# 玻尔速度附近的高电荷态离子与固体表面作用 的 X 射线发射研究

专业 核物理

#### 学生 刘世东 指导老师 赵永涛

**摘要**:详细介绍了兰州重离子加速器国家实验室电子回旋共振离子源(ECRIS)及在其上面搭建的原子物理实验平台,重点研究了在实验平台上完成的玻尔速度附近( $V_p \sim V_{Bohr}$ )的高电荷态离子与固体作用产生的X射线发射。

实验中,用初动能  $E=1.2\sim3.0$ MeV 的高电荷态  $Ar^{12+}$ 离子和初动能为  $50\sim300$ keV 的质子正入射作用于 Si和 Al 表面,研究了靶的 X 射线产额与离子动能之间的关系,研究结果表明: X 射线产额随入射离子的动能的增大而增加; 对于  $Ar^{12+}$ 离子,Si 的 K-X 射线产额远大于 Al 的 K-X 射线产额,但是对于质子,Al 的 K-X 射线产额要稍大于 Si 的 K-X 射线产额。发现高电荷态离子与固体表面作用中的空心原子的形成很大程度上影响 X 射线的发射产额,这主要取决于被捕获的电子的初壳层与辐射跃迁的始末壳层之间的关系。

通过测量 1.8 MeV 的  $Ar^{12+}$  离子垂直入射 AI, Si, Ni, Mo, Sn, Nd, W, Au 表面产生的射线,得出了靶材料的原子序数与 X 射线种类之间的关系:离子轰击元素周期表中 2, 3 周期的轻靶,4, 5 周期的中等靶,6 周期的重靶,发射的 X 射线依次为 K-X, L-X, M-X。当用能量为 1.2 MeV 和 1.8 MeV,电荷态 q=8, 9, 12 的 Ar 离子轰击靶时,没有观察到电荷态对 X 射线产额的影响,并对这两个结论作出了简单的分析。

**关键词:** 高电荷态离子; X 射线; 产额; 经典过垒模型; 空心原子

# X-ray Emission from Solid Surfaces Induced by Highly Charged Ions at Near Bohr Velocities

Student: Shidong Liu Adviser: Yongtao Zhao

**Abstract:** The research platform for atomic physics on the electron cyclone resonance (ECR) ion resource of the national laboratory of the Heavy Ion Research Facility in Lanzhou (HIRFL) is described in detail. Studies on the emission of X-ray from solid surfaces at impact of highly charged ions at the platform are emphasized.

The yields of X-ray from targets Al and Si surfaces bombarded under normal incidence by  $Ar^{12+}$  with initial kinetic energy  $E=1.2\sim3.0 MeV$  and proton with  $E=50\sim300 keV$  have been measured as a function of projectile energies, indicating the X-ray yields of target atoms increase with increasing incident energy, together with observing that the K-X yields of Si induced by  $Ar^{12+}$  far exceeds those of Al, while for proton the K-X yields of Al are slightly over those of Si. It is found that the effects to the yields of X-ray due to the formation of hollow atoms depend on the relationship between the shell of electrons captured and the shells of radiation transition.

The X-ray emissions have been measured from different target surfaces(Al, Si, Ni, Mo, Sn, Nd, W, Au) bombarded by Ar<sup>12+</sup> with the incoming energy E=1.8MeV and draw a conclusion that the K shell electrons of light targets in period 2 and 3 can be stimulated to produce K-X ray, while for the targets in the forth and fifth period and the sixth period can generate L-X ray and M-X ray, respectively. It is hardly observed that the charge state q has an influence on the yields of X-ray in the interaction of Ar<sup>8+,9+,12+</sup>(E=1.2MeV, 1.8MeV) with different targets above mentioned. A primary comprehension to the two phenomena was provided in this paper.

**Key words:** Highly charged ion; X-ray; yield; Classical Over-the-Barrier Model Hollow atom

# 目录

摘要	
Abstract	II
目录	III
Ⅰ 引言	1
1.1 研究背景及应用	1
1.2 高电荷态离子与固体表面的作用机制概述	2
1.3 高电荷态离子与固体表面作用中X射线发射	4
1.3.1 研究概况	4
1.3.2 研究意义	5
1.4 本文的主要工作	5
II X射线发射的理论基础	5
2.1 X射线的发射机制	5
2.2 高电荷态离子与固体表面作用的X射线发射机制	7
2.3 跃迁规则和荧光产额	7
III 实验装置和实验方法	9
3.1 电子回旋共振离子源	9
3.2 90°分析磁铁选择电荷态q	10
3.3 束流的聚焦和准直	10
3.4 真空靶室	12
3.5 X射线的探测系统及数据的获取	
3.6 测量方法及误差评估	
IV 实验结果与分析	14
4.1 Al和Si的K-X射线与入射离子种类和动能之间的关系	
4.2 靶的X射线与原子序数的关系	17
4.3 X射线产额与入射离子电荷态的关系	20
V 总结与展望	22
5.1 本文的主要结论	22
5.2 展望	23
5.3 可开展的后续工作	23
致谢	24
参考文献	24

# | 引言

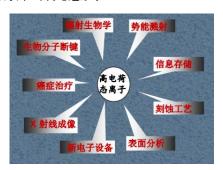
所谓高电荷态离子(Highly Charged Ions,HCI)是指核外电子被高度剥离了的离子[1]。近十几年,离子源技术的发展,实验技术的不断提高和相关理论的持续改进,促进了HCI与固体表面相互作用的实验和理论研究,国际上许多著名实验室对此领域给予了高度重视 [2][3]。高电荷态离子的最显著的特点是它的q值非常大(q>>1),即携带非常大的势能(其值等与该原子q个电子的电离能之和),并且可以产生非常强的库仑场,例如, $Xe^{54}$ 离子所携带的势能就是将Xe原子核外的 54 个电子全部电离所消耗的总能量,约为 202Xe0 [9]11 家态的库仑场强比氢原子 1 态的库仑场强高 6 个数量级,约为 2×10 Xe0 (Xe0 (Xe0 ) 为 500 (Xe0 ) 为 500

#### 1.1 研究背景及应用

1954年,Bell实验室的H. D. Hagstrum<sup>[5]</sup>首次用单电荷态离子He<sup>\*</sup>,Ne<sup>\*</sup>,Ar<sup>\*</sup>,Xe<sup>\*</sup>和多电荷态离子Xe<sup>5\*</sup>轰击钨表面,研究碰撞过程中离子诱导俄歇电子的产额,开创了离子与固体表面相互作用的研究工作;1987年,Delaunay<sup>[6]</sup>用高电荷态离子 N<sup>6\*</sup>,Ne<sup>7\*</sup>,Ar<sup>12\*</sup>和Kr<sup>11\*</sup>与钨表面作用,发现总的电子产额与入射离子的电荷态密切相关,开创了高电荷态离子与表面相互作用的研究工作;为了解释HCI与固体表面的作用机制,J. Burgdörfer<sup>[7]</sup>等人在前人的研究基础上于 1991年建立了经典过垒模型(Classical Over-the-Barrier Model,COBM),之后的十几年又出现了库仑爆炸模型(Coulomb Explosion,CE)<sup>[8]</sup>,缺陷补偿溅射机制(Defect-Mediated Sputtering)<sup>[9]</sup>和超快电子激发模型(Sputtering by Intense,Ultrafast Electronic Excitation)<sup>[10]</sup>,而目前应用最为广泛的是经典过垒模型,这些模型为研究HCI与固体表面相互作用奠定了理论基础<sup>[11]</sup>。G. Xiao<sup>[12]</sup>等研究发现固体表面势与高电荷态离子作用引起二次电子发射的关联作用,并通过表面发射的电子能谱来确定离子径迹的温度。D. Niemann<sup>[13]</sup>等通过高电荷态离子 Ne<sup>6\*</sup>与 Al表面相互作用过程中发射的低能电子发射谱研究了固体Al中等离元激发的机理。T. Schenkel<sup>[14]</sup>等研究了低速高电荷态离子在固体中的势能沉积。D. Gillaspy<sup>[15]</sup>等探索了高电荷态离子在印刷技术中的潜力。Hattass<sup>[16]</sup>等研究了高电荷态离子与固体表面相互作用的平衡时间以及 X 射线能谱。

