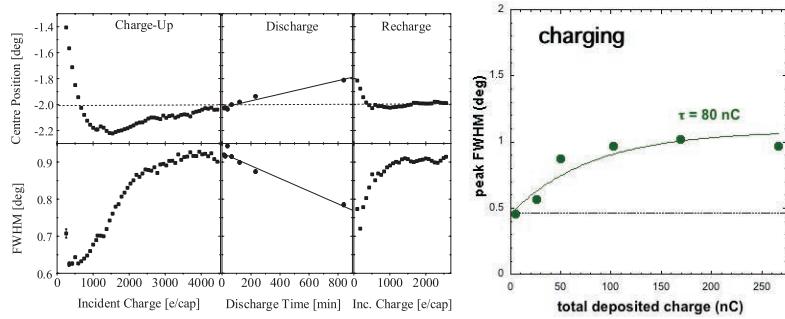


图 1.11: 离子穿过微孔后角分布宽度的时间演化: 左— $7 \text{ keV } \text{Ne}^{7+} \rightarrow \text{SiO}_2$ ($d = 100 \text{ nm}$, $L = 25 \mu\text{m}$); 右— $12 \text{ keV } \text{Ar}^{8+} \rightarrow \text{PET}$ ($d = 200 \text{ nm}$, $L = 10 \mu\text{m}$)

图 1.11 描述了角分布展宽与微孔充放电之间的关系。充电过程中, FWHM 逐渐增大到一个稳定值; 放电后, FWHM 缓慢减小; 重新充电后, FWHM 又缓慢增到同一个稳定值。充电过程中的动态演化过程可以用公式 (1.7) 描述 (见图 1.11 右)。因此, 角分布展宽的动态性质主要与微孔内的电荷沉积和输运过程有关, 而且这一动态性质也可以作为导向的判据。

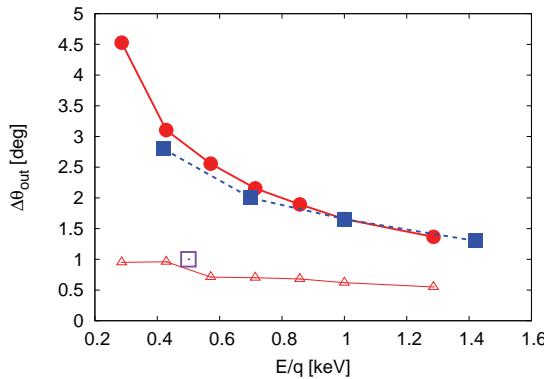


图 1.12: $3 \text{ keV } \text{Ne}^{7+}$ 离子穿过 PET 微孔后角分布宽度与能荷比 E/q 之间的关系: 几何开口角为 1° , □ ($n = 4 \times 10^6/\text{cm}^2$) 和 ■ ($n = 4 \times 10^8/\text{cm}^2$) 为实验数据, △ (单孔) 和 ● (包含平均场) 为模拟数据

Skog 等人 [7] 认为出口处的散焦场主要是由出口处的非局域化电荷斑产生的, 而 Stolterfoht 等人 [22, 45] 则认为散焦场主要是由入口处电荷斑负责产生;

Schiessl 等人 [9, 10] 则认为散焦场是微孔集体效应 (Collective Effect) 造成的平均场 (是一个散焦场)。根据单孔导向模拟 [12, 13]，微孔内部所有沉积电荷在微孔出口处的散焦场非常弱，可以忽略不计 (见图 1.8 右的偏转场分量 E_y)，因此它不可能造成明显的角分布展宽。基于这样的事实，角分布展宽只能由微孔集体效应造成，而且集体效应只在微孔数密度比较大的情况下体现出来 [24, 52]。Schiessl 的模拟结果 [10, 24] 显示，低密度时，角分布宽度约等于微孔的几何开口角；随着微孔密度的增加，集体效应的作用开始变得显著，使角分布变宽 (见图 1.12)。集体效应除了跟微孔密度有关外，还与束流的发散度和均匀度有关，这是因为束流的发散度会影响微孔内壁上的沉积电荷的分布 [53]，从而影响微孔内的电场。

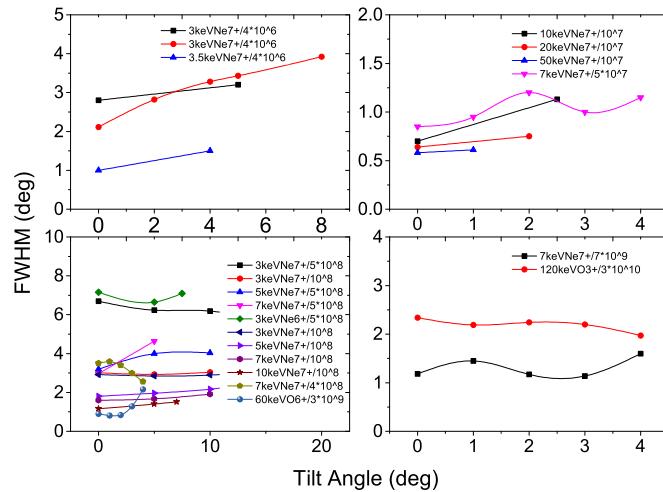


图 1.13: 离子穿过绝缘微孔后的角分布宽度与倾斜角和微孔密度之间的关系

上面介绍了角分布展宽的物理原因，接下来简单介绍一下角分布展宽的现象学规律，以帮助认识电荷在微孔内壁上的沉积过程。虽然 FWHM 的时间演化过程与粒子出射率的时间演化过程类似，都与微孔内壁上的电荷沉积过程有关。但是，FWHM 似乎对电荷沉积更敏感。这是因为实验上观察到的 FWHM 随某个因素 (例如倾斜角 ψ) 的变化关系并不稳定 (唯一)。有的实验观察到 FWHM 随倾斜角的增大而增大或者略有增大 [16, 45, 54]，有的实验观察到 FWHM 与倾斜角无关 [6, 30, 33, 35, 46, 55]，还有的实验观察到 FWHM 随倾斜角的增大而减小 [26]。作者总结了近几年来实验上观察到的 FWHM 与倾斜角和微孔数密度关系，如图 1.13 所示，这些数据来自文献

[6, 11, 16, 22, 25, 26, 32, 33, 38, 45, 47, 49, 54, 56]。由此图可以看出，整体上，当减小微孔数密度时，FWHM 随着倾斜角的增大而增大；在微孔数密度比较高时，FWHM 与倾斜角无关。这可能是由于当微孔密度较大时，沉积在微孔内壁上的电荷分布的“个体差异”被集体效应埋没，所以因倾斜角变化导致的电荷分布差异无法反映在 FWHM 上。

实验上还观察到 FWHM 随电荷态 q 增大而增大 [55]，随动能 T_p 增大而减小 [25, 57]。通常，我们将能荷比 T_p/q 作为一个整体参数来描述 FWHM 与电荷态 q 和动能 T_p 的关系。模拟 [24] 和实验 [22, 45] 结果都显示 FWHM 随 T_p/q 的增大而减小，而且还给出一个经验公式： $\text{FWHM} = 1.65^\circ \text{kV}^{0.7} \left(\frac{q}{T_p}\right)^{0.7}$ 来描述 FWHM 随 T_p/q 的变化。Stolterfoht 当初提出公式的时候认为 FWHM 与微孔直径无关，并且假设散射场主要由入口电荷斑产生 [22, 45]，然而后来他又用实验证明 FWHM 随着微孔直径的增大而减小 [41]。因此，这个公式只能近似适用于直径为 100 nm 左右的 PET 和 PC 微孔。

3) 导向能力—导向角 ψ_c

实验上发现离子穿过微孔的出射率随倾斜角 ψ 的增大而减小。一般地，出射率与倾斜角之间的关系可以用高斯公式很好的描述

$$\begin{aligned} f(\psi) &= f(0) \exp\left(-\frac{T_p}{qU} \sin^2 \psi\right) \\ &= f(0) \exp\left(-\frac{\sin^2 \psi}{\sin^2 \psi_c}\right) \end{aligned} \quad (1.9)$$

式中的 U 代表入口处电荷斑产生的有效势。必须指出，式 (1.9) 是一个半经验的公式，目前来说是无法证明的（虽然 Stolterfoht 于 2013 年基于“平行板”模型通过各种“人为”的近似可以得到这个表达式 [13]）。为了定量表征微孔对低能离子的导向能力，我们把参数 ψ_c 称之为导向角（有些时候也叫临界角，作者更倾向于导向角的叫法，字面上就能体现其作用）。Stolterfoht 通过总结多个 PET 和 PC 微孔的实验结果，得出了一个描述导向角大小的经验公式：

$$\psi_c = 2.9^\circ \text{kV}^{0.7} \left(\frac{q}{T_p}\right)^{0.7} \quad (1.10)$$

微孔对离子的导向能力只取决于微孔的材料性质，即微孔的导电性质，与微孔的尺寸 [41] 和微孔密度 [54] 没有明显的关系。因此，我们可以通过改变微孔材料的电导率控制微孔的导向能力。2012 年，Gruber 等人 [58] 通过改变直

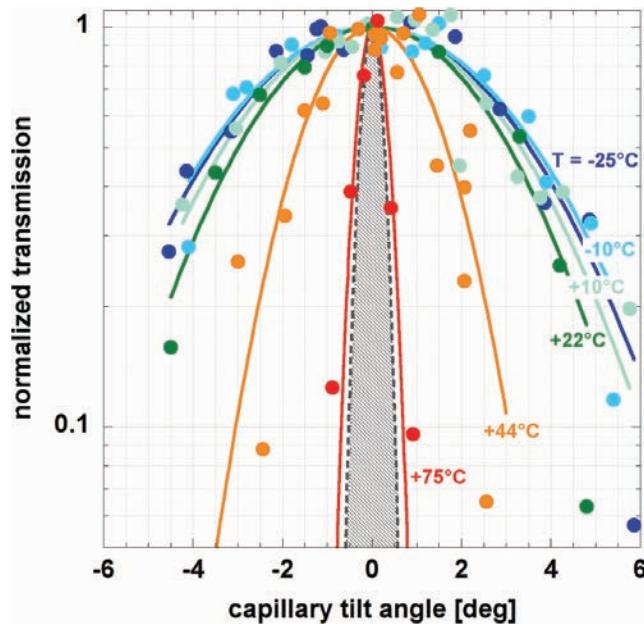


图 1.14: 不同温度下, 4.5 keV Ar^{7+} 离子穿过直玻璃管后的出射率与倾斜角的关系

玻璃管（内外径分别为 $160 \mu\text{m}$ 和 $300 \mu\text{m}$, 长为 11.4 mm ）的温度来改变玻璃管的电导率, 从而控制其导向能力, 实验结果如图 1.14 所示。由此图可以看出, 随着温度的升高, 离子出射率开始下降, 而且当温度达到一定高度后, 离子几乎按几何透射出射。这是因为温度升高时, 玻璃管的电导率变大, 沉积在玻璃管内壁上的电荷迅速流失而无法形成有效的强电荷斑, 微孔内部没有强的有效电场, 于是离子无法被偏转出玻璃管。

1.2.5 其他有趣的效果

1) 阻塞效应 (Blocking Effects)

2011 年, Stolterfoht 等人发现, 当 3 keV Ne^{7+} 离子穿过 PC 微孔后, 出射率随时间先增大, 达到一个最大值后开始下降, 他把这种“离子出射率先增大后减小”的现象称之为阻塞效应 [43]。一年后, Juhász 等人也发现了阻塞效应, 但是 Juhász 发现出射过程中的中性原子也有类似的行为 [50] (这说明这些中性原子是被导向的离子在出射过程中产生的, 而不是离子因与微孔内壁近碰撞产生的)。他们都发现, 倾斜角比较小时, 阻塞现象更严重 (图 1.15)。

离子出射率增大，说明沉积在微孔内壁上的电荷增多；但是随后离子出射率减小有两种可能的原因：一是因为微孔内部的库仑电势太大（电荷沉积过多，或者集体效应导致），从而阻止离子出射；二是微孔内部的库仑电势太小（沉积在内壁上的电荷流失或者沉积电荷过均匀），从而离子无法被偏转出射。

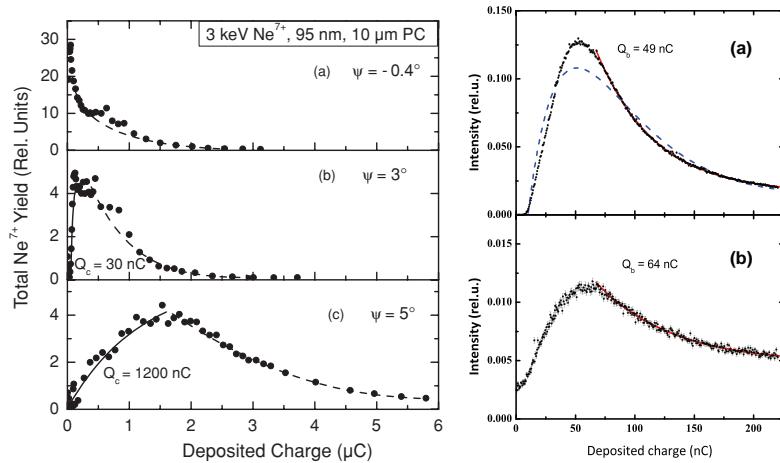


图 1.15: 阻塞效应的实验结果: 左—3 keV Ne⁷⁺ 离子, 右—3 keV Ar⁷⁺ 离子

2013 年, Stolterfoht 的模拟结果显示, 当微孔的电导率比较大时, 可以观察到阻塞效应。同年, Stolterfoht 用实验研究 PET 微孔的数密度对离子出射率的影响, 发现当微孔密度较小时, 离子稳定出射, 随着密度的增大, 阻塞效应开始出现, 而且密度愈大, 阻塞愈明显。这两项研究表明, 大电导率或者集体效应都会导致阻塞效应。前者造成的阻塞效应是因为微孔材料的电导率会随着外场的增大而增大, 沉积在内壁上的电荷会快速的流失; 而后者造成的阻塞效应是因为相邻孔会增强某一孔内的势垒, 这个势垒高度会因为密度的增大而增大, 离子无法穿过势垒而出射 (详情可参看 [52])。

2) 塑形效应 (Shaping/Tailoring Effects)

2012 年, H.-Q. Zhang 等人发现, 当离子傍轴穿过正方形的 SiO₂ 微孔后, 出射离子束的横截面变成菱形; 而当微孔的形状为菱形时, 出射粒子束的横截面是正方形, 如图 1.16 所示。但是, 当倾斜角逐渐增大时, 塑形效应慢慢消失 [17, 18]。塑形效应是离子在微孔内受到四周不均匀的镜像力引起的。

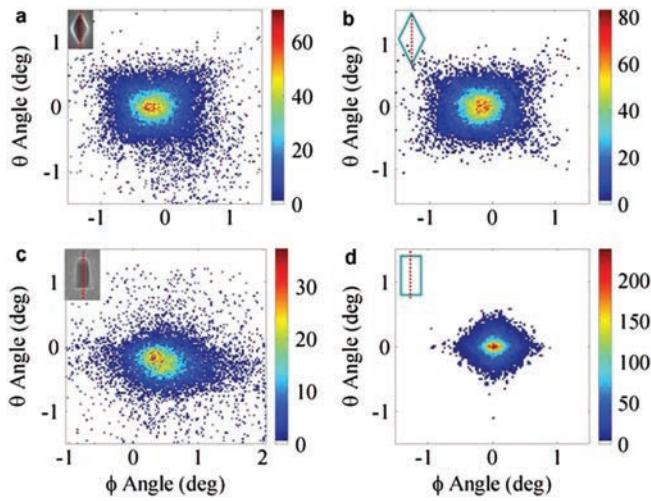


图 1.16: 塑形效应的实验结果 (a) 和 (c) 和模拟结果 (b) 和 (d)

1.3 锥形玻璃管对离子束的聚焦效应

绝缘微孔的两个主要的作用是导向离子和制备离子纳米束或者微束。因为玻璃管（直径 0.1–1000 μm ）制作简单、廉价（加热、拉伸即可），所以研究玻璃管的导向效应对探索玻璃管的应用具有重要的意义。玻璃管对低能离子的导向效应也是基于自组织充电机制，而且实验现象与其他绝缘微孔（例如 PET, PC, Al_2O_3 和 SiO_2 等）的情况大同小异，这里不单独介绍。下面我们主要介绍锥形玻璃管对离子束的聚焦效应（如无特殊说明，一般都是指 0° 时玻璃管出口处的离子面密度与入口处的离子面密度之比）。

2003 年，Nebiki 等人首次利用锥形玻璃管聚焦 2 MeV 的 He^+ 离子 [59]。他采用的玻璃管长约 50 mm，入口直径为 0.8 mm，出口直径只有 0.8 μm ，因此聚焦倍数的上限为 10^6 ($(\frac{0.8 \times 10^3}{0.8})^2 = 10^6$)。实验测定的聚焦倍数高达 10^4 倍，超乎预测！能谱图（大的倾斜角时，能谱有一个低能“尾巴”且峰位减小）表明 2 MeV He^+ 离子的聚焦是由于小角散射而不是导向。

2005 年，Vokhmyanina 等人研究了 200–500 keV 的质子束通过锥形玻璃管（长 10 cm，入口直径为 1.5 mm，出口直径为 0.5 mm）后的聚焦效应 [60]。实验发现聚焦倍数正比于 $\frac{1}{T_p}$ ，其中 T_p 是质子的动能（见图 1.17）。他们认为此能量下的聚焦效应是由自组织充电产生的偏转电场造成的（如果是小角散射，那么聚焦倍数应该正比于 $\frac{1}{T_p^2}$ ）。

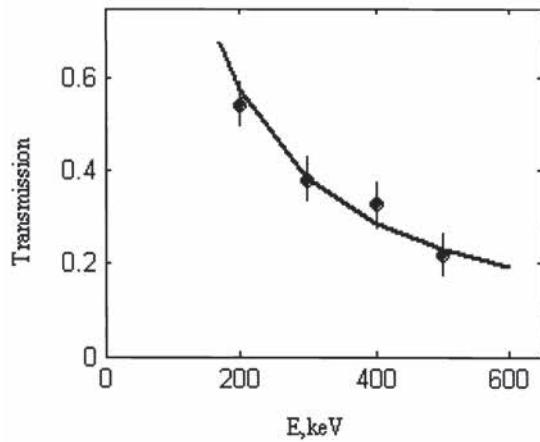


图 1.17: 不同能量的质子束通过锥形玻璃管的出射率

2006 年, Ikeda 等人研究了 8 keV Ar^{8+} 离子通过玻璃管 (长约 50 mm, 入口和出口直径分别为 0.8 mm, 24 μm) 的聚焦效应 [61]。实验测得聚焦倍数约为 10 倍。此外, 他们发现, 当转动玻璃管时, 离子总是沿玻璃管轴线出射且电荷态不发生变化, 这从实验上证明了低能离子在玻璃管中的导向效应。

锥形玻璃管的聚焦效应因离子能量的不同有两种机制: 对于低能离子 (keV 量级), 聚焦是由于导向效应 [61–66], 而对于高能离子 (MeV 量级) 则是由于小角弹性散射 [67–69]。实验中发现锥形玻璃管对低能离子的聚焦倍数随着电流的增大而减小 [66], 并且出口直径越大聚焦倍数越小, 理论模拟表明其正比于 d_{out}^{-1} (d_{out} 是锥形孔的出口直径)。然而, 对于高能 (MeV 量级) 离子, 实验发现聚焦倍数与电流无关 [70], 并发现聚焦倍数正比于 $D_{out}^{-1.3}$ [71], 但是基于多次小角弹性散射的模拟结果显示锥形孔对高能离子的聚焦倍数与孔的出口直径和离子能量无关 [68]。

必须指出, 百 keV 量级和 MeV 量级的轻离子在微孔中的出射机制并不统一, 不同的实验给出不同的物理解释。2015 年, G.Y. Wang 等人 [72] 认为 100 keV 的质子与 PC (Polycarbonate) 微孔膜作用的机制是自组织充电和集体散射 (Charge-patch-assisted Collective Scattering)。但是, Vokhmyanina 等人 [60] 认为 200–500 keV 的质子与玻璃管作用是单纯的自组织充电。2015 年, Rajta 等人 [73] 通过实验发现, 1 MeV 的质子可以由电荷斑偏转而导向通过玻璃管, 且出射率达到 90%。作者对此进行了初步模拟, 模拟结果请看附录 A。

1.4 负离子和电子的导向

低能负离子或者电子在绝缘微孔中的导向效应和离子的有着显著的不同的。沉积在微孔内表面的负电荷（即电子）很容易因碰撞作用而损失掉，所以微孔内部比较难形成“负”电场，进而不容易发生导向效应。

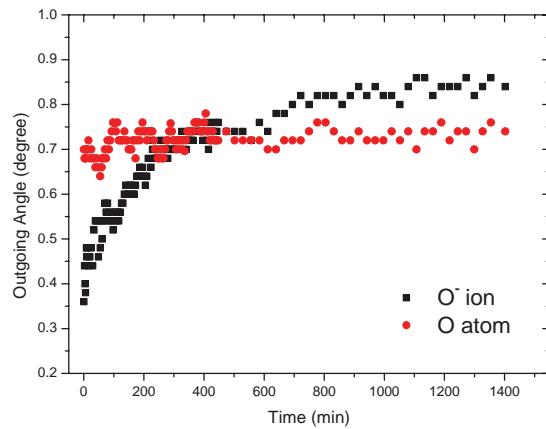


图 1.18: 10 keV 的 O^- 离子穿过倾斜角为 0.8° 的 Al_2O_3 (长 $10 \mu\text{m}$, 直径 20 nm) 纳米孔后出射位置的时间演化

兰州大学（中国·兰州）陈熙萌教授研究组在研究“负离子导向”方面做了大量工作 [51, 74–78]。他们指出负离子的导向跟负离子束的强度有重要的关系—当负离子束的强度较大 ($> 50 \text{ pA/mm}^2$ [51]) 时，实验中可以观察到导向效应（见图 1.18），但是对于小的束流强度，实验上很难观察到导向效应。