现在关于高电荷态离子与固体相互作用中的研究主要集中表面上的二次粒子(电子,离子,中性粒子)的发射、特征X射线的发射,高电荷态离子在固体中的能损与电荷态平

衡之间的关系等方面<sup>[17]</sup>。高电荷态离子物理作为一门新兴学科,无论是理论研究和应用探索都发展迅速,现已渗透到原子物理,等离子体物理,天体物理,生物学等领域当中<sup>[18][19]</sup>,并且在纳米蚀刻,固体结构分析,离子注入以及重离子驱动的惯性聚变等领域有重要的应用前景和研究意义<sup>[18]</sup>。



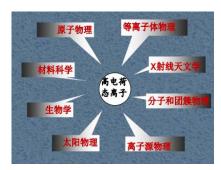


图 1-1 高电荷态离子的应用

# 1.2 高电荷态离子与固体表面的作用机制概述

高电荷态离子与固体表面相互作用过程如下图[20]所示:

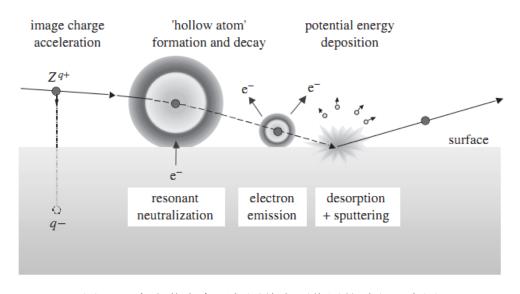


图 1-2 高电荷态离子与固体表面作用的过程示意图

根据经典过垒模型<sup>[20]</sup>,整个作用过程主要包括: 镜像加速、空心原子(第一代和第二代空心原子)的形成和衰变、能量(动能和势能)损失和转变及二次粒子(电子、离子,光子、中性粒子)的发射等过程。在高电荷态离子接近金属表面的过程中,因为q很大,产生的强大库仑场会对靶原子产生极化作用,从而在固体的内表面形成镜像电荷,镜像电荷对入射离子的加速作用,会使高电荷态离子接近金属表面的过程中加速,产生垂直动能(Vertical Kinetic Energy)增益。实验上可以用不同的方法证实经典过垒模型的镜像

加速现象[21][22][23]。其能量增益

$$\Delta E \approx \frac{W}{4\sqrt{2}} \cdot q^{3/2} \tag{1-1}$$

其中,q是入射离子的电荷态(量纲为 1),W是金属靶的功函数。由此式可以看出镜像电荷引起的能量增益与靶材料的功函数 W和入射离子的电荷态 q 密切相关。

当离子与金属靶表面之间的距离达到一定的临界值时,离子与金属表面间的势垒高度低于金属表面电子的费米能级,离子开始共振捕获金属导带上的电子到量子数  $n_c$  很大的高激发态,形成空心原子(Hollow atom)。临界值 Rc 的理论表达式为

$$Rc = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{\sqrt{8q+2}}{2W} \approx \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{\sqrt{2q}}{W}$$
 (1-2)

量子数  $n_c$ 的表达式为

$$n_c = \frac{q^{3/4}}{\sqrt{W}}(atomic \ units) \tag{1-3}$$

其中,e 是基本电荷量。(例如, $Ar^{18+}$ 轰击 A1 (W=0.16 atomic units) 靶时,能量增益约为 60eV,临界值 Rc 约为 2nm,量子数  $n_c$  约为 22。)

空心原子是一个不稳定的高n多激发态原子,寿命很短,它的大部分电子都处于高n能 级的激发态,而内壳层却处于空置状态,这种电子分布倒置状态一般能够持续1006s左右[20], 但是在没有其他粒子碰撞的情况下寿命可以长达千分之一秒甚至一秒[24]。。入射离子到达 金属靶表面时, 若空心原子的高激发态电子的轨道半径超过入射离子表面特征屏蔽长度, 则这些高n激发态电子将会被剥离。几乎同时,入射离子核周围会形成一紧密的电子屏蔽 $^{[2]}$ , 从而在金属的下表面形成第二代空心原子,它的半径要比第一代空心原子的半径小的多。 空心原子可以通过自电离,俄歇跃迁,发射X射线等方式退激,期间伴有大量的低能(约 10eV) 电子发射。同时,受入射离子产生的强库仑电场和势能表层沉积的作用,靶表层原 子会被大量激发, 电离和溅射, 发射电子和X射线。由于镜像加速作用限制了作用时间, 高电荷态离子携带的势能只有一小部分沉积在固体的上表面,而大部分势能会在飞秒时间 内沉积在近表面甚至表面以下的纳米尺度范围,这个过程主要是通过剥离空心原子的里德 伯电子,俄歇跃迁填充内层空穴或与靶原子近碰撞完成[20],可见空心原子的形成退激过程 就是其释放势能的过程。通过这种方式,炮弹的势能就会转换成发射电子的动能及表面小 区域内的靶原子的激发能,从而造成电子空穴对激发,靶的导带或者价带中的热空穴和靶 原子的内壳层空穴。金属中的电子可以认为是自由电子,表面电子结构的改变会被其他地 方的电子迅速抵消,能量很快在金属中扩散消耗而不致使金属表面产生显著改变;但是对 半导体和绝缘体而言, 电子束缚的比较紧, 释放在其表面的能量不能迅速扩散消耗, 从而 可能导致表面结构发生改变,利用此现象可以对固体表面进行分析和修正。

从上面的整个作用过程中可知,同等条件下,高电荷态离子与固体作用产生的二次电子,离子及 X 射线产额比单电荷态离子高的原因主要有:电荷态 q 高使高电荷态离子与靶原子的作用时间相对而言要长,动量转换时间就长,高电荷态离子的能损大;镜像电荷对高电荷态离子的加速作用,造成碰撞能量增益;高电荷态离子与靶原子作用过程中势能的释放;当高电荷态离子作用于固体表面时,可以在 fs 时间尺度和 nm 空间尺度沉积几十甚至上百 keV 的势能,从而使得作用区域形成瞬间等离子体,而等离子体的电子阻止本领要远大于普通状态下物质的电子阻止本领。

#### 1.3 高电荷态离子与固体表面作用中X射线发射

#### 1.3.1 研究概况

目前,关于高电荷态离子与固体作用中X射线的研究主要分为理论和实验研究。

上世纪的中后期,人们主要是对质子等轻离子引起靶原子内壳层的电离和X射线产生截面进行了深入的理论和实验研究,积累了大量的实验数据<sup>[25]</sup>。在离子与原子碰撞的理论研究方面,提出了许多理论模型,如第一级波恩近似(FBA)、平面波玻恩近似理论(PWBA)、半经典近似理论(SCA)和二体碰撞近似理论(BEA)。目前比较成熟的理论是 1981年Brandt和Lapicki基于PWBA理论提出的ECPSSR理论模型,它主要是对PWBA作了一些修正<sup>[26]</sup>:E代表入射离子与靶原子碰撞后的能量损失修正;C代表入射离子在靶核库仑场中的库仑偏转效应修正<sup>[27][28][26]</sup>;R代表靶原子轨道电子的波函数<sup>[28]</sup>和质量<sup>[26]</sup>的相对论修正。

在实验方面,D. Mitra<sup>[27]</sup>等人研究了用能量为 0.33—1.0 MeV的C<sup>2,3,4+</sup>轰击Au 和Pb的X射线产生截面,发现实验结果与平面波玻恩近似给出的结果非常吻合,但是却比ECPSSR给出的结果小 2—5 倍。Yeshpal Singh<sup>[29]</sup>等人研究了能量为 20—102MeV的F离子轰击Bi 靶的M—X射线的产生截面与入射离子能量之间的关系。H. Zhang,X. Chen<sup>[30]</sup>等人用能量为 350—600keV的Xe<sup>q+</sup>(q=25—30)轰击Mo靶,得出Mo的L壳层的电离阈能值低至 2.65—3.03keV/u。Yongtao Zhao<sup>[31]</sup>等研究了高电荷态离子 <sup>40</sup>Ar<sup>q+</sup> 和 <sup>129</sup>Xe<sup>q+</sup>在Be的下表面形成的空心原子的X射线发射,实验结果证实了空心原子的存在,并且发现Xe<sup>28—30+</sup>的X射线谱有一能量约为 1.6MeV的峰,并用"双电子单光子"跃迁机制对其作出了理论解释。张小安<sup>[32]</sup>等研究了高电荷态离子 <sup>129</sup>Xe<sup>q+</sup>(q=25, 26, 27)与Au靶表面作用过程中产生的X射线产额与入射离子的动能和势能之间的关系,并且用Heisenberg不确定关系对Au 的第N能级的寿命进行了估算。杨治虎<sup>[33]</sup>等通过研究高电荷态离子Ar 离子与Zr 靶表面作用产生的Ar的X射线,发现Ar 的K层X射线强度随入射离子的动能而减弱,且发现Ar<sup>17+</sup>的单离子Kα—X射线产额比Ar<sup>16+</sup>的大 5 个量级。李耀宗<sup>[34]</sup>等在研究高电荷态离子 <sup>129</sup>Xe<sup>29+</sup>与不同金属表面作用产生的X射线谱时发现当入射离子动能相同时,Au的Mα<sub>1</sub>—X射线产额比Mo的Lα<sub>1</sub>—X,Lα<sub>2</sub>—X,Lβ<sub>1</sub>—X射线谱时发现当入射离子动能相同时,Au的Mα<sub>1</sub>—X射线产额比Mo的Lα<sub>1</sub>—X,Lα<sub>2</sub>—X,Lβ<sub>1</sub>—X射

线的总产额高,且特征X射线产额随入射离子的动能而增加。梁昌慧<sup>[35]</sup>等通过研究 <sup>129</sup>Xe<sup>28+</sup> 轰击金属Au和Mo的表面发射的X射线,发现在入射离子的电荷态q和能量相同的条件下,对于质量较轻的靶原子,只有其内壳层的电子才能被激发产生X射线,而质量较重的靶原子,只有其较外层的电子才能被激发而产生X射线。王立等通过研究高电荷态离子离子 <sup>40</sup>Ar <sup>4+</sup>与 A1表面相互作用,发现X射线强度随电荷态q增强的趋势与入射离子的库仑势随电荷态q的增加趋势一致。

#### 1.3.2 研究意义

高电荷态离子与靶表面相互作用过程产生的电子发射、靶原子及离子溅射和从红外到 X射线范围的光辐射,携带了大量入射离子、靶原子及其相互作用机制的信息<sup>[34]</sup>。X射线的 发射特别适合研究高电荷态离子在靶表面上的能量转移<sup>[36]</sup>并且在材料微结构的分析与修正,尤其是在医学,地质学和环境学领域、X射线激光材料等其他工业应用方面具有重要应用前景<sup>[28]</sup>,另外对研究入射离子及靶原子的能级结构、元素丰度测定<sup>[28]</sup>、电子密度,理解HCI与固体表面作用过程中势能的沉积和动能的释放、靶特征X射线辐射的产生机制有重要意义<sup>[32]</sup>;作用过程中形成的空心原子非常适合研究室温黑体辐射对高激发态原子寿命的影响<sup>[24]</sup>,而X射线的发射是研究空心原子形成和衰变过程的一个重要手段。

#### 1.4 本文的主要工作

本论文论述了在兰州重离子加速器国家实验室的 ECR 离子源和在其上面搭建的原子物理实验平台上进行的  $Ar^{q+}$  (q=8, 9, 12) 和质子与 A1, Si, Ni, Mo, Sn, Nd, W, Au 作用产生的 X 射线的测量研究,从 X 射线产额与离子种类、动能和电荷态以及与靶材料之间的关系对测量结果进行了分析处理,给出了初步的研究结论。

论文最后总结了全文的主要研究工作,并且指出了本论文工作的不足之处及要改进的 方面和将要开展的工作。

# II X射线发射的理论基础

本章首先详细介绍了 X 射线的发射机制,然后具体分析了高电荷态离子与固体表面相互作用过程中 X 射线的发射,并且简单介绍了 X 射线的跃迁机制和荧光产额。

# 2.1 X射线的发射机制

X射线有两种且两种X射线的发生机制有很大差别:一种是连续光谱辐射,即轫致辐射,

它是由带电粒子(一般指电子)与原子(原子核)相碰撞,发生骤然减速时,由此伴随产生的辐射<sup>[37]</sup>;另一种是不连续的,即特征X射线:当原子因为"某种原因"而使其内壳层电子激发到能量较高的壳层或者被电离变成自由电子脱离原子束缚,此时该内壳层出现空穴,原子处于不稳定的激发状态,处于激发状态的原子有"自发"回到基态(或者能量较低的状态)的趋势,这种趋势迫使外壳层的电子向内壳层空穴跃迁释放能量,此能量有多种释放方式,一种就是以X射线的形式释放,即所谓的特征X射线,另一种就是通过发射俄歇电子,还有一种就是将能量转移给原子核,使原子核处于激发态<sup>[37]</sup>(激发态的核可以通过gamma跃迁或者内转换过程退激);除K壳层以外,其他壳层因角动量量子数的不同而分为不同的支壳层,如果空穴出现在这样的壳层,那么同一主壳层的不同支壳层之间也可以发生跃迁,这是一种无辐射跃迁,即所谓的Coster-Kronig跃迁<sup>[26]</sup>。上述 4 中情况中,后两种的几率很小,在讨论X射线时一般不予考虑。可见:内壳层空穴的产生是产生特征X射线的先决条件,且X射线一旦产生,接下来会发生什么现象与外界毫无关系,完全取决于元素本身的原子序数Z<sup>[37]</sup>。图 2-1 给出了电子跃迁的前两种跃迁(辐射跃迁和俄歇跃迁)示意图:

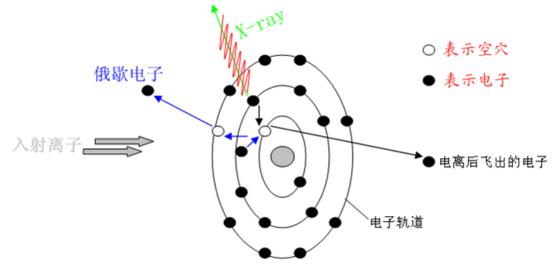


图 2-1 电子跃迁示意图

根据 Bohr 的原子轨道理论, X 射线的能量可由下式计算

$$E_X = E_f - E_i = \Phi_i - \Phi_f \tag{2-1}$$

这里, $E_f$ 和  $E_i$ 分别为电子和空穴所在能级的能量, $\Phi_i$ 和  $\Phi_f$ 则分别表示电子在相应轨道时的结合能。如果知道内层电子对某一电子的屏蔽常数,根据莫塞莱公式也可以计算 X 射线的能量,公式如下:

$$E_X = Ry \cdot (Z - \sigma)^2 \cdot (\frac{1}{n_f} - \frac{1}{n_i})$$
 (2-2)

其中 Ry=Rhc=13.6eV,Ry 有时称之为里德伯能量单位,R=10973731.6 m<sup>-1</sup>,是里德伯常量,h,c 和  $\sigma$  分别是普朗克常数,光在真空中的速度和屏蔽常数。电子的轨道结合能有许多实验数据可查,或通过专门的程序计算。若是知道屏蔽常数  $\sigma$ ,可以通过莫塞莱法则粗略计算电子的结合能, $\sigma$  的值一般通过经验公式来确定,Slater 给出了较简单的确定方法,徐光宪对其作出了改进,结果更准确。

#### 2.2 高电荷态离子与固体表面作用的X射线发射机制

根据上述特征 X 射线的产生机制可将其过程概述为:弹靶相互作用致使原子内壳层电子激发或者电离,外壳层电子的跃迁,能量以发射 X 射线的方式释放。

高电荷态离子与固体表面作用的复杂性(涉及到多体碰撞,多重激发态,电子关联等),给 X 射线的分析带来了一定的困难。高电荷态离子诱导靶原子内壳层电子电离或者激发的机制主要有:电子阻止和势能的释放,即电离和捕获。电离主要是通过入射离子直接与靶原子电子相互作用,通过库仑碰撞使电子电离变成自由电子或者将其激发到高激发态,此时靶原子处于激发态;捕获则是指空心原子的形成与衰变,尤其是第二代空心原子的产生:根据经典过垒模型,当入射离子与靶表面之间的距离达到临界距离时,入射离子通过电子捕获而变成空心原子,靶原子由于内壳层电子被共振捕获而变成空穴,此时靶原子和空心原子都处于激发态;在上述两种作用过程中产生的快速二次电子或者离子可以进一步引起原子电离,相对于原电离,这个过程称之为次电离,一般地,二次电子的动能大于 100eV的概率非常小,所以次电离的产生的 X 射线可以忽略。高电荷态离子与固体表面作用中的 X 射线的来源主要有靶原子和空心原子退激时发射的特征 X 射线;作用过程中发射的二次电子产生的轫致辐射等。其中二次电子的轫致辐射是本底辐射的主要成分。