通常情况下，电子穿过绝缘微孔时导向和散射过程同时存在，一般都是以散射为主 [79]。散射过程一般通过测量电子穿过微孔后的能谱得到，当能谱存在能量损失“尾巴”时就是散射过程；导向过程的存在通过测量电子出射强度的充电时间演化或者放电时间演化，若存在充电或者放电过程，就可以证明导向过程的存在。图 1.19 显示了 800 eV 的电子穿过直径 0.18 mm , 长 14.4 mm 的玻璃管后出射强度、能量和出射谱半高宽的时间演化。图中清晰的显示电子出射存在充电和放电过程，且一段时间后，不再存在能量损失，这充分说明导向效应的存在 [80]。

通过研究能量对电子导向的影响，发现当电子的能量比较低时 ($< 500 \text{ eV}$) 时，电子与绝缘微孔的作用以卢瑟福散射 (Rutherford Scattering) 为主，当电

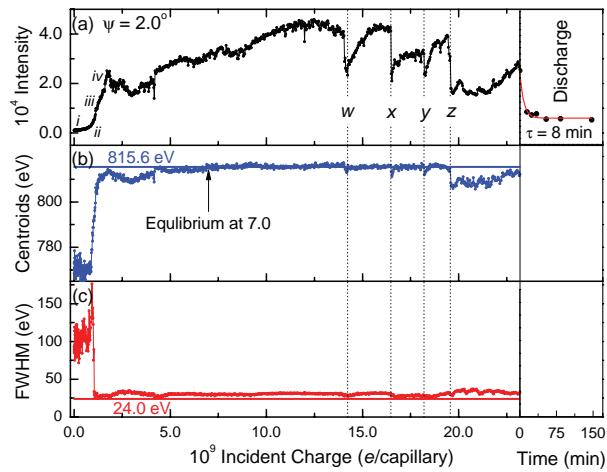


图 1.19: 800 eV 的电子穿过玻璃管后出射强度、能量和出射谱半高宽的时间演化

子的能量大于 500 eV 时，库仑导向和散射同时起作用 [81]。更多关于电子与绝缘微孔作用的研究可以参看文献 [82–84]。

1.5 本章注记

关于微孔导向的经典实验是 Stolterfoht [6, 8, 38, 43], Ikeda [61], Skog [7], H.-Q. Zhang [18, 36] 和 Gruber [58] 等。关于微孔的经典理论分析和模拟是 Schiessl [9–11, 15, 15, 24], Stolterfoht [12, 13, 53, 85], Pokhil [21] 等。本章无法全面的将所有微孔导向的实验和理论研究进行报道，只能撷取一部分进行引述，更多详尽的内容可以通过阅读本章所引文献或者引文中的文献深入了解。

有趣的是，微孔导向效应的发现特别具有“偶然性”。1997 年，Yamazaki 等人用金属 Ni 纳米孔成功的引出了第一代空心原子，并进行了研究，具体实验工作可参看文献 [4]。金属微孔除了可以直接制作在金属薄膜上之外，还可以先在绝缘薄膜上利用高速重离子产生径迹损伤，然后用化学蚀刻的方法得到纳米孔，最后再在微孔内壁上镀上金属层。然而，据说 Stolterfoht 在往 PET 微孔内壁上镀金属层时特别不容易（镀不上或者镀不均匀），因此他就直接用绝缘的 PET 微孔研究离子的出射情况，从而发现了导向效应，进而引起了大批的研究工作者加入这一研究领域。此外，微孔薄膜表面镀的金属层也出乎意外的成为影响电荷输运的一个重要因素，进而影响离子在微孔内的导向出射。

关于微孔导向机制的一条主线是：2002年Stolterfoht等人发现导向效应并提出自组织充电模型；2005年Schiessl等人对微孔导向进行了理论模拟，成功重现了自组织充电过程，采用的电荷输运机制是线性的扩散放电；2008年Skog等人通过实验发现离子在微孔内部的震荡行为，并对自组织充电模型进行的修正，最重要的是提出任何导向至多需要三个电荷斑；2012年Gruber等人通过改变玻璃管的温度来控制导向效应，这是第一次从实验上直接观察到微孔材料导电性质对导向效应的影响；2013年Stolterfoht利用电荷输运中的漂移效应完成微孔导向模拟。

一般地，微孔导向效应的实际应用都是指玻璃管的应用价值。利用玻璃管产生的离子束进行相关研究分析，优势是玻璃管可以产生束斑特别小的离子束，空间分辨率高，且可以在“常”环境（非真空、液体环境等）下进行研究，如PIXE (Particle Induced X-ray Emission) [86–88]，核反应分析 NRA (Nuclear Reaction Analysis) [89]，卢瑟福背散射 RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopic) [90]，Radiography [91]，细胞手术 (Cell Surgery) [69, 71]等。

第二章 实验研究：氢分子离子穿过多孔锥形孔的透射

本实验是在中国科学院近代物理研究所 320 keV 综合实验平台的 ECR (Electron Cyclotron Resonance) 离子源和在其上面搭建的表面物理实验终端上完成的。平台的主要装置包括：电子回旋共振离子源 ECRIS (Electron Cyclotron Resonance Ion Source)，分析（偏转）磁铁，聚焦准直系统，真空靶室以及测量系统等（见图 2.1）。ECR 离子源产生离子后，由引出电压引出，经过聚束器、光阑准直后，经由分析磁铁得到所需要的电荷态，再经过四极透镜、光阑准直聚焦，最后由一个 60° 偏转磁铁进入真空靶室与靶相互作用。探测器的信号由数据获取系统记录并实时存储以便线下处理分析。

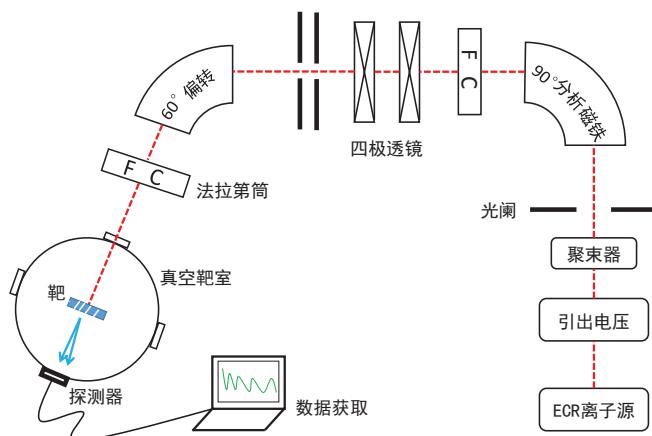


图 2.1: 兰州重离子国家实验室 ECR 离子源 1# 表面物理实验平台示意图

本章首先简单介绍一下实验装置（只涉及理论基础与原理），然后对实验结果进行分析处理并给出实验结论。

2.1 实验平台简介

2.1.1 电子回旋共振离子源

高电荷态离子物理的发展很大程度上得益于离子源的迅速发展。目前高电荷态离子源装置主要有电子回旋共振离子源，电子束离子源（Electron Beam

Ion Source, EBIS) 和电子束离子阱 (Electron beam ion trap, EBIT) 等。其中, ECR 离子源则是国际上公认的可提供强流高电荷态离子束最有效的等离子体装置。

图 2.2 为近代物理研究所 320 kV 全永磁 ECR 离子源实物图。这台离子源是目前国际上体积最大, 磁场最强, 性能最好的 ECR 离子源, 离子源整体由 1412 块永磁铁粘结而成, 7 个磁环之间的磁力可以达到 10 吨以上, 其注入磁场可达 2.2 T, 电子枪内壁径向磁场为 1.21 T。它能产生全部气体元素、非金属和部分金属元素的高、中、低电荷态离子束, 实际运行指标是当前国际同类装置的最好水平。

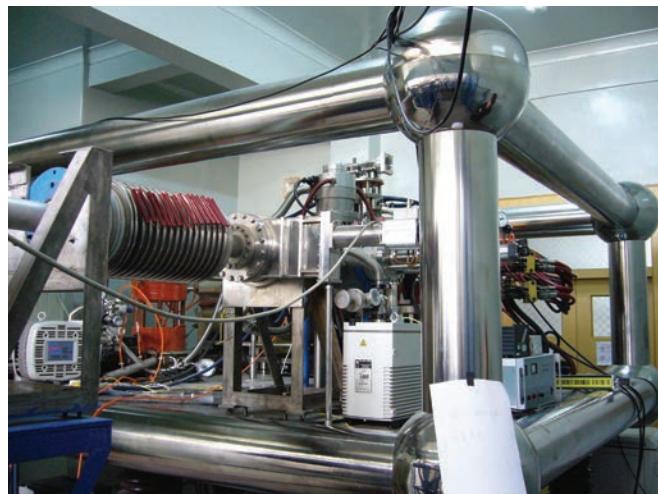


图 2.2: 兰州重离子国家实验室 14.5 GHz ECR 离子源实物图

ECR 离子源是一种利用磁场约束和超高频电子回旋共振加热来产生多电荷态离子的等离子体装置。ECR 离子源利用微波 (电场) 使稀薄中性气体电离形成等离子体, 产生的等离子体被磁场约束在电离区, 随后电子从微波中获得能量而变成高能电子, 高能电子与等离子体区的离子多次碰撞而逐级剥离离子, 使其具有更高的电荷态。因此, 等离子体的约束时间越长, 碰撞次数就越多, 获得的离子电荷态就越高; 然而, 等离子体约束不是完全的, 总会有离子挣脱约束而“丢失”, 故约束时间越长, 离子数目就越少, 所以离子的流强大小和电荷态高低总是一个矛盾体。

具有一定速度 v 的电子在磁场 B 中受到洛伦兹力 F_l 而作回旋圆周运动

(设回旋半径为 ρ , 向心力为 F_c), 回旋频率 ω_{ec} 由 (2.1) 式决定。

$$\begin{cases} F_l = eBv \\ F_c = \frac{m_e v^2}{\rho} \Rightarrow \omega_{ec} = \frac{eB}{m_e} \\ v = \omega_{ec}\rho \end{cases} \quad (2.1)$$

当微波的频率 ω_{RF} 与电子回旋频率 ω_{ec} 相等时, 电子将发生共振并从微波中吸收能量, 从而获得高温等离子体 (高能电子)。由上式可以看出, ω_{RF} 和 B 一一对应。我们可以通过增加微波频率或者磁场来提高 ECR 离子源的性能。

2.1.2 电荷态的选择

离子源产生的离子包含各种电荷态的离子, 引出后往往不能直接用于实验研究, 必须经过电荷态筛选。因为磁场力 (洛伦兹力) 只会改变荷电粒子的运动方向而不改变其能量, 所以通常利用分析 (偏转) 磁场进行电荷态筛选。设 ECR 离子源产生的离子具有电荷态 q_i , 离子质量为 m , 于是引出动能

$$\frac{1}{2}mv^2 = Uq_i \quad (2.2)$$

其中 U 是引出电压。离子在磁场 B 中的运动方程为

$$q_i v B = \frac{mv^2}{\rho} \quad (2.3)$$

联合 (2.2) 和 (2.3) 式可以得到

$$\frac{q_i}{m} = \frac{2U}{B^2\rho^2} \quad (2.4)$$

由上式可以看出, 只有当离子的运动轨迹半径 ρ 与分析磁铁的半径 R_B 相等时, 离子 (q_i, m) 才能通过。因此, 我们可以过改变磁场 B 进行电荷态选择。但是, 冲入离子源的原始中性气体中难免有杂质, 根据 (2.4) 式可以知道分析磁铁无法区分荷质比相同的不同离子。

2.1.3 束流的准直与聚焦

选定电荷态后的离子束, 必须经过准直聚焦才能进入真空靶室与靶相互作用。在我们的束流线上, 电荷态选定后, 束流经过两个四极透镜聚焦 (实物图

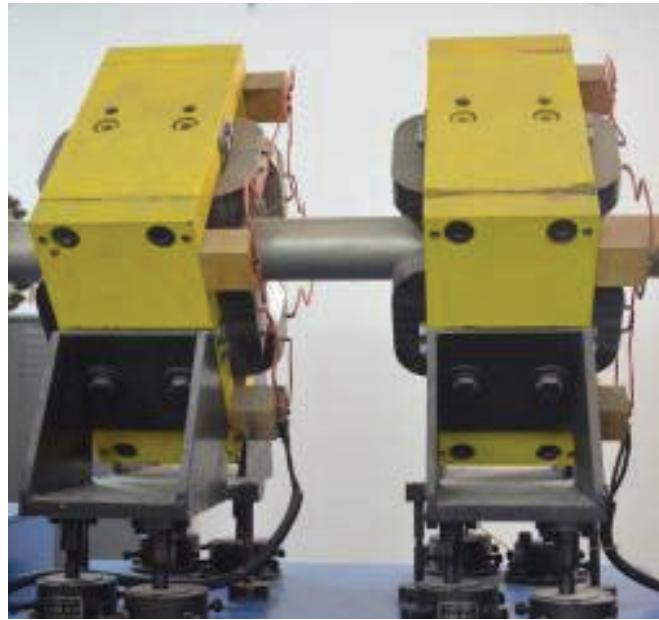


图 2.3: 束流线上的两个四极透镜的实物图

见图 2.3), 然后再经过两个光阑准直, 此时束流的直径可以控制在 10 mm 范围内, 进入靶室后也会有限束孔控制束流的直径尺寸。

下面简单介绍一下磁场聚焦的理论基础。

荷电粒子在磁场中受到的洛伦兹力, 而在荷电粒子的运动方向上洛伦兹力为零, 因此洛伦兹力不会对荷电粒子做功, 不能改变荷电粒子的运动速度大小, 只能改变荷电粒子的运动方向, 使之发生偏转。当荷电粒子的速度 v 与磁场 B 方向成一定夹角 θ 时, 于是速度可以矢量分解为 $v_{\parallel} = v \cos \theta$ 和 $v_{\perp} = v \sin \theta$ 。因为磁场 B 在平行方向上没有作用, 故此时荷电粒子在磁场中做螺旋运动。回旋半径由 (2.3) 式给出, 即

$$\rho = \frac{mv_{\perp}}{qB} = \frac{mv \sin \theta}{qB} \quad (2.5)$$

与回旋半径对应的回旋周期为

$$T = \frac{2\pi\rho}{v_{\perp}} = \frac{2\pi m}{qB} \quad (2.6)$$

由此式看出回旋周期只取决于荷电粒子的种类和磁场强度, 与粒子的初始运动状态无关。因为平行方向上荷电粒子不受力, 所以它在磁场方向上做匀速直线

运动，在一个周期 T 内走过的距离称之为螺距。螺距表达式为

$$h = v_{\parallel} T = \frac{2\pi m v \cos \theta}{qB} \quad (2.7)$$

当夹角 θ （对应束流的发散角，通常不超过 1° ）很小时， $v_{\parallel} \simeq v$ ，故螺距 $h \simeq \frac{2\pi m v}{qB}$ 。

由此可知，一束发散角不大的离子束流，他们的回旋周期和螺距都一样。因此，经过一个回旋周期后他们会重新汇聚到一点，这就是磁聚焦的理论基础。以上的讨论是基于均匀磁场，但是实际上用的都是非均匀磁场（短螺线管）。



图 2.4: 1# 表面物理实验平台球形靶室

2.1.4 真空靶室

我们的靶室为直径 40 cm 的球形，由不锈钢材料做成。图 2.4 展示了球形靶室的实物图。靶室内部还加置了铂金材料做成的电磁屏蔽罩以屏蔽外界电磁场对高电荷态离子的影响。球形靶室表面分布着一些大小不一的窗口（见图 2.4），其中一个作为离子束流口，此窗口一般不做它用，与之正对的那个窗口一般用于安装探测或者法拉第筒。与离子束流水平垂直的两个窗口一般作为观察窗口，直径较大。竖直的窗口用来安装靶架系统。其他小的窗口则用于束

流或者信号检测。我们的靶架系统有五个自由度，分别是上下、左右、前后、方位角以及仰角，精度可以用步进电机数字化调节。靶室的真空一般在 10^{-8} mbar 以上。

2.2 实验方法简介

H_2^+ 离子进过准直聚焦之后进入真空靶室，装置示意图如图 2.5。在真空靶室内，我们用直径为 1 mm 的限束孔裁剪束流。束流强度用一个穿透式法拉第筒监控，强度为 60–1000 pA，发散度好于 0.3° 。微孔样品放在一个角度仪上，该角度仪可以上下左右前后以及仰角和方位角 5 个方向移动。位于微孔样品下游 375 mm 处放置一个二维微通道板（Micro Channel Plate, MCP）探测出射粒子。MCP 的灵敏区形状为圆形，直径为 40 mm，空间分辨率为 $70 \mu m$ 。于是，探测器对微孔的张角为 $\pm 3^\circ$ 。为了分辨出射离子的电荷态，通常会在探测器与微孔样品之间设置一对偏转电极板。实验时靶室的真空度好于 10^{-8} mbar。

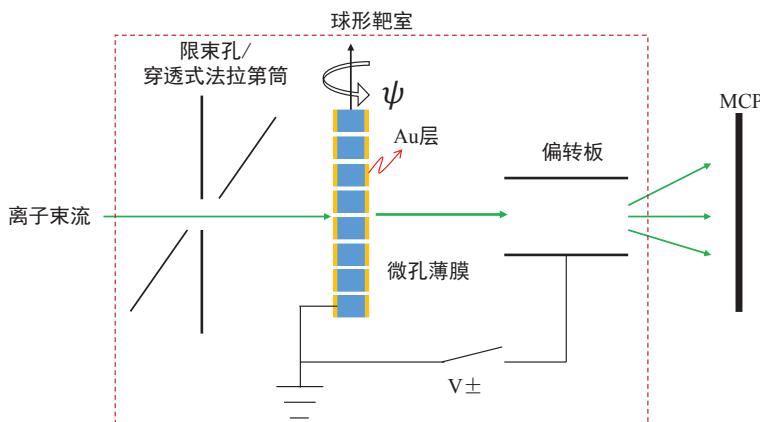


图 2.5: 离子在微孔中的导向实验示意图

实验中用到的锥形 PC 微孔膜是用化学方法蚀刻高能重离子（Au 或者 U）的径迹得到的。微孔的平行度约为 0.4° ，图 2.6 展示了微孔的 SEM 扫描图。微孔的入口和出口直径分别为 $4 \mu m$ 和 $2 \mu m$ ，微孔薄膜厚为 $30 \mu m$ 。由此知，微孔的锥角（微孔内壁与微孔轴线之间的夹角）约为 2° 。此微孔允许的几何透射角为 5.7° ，所以探测器能测到的最大角度为 $\pm 8.7^\circ$ （探测器的几何张角与微孔的几何透射角之和）。微孔面密度为 $2 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ ，对应的微孔平均间距约为 7

μm , 因此微孔之间不大可能发生重叠(见图 2.6)。为了避免束流在微孔膜的表面充电, 我们在其表面镀了一层金, 并接地。

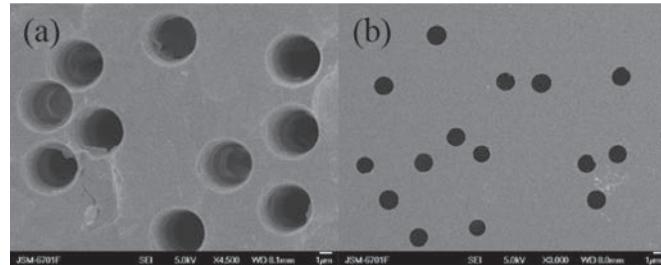


图 2.6: PC 锥孔膜的 SEM 扫描图

0°倾斜角的确定:“来回”转动微孔, 并测量对应情况下的出射离子的强度。出射离子强度最大的倾斜角被认为是0°倾斜角。线下数据处理时, 还会通过出射率随倾斜角的变化曲线重新“精确”确定0°倾斜角。

2.3 实验结果讨论与分析

2.3.1 200 keV H_2^+ 离子的透射与聚焦

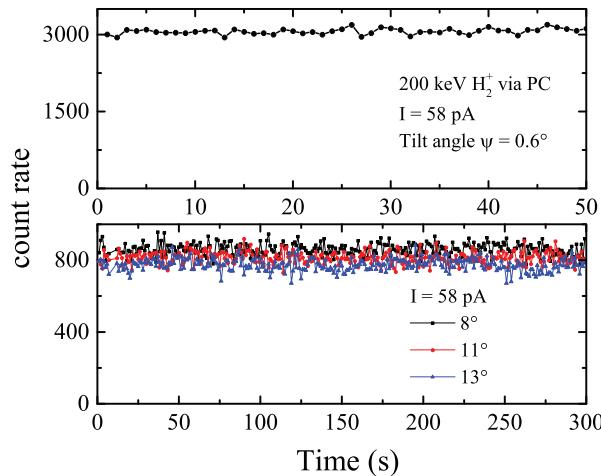


图 2.7: 不同倾斜角下, 200 keV H_2^+ 离子的出射计数与时间的关系

图 2.7 显示了 200 keV H_2^+ 离子穿过锥形孔后探测器上的计数率与时间的关系。入射束流强度为 60 pA, 倾斜角如图中标注。如图所见, 粒子出射非常稳

定，但是实验中并没有观察到充电现象，这说明 200 keV H_2^+ 离子的出射可能不是导向效应，很可能是由于小角散射（因为实验中没有测量出射离子的电荷态，所以探测器上的计数包括各种粒子）。接下来的讨论分析不会涉及出射的动态性质，只关心 200 keV H_2^+ 离子的出射产额与倾斜角的关系以及估算锥形孔的聚焦倍数。

图 2.8 为 200 keV H_2^+ 离子穿过锥形微孔后的透射分布图。选取的角度为 0.6° , 6° 和 13° 。如图所示，透射谱由两部分组成：中间的尖峰和一个宽的包络。这种谱结构跟高能 MeV 的离子穿过锥形玻璃管的透射谱特别相似 [67, 68]。因此，中间的那个尖峰是由几何出射的离子组成，而宽包络是由于离子与微孔内壁的散射造成的。对于 13° 的透射谱，只有一个包络，这是因为微孔的几何透明角度为 5.7° ，因此离子不能直接出射。然而， 6° 时存在直接出射的离子，可能是由束流的发散度和微孔的非平行度造成的。