# 2.3 跃迁规则和荧光产额

根据量子力学理论,外壳层电子向内壳层空穴跃迁时必须符合选择定则,即

 $\Delta n \ge 1$ 

 $\Delta L \geqslant \pm 1$ 

Δ J≥±1 或 0

其中n主量子数,L是轨道角动量量子数,J是总角动量量子数,J=L-S,L-S+1···L+S。只有符合选择定则的跃迁才是被允许的。

对于具有内壳层空穴的原子,可以用荧光产额  $\omega_x$  表示辐射跃迁的大小,荧光产额  $\omega_x$  的定义式为

# $\omega_x = \frac{\dot{X} - \dot{R} = \hat{X} + \hat{X} + \hat{X} + \hat{X}}{\dot{X} + \dot{X} + \hat{X} + \hat{X}}$

根据上面的讨论可知  $1=\omega_x+\omega_e+\omega_N+\omega_C$ ,其中 $\omega_e$ , $\omega_N$ , $\omega_C$ 分别表示俄歇电子产额,原子核被激发的概率,Coster-Kronig跃迁的概率。一般情况下, $\omega_N$ 和 $\omega_C$ 非常小,可以忽略不计,则有  $1=\omega_x+\omega_e$ ,可见辐射跃迁跟俄歇电子跃迁是一对竞争过程。在一般情况下,对轻元素,发射俄歇电子的概率较大,对重元素,发射X射线的几率较大<sup>37</sup>。图 2-2 定性显示出了荧光产额和俄歇电子产额与原子序数的关系。

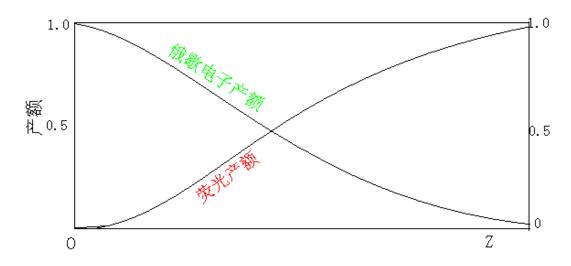


图 2-2 荧光产额和俄歇电子产额与原子序数的关系

Burhop 曾经提出的计算荧光产额的经验公式为

$$\{\omega/(1-\omega)\}^{\frac{1}{4}} = A + BZ + CZ^2$$
 (2-3)

Z是原子序数, A, B, C都是常数。其值可查下表:

常数	$\omega_{K}$	$\omega_L$	$\omega_M$						
A	-0.3795	-0.11107	-0.00036						
В	0. 03426	0. 001368	0. 00386						
С	$-0.1163\times10^{-5}$	$-0.2177 \times 10^{-6}$	$0.20101 \times 10^{-6}$						

表 2-1 荧光产额经验常数表

因为高电荷态离子与固体作用过程存在多电离,电子捕获等复杂过程,荧光产额会发生变化。经验公式(2-3)不适用于计算高电荷态离子入射固体表面 X 射线产生截面和电离截面的计算。

# III 实验装置和实验方法

本实验是在兰州重离子加速器国家实验室的 ECR 离子源和在其上面搭建的原子物理实验平台上完成的。其主要装置包括: 电子回旋共振离子源 (Electron cyclotron resonance ion source, ECSIS),分析(偏转)磁铁,聚焦准直系统,真空靶室,测量系统等,如图 3-1 所示。本节简单介绍了各实验装置的原理,实验的测量和数据获取系统。

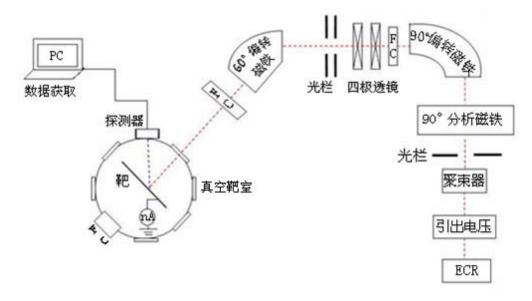


图 3-1 兰州重离子国家实验室 ECR 源原子物理实验平台

# 3.1 电子回旋共振离子源

离子源技术的迅速发展在很大程度上促进了高电荷态离子离子物理的研究。目前的离子源主要有电子回旋共振离子源,电子束离子源(electron beam ion source, EBIS),电子束离子阱(Electron beam ion trap, EBIT),而电子回旋共振离子源被认为是目前提供高电荷态离子束的最有效装置。

ECR 离子源主要是利用微波加热等离子体,当电子的回旋运动频率与外施微波角频率相等时,为共振状态,运动电子可以从微波中不断地,有效地吸收能量而形成高能电子,高能电子游离原子生成 ECR 等离子体,ECR 等离子体又受到最小 B 磁场  $B_{min}$  的约束,被约束的等离子体受到高能电子的逐级电离生成高电荷态离子,离子再经过高压引出包括各种电荷态的离子束。

设经波导或同轴线传到等离子体区的微波的角频率为  $\omega_{RF}$ ,根据洛伦兹力方程:

$$F_{\mathsf{A}} = q \mathsf{V} B \tag{3-1}$$

和圆周运动方程:

$$F_{\text{phih}} = \frac{mv^2}{R} \qquad \qquad \text{$\sharp$ $\mathbf{P}$, $v = \omega \cdot R$} \tag{3-2}$$

可得到共振状态时的频率方程:

$$\omega_{\rm RF} = \omega = \frac{eB}{m_e} \tag{3-3}$$

这里, $\omega$  是电子的回旋频率,B 是离子源共振磁感应强度,e 和  $m_e$  分别是电子的电荷量和质量。也就是说当微波的角频率  $\omega_{RF}$  与磁场 B 相对应时,电子共振吸收微波能量,当电子的能量足够高时,它可以从原子的轨道飞出,即电离。可以通过改变微波频率和磁场强度来实现逐级电离,从而产生高电荷态离子。

#### 3.2 90°分析磁铁选择电荷态q

经由高压从 ECR 中引出的离子束中包括各种不同的电荷态离子,不能用于实验研究,必须首先对其进行电荷态分离选择。这个工作主要是由分析磁铁来完成的。电荷态为 q 的离子在磁场中运动,受洛伦兹力作用而改变运动状态,但是洛伦兹力对其不做功,因此,我们可以用  $90^\circ$  分析磁铁来选择高电荷态离子的电荷态 q。设高电荷态离子在离子源中的速度可以忽略不计,由高压 U 引出的高电荷态离子的电荷态为  $q_i$ ,质量为 m,且不含杂质离子,则其引出动能为

$$\frac{1}{2}mv^2 = Uq \tag{3-4}$$

设分析磁铁的半径为 R,磁场均匀,大小为 B,则电荷态为  $q_i$ 的离子在磁场中的运动方程为:

$$qvB = \frac{mv^2}{R} \tag{3-5}$$

由(3-4)、(3-5)两式可得:

$$\frac{q_i}{m} = \frac{2U}{R^2 R^2} \tag{3-6}$$

因为 U, B, R 和 m 都是定值,所以从分析磁铁中射出的离子束中只含有一种电荷态的离子。但是离子束中难免会有杂质离子,所以从分析磁铁中射出的离子束实际上由荷质比相同的离子构成,分析磁铁无法加以区分。

# 3.3 束流的聚焦和准直

离子束在进入靶室前必须进行聚焦和准直。束流首先经过两个四极透镜聚焦,再经过

两个光栏准直,经过此准直聚焦后,离子束的直径可以控制在 10mm 范围,束流强度一般为 nA 量级(从离子源出射的离子束流强度为 uA 量级)。

下面简要说明一下磁场的聚焦原理:

设一带电量为 q,质量为 m 的粒子进入均匀磁场 B 中,发散角为  $\theta$ ,即速度 V的方向与磁场方向之间的夹角,则带电粒子将在磁场中将做螺旋线运动,螺旋线的半径 R可以由(3-5)式得出,即

$$R = \frac{mV_{\perp}}{qB} \tag{3-7}$$

 $V_{\perp}$ 是带电粒子速度垂直于磁场 B的分量。

螺旋线运动除了螺旋半径 R 外,还有两个很重要的物理量,即螺距 H 和回转周期 T,两者之间关系为

$$H = V_{\parallel}T = V_{\parallel} \cdot \frac{2\pi \, m}{aB} \tag{3-8}$$

 $V_{\mu}$ 是带电粒子速度平行于磁场 B的分量,可见回旋周期 T与粒子速度无关。

由(3-7)和(3-8)两式可以知道,一束发散角  $\theta_i$ 不大的带电粒子束,当它们在磁场方向上的速度分量,即  $V_{//}$ 大致相等时,它们的螺距 H 相等,而且它们的回转周期 T 也相同,也就是说经过一个回转周期后它们将重新汇聚在另一点,这就是磁聚焦原理。磁聚焦一般都是利用载流螺线管中激发的磁场来实现的。在实际应用中,大多数是用载流的短线圈所激发的非均匀磁场实现磁聚焦作用,例如四极透镜。四极透镜的聚焦原理如下图所示。

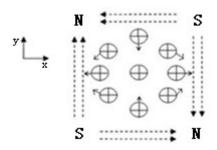


图 3-2 四极透镜的聚焦原理示意图(图中正离子的运动方向垂直 于纸面向外,图示为 x 方向散焦, y 方向聚焦。)

实验中的两个透镜分为前级透镜和次级透镜。由图 3-2 可以看出,四极透镜不但对靠近轴心的运动离子有聚焦作用,而且对偏离轴心较大的运动离子还有剔除作用。鉴于此,我们选择前级透镜的水平方向散焦,竖直方向聚焦,次级透镜与前级透镜正好相反,以剔除偶尔注入的临近电荷态的离子。经过透镜聚焦后,只有轴心附近很小范围内的离子可以沿轴线前进,偏离轴心较大的离子大部分被散焦到管道边缘。透镜后面的两个光栏可以进

一步挡住偏离轴心较大的少数离子。

#### 3.4 真空靶室

靶室是由不锈钢材料做成。因为入射离子的电荷态比较高,且与靶作用过程中形成的空心原子受外界电磁干扰相对严重,因此靶室内部还加置了铂金材料做成的电磁屏蔽罩以减弱外空间的电磁场对离子束作用过程的影响。靶室的表面分布着一些大小不一的窗口,其中一个作为束流入口,这个窗口一般不做他用,是固定的;与束流方向垂直的两个水平正对的窗口一般作为实验员观察窗口,且这两个窗口的直径比较大,便于观察;竖直的窗口一般用来固定靶架系统,通过此系统可对靶进行前后左右上下移动,并且能够对靶进行360度转动,移动的位置或大小可以通过固靶系统上的标尺或者螺旋测微器进行精确测定,靶架一般用导电性良好的金属做成,这样可以避免打在上面的离子或电子造成的电荷积累,本实验所用的靶架是用金属铝做成的,并与电流表相连接地;其他窗口一般做束流检测或者安装探测器、引出电流表之用。在束流的正前方安装一个法拉第筒以检测入射束流,将一个灵敏电流表(pA 电流表)与法拉第筒相连,通过法拉第筒上的流强确定入射束流强度。入射束流正入射到靶上,探测器与束流方向成 45 度角。靶室的进束口与靶之间还有一个限束光栏,以进一步挡住偏离束流轴心较大的离子。实验过程中需要一个高真空的靶室,真空度一般要求 10<sup>-7</sup>mbar 以上。



图 3-3 真空靶室实物图

#### 3.5 X射线的探测系统及数据的获取

我们采用美国 Amptek 公司生产的 XR-100CR 硅漂移探测器测量高电荷态离子与固体表面作用过程中产生的特征 X 射线谱。



图 3-4 Si 漂移探测器的实物图

图中带有"PX4"字样的部分用于探测器与计算机之间的接口并附带数据采集,控制和分析软件,PX4主要包括包括脉冲整形放大器、多道分析器(MCA)和电源。输入电压通过交流电压转换器进行直流供电(+5V直流),功耗通常为 1. 2W。下面的白色部分是 X 射线探测器,它既可工作在空气中也可工作在真空中,能量分辨率在 5. 9keV 处可达 145eV,最佳的能量范围为 1~40keV,最大计数率高达 2×105cps;探测器的铍窗厚度一般为 0. 5mi1或者 1mi1(25um)。 X 射线光谱由装在计算机上的 ADMCA 软件记录。实验前首先要对探测器进行能量刻度,以便通过能量去辨认各个靶材料的特征谱。本实验采用放射性 55Fe 源作为标准源,因为半导体 Si 探测器的能量响应具有很好的线性关系,所以直接根据 55Fe 的两个特征谱得到 Si 漂移探测器的能量刻度曲线。

#### 3.6 测量方法及误差评估

本实验所用的高电荷态离子由 14.5GHz 电子回旋共振离子源(ECRIS)提供,束流在不同的引出电压下引出,经过聚束器和光栏的聚焦和准直,利用 90°偏转分析磁铁将确定电荷态的离子引入原子物理实验平台,再经过四极透镜和光栏的聚焦准直,进入内部具有电磁屏蔽功能的超高真空(约  $10^{-7}$ mbar)靶室,与靶表面发生相互作用。束斑面积控制在  $6\times6$ mm 范围,,束流强度为 nA 量级,入射束流正入射到靶上,探测器方向与束流方向为 45°,且保持不变,可通过移动靶架是束流与不同的靶发生作用。探测器与靶之间相距 32.5mm,探测器的探头面积为 7mm²。实验中,入射离子与靶原子作用后产生特征 X 射线被 Si 漂移探测器所记录,同时通过接在靶上的束流积分仪得到测量时间 $\Delta T$ 内入射到靶上的

电荷总量。这样可以得到X射线的单离子产额

$$Y = \frac{N_x}{N_p} = \frac{N_x}{Q/eq} \tag{3-9}$$

其中, $N_a$ 和  $N_a$ 分别为 $\triangle T$ 时间内入射离子与靶作用产生的 X 射线数和打在靶上入射离子数,Q是测量时间 $\triangle T$ 内入射到靶上的电荷总量,e和 q 分别为基本电荷量和入射离子的电荷态。但是,在实际计算中,我们采用下面的近似。

$$Y = \frac{N_x}{N_p} = f \cdot \frac{A}{Q/eq} \cdot \frac{4\pi}{\Omega}$$
 (3-10)

其中,A特征谱的面积, $\Omega$  是探测器的立体角,f 是一些修正的综合修正系数,如靶的自吸收,Be 窗的自吸收及高斯拟合修正等。在此式中 Q可由接在靶上的束流积分仪读数作为近似。由此式可以知单离子 X 射线产额的偏差来自于 $\Delta A$ ,  $\Delta Q$ ,  $\Delta \Omega$ , 因为从分析磁铁出来的离子束实际上荷质比相同的离子组成,从而单离子 X 射线产额的偏差还包括 $\Delta Q$ , 也就是

$$\Delta Y = \Delta Y(\Delta A, \Delta Q, \Delta \Omega, \Delta q) = \sqrt{\Delta Y_A^2 + \Delta Y_Q^2 + \Delta Y_\Omega^2 + \Delta Y_q^2}$$
(3-11)

上式中的 $\triangle Y_A$ ,  $\triangle Y_Q$ ,  $\triangle Y_\Omega$ ,  $\triangle Y_q$ 分别是 A, Q, q,  $\Omega$  引起的 Y的绝对误差, $\triangle Y$ 可以根据独立变量下的误差传递公式,即

$$\sigma_f = \left[ \left( \frac{\partial f}{\partial x_1} \right)^2 \sigma^2_{x_1} + \left( \frac{\partial f}{\partial x_2} \right)^2 \sigma^2_{x_2} + \dots + \left( \frac{\partial f}{\partial x_n} \right)^2 \sigma^2_{x_n} \right]^{1/2}$$
 (3-12)