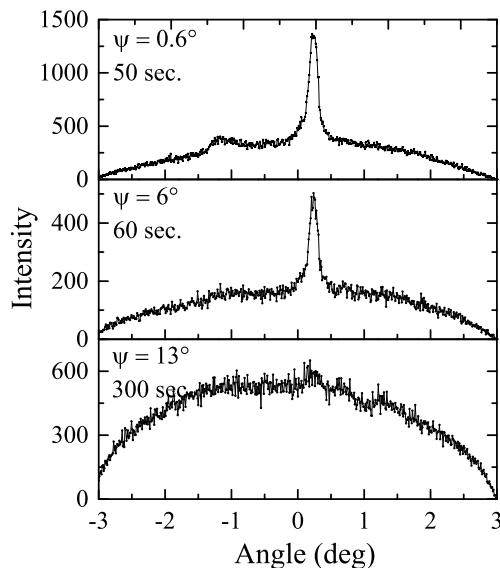


图 2.8: 200 keV H_2^+ 离子穿过锥形微孔后的透射分布

但是，图 2.7 显示，大于 8° 时，出射粒子的计数率几乎不再随着倾角的变化而变化。因此我们把 13° 的出射粒子作为本底。没有束流时，探测器上没有计数，所以这个本底随束流而来，我们猜测这个本底可能是束流与微孔壁作用过程中产生的光子和中性原子。下面的聚分析中，我们扣除了这个本底，但是不区分直接出射和散射粒子。

我们计算了出射粒子产额与倾斜角的关系，如图 2.9 所示。图中虚线表示几何透射与倾斜角的关系曲线。产额用 0.6° 时的产额归一化。如图所示，实验曲线稍微比几何曲线宽，根据上面的讨论，这主要是小角散射造成的。 0.6° 的出射粒子在探测器上的计数率为 3000 cps， 13° 的为 750 cps，因此净出射率为 2250 cps。60 pA 的主束在探测器上的计数率为 10164 cps。因此聚焦倍数 F （出射面密度与入射面密度之比）

$$F = \frac{N_t}{N_i} \frac{1}{nS_o} \quad (2.8)$$

式中 N_t 和 N_i 分别是出射粒子计数率和主束计数率， n 微孔数目面密度， S_o 表示单个微孔的出口面积。

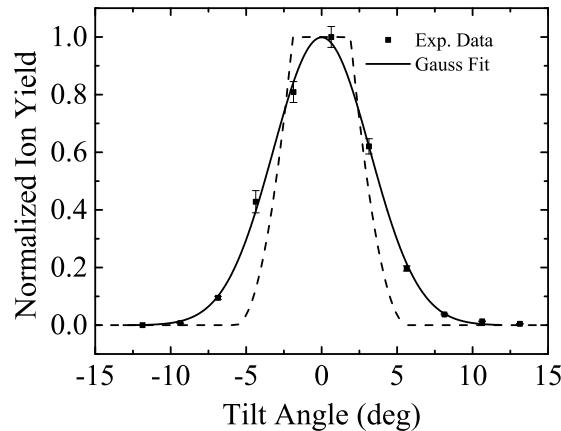


图 2.9: 200 keV H_2^+ 离子穿过锥形微孔后归一化产额与倾斜角的关系

将数值带入后算得聚焦倍数约为 3.5 倍。根据上面的讨论知道，此时的聚焦效应是由小角散射造成的。理论计算的最高聚焦倍数为 $\left(\frac{d_{in}}{d_{out}}\right)^2 = \left(\frac{4}{2}\right)^2 = 4$ 。作为比较，我们也测量了 7 和 20 keV H_2^+ 离子穿过此微孔的聚焦倍数，分别为 2.3 和 1.3 倍，小于 200 keV 的情况。根据碰撞散射理论（卢瑟福散射），能量越大，散射截面越小，但是 200 keV 情况时的实验值却是 3.5，这说明必然有其他因素造成这么大的聚焦倍数（注意实验中用的探测器是 MCP），例如 200 keV H_2^+ 与微孔壁作用过程中产生的光子和中性原子。

这里必须指出，高能时， H_2^+ 离子因碰撞很可能分裂成两个“H 粒子”（绝大多数是质子，原因请看后面），但是这不大可能造成 2 倍的计数，从而对聚焦没有贡献。这是因为，2013 年，Yokoe 等人 [92] 用 0.48–1.92 MeV 的 C_2^+ 离

子轰击锥形玻璃管，研究出射粒子的能谱时，发现分裂后的两个粒子平分分裂前的能量，且只有一个能够出射，另一个无法通过散射过程出射。根据这样的实验事实，我们可以推断氢分子离子虽然会因为碰撞而产生分裂（速度越大越容易分离），但是探测器上的总计数不会因为分裂发生改变，所以氢分子离子的分裂不会对聚焦效应产生影响。

200 keV 的氢分子离子分裂后的两个“H 粒子”的能量为 100 keV，对应的速度为 $2v_B$ (v_B 为玻尔速度)。根据玻尔理论（参看《粒子同固体相互作用物理学》，王广厚著），此时的“H 粒子”不可能为原子态（粒子的速度大于电子的轨道速度），所以 200 keV 的氢分子离子分裂后的碎片大多数为质子。

2.3.2 7-200 keV H_2^+ 离子的双肩峰角分布

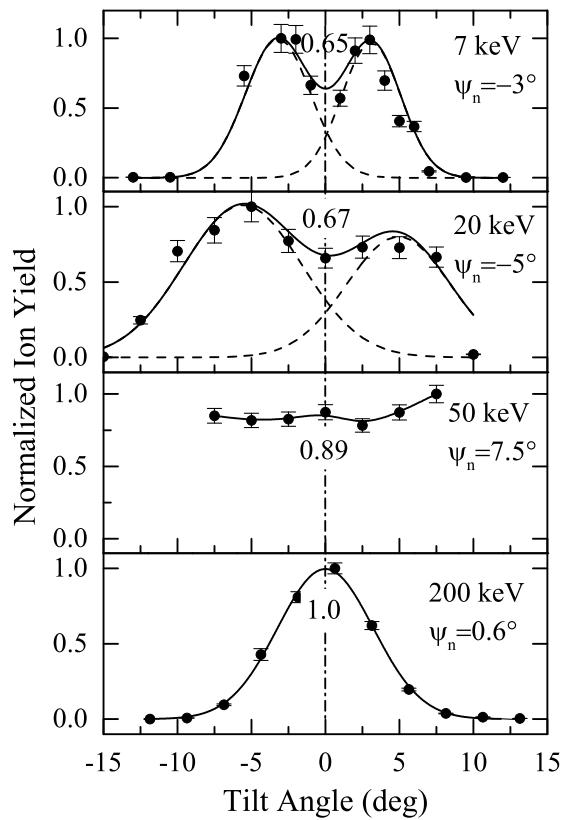


图 2.10: 不同能量的 H_2^+ 离子的出射角分布

下面我们讨论不同能量的 H_2^+ 离子穿过锥形孔后的角分布谱，如图 2.10 所示。图中的 ψ_n 表示归一化角度。由图中可以看出，7 和 20 keV 的情况下，出

射角分布有两个峰分布在 0° 两侧，而 0° 处则是一个凹陷，我们把这种分布称之为双肩峰（Shoulder-Peak）分布；50 keV 的情况分布只有一个平坦区，而 200 keV 时只有一个峰处于 0° 位置。因此，我们用高斯公式拟合了 7 和 20 keV 的两个峰（虚线为拟合，实线为两个拟合峰的叠加），用一条平滑曲线连接 50 keV 的实验点，200 keV 的实线表示高斯拟合。

从拟合线很容易看出，随着入射离子能量的升高，出射角分布从双肩峰结构变成平坦，最后变成单峰结构。2011 年，Kreller 等人用不同能量的 Ar^{8+} 离子轰击锥形玻璃管时也发现了这种双峰结构 [65]。但是他们没有给出合理的解释。2014 年，Gruber 等人研究了温度效应对低能离子在锥形玻璃管中导向的影响，发现温度低的时候，出射角分布为双峰结构，随着温度的升高，双峰结构变弱直至消失 [53, 93]。一年后，Stolterfoht 通过模拟指出，这种双肩峰结构是电荷在微孔内壁上的沉积分布使离子在微孔出口处的内侧被导向偏转过大造成的，而且发现当束流的发散度较大时，不会出现双肩峰结构。他们这些双肩峰结构都是导向机制所能解释的。

但是，我们的实验结果不能用导向机制去解释。首先，实验中我们并没有观察到充电效应；其次，双肩峰之间的距离随着能量的增加而增加，这与导向机制相反—导向机制指出高能离子不容易被导向。因此，根据前面的讨论分析，这里的双肩峰现象很可能是小角散射引起的（参看文献 [67, 68]）。

2.3.3 峰谷差与能量的关系

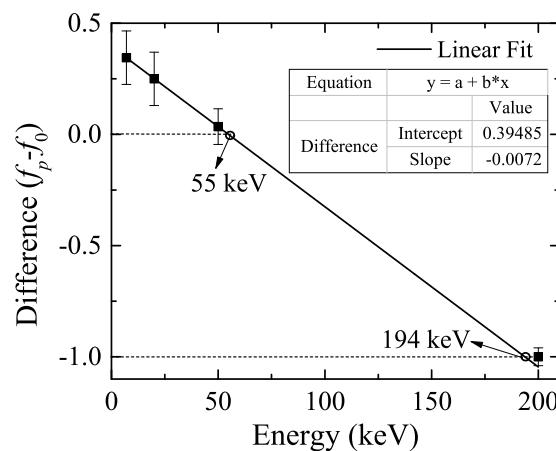


图 2.11: 峰谷差与能量的关系

最后，我们分析了双肩峰高度 f_p 与 0° 处归一化产额之间的相对差与能量的关系，如图 2.11 所示。 f_p 是两个峰的数值平均。图中的实线是线性拟合前面三个实验点得到的，拟合参数见图中表格。从拟合曲线我们可以得到两个特征能量点：一个能量点为 55 keV，此时峰强度与 0° 强度相等；另一个能量点为 194 keV，此时峰谷差值为 -1。当能量小于 55 keV 时，出射粒子的角分布曲线有两个峰；能量在 55 keV 附近时，角分布曲线呈平坦状；当能量高于 194 keV 时，峰谷差总是 -1，因此只有一个峰位于 0° 处。此外，通过这个线性拟合可以知道，低能的峰谷差极限值小于 0.5。

2.4 本章注记

精巧的实验是深入理解微孔导向机制的重要方法。目前在基础研究方面，两个最精巧的两个实验分别是 Gruber [58] 和 H.-Q . Zhang [18]。前者证明了微孔材料导电性质在微孔导向效应中的重要作用，并提供一种控制导向效应的可行手段—温控；后者发现了一个特别有意思的现象—塑形效应，由于离子周围受到的镜像力不均匀，因此零倾斜的微孔对离子束不是简单的几何“切割”。

我们首次使用多孔的锥形孔薄膜（以前所有的锥形孔实验都是基于单个锥形玻璃管）研究了不同能量的氢分子离子穿过锥孔后的透射分布。发现了一个特别的现象—透射分布中具有双肩峰结构。必须指出，我们的实验有瑕疵：1) 用的是新型孔，我们却又用了特殊的离子束—分子离子；2) 用了分子离子之后，我们却没有对其进行电荷态辨别，也就没有分析分子离子碎裂后对计数的影响。3) 用的离子能量跨度太大，远超过纳米孔或者微米孔对离子导向的极限。故，作者本人在后续的研究工作中，应该更注重实验的先前安排，培养自己的超前意识。

第三章 离子在绝缘微孔中导向效应的理论分析

在科学的研究中所遇到的大量函数，有相当一部分是通过观测和实验得到的。虽然函数关系在某个观测区间上存在且变化趋势可预测，但却无法知道具体的完全正确的解析表达式，只能通过观测或者实验得到一些零散的数据点，因此希望对实验观测数据用一个简答的解析表达式近似的给出整体的描述，往往这些简单的表达式都不可能从第一原理进行推演获得。本章就是基于已观测到的导向实验现象规律，“猜测”一个可行的解析表达式，然后用这个表达式进行一些列的推演或者数值计算，从而解释一些实验现象。

离子进入微孔之后，一部分电流用来形成电荷斑，通常可以将这部分电流叫做吸收电流 J_a 。吸收电流形成的电荷斑产生电场，偏转以后入射的离子，形成出射电流。通常，形成的电荷斑会因为微孔材料的电导率而衰减，这样，我们可以将吸收电流进一步分为充电电流（或者沉积电流）和放电电流。

沉积在微孔内壁上的电荷量 $Q_{dep}(t)$ 是由沉积电流 J_{dep} 形成形成的。根据电荷守恒，可以得到

$$\frac{dQ_{dep}(t)}{dt} = J_{in} - J_d(t) - J_{tr}(t) \quad (3.1)$$

其中， J_{in} ， J_d 和 J_{tr} 分别表示入射电流，放电电流和出射电流，于是离子的出射率可以表示 $f_{tr} = J_{tr}/J_{in}$ 。

3.1 线性沉积模型

一般情况下，微分方程 (3.1) 是无法求解的，这是因为放电电流 J_d 和出射电流 J_{tr} 都是不可知的。但是注意，依据电荷守恒可知，方程 (3.1) 是严格正确的，并非一个近似方程。根据实验现象，出射电流 J_{tr} 是随着沉积电荷量 Q_{dep} 的增加而增加的。若我们假设放电电流 J_d 和出射电流 J_{tr} 都正比与沉积电荷量 Q_{dep} ，比例系数分别是 $1/\tau_{tr}$ 和 $1/\tau_d$ ，一般将这种电荷沉积方式称之为线性沉积放电 [6]。 τ_{tr} 和 τ_d 都是和微孔材料有关的时间常数，其中， τ_d 是微孔材料的放电时间。在这种情况下，微分方程 (3.1) 可以改写为

$$\frac{dQ_{dep}(t)}{dt} = J_{in} - \left(\frac{1}{\tau_{tr}} + \frac{1}{\tau_d} \right) Q_{dep}(t) \quad (3.2)$$

方程 (3.2) 是可解析的，其解为

$$Q_{dep}(t) = Q_\infty \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_c}\right) \right] \quad (3.3)$$

式中 $Q_\infty = J_{in}\tau_c$, $\tau_c = (1/\tau_{tr} + 1/\tau_d)$ 。 Q_∞ 表示微孔导向出射完全平衡时，微孔内壁上的电荷量， τ_c 表示入射电流对微孔充电的时间常数。

由线性沉积放电假设和 (3.3) 式可知，离子的出射率具有与 (1.7) 式一样的函数形式，即 $1 - \exp(-t/\tau_c)$ 。但是此种沉积模型无法解释出射率随倾斜角减小的实验现象 [6]。在线性沉积放电模型下，沉积电荷 $Q_{dep}(t)$ 和出射电流 $J_{tr}(t)$ (或者 $f_{tr}(t)$) 有相同的时间演化形式，所以它们两者之间的时间常数（为了区分，我们可以定义两者的时间常数分别为 τ_c^Q 和 τ_c^f ）是一样的。但是，在非线性放电情况下，两者不完全相等。

3.2 非线性沉积模型

3.2.1 (准) 指数放电

实验上发现，导向离子的出射率几乎不依赖于入射电流（电流增大三个量级，出射率稍有增加）[38]；此外，Ikeda 等人发现，离子穿过玻璃平行板时，出射强度存在规则的震荡 [94]。这些现象都可以用沉积电荷诱发的阻变转换 (Resistive Switching) 解释。

根据 Frenkel-Poole 效应 [14]，绝缘材料的电导率与外电场的平方根成指数关系，即

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(\sqrt{\frac{E}{E_c}}\right) \quad (3.4)$$

式中 σ_0 表示微孔材料在无外电场情况下的电导率，即本征电导率； E 表示沉积电荷产生的电场， E_c 是一个特征场，表达式为 $E_c = \frac{4\pi\varepsilon(kT)^2}{e^3}$ 。在室温下， $E_c \approx 1.39 \mu\text{m}$ 。

放电时间正比于电导率的倒数，因此，我们可以得到绝缘材料的放电时间为 [9]

$$\tau'_d = \tau_d \exp\left(-\sqrt{\frac{E}{E_c}}\right) \quad (3.5)$$

通常认为，大部分沉积电荷主要分布在微孔的入口处，因此如果认为微孔内部的电场 E 近似正比于微孔内沉积电荷 Q_{dep} ，因此，(3.5) 式可以改写为

$$\tau'_d = \tau_d \exp \left(-\sqrt{\frac{Q_{dep}(t)}{Q_c}} \right) \quad (3.6)$$

式中的 Q_c 与特征场 E_c 对应。根据 $J_d = \frac{Q_{dep}(t)}{\tau'_d}$ 得到

$$J_d(t) = \frac{Q_{dep}(t)}{\tau_d} \exp \left(\sqrt{\frac{Q_{dep}(t)}{Q_c}} \right) \quad (3.7)$$

如果，微孔内的沉积电荷非常少，即 Q_{dep} 非常小，那么 (3.7) 式退化为 (3.2) 式中的线性形式，即 $\frac{Q_{dep}(t)}{\tau_d}$ 。

3.2.2 双曲放电

上述准指数放电是基于 Frenkel-Poole 效应模型得到的，而 (3.5)–(3.7) 式的数学形式的处理，并没有从微观机制上去考虑电荷在绝缘材料表面的放电过程。沉积在绝缘材料表面上的电荷的消散有两种过程，即自由扩散 (Diffusion) 和外场漂移 (Drift)。扩散电流取决于电荷密度梯度，漂移电流取决于微孔内部的电场。对于扩散系数为 D (m^2/s)，迁移率为 μ ($\text{m}^2/(\text{Vs})$) 的材料，电荷“走过”一段距离 l ，扩散和漂移过程分别用的时间为 $t_{diffusion}$ 和 t_{drift} 。于是有

$$\begin{cases} 2Dt_{diffusion} = l^2 \\ \mu Et_{drift} = l \end{cases} \quad (3.8)$$

根据 Einstein 关系： $D = \mu \frac{kT}{q}$ ($k = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$ 是玻耳兹曼常数)，可以得到

$$\frac{t_{diffusion}}{t_{drift}} = \frac{Eq}{2kT} \quad (3.9)$$

在室温下，当 $l \simeq \mu\text{m}$, $E \simeq 0.1 \text{ V/nm}$ 时， $\frac{t_{diffusion}}{t_{drift}} > 10^3$ 。所以相对于漂移电流而言，扩散电流造成的电荷衰减可以忽略。

根据 Liesegang 等人 [95, 96] 的实验结果和理论（基于漂移 Model，因为采用电流描述为 $J = \sigma \times E$ ）推导，分布在绝缘材料表面的电荷遵循双曲线衰减 [21, 95, 96]，而不是指数衰减，即

$$Q_{dep}(t) = \frac{Q_0}{(1 + t/t_0)} \quad (3.10)$$

式中 Q_0 是初始电荷量; t_0 可以表示为 β/Q_0 , 其中 β 与电荷斑尺寸、微孔间距(对应于微孔密度)和微孔材料有关。于是, 此时对应的放电电流 $J_d(t)$ 为

$$J_d(t) = \frac{Q_{dep}^2(t)}{\beta} \quad (3.11)$$

3.2.3 渐近行为的理论分析

虽然我们“知道”了放电电流的理论表达式, 但是在非线性放电情况下 (3.1) 式依然不可解, 因为出射电流 $J_{tr}(t)$ 的理论表达式无法给出, 因此对于这样的方程, 我们有两种解决方法, 即:

1. 假设 $J_{tr}(t)$ 和 $Q_{dep}(t)$ 之间的函数关系为 $J_{tr}(t) = y(Q_{dep})$, 或者 $J_{tr}(t)$ 的时间演化表达式, 那么, 我们可以数值求解(如果可以的话, 解析求解)。因为通过实验, 我们可以得到 $J_{tr}(t)$ 的时间演化曲线, 进而可以很“容易”地假设一个表达式, 例如线性沉积模型下, 我们假设 $J_{tr} = Q_{dep}/\tau_{tr}$ 。这一种方法是一种经常用的方法, 但是这种方法一般不能给出 $J_{tr}(t)$ 的解析表达式;
2. 假设一个微分方程 (3.1) 的试探解, 然后就完全可以解析求解出 $J_{tr}(t)$ 。最后, 将得到的理论表达式与实验结果比较。这一种方法的优点在于可以给出 $J_{tr}(t)$ 的解析表达式, 但是困难在于如何合理的寻找试探解。

下面, 我们先用第一种方法进行渐近行为的讨论。这里用一个经验公式来描述出射电流 $J_{tr}(t)$ 与沉积电荷 $Q_{dep}(t)$ 之间的关系, 即

$$J_{tr}(t) = J_{in}f_0 \exp\left(-\frac{C_e T_p}{qQ_{dep}(t)} \sin^2 \psi\right) \quad (3.12)$$

式中, q 和 T_p 分别表示入射离子的电荷态和能量; 根据实验测量 $f_0 \simeq 0.6$ [42]; $C_e = \frac{\varepsilon \varepsilon_0 A}{d}$ 一个有效电容, 其中 A 表示电荷斑的面积尺寸, d 表示微孔的直径, ε_0 是真空介电常数, ε 为微孔材料的相对介电常数。

- (准) 指数放电

在指数放电模型下, 联立式 (3.1), (3.7), (3.12) 可得

$$\frac{dQ_{dep}(t)}{dt} = J_{in} - J_{in}f_0 \exp\left(-\frac{C_e T_p}{qQ_{dep}(t)} \sin^2 \psi\right) - \frac{Q_{dep}(t)}{\tau_d} \exp\left(\sqrt{\frac{Q_{dep}(t)}{Q_c}}\right) \quad (3.13)$$