计算。这里, $\sigma_{x_1}$ , $\sigma_{x_2}$ ... $\sigma_{x_n}$ 是 $x_1$ , $x_2$ ... $x_n$ 的标准误差。

假设X射线的发射是各向同性的,且忽略修正系数的影响,采用任意单位,则产额

$$Y = \frac{A}{Q/q} \tag{3-13}$$

如无特殊说明,后面数据处理中的 X 射线产额都是采用此单位。此时 X 射线产额的标准差为

$$\Delta Y = \frac{q}{Q} \cdot \sqrt{A} + \frac{A}{Q/q} \cdot \frac{\Delta Q}{Q} \tag{3-14}$$

式中A误差取作统计误差,Q的相对误差取作5%。

# IV 实验结果与分析

本实验选取了两种离子束流,一种是能量为 1.2MeV, 1.8MeV, 2.4MeV, 3.0MeV 的 40Argular 4.2MeV, 4.4MeV, 3.0MeV 的 40Argular 4.2MeV, 4.4MeV, 4.4

(q=8, 9, 12) 离子,另一种是能量为 50 keV,100 keV,150 keV,200 keV,250 keV,300 keV的质子。靶有金属  $_{13}\text{Al}$ , $_{79}\text{Au}$ ,  $_{42}\text{Mo}$ ,  $_{60}\text{Nd}$ ,  $_{50}\text{Sn}$ ,  $_{74}\text{W}$ ,铁磁材料  $_{28}\text{Ni}$ ,半导体材料  $_{14}\text{Si}$ 。靶的厚度大于最大能量的离子对应的射程,故不存在入射离子穿透靶的情况。

#### 4.1 AI和Si的K-X射线与入射离子种类和动能之间的关系

我们选取了能量为 1. 2MeV,1. 8MeV,2. 4MeV,3. 0MeV 的  $Ar^{12}$ 离子和能量为 50keV,100keV,150keV,200keV,250keV,300keV 的质子与 A1 和 Si 相互作用,产生射线。通过实验数据分析,分析二者之间异同,并用经典过全模型对结果作出了定性解释。

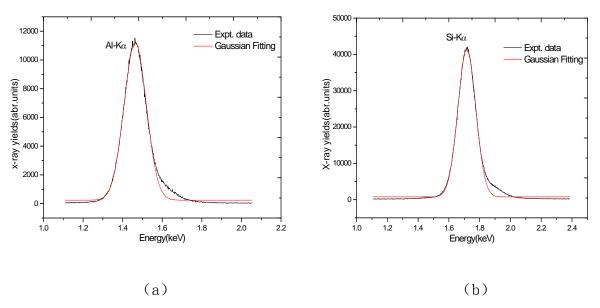


图 4-1 1.8Mev (45keV/u) 的 Ar<sup>12+</sup>轰击 A1(a)和 Si(b)的能谱图

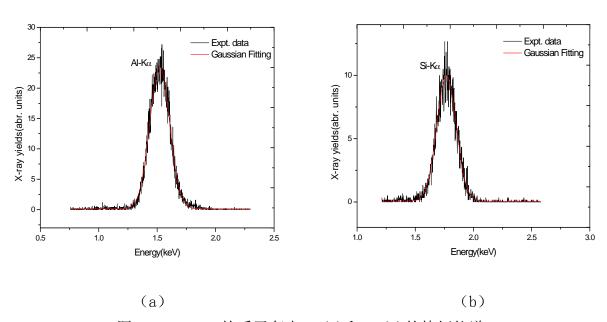


图 4-2 50keV 的质子轰击 A1(a)和 Si(b)的特征能谱

图 4-1 和图 4-2 分别为入射能量为 1.8MeV 和 50keV 的  $Ar^{12+}$ 和质子与 A1 靶和 Si 靶表面作用产生的特征 K-X 射线谱,图中的红线是高斯拟合出的曲线。图 4-3 是  $Ar^{12+}$ 轰击 A1 和 Si 时特征 K-X 射线的产额与入射离子的动能之间的关系,横轴是入射离子单核子的能量,纵轴为任意单位下单离子 X 射线产额(用 3-13 式计算所得)。

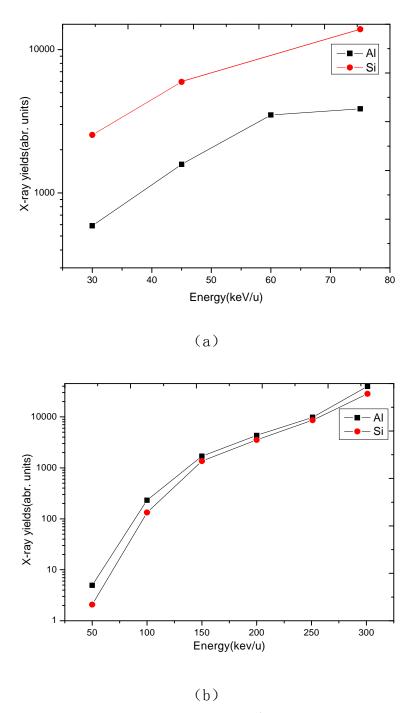


图 4-3 A1 和 Si 的特征 X 射线产额分别随 Ar<sup>12+</sup>(a) 和质子(b) 动能的变化关系

根据图 4-3 可得出一下结论:

(1) 无论是质子还是 Ar<sup>12</sup>离子与 Al 和 Si 相互作用, 靶的 X 射线产额都是随入射动能

的增加而逐渐增大。

(2) 质子轰击 A1 靶和 Si 靶时,A1 的 X 射线产额大于 Si 的 X 射线产额,且二者相差不到 2 倍,但是  $Ar^{12+}$ 轰击 A1 靶和 Si 靶时, Si 的 X 射线产额大于 A1 的 X 射线产额且二者相差 3 倍以上。

现在就结论(1)和(2)分别作出解释: 靶的 X 射线产额随入射离子的动能增加,这是因为在弹靶相互作用过程中,随着入射离子动能的增加,入射离子激发或者电离靶的内壳层电子的概率增加,所以 X 射线产额增加;而且从后面 4.3 节的分析中会知道在此电荷态下, X 射线的发射主要是由于电离损失造成,捕获成分几乎没有。

对于结论(2)可以用经典过垒模型作出定性解释:高电荷态离子与固体靶作用时,当弹靶之间的距离达到临界距离 Rc 时,高电荷态离子开始共振捕获靶的外层电子形成空心原子,但是此时高电荷态离子的速度很快,在它接近靶表面的过程中捕获的电子会很快被剥离;高电荷态离子进入靶表面以后,又通过共振捕获靶原子的次内壳层或者其他内壳层的电子,形成第二代空心原子,此空心原子主要通过自电离,俄歇跃迁或者辐射跃迁等过程退激。因为 A1 是金属,与 Si 相比,Ar<sup>12+</sup>与 A1 作用时更容易且快速的形成空心原子,特别是第二代空心原子的形成将捕获 A1 的 L 壳层的电子,从而使 A1 的 L 壳层的电子数目相对于 Si 的 L 壳层而言要少的多,所以当与 Ar<sup>12+</sup>离子(高电荷态离子)相互作用时,Si 的 K—X 射线产额远远高于 A1 的 K—X 射线产额。因为在质子作为入射离子的情况下,不存在上述现象,A1 的 K 壳层电子的电离能小于 Si 的 K 壳层电子的电离能,所以相同动能的质子轰击 A1 和 Si 时,A1 的 K—X 射线产额稍高于 Si 的 K—X 射线产额。我们只是对实验现象做了初步分析,分析结果的合理性还有待于进一步研究和探讨。由此可得出