首先考虑微分方程 (3.13) 在 $t \rightarrow \infty$ 时的渐近行为。此时 $Q_{dep}(t \rightarrow \infty) = Q_\infty$, 且 $\frac{dQ_{dep}(t)}{dt} \Big|_{t \rightarrow \infty} = 0$, 因此方程 (3.13) 化为

$$J_{in} - J_{tr} - \frac{Q_\infty}{\tau_d} \exp \left(\sqrt{\frac{Q_\infty}{Q_c}} \right) = 0 \quad (3.14)$$

一般地, $\frac{Q_\infty}{Q_c} \simeq 50-100$ [12, 13] (在后面的数值计算部分, 作者会给出半定量推导过程)。当倾斜角较大时, 与指数项 $\frac{Q_\infty}{\tau_d} \exp \sqrt{\frac{Q_\infty}{Q_c}}$ 相比, J_{tr} 可以忽略不计。于是有

$$J_{in}\tau_d \simeq Q_\infty \exp \left(\sqrt{\frac{Q_\infty}{Q_c}} \right) \quad (3.15)$$

表达式 (3.15) 说明平衡电荷量随着放电常数 τ_d 增大而增大, 这是合理的, 因为 τ_d 大时, 沉积在微孔内壁上的电荷流失的少, 所以“留在”微孔内壁上的电荷就会增多。但是仅从数学上看, 因为 Q_∞ 处在指数因子上, 所以 Q_∞ 随着 τ_d 增大不明显。通过计算发现, 当 τ_d 从 $1 \rightarrow 10^5$, Q_∞ 只增加 20 倍左右, 如图 3.1 所示。由式 (3.15) 可以看出, 电流 J_{in} 和放电时间常数 τ_d 对 Q_∞ 有相同的效果。因此, 沉积电荷 Q_∞ 随着入射电流 J_{in} 变化很小, 进而微孔内的电场分布变化很小 (注意, 在得到准指数放电表达式, 已经假设微孔内的电场近似正比于沉积电荷 Q_{dep} 。这里的这个推论也正是假设与结论自洽的表现)。这就解释了导向离子的出射率几乎不依赖于入射电流 [38]。

沉积电荷 $Q_{dep}(t)$ 时间演化的特征时间可以表示为 $\tau_c^Q \simeq 0.632 \frac{Q_\infty}{J_{in}}$ 。根据 (3.15) 式可得

$$\tau_c^Q \simeq 0.632 \cdot \tau_d \exp \left(-\sqrt{\frac{Q_\infty}{Q_c}} \right) \quad (3.16)$$

联合 (3.6) 式可知

$$\tau_c^Q \simeq 0.632 \cdot \tau_d'(t \rightarrow \infty) \quad (3.17)$$

一般地, 我们都用 (1.1) 描述沉积电荷量的时间演化, 故出现 0.632 的常数因子。由此可见, 在准指数放电模型下, 电流对微孔的充电时间与微孔材料的介电性质息息相关。由 (3.12) 式可以看出, 导向离子出射率时间演化的时间常数 τ_c^f 也正相关于放电时间 τ_d' 。

其次, 当 $t \rightarrow 0$ 时, 微分方程 (3.13) 可渐近地表示为

$$\frac{dQ_{dep}(t)}{dt} = J_{in} \quad (3.18)$$

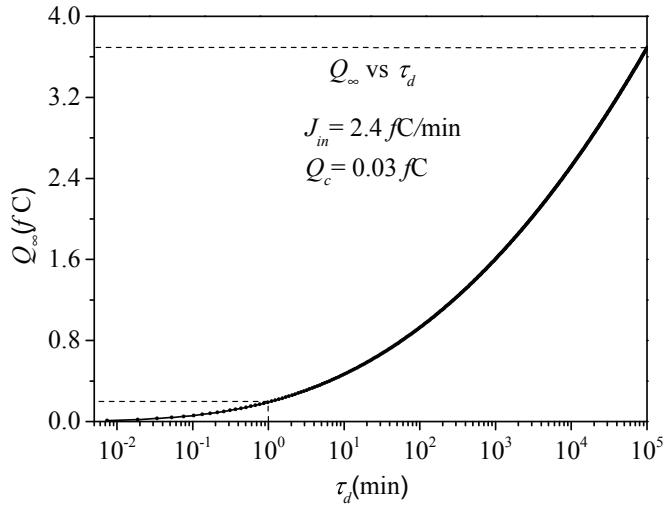


图 3.1: $t \rightarrow \infty$ 时, 平衡沉积电荷量 Q_∞ 与 τ_d 的关系。

很容易得出 (3.13) 式的解析解为,

$$Q_{dep}(t) = J_{in} \cdot t \quad (3.19)$$

所以在充电开始阶段, 沉积电荷量与充电电流成正比。

通过分析微分方程在 $t \rightarrow 0$ 和 $t \rightarrow \infty$ 时的渐近行为, 我们可以知道, 沉积电荷量 $Q_{dep}(t)$ 开始阶段随着 t 线性增大, 最后达到一个稳定值 Q_∞ 。这正解释了为什么可以用公式 (3.3) 描述沉积在微孔内壁上的总电荷的时间演化关系。

- 双曲线放电

同理, 我们也可以就双曲放电形式做此类渐近行为分析, 这里不再赘述。

3.2.4 数值计算讨论

下面对方程 (3.13) 进行数值解析。在进行解析之前, 我们必须对其中的参数进行估算或者设定。我们考虑一种典型情况: 实验束流强度为 1 nA/mm^2 , 能量 $T_p = 3 \text{ keV}$ 的 Ne^{7+} 离子, 入射到长 $L = 10 \mu\text{m}$, 直径 $d = 200 \text{ nm}$ 的 PET 微孔。因此入射到一个微孔内的束流强度 $J_{in} = 2.4 \text{ fC/min}$; 实验上测量到 0° 出射率 $f_0 \simeq 0.6$ 。根据模拟结果 [9, 10, 12, 13], 入口处电荷斑轴向尺寸一般为 $1\text{--}3 \mu\text{m}$, 所以对应的电荷斑面积 $A \simeq 0.63 \mu\text{m}^2$, 进而得到 $C_e \simeq 0.09 \text{ fF}$ 。

根据 (3.5) 和 (3.6) 两式可知, 特征电荷 Q_c 对应于特征电场 E_c , 因此根据高斯定律, 很容易得到 $Q_c \simeq (E_c \varepsilon_0) \cdot A = 3 \times 10^{-2} \text{ fC} (\sim 200\text{e})$ 。需要指出的是, Q_c 与倾斜角相关 (因为电荷斑的尺寸与倾斜角 ψ 有关 [12, 13])。

放电时间常数 τ_d 比较难估算, 这是因为绝缘材料的电导率非常小, 实验上的测量值会因为测量方法的不同而有很大的差异 [19]。微孔放电实验显示 PET 材料的 $\tau_d \simeq 40 \text{ min}$ [6]; 但是利用非线性放电模型对实验结果拟合得到的 τ_d 在 10^4 – 10^7 min 之间 [38, 42, 46]; 根据实验测量到 PET 的迁移率在 1 – $300 \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 之间 [21, 97], 根据漂移模型 ((1.4) 式), 得到的 τ_d 在 3 – 300 min 之间。可以看出 τ_d 的不确定度非常大, 但是前面的渐近分析指出 Q_∞ 随 τ_d 变化非常缓慢 (图 3.1), 因此微分方程 (3.13) 是 τ_d 的缓变函数。这就是说 τ_d 如此大的不确定度不会对数值计算结果造成很大的影响 (下面我们通过计算多个不同的 τ_d 证明这一点)。为清楚起见, 计算中用的参数值列在表 3.1 中。

表 3.1: 数值计算中用到的参数值

$J_{in}(\text{fC}/\text{min})$	f_0	$C_e (\text{fF})$	$T_p/q(\text{kV})$	$Q_c(\text{fC})$
2.4	0.6	0.09	3/7	0.03

图 3.2 显示不同放电时间下的沉积电荷和出射率的时间演化。为了确定沉积电荷和离子出射率的特征时间 (τ_c^Q 和 τ_c^f), 计算数据用下列方程进行了拟合:

$$\begin{cases} Q_{dep}(t) = Q_\infty \left[1 - \exp \left(-\frac{t}{\tau_c^Q} \right) \right] \\ f(t) = f_\infty \left[1 - \exp \left(-\frac{t}{\tau_c^f} \right) \right] \end{cases} \quad (3.20)$$

式中的 f_∞ 表示的是平衡时的离子出射率。

如图 3.2 所示, 式 (3.20) 可以较好的描述沉积电荷和出射率的时间演化 (后面会看出这将是我们给出方程试探解的一个重要的依据)。拟合得到的参数如表 3.2 所示。表中数据显示, 对跨度为 4 个量级的不同 τ_d , 计算得到的时间参数值、平衡沉积电荷量和离子出射率变化不是特别明显。仔细观察表 3.2 会发现, 对于 $\tau_d = 4 \times 10^5 \text{ min}$, 时间参数值显示出更大的差异, 这是因为当 τ_d 非常大时, 微分方程 (3.13) 右边中第二项与第三项相比不能忽略, 从而方程 (3.15) 不能近似成立。尽管如此, 方程 (3.15) 仍不失一个非常好的近似。

上面的渐近分析指出 τ_d 和 J_{in} 对 Q_∞ 有相同的效应, 因此才会导致离子出射率不随电流有明显的变化。我们通过数值分析, 对此结果进行了验证。我们

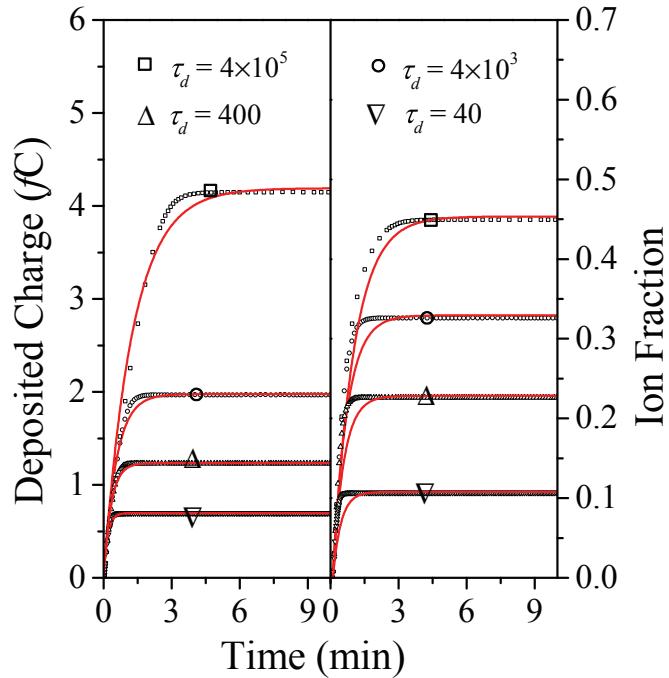


图 3.2: 不同放电时间对应的沉积电荷量 $Q_{dep}(t)$ 与导向离子出射率 $f_{tr}(t)$ 的时间演化。

研究了 $\tau_d = 400$, $J_{in} = 0.24 \text{ fC/min}$ (对应 100 pA/mm^2) 对应的沉积电荷和离子出射率的时间演化，并跟 $\tau_d = 400$, $J_{in} = 2.4 \text{ fC/min}$ 的结果进行了对比，如图 3.3 所示。由图看见，出射率几乎不变，且相应的时间常数与电流强度近似反比。

3.2.5 离子出射率的解析讨论

上面的数值分析可以看出，出射率随辐照时间先增大后达到一个稳定值。

表 3.2: 拟合得到相关数值表

$\tau_d(\text{min})$	$Q_\infty(\text{fC})$	$\tau_c^Q(\text{min})$	$0.632\frac{Q_\infty}{J_{in}}(\text{min})$	$0.632\tau'_d(\text{min})$	$\tau_c^f(\text{min})$	f_∞
40	0.70	0.18	0.18	0.20	0.36	0.11
400	1.23	0.33	0.32	0.42	0.48	0.23
4k	1.98	0.55	0.52	0.74	0.62	0.33
400k	4.19	1.28	1.10	1.86	0.93	0.45

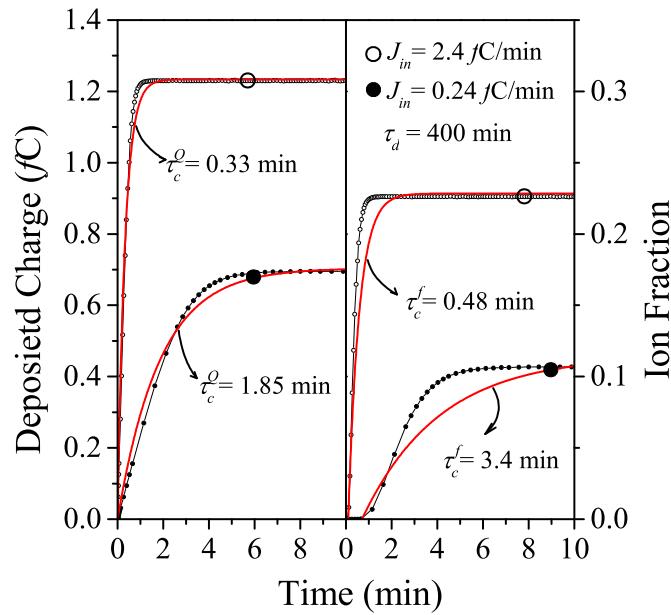


图 3.3: 不同电流强度对应的沉积电荷量 $Q_{dep}(t)$ 与导向离子出射率 $f_{tr}(t)$ 的时间演化。

但是, 实验 [43, 50] 和理论模拟 [12] 表明出射率有时候会出现阻塞 (Blocking) 现象—离子出射率随时间先增大后减小。实验结果表明阻塞现象与微孔的密度有关 [52], 然而模拟结果表明与微孔材料的导电性质有关 [12]。2012 年, Juhász 等人“造”了一个分段公式来描述阻塞效应 (公式详情请参看文献 [50])。下面, 我们根据上面的数值计算和一个常用的假设来得出一个通用的公式描述离子出射率的时间演化过程。

前面我们提到, 求解微分方程 (3.1) 有两种方法。上面的数值分析采用的是第一种方法, 接下来的分析我们采用第二种方法, 即提出一个试探解。

我们假设离子在微孔内壁上的电荷沉积类似电流对电容器的充电过程 (电容器假设), 因此沉积电荷的演化过程可以用下式表示:

$$Q_{dep}(t) = Q_\infty \left[1 - \exp \left(-\frac{t}{\tau_c^Q} \right) \right] \quad (3.21)$$

该式的合理性依据: 1) 渐近性分析发现沉积电荷量先增大, 后达到一个稳定值; 2) 数值计算结果指出沉积电荷量从零慢慢增大到一个稳定值 (图 3.2)。

联合指数放电电流 (3.7) 式可以得到放电电流的时间函数

$$J_d(t) = \alpha J_{in} \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_c^Q}\right) \right] \cdot \exp\left[\sqrt{\frac{Q_\infty(1 - \exp(-t/\tau_c^Q))}{Q_c}}\right] \quad (3.22)$$

式中的 $\alpha = \frac{\tau_c^Q}{\tau_d}$ 。一般情况下, $\tau_c^Q \ll \tau_d$, 所以 $\alpha \ll 1$ 。

将方程 (3.21) 和 (3.22) 代入微分方程 (3.1) 得到离子出射率为

$$f_{tr}(t) = \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_c^Q}\right) \right] \cdot \left[1 - \alpha \exp\left(\sqrt{\frac{Q_\infty(1 - \exp(-t/\tau_c^Q))}{Q_c}}\right) \right] \quad (3.23)$$

为了分析离子出射率的时间演化, 我们令 $\frac{Q_\infty}{Q_c} = 50$ (这个值与理论模拟给出的电场比值差不多 [12])。根据实验结果我们令 $\tau_c^Q = 2 \text{ min}$ (对于 nA 量级的束流, 充电时间一般在几分钟量级), $\alpha \sim 10^{-4}$ (此数值来自准指数放电模型对实验数据的拟合 [38, 42, 46])。计算结果如图 3.4 所示。

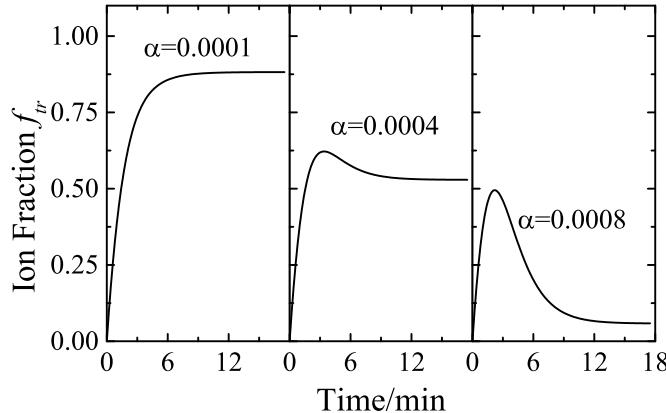


图 3.4: 不同放电时间常数对应的导向离子出射率 $f_{tr}(t)$ 的时间演化。

从图 3.4 可以很清楚的看出不同的放电常数将导致不同的离子出射率。当放电常数较大 (如 $\alpha = 10^{-4}$) 时, 离子达到稳定出射; 随着放电常数的减小, 离子慢慢出现阻塞现象。这说明当微孔的电导率变大时, 出射率会发生显著改变, 且出射率对微孔材料的导电性特别敏感, 这与理论模拟是一致的 [12]。但是, 上面的数值 (渐近) 分析指出出射率对放电时间常数 τ_d 不敏感, 这是因为我们采用的离子出射率假设 (见 (3.12) 式) 造成的。因此, 对离子导向的理论分析是一个特别艰巨的挑战, 上面的两种分析都是特别基础的。

3.2.6 阻塞出射的拟合

为了验证公式 (3.23)，下面用这个公式对实验中观察到的阻塞出射进行拟合。实验数据取自文献 [43]，即3 keV Ne^{7+} 离子在长为 $10 \mu\text{m}$ 的 PC 管中被阻塞。由图 3.5 可以看出，公式 (3.23) 可以很好的拟合阻塞出射的实验数据。但是，因为在拟合过程中把 Q_∞/Q_c 定为 50，其他的都是自由参数，因此得到理想的拟合结果不足为奇。

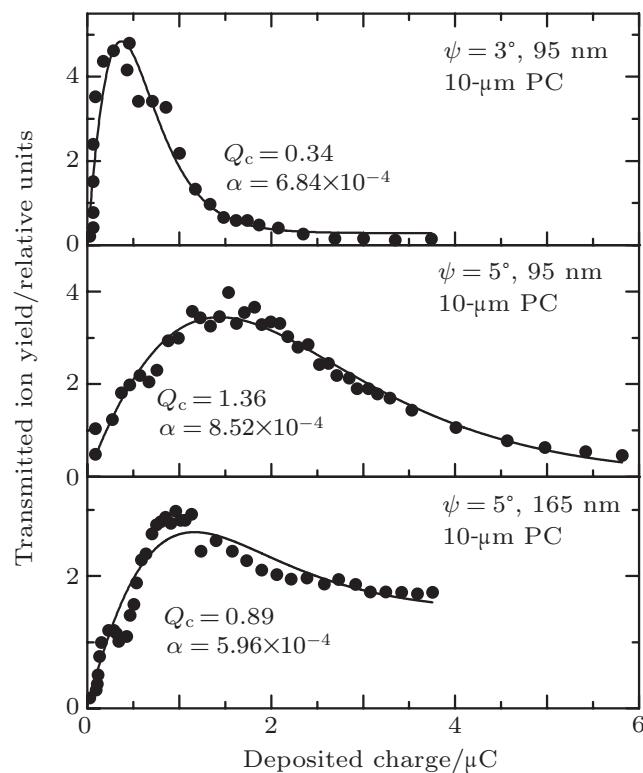


图 3.5: 公式 (3.23) 对实验阻塞出射的拟合。

由拟合参数（见图 3.5）可以看出，参数 $\alpha \simeq 10^{-3} - 10^{-4}$ 之间，与前面的假设一致。对于 $\psi = 5^\circ$ 的两种情况，这里得到的上升电荷，即 Q_c （对应充电时间 τ_c^Q ）与文献 [43] 给出的数值一致。但是，对于 $\psi = 3^\circ$ 的情况，我们得到的 Q_c 值约是文献 [43] 给出的值的 10 倍。这是由于离子出射强度在没有达到饱和时就开始下降（文献 [43] 直接用表达式 (3.20) 拟合曲线的上升部分得到 Q_c ，这样的做法等同于认为此时的最大值就是导向出射的饱和值）。

3.3 附：根据实验结果估算微孔内部的电场

绝缘微孔导向过程是一个统计过程，很多时候无法精确地计算微孔内部的电场或者电势。这个时候就需要寻找合理的方法进行估算。在实验中，能得到的反映微孔导向过程的最重要的物理量是平衡沉积电荷量 Q_c （有时候也用 Q_{eq} 或者 Q_∞ 表示）。下面提供一种用这个物理量估算微孔内部的电场的方法。

3.3.1 电场大小估算

在估算之前，我们先做一下简化。假设沉积在微孔内壁上的电荷均分布，且分布整个微孔（这样的假设其实对应于“平均”）。估算方法采用高斯定理（Gauss Law）——即利用电荷面密度估算电场而不是电荷量。

如何判断估算结果合理性？估算的电场值不能高于微孔材料的电场击穿值 E_{break} 。对于常见的高分子绝缘微孔材料， $E_{break} \simeq 0.1 \text{ V/nm}$ [22]，对应的电荷面密度 $\rho_{break} \simeq 0.006\epsilon e/\text{nm}^2$ (ϵ 为材料的相对介电常数)。因此估算得到的电场或者电荷面密度不应该大于相应的临界值 E_{break} 或者 ρ_{break} 。