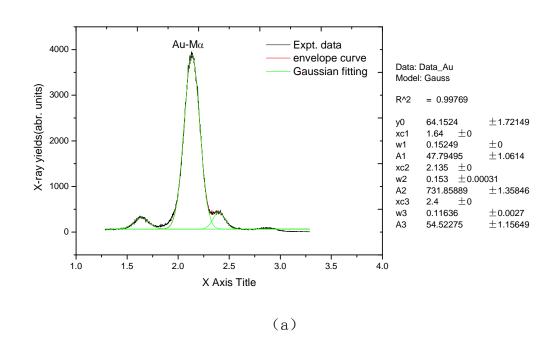
我们认为高电荷态离子与固体表面作用中的势能释放能够促进离子在靶表面的动能 损失,从而造成电离增加,二次粒子产额升高;作用过程中空心原子的形成,特别是第二 代空心原子,可以影响 X 射线的发射几率,这主要却决于入射离子捕获的电子所在的壳层 与辐射跃迁的始末壳层的关系,若捕获的电子在辐射跃迁的始壳层,则 X 射线产额将会减 小,但是若捕获的电子在辐射跃迁的末壳层,则 X 射线的产额将会增大。

# 4.2 靶的X射线与原子序数的关系

不同的弹靶组合,X 射线的产额以及 X 射线的种类都会有所不同,而靶的性质(如核电荷数 Z、靶原子的核外电子结构、导电性和绝缘性等)是一个很重要的影响因素。为分析 X 射线的种类与靶材料的关系,我们选取了动能为 1.8 MeV 的  $Ar^{12+}$ 入射 A1, Si, Ni, Mo, Sn, Nd, W, Au 表面,通过测量靶的特征能谱,系统分析了  $Ar^{12+}$ 入射不同的靶材料时,X 射线的种类与靶材料原子序数 Z 之间的关系。

图 4-4 是 1.8MeV 的 Ar<sup>12+</sup>轰击 Au 和 Mo 表面时的特征能谱。(a) 图是 Au 的实测能谱,

图中最高的峰为  $Au-M\alpha$  峰,分布在它两侧的侍从峰为背景峰;(b)图是 Mo 的实测能谱,图中的三个峰分别为  $Mo-L\alpha$ , $Mo-L\beta$  峰和  $Ar-K\alpha$  峰。各峰的峰位,峰面积和半高宽可从拟合数据中读出。



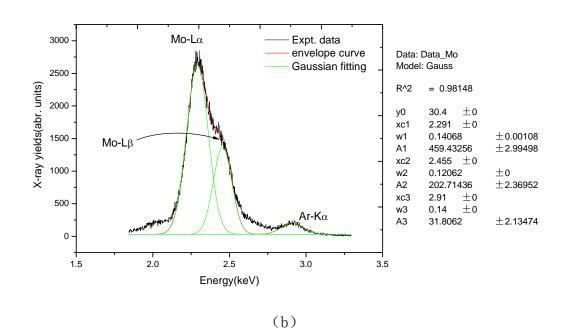


图 4-4 1.8MeV 的 Ar<sup>12+</sup>与 Au(a)和 Mo(b)相互作用时的特征谱

元素/能量	t(MeV)	1. 2	1.8	2. 4	3	X-ray 谱系
A1	13	598. 338	1547. 168	3501. 106	3867. 865	K — X
Si	14	2561. 518	5987. 272		13877. 632	K A
Ni	28	23. 702	34. 028	150. 254	62. 955	
Мо	42	221. 998	622. 623	773. 243	1530. 303	L-X
Sn	50	30. 365	79. 038	290. 135	271. 467	
Nd	60	88. 721	152. 861	687. 004	212. 948	
W	74	124. 206	442. 313	741. 096	1388. 674	M-X
Au	79	220. 553	731.859	1395. 066	1803. 806	

表 4-1 靶的 X 射线产额

根据表 可以得出:相同能量的同一入射离子与不同的靶相互作用时,对于原子序数较小,原子质量较轻的靶,只有其 K 层电子被激发和电离而产生 X 射线;对于中等原子序数和原子质量的靶,只有其 L 壳层的电子可以被激发和电离而产生 X 射线;对于原子序数较大,原子质量较重的靶,只有其 M 层的电子可以被激发和电离而产生 X 射线。根据本次实验数据并结合其他弹靶组合的数据处理结果,给出如下结论:

在能量不是很大的高电荷态离子作为入射离子的情况下,元素周期表中第 2,3 周期的元素固体靶,入射离子主要激发和电离靶的 K 壳层的电子而发射 X 射线;第 4,5 周期的元素固体靶,入射离子主要激发和电离靶的 L 壳层的电子而发射 X 射线;第 6 周期的元素固体靶,入射离子则主要激发和电离靶的 M 壳层的电子而发射 X 射线。这是因为随着原子序数的增大,原子核对核外电子的束缚力逐渐增强,并且从一个壳层过渡到另一个壳层时,电子的电离能会突然变得非常大,呈现台阶状(如图 4-5,4-6 所示),要打出其内壳层的电子需要更大的能量。因此,当某一能量的入射离子刚好打出靶某一壳层的电子而产生 X 射线,若要打出再靠内的壳层电子需要增加很大的能量 $\triangle$ E 才能将电子打出产生 X 射线,并且根据图 4-5 和 4-6 可以看出,随着原子序数的增大和主量子数 n 的减小, $\triangle$ E 也就愈大, $\triangle$ E 愈大表明打出 Z大 n 小的靶的内壳层电子的能量愈高。

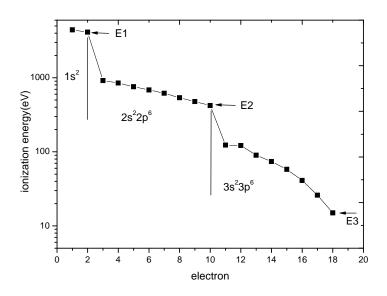


图 4-5 <sub>18</sub>Ar 的核外电子的电离能(理想情况下,若选取 Ar 作为靶,只有入射离子的能量大于 E1, E2, E3 时才有可能将相应轨道的电子激发或者电离)

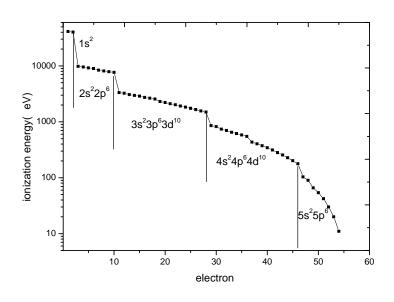


图 4-6 54Xe 的核外电子的电离能

# 4.3 X射线产额与入射离子电荷态的关系

在 2.2 节中已经指出高电荷态离子与固体表面相互作用过程中发射的 X 射线主要是通过电离和捕获过程来完成的。通常情况下,在低速区( $V_p << V_{Bohr}$ ),捕获过程是主要的,而电离作用可以忽略,可以用经典过垒模型解释;在高速区( $V_p >> V_{Bohr}$ ),电离过程是主要的,捕获作用可以忽略,微扰理论和独立电子近似可以帮助我们理解理解电离机制;在中速区

(V<sub>p</sub>~V<sub>Bohr</sub>), 电离和捕获作用相当。

图 4-7(a) 和 (b) 分别是 1. 2MeV 和 1. 8MeV 的  $Ar^{q+}$  (q=8, 9, 12) 与 A1, Au, Mo, Si, W 相互作用过程中靶的 X 射线随入射离子电荷态 q 的变化关系图。

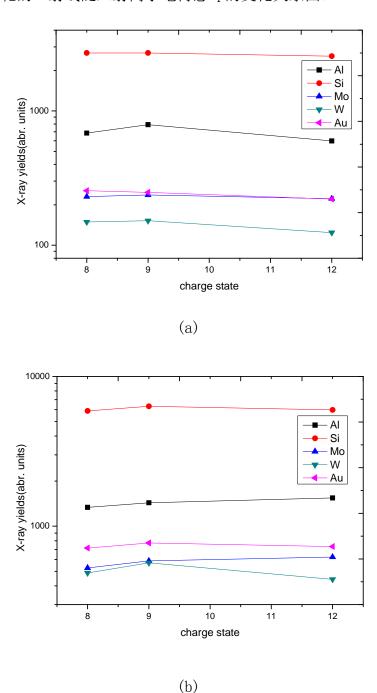


图 4-7 X 射线产额与电荷态 q 之间的关系

根据图 4-7 我们没有发现 X 射线对电荷态 q 有很明显的依赖的关系。我们可以利用莫塞莱方法和 Slater 计算屏蔽常数的经验公式对这一现象作出解释。根据莫塞莱公式(2-2),可知原子的某一个电子的电离能