下面具体介绍估算步骤。一般情况下，实验中得到的 Q_c 都是沉积在微孔入射表面的电荷量，不是进入单个微孔的电荷量 Q_c^s ，因此需要先将 Q_c 换算成 Q_c^s 。换算公式（参看第一章 (1.8) 式）如下：

$$Q_c^s = Q_c \left(\frac{d}{D} \right)^2 \quad (3.24)$$

其中 d 和 D 分别表示微孔的直径和限束孔的直径，而 $Q_c = J_{in}\tau_c$ (J_{in} 表示入射电流强度， τ_c 表示离子出射强度的上升时间，具体参看第一章)。

根据前面的假设，纳米孔内的电荷斑长度就是微孔的长度 L [6, 21]（对于宏观玻璃管可能不适用），电荷斑的宽度可以用 $\pi d/2$ 。因此电荷斑的面积 S 为

$$S \simeq \frac{1}{2}L\pi d \quad (3.25)$$

因此根据高斯定理，微孔内部的电场 E 为

$$E = \frac{Q_c^s}{S\epsilon_0\epsilon} \quad (3.26)$$

3.3.2 电势的估算

电势 U_e 的估算用电场 E 与微孔直径 d 的乘积。

例

1. Stolterfoht的模拟文章 [12, 13] 中得到的 Q_c^s 约为 4 fC ; 微孔直径 $d = 200 \text{ nm}$, 长度 $L = 10 \mu\text{m}$, 相对介电常数 $\epsilon \simeq 3$, 根据公式 (3.26) 可以得出电场 E 约为 0.05 V/nm 。这个值与理论模拟结果 0.05 V/nm 一致 (注意, 相等完全是偶然, 一般都是量级相等)。
2. 作者本人的模拟结果得出 Q_c 约为 205 nC (参看第四章), 对应的 Q_c^s 为 2 fC , 但是微孔直径为 $d = 200 \text{ nm}$ 。于是, 电场 E 也约等于 0.05 V/nm , 与模拟值 0.07 V/nm 非常接近。
3. 文献 [6] 中: Q_c^s 约为 $5500 e$, 可以估算电场 $E \simeq 0.02 \text{ V/nm}$ (与模拟结果的值“差不多”)。于是得出电势 $U_e \simeq E \cdot d = 0.02 \times 100 = 2 \text{ V}$, 是计算值 1 V 的 2 倍。

注意: 这种估算只能作为一种辅助, 且实验中能观察到充电效应, 否则无法确定 Q_c 。

3.4 本章注记

理论分析是深入理解微孔导向机制的一种重要手段。分析后可以很容易看出影响微孔导向的各个因素。不过, 微孔导向理论特别复杂且有一些不特别确定的成分, 很难得出精确的理论表达式对一些现象加以呈现。因此, 一般的理论分析都是基于一些现象性 (Phenomenology) 结果, 并不能从第一原理得到, 所以都是经验或者半经验的。

我们的理论分析采用了两种方法: 1) 数值求解—前提假设离子出射率与沉积电荷之间存在关系式 (3.12); 2) 解析分析—前提假设离子束流对微孔的“充电过程”类似电流对电容器的充电过程, 即公式 (3.21)。这里必须指出, 数值求解跟实验结果 (离子出射率几乎不依赖于入射电流强度) 是符合的, 但是跟理论模拟结果 (模拟指出离子出射率的时间演化敏感的依赖于微孔的电导率) 不符合; 而解析分析正好相反。

相对于单纯的实验叙述来说, 公式化的理论分析更清楚且具有说服力; 而相对理论模拟来说, 理论分析又更简单且“可视化”。其实, 很多时候理论模拟不是万能的, 不可能重现 (Reproduce) 所有的实验现象, 这是因为模拟中可能会忽略很多细节 (有时候合理, 有时候可能不合理) 且很多时候我们并没

有将实验中的电子学和束线系统考虑进去。这个时候，基于实验现象的理论分析可能就更具有实用性。例如，微孔实验中观察到离子出射率（出射离子数与入射离子数的比值）几乎不依赖于入射电流强度 [38]，目前还没有模拟程序可以重现这个实验；然而，我们的理论分析却可以很好的重现这个结果（参看公式 (3.15)，此公式指出微孔内部的沉积电荷量随入射电流变化特别慢）。

第四章 低能离子在绝缘微孔中导向的模拟

用解析理论的形式去描述离子在微孔中的导向是很困难的，这是因为离子在微孔中的沉积和出射都是随机过程。但是离子导向的模拟涉及很大的时间跨度，因此模拟工作仍然是一个特别艰巨的任务。涉及的时间跨度达18个量级，具体估算可以参看文献 [10]，这里不再赘述。为了行文更连贯，我们可能把一些测试放在附录中作为辅助材料。

4.1 模拟方法介绍

4.1.1 基本考虑

离子在靠近微孔内表面时，当其与表面的距离小于临界距离 $d_c \simeq \sqrt{2q}/W$ （其中 q 是离子的电荷， W 是微孔材料的功函数），离子会共振捕获微孔内壁表面的原子的电子，随后经过一系列衰变过程，离子会改变电荷态。但是，我们在模拟时没有考虑离子电荷的改变。

模拟程序中，需对圆形微孔进行边界设定（长为 L ，直径为 d ）。微孔的尺寸和坐标如图 4.1 所示。当离子的轨迹线与微孔边界相交时，离子沉积全部的电荷于交点处，于是微孔壁带正电并产生电场偏转后来的离子。碰撞过程中不考虑因碰撞而造成的二次电子发射，Schissel 等人 [9, 10] 发现二次电子发射造成的充电效应不会明显改变离子的导向过程（考虑二次电子的效应跟增大电流有相同的结果）。

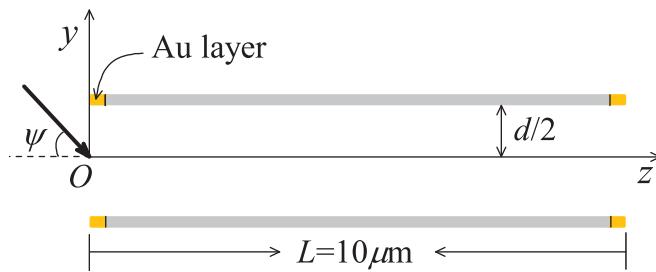


图 4.1: 微孔的尺寸和坐标系图示

沉积电荷在微孔内部产生的电场会因为沉积电荷的镜像电荷 ($q' = q \frac{1-\varepsilon}{1+\varepsilon}$)

减弱，减弱因子为 $\frac{2}{1+\varepsilon}$ 。这里我们选取 PET 材料为例 ($\varepsilon = 3.2$)。此外，模拟过程忽略了相邻孔内的沉积电荷对电场的影响。当微孔密度比较小时(小于 $5 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$)，这个忽略是合理的 [52]。

离子的轨迹用库仑场中的牛顿方程计算。每计算一次离子轨迹，库仑场必须重新计算，这是导向模拟程序中最耗时的计算过程。

4.1.2 沉积电荷的输运过程

由于微孔材料的导电性，沉积在微孔内壁上的离子（或者“电荷团”）的位置和电量都会发生改变。Pokhil 等人 [21] 指出，漂移效应比扩散效应造成的电荷损耗大，因此在模拟中，我们只考虑漂移效应。另外，因为 PET 材料的表面扩散系数 D_s 大于体扩散系数 D_b [98]，所以模拟中只认为电荷在表面漂移，且当电荷漂移到微孔的出入口边缘的接地金属层时，完全放电。

沉积电荷的漂移是微孔中的沉积电荷产生的内建电场驱动的。漂移速度 v 与微孔材料的载流子的迁移率 μ 有关。实验发现载流子的迁移率会随着电场的平方根指数增长 [99]，即

$$\mu = \mu_0 \exp \left(\sqrt{\frac{|\vec{E}|}{E_c}} \right) \quad (4.1)$$

式中 μ_0 表示没有电场时 PET 材料的迁移率， $|\vec{E}|$ 表示电场的绝对值， E_c 的具体表达式，请参看 (3.4) 式。当电场非常小时，式子 (4.1) 退化成线性形式。因此，上述公式是一个通用公式，不必在意电场大小的限制。漂移速度由下式给出

$$v = \mu \vec{E} \quad (4.2)$$

这里需要说明的是，这里的迁移率的电场依赖关系与电导率的电场依赖关系（比较公式 (4.1) 和 (3.4)）是一样的。Stolterfoht 把这两者都归功于 Poole-Frenkel 机制 [14]。但是，根据 Poole-Frenkel 机制，电导率的增加是由于载流子数目的增多，而不是由于迁移率的增大（电导率 $\sigma = q_i n_{q_i} \mu$ ， q_i 和 n_{q_i} 分别表示载流子的电荷和数密度），虽然两者会导致一样的电导率，但是微观机制上是不一样的。

在相邻两个入射离子时间差内 $\Delta t = \frac{q}{I_p d^2}$, 沉积电荷“漂”过的距离为

$$\Delta \vec{s} = \vec{E} \mu_0 \Delta t \exp \left(\sqrt{\frac{|\vec{E}|}{E_c}} \right) \quad (4.3)$$

I_p 为入射电流面密度。我们用这个式子计算沉积离子的位置信息。

离子（团）的电量的衰减，我们采用双曲线衰减，即公式 (3.10)。在第三章中已经指出，双曲衰减是基于漂移效应（作者曾跟 Stolterfoht 讨论过这个公式的内在机制，Stolterfoht 倾向于将双曲衰减解释为漂移过程，即上面 (4.3) 式的线性形式描述的过程，因此认为将双曲衰减加入模拟是一种重复，然而作者本人不认为如此。我们测试了有、无双曲衰减的导向过程，发现没有双曲衰减时无法完成导向，因此我们只能通过模拟的结果去证明这种做法的合理性）。作者的模拟结果显示，公式 (4.3) 的线性形式描述的电荷衰减不遵循双曲衰减。这一定程度上说明公式 (4.3) 的线性形式和双曲衰减可能不是一个过程（当然，也可能存在交叉）。

4.1.3 电荷漂移 Vs 双曲衰减

为了验证漂移过程导致的电荷衰减是否遵循双曲线形式，作者进行了模拟。关于绝缘薄膜材料上的表面电荷衰减遵循双曲衰减的理论论据请参看文献 [21, 95, 96]，这里只讨论漂移过程的模拟。

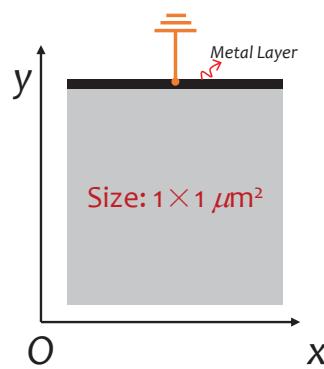


图 4.2: 薄膜材料的坐标示意图

定义一片正方形绝缘材料薄膜，面积为 $1 \mu\text{m}^2$ ，一端有一金属层并接地，如图 4.2 所示。薄膜上均匀分布电荷 $10^4 e$ ，用随机数产生。

设材料的载流子的迁移率 $\mu_0 = 260 \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ (常见 PC 和 PET 微孔材料的典型可接受值)。为了能与文献 [21, 95, 96] 比较并验证一些“争论”，这里不考虑迁移率的非线性 [99] (或者参看公式 (4.1))。电荷在时间 Δt 内漂移的距离用 (4.3) 式的线性形式描述。

模拟过程中考虑了沉积电荷关于金属层的镜像电荷，这样可以保证金属层截面处的电势恒为 0。表面电荷量的时间演化如图 4.3 所示，模拟数据分别用双曲线 $\frac{Q_0}{1+t/t_0}$ 和指数衰减曲线 $Q_0 \exp(-t/\tau)$ 进行了拟合 (拟合中 $Q_0 = 10^4 e$, t_0 和 τ 为自由参数)，发现漂移过程控制的表面电荷衰减不遵循这两条曲线。

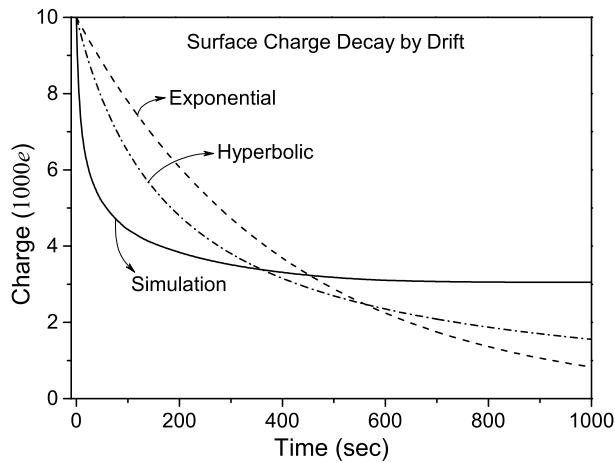


图 4.3: 漂移过程决定的电荷衰减

为了更好的说明这个问题我们将模拟数据取倒数 (图 4.4)。如果电荷衰减遵循双曲衰减，电荷量的倒数应该为一条直线。这就说明由公式 (4.2) 和 (4.3) 描述的电荷漂移过程不是双曲过程，与文献 [21, 95, 96] 描述的电荷衰减过程有差异，因此，模拟中我们将这两个过程 (微观的电荷漂移过程 (物理过程) 和双曲衰减过程 (数学过程，更本质的物理过程作者不能确定)) 视为独立过程，并都考虑在内。

不同的放电时间后对应的电荷分布如图 4.5 所示，左边列为电荷沿 x 轴的分布，右边列为对应的二维分布。从上往下，放电时间分别为 0, 10, 100, 200, 1000 秒。由图 4.3 知，电荷量的衰减随着时间越来越慢，这个现象可以从图 4.5 解释：放电开始后，表面电荷会迅速通过金属层放电，同时部分电荷汇聚在 x 轴的两个“端点”，处在这两个端点的电荷的漂移运动特别慢，所以当放电一段时间后，放电速度会越来越慢。但是因为“镜像力”(金属层接地) 的存在，

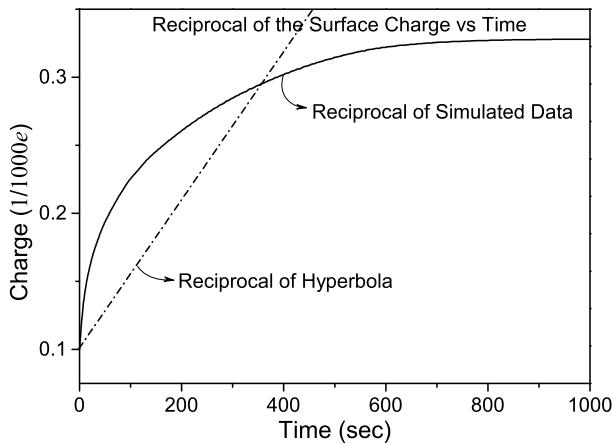


图 4.4: 对应图 4.3 的数据的倒数图

电荷会越来越少，直至全部放电。

根据上面的讨论，作者认为模拟中公式 (4.3) 用来描述沉积电荷的位置分布，而双曲表达式 (3.10) 描述沉积离子（团）的量的衰减，两者共同来决定沉积电荷的分布。

4.2 模拟结果

4.2.1 不考虑电荷输运过程—库仑阻塞

为了验证微孔材料导向性质在微孔导向中的作用，我们首先测试了不考虑导电率时的离子的出射情况。这里，微孔材料为 PET，长 $L = 10 \mu\text{m}$ ，直径 $d = 100 \text{ nm}$ ；束流参数：3 keV Ne^{7+} 离子的束流强度为 200 pA/mm^2 ，发散度为 0.3° (FWHM)。

图 4.6 显示了不考虑导电率时，3 keV Ne^{7+} 离子穿过 PET 纳米孔的离子径迹和电荷分布。倾斜角 ψ 设定为 3° 。每个图内只显示 50 条离子的轨迹，图中的数字表示进入微孔内的离子数。由图看出，开始时 (< 100 个离子) 进入微孔的离子全部沉积；一段时间后，后面入射的离子被偏转出微孔；但是随着沉积电荷量的增加，离子会迅速在微孔内壁两侧偏转而不能出射。

单纯从图景上看，此时的阻塞出射是由于束流尺寸造成的：如图 4.6 所示，处于束流下面的离子更难于偏转，所以当上面离子能够偏转出射时，下面的离子仍持续地在微孔内壁上沉积电荷，随着时间的增加，电荷沉积过多，导致离

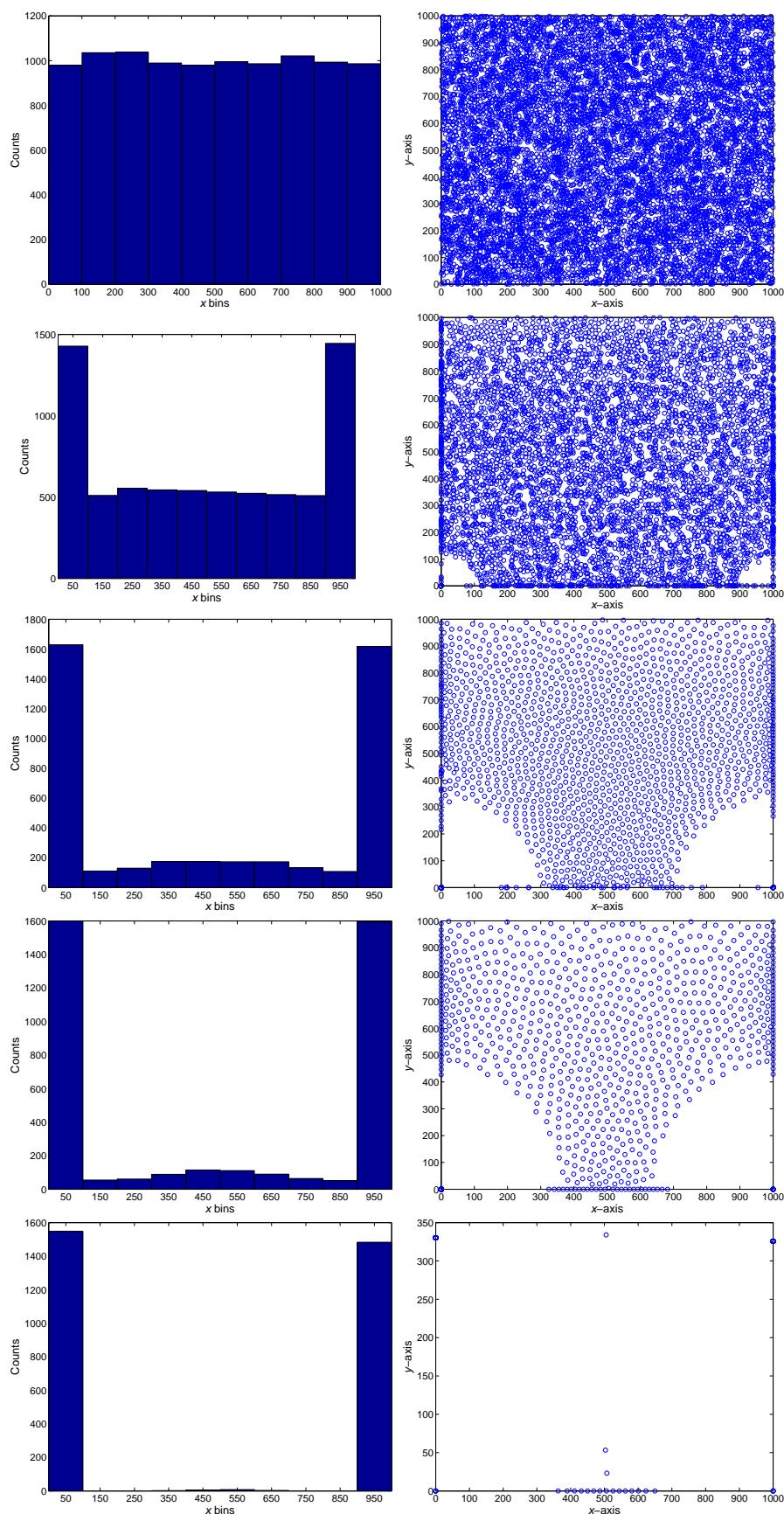


图 4.5: 不同放电时间后的表面电荷分布图

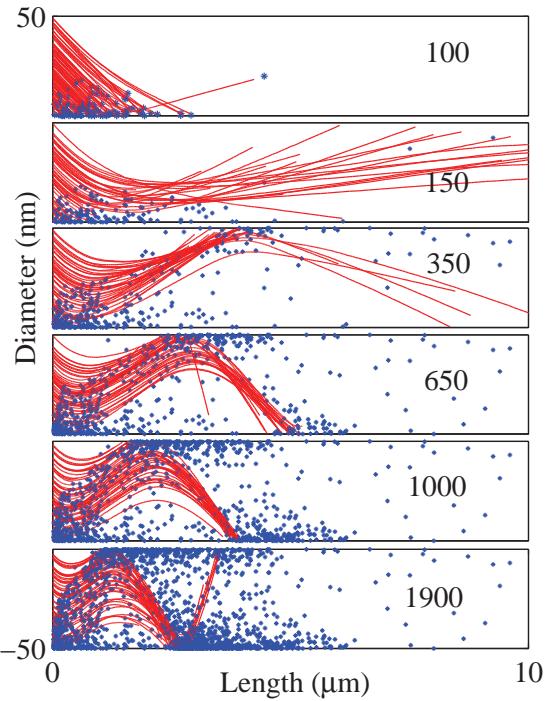


图 4.6: 不考虑电导率时, $3 \text{ keV } \text{Ne}^{7+}$ 离子穿过 PET 纳米孔的离子径迹和电荷分布

子被“过”偏转。此外，这样的偏转不是“镜面偏转”，因为束流尺寸越来越“细”，所以即便不考虑微孔材料的击穿电场，也不会有离子经过很多次偏转而出射。（当束流尺寸特别小时，不考虑导电率也可以出射，例如 MeV 的质子微束导向出射玻璃管 [73]）。

物理上来看，阻塞出射是因为微孔内的电场过大，如图 4.7 所示。偏转场 (E_y) 有三个峰值，与微孔内的电荷斑分布一致，且其最大峰值约为 0.2 V/nm ，大于 PET 材料的击穿电场 (0.1 V/nm [22])，这说明在此种情况下，微孔会被击穿！另外，可以看出电场 E_x 几乎为 0，这说明沉积电荷在微孔内对称分布；除微孔入口处的部分，电场 E_z 也几乎为 0。当考虑微孔材料的导电性时，入口处的电场 E_z 会导致电荷朝向微孔入口表面漂移，从而导致放电。

可见，如果不考虑材料的导电性，沉积电荷产生的电荷斑会迅速过冲，从而造成库仑阻塞 (Coulomb Blocking)，这一演化过程特别快。因此，要实现微孔导向的平衡，必须考虑微孔材料的导电性质。

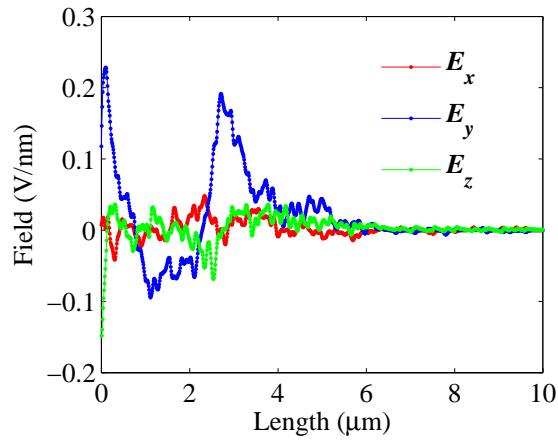


图 4.7: 不考虑导电率时, 微孔内的电场分布

4.2.2 迁移率的选择

模拟中一个很重要且不能从第一原理解释的是电荷迁移率的数值大小如何确定。通过模拟电荷漂移导致的电荷放电, 发现漂移放电不遵循双曲衰减(参看 4.1.3 节), 因此我们视这两个过程为独立过程。但是, 当 $\mu_0 = 0$ 时, 我们可以确定 $t_0 \rightarrow \infty$, 这对应不考虑导电率。根据前人的实验结果和理论分析 [21], 模拟中 t_0 被设定为 1000 秒, 所以寻找一个最优化的 μ_0 时, 保持 t_0 不变而只改变 μ_0 。

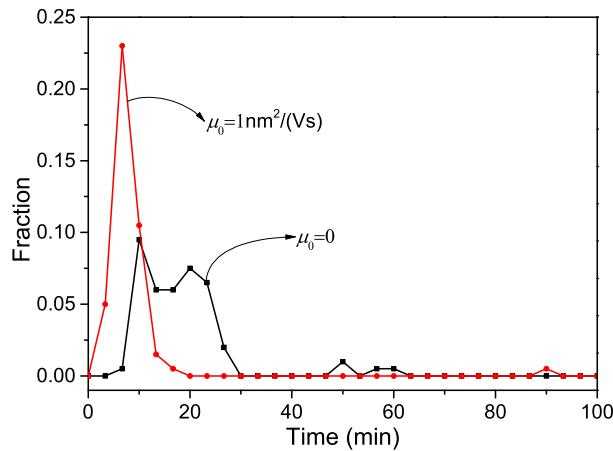


图 4.8: 极端迁移率对应的离子出射率的时间演化

- 极端情况

首先测试了两个极端情况，即 $\mu_0 = 1 \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $t_0 = 1000 \text{ s}$ 和 $\mu_0 = 0 \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $t_0 \rightarrow \infty$ 。这两种情况下都没有导向出射（图 4.8 所示）。后者是因为微孔内的电场过强导致库仑阻塞（对于这一情况可以参看图 4.6 和 4.7）。

下面分析了 $\mu_0 = 1 \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$, $t_0 = 1000 \text{ s}$ 时微孔内的电场分布和与电场分布对应的电荷分布，如图 4.9 所示，可见微孔内没有足够的偏转电场来偏转离子出射，从而使离子径迹几乎直线碰撞微孔内壁。通过电荷分布我们知道微孔内之所以没有电场是因为大部分电荷通过漂移到了微孔顶部。这说明模拟中 μ_0 描述的漂移运动（公式 (4.2) 和 (4.3)）主要负责沉积电荷的位置分布。

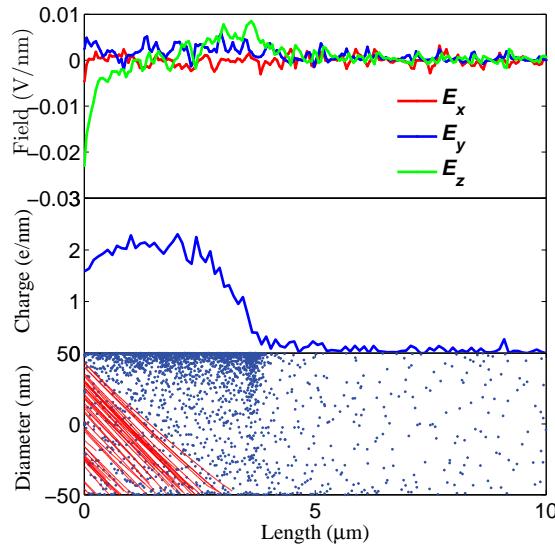


图 4.9: (Color online) $\mu_0 = 1 \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 时微孔内的电场分布和对应的电荷分布

· 最优选择

接下来，通过测试不同的 μ_0 值 (10^{-2} – 10^{-4}) 选择最优的数值，如图 4.10 所示。可以看出，不同的 μ_0 导致离子的出射率有细微的差异，例如导向出射离子的平衡值和充电时间，这两个值可以通过公式 (4.4) 拟合得到。通过与实验结果比较，作者选择了 $\mu_0 = 10^{-4}$ 。

这里必须指出，不同的 μ_0 值造成微孔内部的电场分布不同 (μ_0 越大，偏转电场 E_y 越小)。当 μ_0 特别小时，微孔内部的电场几乎不变，其实这是“必然”的结果。电荷在漂移的同时，电荷量也在衰减； μ_0 小时，漂移到一定距离所用的时间就长，从而电荷量衰减到很小，这样电荷位置分布对电场的分布就不明显（因为电荷量小到不影响）。也就是说，当我们不考虑沉积电荷位置分

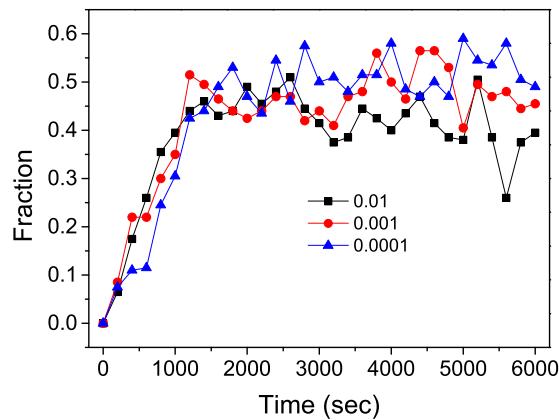


图 4.10: (Color online) 不同的 μ_0 对应的离子出射率的时间演化

布（对应 μ_0 特别小）而只考虑电荷量的衰减时也可以“得到”导向，但是在物理上不允许。

- 另一种可选择的方案*

目前，作者一直在努力尝试着从物理上分离导向模拟中公式 (4.2) 和 (4.3) 描述的电荷漂移过程和双曲线衰减过程。从上面的分析中，我们知道只有当 μ_0 取 10^{-4} 这样的小值时才能得到合理（定性和定量）的模拟结果。另一种可能的方案是将电荷的位置分布用扩散过程替代（相比于漂移运动，扩散特别慢）。

4.2.3 考虑电荷输运过程—导向出射

由上面的测试可知，当不考虑导电率时，微孔导向很快发生库仑阻塞而不能达到平衡出射，因此要实现导向平衡过程，必须考虑微孔材料的导电性质。微孔导向模拟涉及的材料性质主要有：材料的介电常数 ϵ —影响电荷屏蔽；材料的迁移率 μ_0 —影响电荷位置分布；放电时间常数 t_0 —影响电荷量衰减。对于 PET 材料， $\epsilon = 3.2$ ；文献中给出的迁移率 μ_0 有很大的不确定度，我们查到的最小迁移率为 $1 \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ [97]。但是通过测试，我们发现这个数值太大，以至使沉积电荷无法形成有效的电荷斑。因此，通过多次测试，我们选择迁移率 $\mu_0 = 10^{-4} \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ 。注意，这个数值比实验值小四个量级，比文献 [12] 中的小两个量级；对于放电时间常数 t_0 ，我们采用 Pokhil 等人 [21] 给出的数值，约 1000 s。（注意：作者无法从第一原理对 μ_0 和 t_0 的值给出估算；如此小的 μ_0 值，可以认为是离子迁移率（离子的质量远大于电子））。

图 4.11 显示 3 keV 和 7 keV Ne^{7+} 离子穿过微孔后的轨迹和电荷分布。图中的数字表示时间，单位是 min；倾斜角为 2° 。由图可以看出，当考虑合适的电导率时，离子轨迹在平衡以前会经过几次震荡，最后达到平衡。此外，可以看出，在微孔入口处存在一个明显的电荷斑，也就是说微孔导向平衡所需要的偏转力主要是由入口处电荷斑提供的，这是纳米孔导向的一个重要特征。由于漂移效应，入口处电荷斑会在微孔的 u 方向分布。

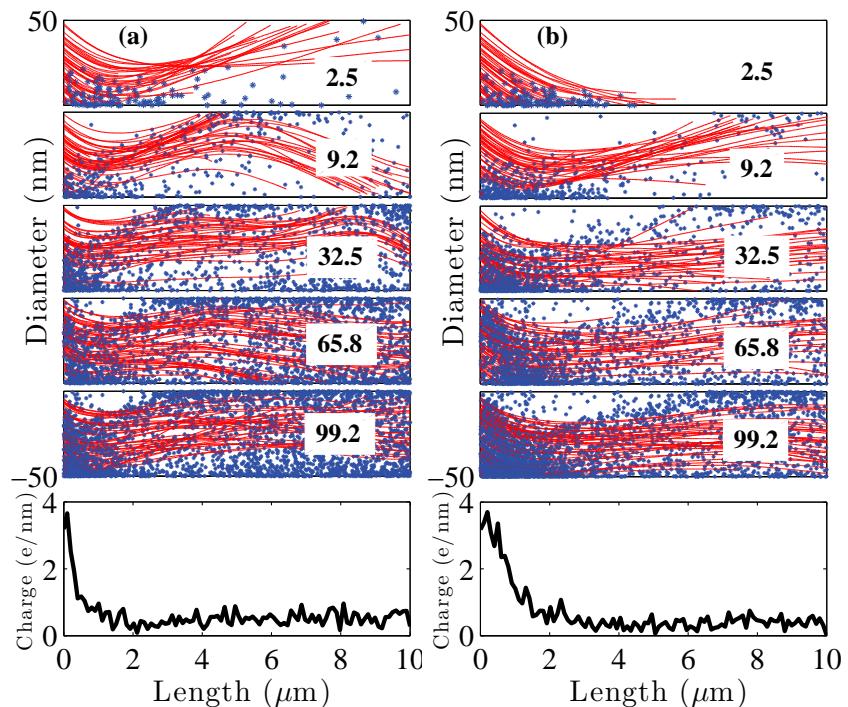


图 4.11: 3 (a) 和 7 (b) keV Ne^{7+} 离子穿过 PET 孔的轨迹和电荷分布

通过比较图 4.11 (a) 和 (b) 可以看出，3 keV Ne^{7+} 离子的轨道震荡比 7 keV Ne^{7+} 离子的更快。这个模拟结果与实验结果 [27] 是一致的。为了定量的比较两个能量的 Ne^{7+} 离子导向出射的区别，我们从模拟结果中提取了出射率随时间的变化关系，如图 4.12 所示。我们用一个常用的半经验表达式对模拟数据进行了拟合，

$$f(t) = f_\infty \left[1 - \exp \left(\frac{t - \tau_s}{\tau_c} \right) \right] \quad (4.4)$$

其中 f_∞ 表示平衡出射率， τ_s 和 τ_c 是时间常数，分别表示出射延迟时间和离子对微孔“充电”的特征充电时间。

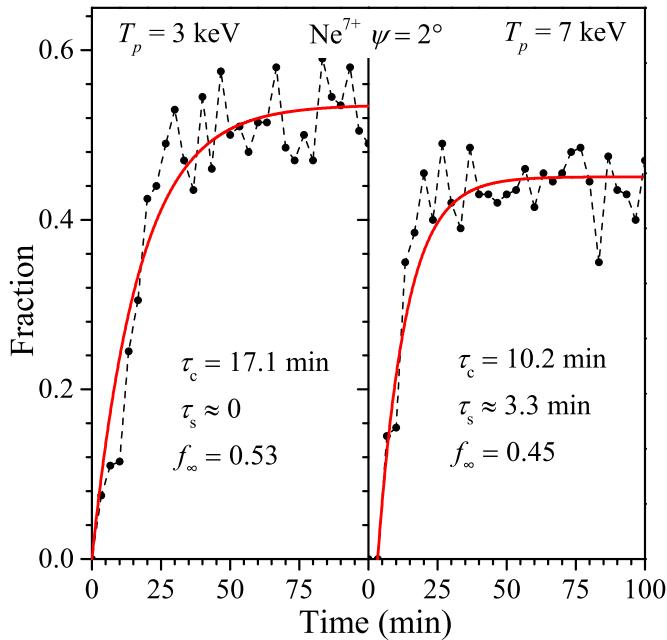


图 4.12: 3 和 7 keV Ne^{7+} 离子穿过 PET 孔的出射率时间演化

拟合结果表明，当离子能量低时需要的充电时间长。根据图 4.11 可知，这是由于低能离子要经过多次偏转才能平衡出射（即需要的“临时电荷斑”多）。对于 3 keV 的 Ne^{7+} 离子，模拟的充电时间常数 $\tau_c \simeq 17.1$ min，对应的沉积电荷量 $Q_c^{\text{sim}} = I_p \times \tau_c \simeq 205$ nC；实验上，当倾斜角 $\psi = 5^\circ$ 时，沉积电荷量 $Q_c^{\text{exp}} \simeq 350$ nC。可见，两者是可以比拟的，需要注意的是：不同电流和倾斜角会导致不同的沉积电荷量 [39]。

4.2.4 导向效应的质量无关性

为了研究离子质量对导向出射的影响，我们模拟了不同离子种类的导向出射。模拟中我们不改变离子的电荷态 q 和能量 T_p 或者荷能比 $\frac{q}{T_p}$ ，且设定倾斜角 $\psi = 2^\circ$ 。模拟结果如图 4.13 所示。

由图可以看出，所有离子的出射率都是随时间慢慢增大至一个稳定值。同样，我们用公式 (4.4) 对数据进行了拟合，拟合参数参看表格 4.1。由表格可以清楚地看出，不同的离子质量，平衡出射率 f_∞ 和充电时间 τ_c 在误差范围内是相等的（注意：误差来源 OriginLab 拟合数据时给出的拟合误差，即随机数导致的随机误差）。此外发现，当离子的荷能比一样时，平衡出射率 f_∞ 和充电时

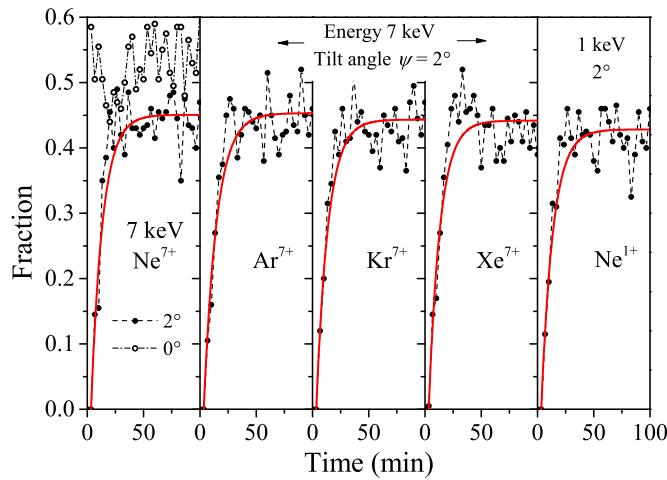


图 4.13: 不同质量的离子穿过 PET 孔的出射率时间演化

间 τ_c 也是一样的，这说明离子的导向出射与离子的质量无关，只依赖于离子的荷能比。离子导向的质量无关性说明微孔（尤其是玻璃管）在操纵离子方面具有很大的应用前景。

表 4.1: 用公式 (4.4) 对图 4.13 中不同数据的拟合参数

能量 (keV)	离子种类	τ_c (min)	f_∞
7	Ne^{7+}	10.2 ± 1.4	0.45 ± 0.01
7	Ar^{7+}	11.4 ± 1.5	0.45 ± 0.01
7	Kr^{7+}	10.5 ± 1.4	0.44 ± 0.01
7	Xe^{7+}	10.1 ± 1.5	0.44 ± 0.01
1	Ne^{1+}	10.4 ± 1.4	0.43 ± 0.01

模拟结果显示，当倾斜角 $\psi = 0^\circ$ 时，平衡出射率为 0.55。这个值与实验给出的值 0.5–0.6 [47, 57] 符合的很好；而 $\psi = 2^\circ, 3^\circ, 4^\circ$ 时，出射率 $f_\infty = 0.44, 0.27, 0.12$ ，于是我们估算导向角 $\psi_c \simeq 3.2^\circ$ 。这个值约等于经验标度律 [22, 45] 给出的 2.9° 。

4.2.5 微孔内的平衡电场—导向机制探索

离子在微孔内沉积电荷，产生的电场除了负责电荷在微孔内表面的漂移运动外，也负责后续离子的偏转导向。因此研究微孔内的偏转电场分布对于更深

入理解微孔导向机制具有重要的研究意义。模拟发现微孔内的电场 E_x 和 E_z 几乎都是 0 (参看图 4.7 和 4.9)，故这里不作讨论。下面我们只关心电场分量 E_y ，如图 4.14 所示。

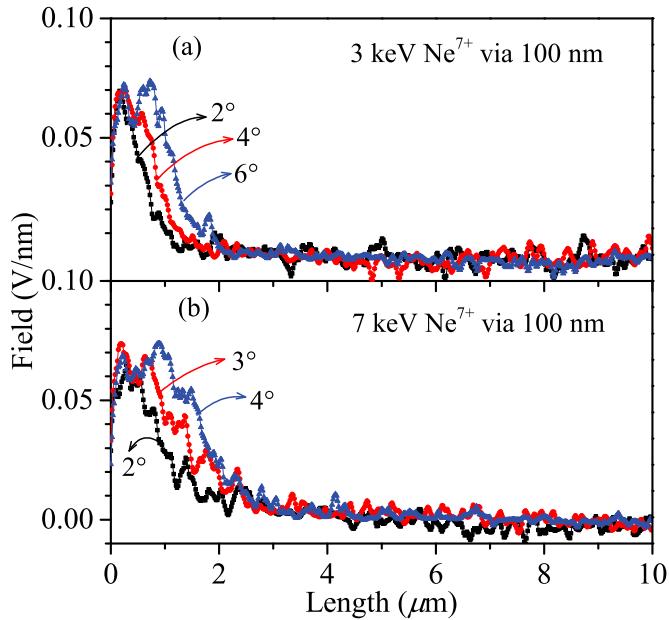


图 4.14: 导向平衡时, 微孔内的电场分布

图 4.14 描述了 3 keV 和 7 keV Ne^{7+} 离子在微孔 (直径为 100 nm, 长为 10 μm) 内导向平衡时的电场分量 E_y 的分布。对于 3 keV Ne^{7+} 离子, 倾斜角 ψ 从 2° 到 6° , 而对于 7 keV Ne^{7+} 离子, 倾斜角 ψ 从 2° 到 4° 。

由图 4.14 可以看出, 导向平衡时只有入口处存在偏转电场 E_y , 这与前面的结论: 平衡时只有一个大的电荷斑处在微孔入口处 (图 4.11 所示), 是一致的。只有微孔入口处存在偏转场说明在平衡导向时, 离子只需要经过一次偏转而沿轴线出射, 这是微孔材料存在电导率的必然结果。此外, 电场分量 E_y 的最大值约为 0.07 V/nm, 比 Stolterfoht 得到的 0.05 V/nm 大一点, 这可能是由于我们的微孔直径 (100 nm) 比 Stolterfoht 用的 (200 nm) 小。微孔直径越小, 沉积电荷斑越“局域”, 从而产生大的电场。

微孔内的平衡电场 E_y 最重要的性质是: 电场 E_y 的最大值不随倾斜角和能量变化, 但是电场的长度 (E_y 不等于 0 的部分) 随着倾斜角和能量的增大而变长。这个性质是自组织充电模型的一个重要特征。微孔导向的动力学平衡条件为:

$$p_{\perp} = mv_0 \sin \psi = \int qE_y dt \quad (4.5)$$

其中 p_{\perp} 表示离子（质量 m , 速度 v_0 ）的垂直到量。一般地，离子的倾斜角 ψ 都很小，于是有 $v_{\parallel} \simeq v_0$

$$dt = \frac{dl}{v_{\parallel}} \simeq \frac{dl}{v_0} \quad (4.6)$$

联立式 (4.5) 和 (4.6) 可得：

$$2T_p \sin \psi = ql_c \int_0^{l_c} \frac{E_y}{l_c} dl = ql_c \bar{E}_y \quad (4.7)$$

式中 $T_p = \frac{1}{2}mv_0^2$ 为离子的动能， l_c 表示入口处电荷斑的长度； \bar{E}_y 表示电场分量 E_y 在电荷斑长度内的平均电场。因为电场的最大值几乎是常数，所以 \bar{E}_y 几乎只依赖于电荷斑长度 l_c 。因此，根据式 (4.7) 可知：当改变能量 T_p 或者倾斜角 ψ 时，自组织充电机制只需通过改变入口处电荷斑的长度 l_c 完成导向平衡（有时候，把 $\bar{E}_y l_c$ 等效为一个“电势” U_y ，但是必须注意物理量 U_y 是一个“伪电势”，它只是有电势的量纲，因为根据电势的定义 $U = \int \mathbf{E} \cdot d\mathbf{l}$ 可知， $\int E_y dl \equiv 0$ ）。

偏转电场 E_y 的最大值不随倾斜角和能量变化这一性质对于理解 MeV 离子可以被导向具有重要的意义。但是，MeV 离子的导向跟离子束束斑尺寸和发散度以及微孔材料的导电性（通常是玻璃管，因为玻璃管的电导率容易人为改变）具有重要的关系。

4.3 本章注记

关于微孔导向的理论模拟的相关文献非常多。文献 [9–13, 15, 23, 24] 是关于低能（keV 量级）离子在纳米孔中的导向模拟，尤以 [9, 10, 12, 13] 最具代表性；文献 [62, 64, 67, 68, 85] 是关于离子在玻璃管（包括锥形玻璃管）中的导向模拟，其中 [62, 64, 85] 是关于低能离子的，而 [67, 68] 是关于高能离子的；文献 [79] 是关于电子在绝缘纳米孔中的导向模拟；另外，文献 [7, 17, 36, 53, 60, 66, 93, 94, 100–103] 也涉及到导向模拟。

目前，导向模拟的难点在于如何准确地选择沉积电荷输运机制。目前主要有两种机制：1) 扩散放电，2) 漂移放电。对于扩散输运过程，沉积电荷的位

置分布由表面扩散决定；而沉积电荷量的衰减由体扩散决定，一般用指数衰减形式来表示（参看文献 [9, 10]）。对于漂移运输过程，沉积电荷的分布和衰减都是由电荷在自建电场中的漂移运动决定（参看 [12, 13, 21]）。无论是扩散运输还是漂移运输，他们都取决于微孔材料的导电性质，即电导率或者载流子的迁移率。当微孔材料的电导率或者载流子的迁移率跟外电场有关，称之为非线性模型，反之为线性模型。一般情况下，非线性模型就是指 Frenkel-Poole 效应 [14]。

本文采用的电荷运输机制是漂移运输的非线性模型。沉积电荷的位置分布由漂移运动决定（公式 (4.3)）；沉积电荷量的衰减由双曲线表达式决定（公式 (3.10)）。模拟结果与实验结果符合得很好。

第五章 结论与展望

本章主要概括了本文的三个研究工作：实验研究、理论分析以及模拟，同时提及了将来可能进一步研究的微孔导向问题。本文虽然名为“实验和理论模拟研究”，但是我们并没有系统的介绍微孔导向领域的常规实验、理论分析和模拟方法，而是只针对我们自己的实验和理论模拟进行论述。虽然作者本人力图把研究生工作的所有问题论述清楚，但是受能力所限，仍然无法解释清楚工作中的一些问题，只能在将来继续学习并解决。

5.1 结论

5.1.1 实验研究

本文的第二章介绍了 7–200 keV 的 H_2^+ 离子穿过多孔 PC 锥形孔膜的透射分布。实验中发现 200 keV 的 H_2^+ 离子穿过锥形孔后的透射分布（透射粒子数与倾斜角的关系）宽度略大于几何透射分布的宽度（图 2.9），这说明此情况下没有明显的导向效应；这一点也可以从透射粒子强度的时间演化（图 2.7）证实，因为出射强度在束流开始时就达到稳定值，没有充电效应。

此外，我们还发现锥形孔对离子具有聚焦效应。这里的聚焦效应是由小角散射引起的，这与大多数玻璃管对高能（百 keV 量级以上）离子的聚焦原理是一样的。

最重要的实验结果是发现离子穿过锥形孔后的透射分布具有双肩峰结构（图 2.9），这些双肩峰结构在能量升高后消失，且双肩峰的距离随着能量的增大而增大。这个实验结果不能用导向机制解释。这里必须指出，虽然实验中我们没有对 H_2^+ 离子的分裂进行检测，但是根据 Yokoe 等人 [92] 的实验结果可以知道，分子离子的分裂不会对探测器的计数造成 2 倍增加，因为碎裂粒子只有一个可以被探测器探测到，因此我们认为这里的双肩峰结构可能是小角散射引起的。

5.1.2 理论分析

第三章详细介绍了微孔导向的理论描述，分别通过数值计算和解析表达描

述了微孔导向出射率的时间演化，对理解微孔材料导电性对导向效应的影响具有重要意义。分析中我们采用了Frenkel-Poole机制引起的放电，通过渐近分析（表达式 (3.15)）我们发现离子的平衡出射率几乎不依赖于入射电流，这是因为平衡沉积电荷量 Q_∞ 几乎不随入射电流的增大而明显增大。

通过分析我们还发现，入射电流对微孔的“充电时间”依赖于平衡沉积电荷量 Q_∞ ，并且近似等于 Frenkel-Poole 机制确定的放电时间（参看公式 (3.15)）。

根据数值计算结果和微孔类似一个电容器的假定，我们认为入射电流对微孔的充电过程可以用电容器充电表达式（公式 (3.21)）描述，由此得到一个可以描述微孔导向出射率时间演化的表达式公式 (3.23)。这个表达式既可以描述平衡导向出射，也可以描述阻塞出射。须注意，库仑阻塞是由于沉积电荷量过大造成的，但是如果微孔材料的导电性质由 Frenkel-Poole 机制决定，那么就不可能发现库仑阻塞，因为任何过冲都会被指数放电抵消。库仑阻塞的最后结果一定是完全阻塞（Full Blocking），但是实验中观察的阻塞效应往往是不完全阻塞（Partial Blocking），因此实验中观察的阻塞很可能不是库仑阻塞。根据我们的分析结果，实验中观察的阻塞效应可能是由于大的导电率造成。Stolterfoht 等人发现，阻塞效应强烈的依赖于微孔的面密度（这可能是由于过多的微孔会导致微孔材料的电导率发生变化。）。

5.1.3 模拟研究

本文的第四章详细介绍微孔导向的蒙卡模拟方法和模拟结果。模拟的难点在于如何恰当地选择沉积电荷在微孔内表面上的放电机制。我们认为沉积电荷的输运以漂移为主，且将漂移分成两个独立部分：1) 沉积电荷的位置改变；2) 沉积电荷的量的衰减。位置的改变由漂移速度（公式 (4.2) 和(4.3)）决定，而量的衰减服从双曲线衰减（公式 (3.10)）。离子在微孔中的轨迹由库仑场中的牛顿方程决定。

采用上述方法，我们成功的模拟了微孔导向的平衡出射，并且发现沉积电荷主要集中在微孔入口处。这里必须指出：在纳米孔的情况下，必须考虑微孔材料的导电性质才能获得平衡导向（对于直径在 mm 量级的宏观玻璃管，当我们用微束进行模拟时，发现即便不考虑微孔材料也可以得到导向出射）。

模拟结果显示：能量高的离子达到平衡出射的时间 τ_c 小于能量低的离子

(图 4.12)，这符合实验结果；实验中观察的导向效应的质量无关性也在模拟中得到证实（图 4.13）；微孔完成不同能量或者倾斜角的离子的导向平衡主要通过“智能”调节偏转电场的长度实现，而不会改变微孔内部的电场强度（微孔导向最终结果是动能的重新分配，垂直动能减小而平行动能增加）。自组织充气机制的这个性质对于理解 MeV 离子的导向有重要的“辅助”意义。

5.2 展望

本文的工作仍需要更为详细的补充和深入，尤其对于实验部分。在 H_2^+ 离子穿过锥形孔的实验中，我们没有检测分子离子的碎裂和电荷态分析，只是初步研究了出射粒子（包括所有的粒子，甚至碰撞过程中产生的光子）的角分布。将来有必要对此实验进行补充，并对实验结果进一步分析。

理论分析部分，一些细节（如给出一个更合理的出射率和沉积电荷之间的关系）仍需要深入考虑；最好能通过分析得到实验中总结出的经验或者半经验公式。

对于导向模拟，我们的程序存在一个“不自洽”的参数—载流子的迁移率。目前，文献报道过的最低迁移率为 $1 \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ ，而本文的模拟中使用的是 $10^{-4} \text{ nm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ ，并且我们无法将这个迁移率与双曲衰减曲线中的时间参数 t_0 建立关系。作者希望在将来能够给出合理的解释（目前一个可行性解释是：我们使用的迁移率是离子迁移率而双曲衰减中用到的是电子迁移率，但是我们无法给出理论基础）。作者希望通过精修模拟程序，使程序可以重现离子出射率与入射电流之间的弱关系；并使程序能够适用于玻璃管导向，以期模拟 MeV 离子的导向（其实，作者已经做了一些测试，测试结果可以参看附录。大体上可以确定 MeV 离子可以导向出射玻璃管，但是与离子束的束斑尺寸和束流发散度有很大关系）。

附录 A MeV 离子导向探索

A.1 序

目前多数人认为 MeV 离子穿过玻璃管（纵横比一般为 50–100，对应的开口角为 0.57° – 1.15° ，直径多数在亚微米量级）是由散射造成的。这是因为根据 Stolterfoht 等人 [22, 45] 发展起来的经验公式 (1.10) 可以估算 1 MeV 的质子在玻璃管中的导向角约为 0.023° ，远小于几何开口角（注意，导向角与孔直径的关系不大 [41]）。这是对 MeV 离子能被导向最简单的否定。

很多 MeV 离子与玻璃管作用的实验和理论 [66–69, 91, 104] 都指出 MeV 离子穿过微孔主要是由于小角散射，从而一般不考虑 MeV 离子的导向。这里必须指出，无论是弹性散射还是非弹性散射，出射离子都有能损。当然也有实验表明 MeV 离子可以被绝缘玻璃管导向，例如文献 [105–108]，这几个实验对于证明 MeV 离子可以很明显的被导向不是特别充分；但是最近 Rajta 等人 [73] 的实验充分证明了 MeV 可以很明显的被导向，因为实验中他们观察到 1) 离子的出射时间演化存在充电效应；2) 出射离子无能损且沿玻璃管轴线出射；3) 离子出射率可以达到 80%–90%，如图 A.1 所示，必须注意此实验用的质子束流为微束。因此，为了探讨 MeV 离子的导向，作者修改了第四章中的模拟程序来模拟 MeV 离子的导向。

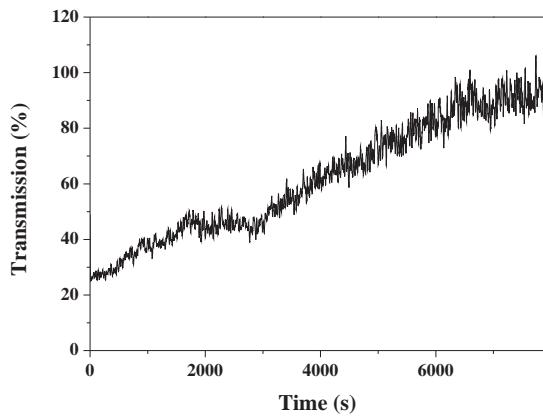


图 A.1: 1 MeV 质子微束穿过倾斜角 $\psi = 1^\circ$ 的玻璃管后出射离子的时间演化

A.2 初步的模拟结果

第四章已经指出，高分子微孔材料的导电特性对于离子导向至关重要，这同样适用于玻璃管 [85]。通常，为了防止离子在微孔前表面充电，实验前会在微孔膜的前后面镀一金属层（例如，金 Au）；但是对于宏观玻璃管，不同的实验有不同的接地处理：有的实验 [109, 110] 只是在玻璃管的入射口表面加一个限束孔（一般用限束孔直径小于或等于玻璃管入射口直径的铝 Al），不再做其他处理；有的实验 [111] 用一个金属管做玻璃管支架（将玻璃管放入金属管中），这种方法不能保证玻璃管与金属管很好的接触，尤其对于锥形玻璃管；有的实验 [58] 先用石墨（或者其他导电层）包裹玻璃管，然后再用靶架支撑玻璃管，这种方法能够保证玻璃管外壁很好的接地。

A.2.1 Rajta 实验条件

Rajta 实验 [73] 的基本条件如下：质子微束，束斑 $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ ，流强 a few pA，发散度好于 0.3° ；玻璃管为圆柱形，长 44.5 mm，直径 800 μm ，对应的开口角为 1.03° 。束流从倾斜角 $\psi \approx 1^\circ$ 的玻璃管口中心入射，因此束流不大可能几何出射。然而，我们无法从文献中得知实验采用上述的哪种接地（本文作者猜测没有做特殊处理，将来会询问求证）。

A.2.2 初步模拟结果

为了模拟，设定束流强度为 2 pA，约 10^7 ions/s。这里，并没有考虑沉积电荷量的衰减。必须指明，为了加快模拟速度（模拟 6 万次计算需要 7 天左右），每入射一个离子，相当于入射 N_0 个离子，例如 $N_0 = 10^5, 10^6, 10^7$ 。为了体现电流强度的变化，我们通过改变 N_0 的值。

首先，这里先不测试 N_0 的值对应的电流强度；只研究电流强度的变化对 MeV 离子导向的结果。 $N_0 = 10^6, 10^7$ 对应的离子出射率的时间演化如图 A.2: 所示。可见，不同的电流强度导致不同的出射 1) 当电流强度 $N_0 = 10^6$ 时，离子出射率的模拟结果跟实验结果非常接近（比较图 A.1 和 A.2；并注意对于模拟，零时刻的出射率设为了 0）；2) 当电流强度 $N_0 = 10^7$ 时，离子出射强度在 2000 秒时迅速下降，这是另一个电荷斑的开始形成造成的（不是因为放电），等这个电荷斑的“强度”慢慢变强，离子出射强度也随着慢慢增大。单纯从实验现象来说（定性地），模拟结果 2 与文献 [73] 的实验结果（During the

charge-up process a few times we experienced sudden drops in the transmission. 具体描述参看文献) 也符合。

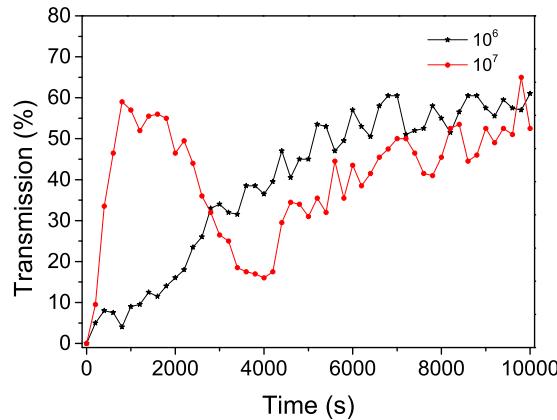


图 A.2: 模拟: 不同电流强度的 1 MeV 质子微束穿过倾斜角 $\psi = 1^\circ$ 的玻璃管后出射离子的时间演化

虽然模拟的离子出射率的时间演化与实验结果很好的符合,但是离子的出射方向并不严格的平行于玻璃管轴线,见图 A.3。有时候把这种现象叫做不完全导向 (Incomplete guiding) [103, 111]。这与 Rajta 实验结果不符,因此模拟程序尚需物理机制的修改。

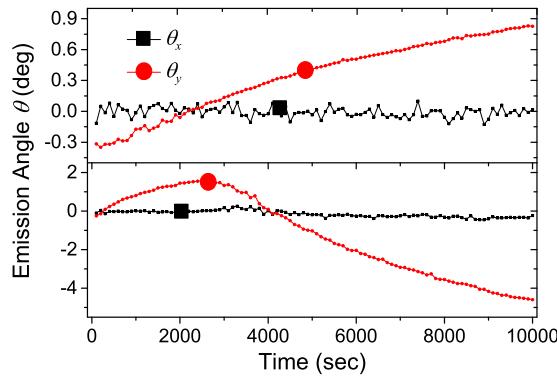


图 A.3: 模拟: 不同电流强度的 1 MeV 质子微束穿过倾斜角 $\psi = 1^\circ$ 的玻璃管后发射角 θ 时间演化

通过模拟发现, 束流的发散度对离子导向有很强的影响。当 $N_0 = 10^6$ 且不考虑发散度, 离子被库仑阻塞而无法出射, 如图 A.4。这是因为沉积电荷的

位置分布会影响玻璃管内部的电场从而影响后续离子的运动轨迹。当沉积电荷的位置分布不“允许”时，后续离子会一直直接与玻璃管内壁作用而沉积电荷，库仑电场不断增大，进而导致库仑阻塞。

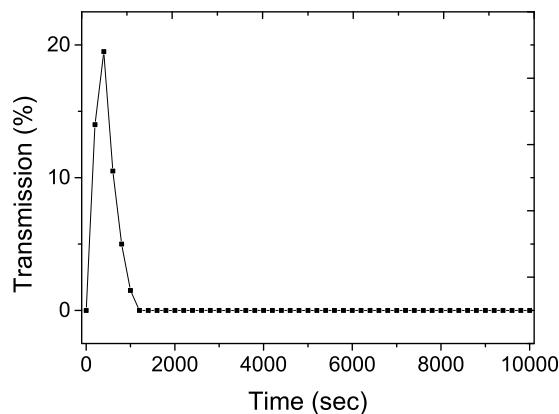


图 A.4: 模拟: $N_0 = 10^6$ 且不考虑发散度, 1 MeV 质子微束穿过倾斜角 $\psi = 1^\circ$ 的玻璃管后离子出射率的时间演化

上述 MeV 离子导向模拟结果为 2015 年 11 月 20 日前的; 程序调试修正持续更新中

下面的话是论文被审阅之后添加的 (审阅意见 2016 年 04 月 22 日返回, 作者于 2016 年 05 月 03 日添加)

评阅人建议用另一种判断离子出射是否为导向的方法: 离子的绝对出射率随倾斜角的变化, (“对穿透率随着偏转角度的变化更能说明是导向, 还是散射”, 来自评阅人)。有时候, 实验中采用的电流很大, 所以根本观察不到充电效应 (参看1.2.4), 评阅人指出的这种方法就变的非常有效。离子从倾斜的绝缘孔中出射, 只有两种途径: 1) 导向; 2) 散射 (注意, 晶体中的沟道效应本质上也是散射过程)。散射造成的出射角分布“几乎”与几何透射角分布重合 (散射角分布稍宽), 而导向出射角分布则“远”宽于几何透射角分布。因此, 当得到的角分布大于几何透射分布时, 就可以认为是导向; 否则为散射。但是, 当离子的能量很高, 这种方法不适用, 这是因为随着能量的增大, 导向出射角分布越来越小, 渐近于几何透射角分布。

参考文献

- [1] D. Mo, J. Liu, J. Duan, H. Yao, H. Latif, D. Cao, Y. Chen, S. Zhang, P. Zhai, and J. Liu, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **333**, 58 (2014).
- [2] P. Apel, Radiation Measurements **34**, 559 (2001), proceedings of the 20th International Conference on Nuclear Track s in Solids.
- [3] J. Burgdorfer, P. Lerner, and F. W. Meyer, Physical Review A **44**, 5674 (1991).
- [4] S. Ninomiya, Y. Yamazaki, F. Koike, H. Masuda, T. Azuma, K. Komaki, K. Kuroki, and M. Sekiguchi, Physical Review Letters **78**, 4557 (1997).
- [5] Y. Yamazaki, Physica Scripta **T73**, 293 (1997).
- [6] N. Stolterfoht, J. H. Bremer, V. Hoffmann, R. Hellhammer, D. Fink, A. Petrov, and B. Sulik, Physical Review Letters **88** (2002).
- [7] P. Skog, H. Q. Zhang, and R. Schuch, Physical Review Letters **101** (2008).
- [8] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, D. Fink, B. Sulik, Z. Juhasz, E. Bodewits, H. M. Dang, and R. Hoekstra, Physical Review A **79** (2009).
- [9] K. Schiessl, W. Palfinger, C. Lemell, and J. Burgdorfer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **232**, 228 (2005).
- [10] K. Schiessl, W. Palfinger, K. Tokesi, H. Nowotny, C. Lemell, and J. Burgdorfer, Physical Review A **72** (2005).
- [11] K. Schiessl, W. Palfinger, K. Tokesi, H. Nowotny, C. Lemell, and J. Burgdoerfer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **258**, 150 (2007).

- [12] N. Stolterfoht, Physical Review A **87** (2013).
- [13] N. Stolterfoht, Physical Review A **87** (2013).
- [14] J. Frenkel, Physical Review **54**, 647 (1938).
- [15] K. Schiessl, C. Lemell, K. Tokesi, and J. Burgdoerfer, Journal of Physics Conference Series **194**, 012069 (2009).
- [16] M. B. Sahana, P. Skog, G. Vikor, R. T. R. Kumar, and R. Schuch, Physical Review A **73** (2006).
- [17] H. Q. Zhang, N. Akram, I. L. Soroka, C. Trautmann, and R. Schuch, Physical Review A **86** (2012).
- [18] H. Q. Zhang, N. Akram, P. Skog, I. L. Soroka, C. Trautmann, and R. Schuch, Physical Review Letters **108** (2012).
- [19] K. C. Kao, *Dielectric Phenomena in Solids* (Elsevier Academic Press, 2004).
- [20] S. R. Holcombe, J. Liesegang, and E. R. Smith, Journal of Physics: Condensed Matter **16**, 5999 (2004).
- [21] G. P. Pokhil and K. A. Vokhmyanina, Journal of Surface Investigation-X-Ray Synchrotron and Neutron Techniques **2**, 237 (2008).
- [22] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z. Juhasz, B. Sulik, V. Bayer, C. Trautmann, E. Bodewits, A. J. de Nijs, H. M. Dang, and R. Hoekstra, Physical Review A **79** (2009).
- [23] C. Lemell, K. Schiessl, H. Nowotny, and J. Burgdoerfer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **256**, 66 (2007).
- [24] K. Schiessl, C. Lemell, K. Toekesi, and J. Burgdoerfer, Journal of Physics Conference Series **163**, 012081 (2009).

- [25] R. Hellhammer, Z. D. Pesic, P. Sobocinski, D. Fink, J. Bundesmann, and N. Stolterfoht, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **233**, 213 (2005).
- [26] G. Vikor, R. T. R. Kumar, Z. D. Pesic, N. Stolterfoht, and R. Schuch, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **233**, 218 (2005).
- [27] Y. Kanai, M. Hoshino, T. Kambara, T. Ikeda, R. Hellhammer, N. Stolterfoht, and Y. Yamazaki, Physical Review A **79** (2009).
- [28] D.-H. Li, Y.-Y. Wang, Y.-T. Zhao, G.-Q. Xiao, D. Zhao, Z.-F. Xu, and F.-L. Li, Chinese Physics Letters **26** (2009).
- [29] D. H. Li, Y. Y. Wang, Y. T. Zhao, G. Q. Xiao, D. Zhao, Z. F. Xu, and F. L. Li, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **267**, 469 (2009).
- [30] S. Matefi-Tempfli, M. Matefi-Tempfli, L. Piraux, Z. Juhasz, S. Biri, E. Fekete, I. Ivan, F. Gall, B. Sulik, G. Vikor, J. Palinkas, and N. Stolterfoht, Nanotechnology **17**, 3915 (2006).
- [31] H. F. Krause, C. R. Vane, and F. W. Meyer, Physical Review A **75** (2007).
- [32] P. Skog, I. L. Soroka, A. Johansson, and R. Schuch, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **258**, 145 (2007).
- [33] X.-M. Chen, J. Wang, X.-A. Wang, G.-Z. Sun, Y.-F. Chen, F.-Y. Xi, J.-X. Saho, Y. Cui, B.-W. Ding, J.-K. Xu, L. Feng-Jun, Y. Yong-Zhi, Z. Chun-Lin, and Q. Xi-Yu, Chinese Physics Letters **25**, 4255 (2008).
- [34] Z. Juhasz, B. Sulik, S. Biri, I. Ivan, K. Tokesi, E. Fekete, S. Matefi-Tempfli, M. Matefi-Tempfli, G. Vikor, E. Takacs, and J. Palinkas, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **267**, 321 (2009).

- [35] F. Y. Xi and H. Y. Lv, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **339**, 34 (2014).
- [36] H. Q. Zhang, P. Skog, and R. Schuch, Physical Review A **82** (2010).
- [37] F. I. Allen, A. Persaud, S. J. Park, A. Minor, M. Sakurai, D. H. Schneider, and T. Schenkel, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **244**, 323 (2006).
- [38] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, J. Bundesmann, D. Fink, Y. Kanai, M. Hoshino, T. Kambara, T. Ikeda, and Y. Yamazaki, Physical Review A **76** (2007).
- [39] R. Hellhammer, J. Bundesmann, D. Fink, and N. Stolterfoht, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **258**, 159 (2007).
- [40] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z. D. Pesic, V. Hoffmann, J. Bundesmann, A. Petrov, D. Fink, and B. Sulik, Surface and Coatings Technology **196**, 389 (2005).
- [41] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z. Juhasz, B. Sulik, E. Bodewits, H. M. Dang, and R. Hoekstra, Physical Review A **82** (2010).
- [42] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z. D. Pesic, V. Hoffmann, J. Bundesmann, A. Petrov, D. Fink, and B. Sulik, Vacuum **73**, 31 (2004).
- [43] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, B. Sulik, Z. Juhasz, V. Bayer, C. Trautmann, E. Bodewits, and R. Hoekstra, Physical Review A **83** (2011).
- [44] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z. D. Pesic, V. Hoffmann, J. Bundesmann, A. Petrov, D. Fink, B. Sulik, M. Shah, K. Dunn, J. Pedregosa, and R. W. McCullough, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **225**, 169 (2004).

- [45] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, J. Bundesmann, and D. Fink, Physical Review A **77** (2008).
- [46] N. Stolterfoht, V. Hoffmann, R. Hellhammer, Z. D. Pesic, D. Fink, A. Petrov, and B. Sulik, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **203**, 246 (2003).
- [47] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, P. Sobocinski, Z. D. Pesic, J. Bundesmann, B. Sulik, M. B. Shah, K. Dunn, J. Pedregosa, and R. W. McCullough, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **235**, 460 (2005).
- [48] M. Fuersatz, W. Meissl, S. Pleschko, I. C. Gebeshuber, N. Stolterfoht, H. P. Winter, and F. Aumayr, Journal of Physics Conference Series **58**, 319 (2007).
- [49] Y. Kanai, M. Hoshino, T. Kambara, T. Ikeda, R. Hellhammer, N. Stolterfoht, and Y. Yamazaki, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **258**, 155 (2007).
- [50] Z. Juhasz, S. T. S. Kovacs, P. Herczku, R. Racz, S. Biri, I. Rajta, G. A. B. Gal, S. Z. Szilasi, J. Palinkas, and B. Sulik, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **279**, 177 (2012).
- [51] D. Feng, J. X. Shao, L. Zhao, M. C. Ji, X. R. Zou, G. Y. Wang, Y. L. Ma, W. Zhou, H. Zhou, Y. Li, M. Zhou, and X. M. Chen, Physical Review A **85** (2012).
- [52] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, B. Sulik, Z. Juhasz, V. Bayer, C. Trautmann, E. Bodewits, G. Reitsma, and R. Hoekstra, Physical Review A **88** (2013).
- [53] N. Stolterfoht, E. Gruber, P. Allinger, S. Wampl, Y. Wang, M. J. Simon, and F. Aumayr, Physical Review A **91** (2015).

- [54] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, J. Bundesmann, and D. Fink, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **267**, 226 (2009).
- [55] M. Kreller, G. Zschornack, and U. Kentsch, Journal of Physics Conference Series **163**, 012090 (2009).
- [56] X.-M. Chen, F.-Y. Xi, X.-Y. Qiu, J.-X. Shao, Y. Cui, G.-Z. Sun, J. Wang, Y.-F. Chen, H.-P. Liu, Y.-Z. Yin, F.-J. Lou, X.-A. Wang, J.-K. Xu, and C.-L. Zhou, Chinese Physics Letters **25**, 4348 (2008).
- [57] R. Hellhammer, P. Sobocinski, Z. D. Pesic, J. Bundesmann, D. Fink, and N. Stolterfoht, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **232**, 235 (2005).
- [58] E. Gruber, G. Kowarik, F. Ladinig, J. P. Waclawek, D. Schrempf, F. Aumayr, R. J. Bereczky, K. Tokesi, P. Gunacker, T. Schweigler, C. Lemell, and J. Burgdoerfer, Physical Review A **86** (2012).
- [59] T. Nebiki, T. Yamamoto, T. Narusawa, M. B. H. Breese, E. J. Teo, and F. Watt, Journal of Vacuum Science and Technology A **21**, 1671 (2003).
- [60] K. A. Vokhmyanina, L. A. Zhilyakov, V. S. Kulikauskas, V. P. Petukhov, and G. P. Pokhil, “Transporting proton beam through a quartz tube,” in *X-Ray and Neutron Capillary Optics II*, Proceedings of the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (Spie), Vol. 5943, edited by M. A. Kumakhov (2005) pp. 35–39, times Cited: 3 2nd International Conference on X-Ray and Neutron Capillary Optics SEP 22-26, 2004 Zvenigorod, RUSSIA Inst Roentgen Opt; SPIE; SPIE Russia Chapter; Unisantis S A Pokhil, Grigory/H-3617-2013.
- [61] T. Ikeda, Y. Kanai, T. M. Kojima, Y. Iwai, T. Kambara, Y. Yamazaki, M. Hoshino, T. Nebiki, and T. Narusawa, Applied Physics Letters **89** (2006).

- [62] T. Schweigler, C. Lemell, and J. Burgdoerfer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **269**, 1253 (2011).
- [63] M. Alshammari, K. Alshammari, A. Cudd, R. D. DuBois, and K. Tőkési, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **354**, 20 (2015).
- [64] E. Giglio, R. D. DuBois, A. Cassimi, and K. Tőkési, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **354**, 82 (2015).
- [65] M. Kreller, G. Zschornack, and U. Kentsch, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **269**, 1032 (2011).
- [66] T. Ikeda, Y. Kanai, T. M. Kojima, Y. Iwai, Y. Kanazawa, M. Hoshino, T. Kobayashi, G. P. Pokhi, and Y. Yamazaki, Journal of Physics Conference Series **88**, 012031 (2007).
- [67] M. J. Simon, C. L. Zhou, M. Doebeli, A. Cassimi, I. Monnet, A. Mery, C. Grygiel, S. Guillous, T. Madi, A. Benyagoub, H. Lebius, A. M. Mueller, H. Shiromaru, and H. A. Synal, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **330**, 11 (2014).
- [68] J. Hasegawa, S. Jaiyen, C. Polee, N. Chankow, and Y. Oguri, Journal of Applied Physics **110** (2011).
- [69] T. Ikeda, Y. Kanai, Y. Iwai, T. M. Kojima, K. Maeshima, W. Meissl, T. Kobayashi, T. Nebiki, S. Miyamoto, G. P. Pokhil, T. Narusawa, N. Imamoto, and Y. Yamazaki, Surface and Coatings Technology **206**, 859 (2011).
- [70] T. Nebiki, D. Sekiba, H. Yonemura, M. Wilde, S. Ogura, H. Yamashita, M. Matsumoto, K. Fukutani, T. Okano, J. Kasagi, Y. Iwamura, T. Itoh, S. Kuribayashi, H. Matsuzaki, and T. Narusawa, Nuclear Instruments and

- Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **266**, 1324 (2008).
- [71] Y. Iwai, T. Ikeda, T. M. Kojima, Y. Yamazaki, K. Maeshima, N. Imamoto, T. Kobayashi, T. Nebiki, T. Narusawa, and G. P. Pokhil, Applied Physics Letters **92**, 023509 (2008).
- [72] G. Y. Wang, J. X. Shao, Q. Song, D. Mo, A. X. Yang, X. Ma, W. Zhou, Y. Cui, Y. Li, Z. L. Liu, and X. M. Chen, *Scientific Reports* **5**, 15169 (2015).
- [73] I. Rajta, G. U. L. Nagy, R. J. Bereczky, and K. Tokesi, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **354**, 328 (2015).
- [74] G. Sun, X. Chen, J. Wang, Y. Chen, J. Xu, C. Zhou, J. Shao, Y. Cui, B. Ding, Y. Yin, X. Wang, F. Lou, X. Lv, X. Qiu, J. Jia, L. Chen, F. Xi, Z. Chen, L. Li, and Z. Liu, Physical Review A **79** (2009).
- [75] L. Chen, X. Lv, J. Jia, M. Ji, P. Zhou, G. Sun, J. Wang, Y. Chen, F. Xi, Y. Cui, J. Shao, X. Qiu, Y. Guo, and X. Chen, Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics **44** (2011).
- [76] L. Chen, Y. Guo, J. Jia, H. Zhang, Y. Cui, J. Shao, Y. Yin, X. Qiu, X. Lv, G. Sun, J. Wang, Y. Chen, F. Xi, and X. Chen, Physical Review A **84** (2011).
- [77] X.-Y. Lue, L. Chen, X.-M. Chen, J.-J. Jia, P. Zhou, C.-L. Zhou, X.-Y. Qiu, J.-X. Shao, Y. Cui, Y.-Z. Yin, H.-W. Wang, and M.-C. Ji, Chinese Physics B **20** (2011).
- [78] H. Wang, L. Chen, X. Lv, C. Zhou, J. Jia, P. Zhou, J. Shao, M. Ji, and X. Chen, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **286**, 351 (2012).
- [79] K. Schiessl, K. Tokesi, B. Solleeder, C. Lemell, and J. Burgdoerfer, Physical Review Letters **102** (2009).

- [80] B. S. Dassanayake, R. J. Bereczky, S. Das, A. Ayyad, K. Toekesi, and J. A. Tanis, *Physical Review A* **83** (2011).
- [81] B. S. Dassanayake, S. Das, R. J. Bereczky, K. Tőkési, and J. A. Tanis, *Phys. Rev. A* **81**, 020701 (2010).
- [82] W. Wang, D. Qi, D. Yu, M. Zhang, F. Ruan, J. Chen, and X. Cai, *Journal of Physics Conference Series* **163** (2009).
- [83] S. Das, B. S. Dassanayake, M. Winkworth, J. L. Baran, N. Stolterfoht, and J. A. Tanis, *Phys. Rev. A* **76**, 042716 (2007).
- [84] A. R. Milosavljević, G. Víkor, Z. D. Pešić, P. Kolarž, D. Šević, B. P. Marinković, S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, and L. Piraux, *Phys. Rev. A* **75**, 030901 (2007).
- [85] N. Stolterfoht, *Physical Review A* **89** (2014).
- [86] T. Nebiki, M. H. Kabir, and T. Narusawa, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **249**, 226 (2006).
- [87] N. Fujita, K. Ishii, and H. Ogawa, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **269**, 1023 (2011).
- [88] M. J. Simon, M. Doebeli, A. M. Mueller, and H. A. Synal, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **273**, 237 (2012).
- [89] D. Sekiba, H. Yonemura, T. Nebiki, M. Wilde, S. Ogura, H. Yamashita, M. Matsumoto, J. Kasagi, Y. Iwamura, T. Itoh, H. Matsuzaki, T. Narusawa, and K. Fukutani, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **266**, 4027 (2008).

- [90] K. Ishii, N. Fujita, and H. Ogawa, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **269**, 1026 (2011).
- [91] J. Hasegawa, S. Shiba, H. Fukuda, and Y. Oguri, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **266**, 2125 (2008).
- [92] J. Yokoe, H. Tsuchida, K. Nishimura, R. Murakoshi, S. Mori, M. Naitoh, T. Majima, and A. Itoh, Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics **46** (2013).
- [93] E. Gruber, N. Stolterfoht, P. Allinger, S. Wampl, Y. Wang, M. J. Simon, and F. Aumayr, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **340**, 1 (2014).
- [94] T. Ikeda, Y. Iwai, T. M. Kojima, S. Onoda, Y. Kanai, and Y. Yamazaki, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **287**, 31 (2012).
- [95] J. Liesegang, B. C. Senn, and E. R. Smith, Journal of Applied Physics **77**, 5782 (1995).
- [96] J. Liesegang and B. C. Senn, Journal of Applied Physics **80**, 6336 (1996).
- [97] J. C. Schug, A. C. Lilly, and D. A. Lowitz, Physical Review B **1**, 4811 (1970).
- [98] http://usa.dupontteijinfilms.com/informationcenter/downloads/Electrical_Properties.pdf.
- [99] W. D. Gill, Journal of Applied Physics **43**, 5033 (1972).
- [100] K. A. Vokhmyanina, L. A. Zhilyakov, A. V. Kostanovsky, V. S. Kulikauskas, V. P. Petukhov, and G. P. Pokhil, Journal of Physics a-Mathematical and General **39**, 4775 (2006).

- [101] G. P. Pokhil, K. A. Vokhmyanina, and A. I. Mironchik, *Journal of Surface Investigation-X-Ray Synchrotron and Neutron Techniques* **3**, 326 (2009).
- [102] R. D. DuBois and K. Tokesi, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **279**, 186 (2012).
- [103] Y. Xue, D. Yu, J. Liu, Y. Wu, M. Zhang, J. Chen, W. Wang, R. Lu, C. Shao, L. Kang, J. Li, X. Cai, and N. Stolterfoht, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **359**, 44 (2015).
- [104] T. M. Kojima, D. Tomono, T. Ikeda, K. Ishida, Y. Iwai, M. Iwasaki, Y. Matsuda, T. Matsuzaki, and Y. Yamazaki, *Journal of the Physical Society of Japan* **76**, 093501 (2007).
- [105] F. F. Komarov, A. S. Kamyshan, and C. Karwat, *Vacuum* **83**, S51 (2009).
- [106] Z. Gong, S. Yan, H. Ma, R. Nie, J. Xue, and Y. Wang, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **272**, 370 (2012).
- [107] K. Tokesi, I. Rajta, R. J. Bereczky, and K. Vad, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **279**, 173 (2012).
- [108] G. U. L. Nagy, I. Rajta, R. J. Bereczky, and K. Tőkési, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **354**, 317 (2015).
- [109] A. Cassimi, L. Maunoury, T. Muranaka, B. Huber, K. R. Dey, H. Lebius, D. Lelievre, J. M. Ramillon, T. Been, T. Ikeda, Y. Kanai, T. M. Kojima, Y. Iwai, Y. Yamazaki, H. Khemliche, N. Bundaleski, and P. Roncin, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **267**, 674 (2009).

- [110] T. M. Kojima, T. Ikeda, Y. Kanai, and Y. Yamazaki, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **354**, 16 (2015).
- [111] Y. Wu, D. Yu, Y. Xue, J. Chen, J. Liu, M. Zhang, W. Wang, R. Lu, F. Ruan, F. Du, C. Shao, J. Li, L. Kang, and X. Cai, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms **334**, 59 (2014)

发表文章目录

- [1] S. D. Liu, Y. Y. Wang, Y. T. Zhao, X. M. Zhou, R. Cheng, Y. Lei, Y. B. Sun, J. R. Ren, J. L. Duan, J. Liu, H. S. Xu, and G. Q. Xiao, Double-peak structures in transmission of c ions through conical multicapillaries in a polymer: Projectile-energy dependence, *Phys. Rev. A* **91**, 012714 (2015). **(Chapter 2)**
- [2] Liu Shi-Dong, Zhao Yong-Tao, Wang Yu-Yu, Stolterfoht N, Cheng Rui, Zhou Xian-Ming, Xu Hu-Shan, and Xiao Guo-Qing, Analytical model for describing ion guiding through capillaries in insulating polymers, *Chin. Phys. B* **24**, 086104 (2015). **(Chapter 3)**
- [3] S. D. Liu, Y. T. Zhao, Y. Y. Wang, X. M. Zhou, R. Cheng, X. Wang, Y. Yu, J. R. Ren, Y. Lei, Y. B. Sun, Y. F. Li, H. B. Peng, G. Xu, G. Q. Xiao, Transmission of 200 keV H_2^+ Ions through Tapered Capillaries in PC, *Journal of Physics: Conference Series* **488**, 132041 (2014).
- [4] S.D. Liu, Y.T. Zhao, Y.Y. Wang, X.M. Zhou, R. Cheng et al, Simulations of guiding of low-energy ions through a single nanocapillary in insulating materials. (to be submitted) (2015). **(Chapter 4)**
- [5] Y Y Wang, S D Liu, Y T Zhao, J R Sun, D H Li, J L Dun, X M Chen, and G Q Xiao, Energy dependence of highly charged ions guided through nanocapillaries in polycarbonate, *Phys. Scr.* **T156**, 014060 (2013).
- [6] Y. Yu, S. D. Liu, Y. T. Zhao, Y. Y. Wang, X. M. Zhou, R. Cheng, Y. F. Li, Y. Lei, Y. B. Sun, H. B. Peng, Secondary Electron Emission from Carbon Foils under O^{2+} Ion Impact, *Journal of Physics: Conference Series* **488**, 132045 (2014).
- [7] Y. Y. Wang, S. D. Liu, Y. T. Zhao, J. L. Duan, X. M. Zhou, J. R. Ren, R. Cheng, X. Wang, Y. Yu, Y. Lei, Y. B. Sun, Y. F. Li, H. B. Peng, G. Q.

Xiao, Energy dependence of H_2^+ ions guided through tapered capillaries in PC, *Journal of Physics: Conference Series* **488**, 132044 (2014).

简 历

基本情况

刘世东，男，山东省临沂市沂水县人，1989年10月14日出生，未婚，中国科学院近代物理研究所&中国科学院大学在读博士。

教育状况

2007年9月至2011年7月，四川大学物理科学与技术学院，本科，专业：核物理。

2011年9月至2016年7月，中国科学院近代物理研究所（&中国科学院大学），硕博连读研究生，专业：粒子物理与原子核物理。

获奖情况

无。

研究兴趣

离子与原子、固体表面相互作用

低速高电荷态离子在绝缘微孔中的导向效应

联系方式

通讯地址：甘肃省兰州市南昌路509号，中国科学院近代物理研究所

邮编：730000

E-mail: liusd@outlook.com;

iamstone6@163.com

致 谢

写到这里可以松一口气了，关于研究生的主要工作内容基本介绍完了。不过，论文的撰写工作尚未完成，还有许多的修改问题有待进一步与导师讨论并解决。在完成所有的论文工作之前，必须对帮助作者的所有人表达谢意。

非常感谢我的导师徐瑚珊研究员，很荣幸能成为徐老师的一名学生，但也非常遗憾没有跟徐老师经常交流以聆听教诲。徐老师的人格魅力将会一直深深地影响着我。在此，谨向徐老师表达我崇高的敬意。

自 2012 年 7 月份入所至今，我就一直待在等离子体物理研究组，本文的所有工作都是在此组里做的。我虽然非常的努力学习工作，但是受自身能力所缚，很多工作都无法完成的很好。好在有等离子体物理研究组的所有成员的指导、帮助和建议，让我做出了一点点成绩以期毕业。在这里，特别感谢赵永涛导师（我的第二导师）给了我一个自由的学习环境，以及在学习工作方面对我的耐心指导和鞭策；博士期间的论文的发表都有赵永涛导师无私的帮助和辛劳的汗水；感谢王瑜玉副研究员、程锐副研究员、周贤明师兄、彭海波师兄和雷雨师姐在实验时不遗余力的帮我搭建实验仪器和数据获取系统；其中特别感谢王瑜玉副研究员，本文的许多工作都是在她的督促、鼓励和监督下完成的，而且论文的后续修改肯定得需要她的大力支持与帮助；也特别感谢周贤明师兄的宽容，因为和你值实验班时我都在偷懒，感谢你在研究工作中对我的帮助和鼓励。感谢王兴师兄和孙渊博师兄对我的鼓励，让我再往前走一步；感谢徐戈师兄、任洁茹师姐、虞洋师兄、李永峰师兄、邓佳川、肖家浩和麻礼东，咱们能够一起成长。谢谢在我的求学路上有你们陪伴。

在这里，特别感谢亥姆霍兹柏林材料与能源研究中心 (Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie) 的 Nikolaus Stolterfoht 教授，和他一起进行的学术讨论对我受益匪浅。

感谢人教处的华明漪老师，梁敏乐老师，李明治老师多年来在生活和学习中给予的耐心帮助。

感谢 320 kV 实验平台上的工作人员在我实验时提供的高品质束流。

刘世东 二〇一六年二月二十三日