$$I \approx \Phi = Ry \cdot (Z - \sigma)^2 \cdot \frac{1}{n^2}$$

屏蔽常数可以根据 Slater 方法计算: 对于 Al 和 Si 的 K 壳层电子,  $\sigma$  =0.3,而对于 Mo 的 L 壳层的电子,  $\sigma$  =4.15,对于 W 和 Au 的 M 壳层的电子, s 和 p 支壳层上的电子,  $\sigma$  sp =8.8,对于 d 支壳层上的电子,  $\sigma$   $\sigma$  =21.15,由此可计算出 Al,Si 的 K 壳层电子的平均电离能分别为  $I_{\kappa}(A1)$  =2.194keV,  $I_{\kappa}(Si)$  =2.553keV,Mo 的 L 壳层的电子的平均电离能  $I_{\iota}(Mo)$  =4.871keV , W 和 Au 的 M 壳 层 电 子 的 平 均 电 离 能 分 别 为  $I_{sp}(W)$  =6.424keV, $I_{\sigma}(W)$  =4.221, $I_{sp}(Au)$  =7.447keV, $I_{\sigma}(Au)$  =5.057keV。根据图 4-5 可以看出,Ar  $^{8+}$ ,Ar  $^{9+}$ 和 Ar  $^{12+}$ 对应的最后一个电子的电离能都小于 1keV,也就是说 Ar  $^{q+}$  (q=8,9,12)不可能通过捕获 Al ,Si,Mo,W 和 Au 的 K,L 和 M 壳层的电子而发射 X 射线,X 射线的发射主要由电离过程产生。这是 X 射线产额与电荷态 q 之间没有明显依赖关系的主要原因。

虽然 X 射线的产额随电荷态 q 的变化不明显,但是这并不意味着 q 在高电荷态离子与物质相互作用过程中不起作用或者影响不大。上面所说的在不同的能区,捕获和电离都是指对整个原子的所有电子而言,而 X 射线产额却主要反映了捕获和电离对原子内壳层电子的作用。

# V 总结与展望

高电荷态离子与固体作用已然是一个热点研究领域之一。对作用过程中 X 射线的研究不但有助于我们更深入的理解其作用机制,而且在材料改性等领域有着很广阔的应用前景。本文主要研究了高电荷态离子与固体表面作用过程中 X 射线的产额与靶,入射离子能量和电荷态之间的关系。

# 5.1 本文的主要结论

本文主要用能量为 1. 2MeV, 1. 8MeV, 2. 4MeV, 3. 0MeV 的  $^{40}$ Ar $^{9+}$  (q=8, 9, 12) 离子,和能量为 50keV,100keV,150keV,200keV,250keV,300keV 的质子轰击金属  $_{13}$ A1, $_{79}$ Au, $_{42}$ Mo, $_{60}$ Nd, $_{50}$ Sn, $_{74}$ W,铁磁材料  $_{28}$ Ni,半导体材料  $_{14}$ Si。

研究发现,当质子和 Ar<sup>12+</sup>入射 A1 和 Si 表面时,A1 和 Si 的 X 射线产额随入射离子的能量而增加,但是在质子轰击下,A1 的 X 射线产额要大于 Si 的 X 射线产额,且二者相差不大,而在 Ar<sup>12+</sup>离子轰击下,Si 的 X 射线产额大于 A1 的 X 射线产额,且二者相差较大。我们用经典过垒模型对结果作出了初步解释,原因在于 A1 是金属,在高电荷态离子与其相互作用时更容易且快速的形成空心原子,特别是第二代空心原子的形成使 A1 的 L 壳层

的电子数减少而造成 A1 的 K-X 射线产额低于 Si 的 K-X 射线产额。

为研究 X 射线产额与靶材料的关系,我们研究了 1.8MeV 的 Ar<sup>12\*</sup>作用在不同的靶上发射的 X 射线产额,结果表明:对于核电荷数较小,原子质量较轻的靶,入射离子主要电离或者激发其 K 壳层电子发射 K—X 射线;对于中等质量的靶,入射离子主要电离或者激发靶的 L 壳层的电子而发射 L—X 射线线;对于重靶则主要发射 M—X 射线。据此,我们将元素周期表中的元素进行了简单的分类: 2,3 周期的元素靶与高电荷态离子作用时主要产生 K—X 射线,4,5 周期的元素靶主要产生 L—X 射线,而 6 周期则主要产生 M—X 射线。另外,我们还研究了 X 射线产额与电荷态 q 之间的关系,研究结果没有发现 X 射线产额与电荷态 q 之间有强烈的依赖关系。

#### 5.2 展望

本文对实验结果只作出了定性解释,而没有给出理论上的合理计算与分析,并且一些解释还只是初步的,在理论计算方面尚需进一步分析探讨。这是本论文的最大不足之处。 另外, 因为选取的电荷态比较少,没有发现 X 射线产额与电荷态 q 之间的依赖关系。若要研究两者之间的关系,可以增加逐渐增加电荷态 q,并且选取不同是入射离子和靶进一步进行相关实验研究。

如果能够进一步提高束流的稳定性,且能够更准确的测量入射在上的离子数或者电流(电荷),这将使实验结果更准确可靠。探测器的能量分辨率还需进一步提高,以区分能量相近的特征能谱,并且关于 X 射线产额的理论计算尚需改进(如要考虑自吸收, X 射线发射的各向异性,激发函数及电荷态的变化等),使 X 射线的产额计算更接近真实值。因为 X 射线的产额对高电荷态离子的电荷态不灵敏,所以若要研究电荷态 q 在离子与物质相互作用中的影响,最好测量二次电子或者离子产额与电荷态 q 之间的关系。

# 5.3 可开展的后续工作

本次实验的数据还有待更深入的分析和研究, Ar<sup>c+</sup>与多个靶作用时都产生了 Ar 的 Kα -X 射线, 可以以此为出发点展开深层次的研究; 扩展高电荷态离子产生的 X 射线在相关学科和领域中的应用。相信经过不懈努力和持续奋斗, 我们实验组在高电荷态离子物理方面会有更高的突破!

# 致谢

非常感谢我的导师赵永涛研究员。本论文的完成离不开他的悉心指导。在近物所做毕设的两个多月的时间,他教我如何从众多的数据中挖掘"可研究点",教我如何写出一篇高质量的文章;他能迅速找到解决问题的方法,足见其渊博的知识,敏锐的洞察力,严谨的科学工作态度;他工作认真,平易近人,在学习和生活上都给予了我很大的帮助和关心,这些都给我留下了深刻的印象!

感谢我的辅导员吴海英老师,系主任杨朝文教授,任课老师敬克兴教授、吴丽萍副教授、梁勇飞老师、罗怿老师、李永青老师、林方老师等,感谢他们对我学习和生活上的指导和关心。他们不断学习的精神,一丝不苟的工作态度都深深的鼓舞着我,使我受益一生!

感谢我的师兄王兴、徐戈、程瑞、周贤明、孙渊博,师姐王瑜玉、雷瑜。感谢他们对 我学习和生活上的帮助和关心。特别是师兄王兴和徐戈,他两个人在论文的数据处理和结 果分析等方面提供了许多建设性的建议,与他们的讨论也使我学到了许多!

感谢我的同班同学徐洁皓、周晟,杨金龙、汪文聪、林炜平、陈冲、郭翔博、朱沛文等。感谢我的朋友郝明月、张焕学、冯英铭、田相远、张加君等。感谢他们同我一起分担我的乐与忧,从他们身上我学到了很多,使我能够有个健康的心态去学习和生活!

把我最挚诚的感谢送给我的父母,他们让我自己去选择自己喜欢做的事,做自己应该做的事!将我最挚诚的感谢再送给我的哥哥,姐姐,妹妹,他们的无私和"放弃"成就了现在的我,特别是我的妹妹,非常感谢她提供我从高中到大学的所有学费和生活费!谢谢他们对我的全力支持和无微不至的关怀!!! 祝他们身体健康,一生快乐!!!

本文所引文献资料的编、著者在此一并表示感谢!

# 参考文献

- [1] 赵永涛、肖国青等. 高电荷态离子 40Ar<sup>4+</sup>与 Si 表面作用中的电子发射. 物理学报, 2007. **56**: 5734-05
- [2] J. I. Juaristi et al., Charge State Dependence of the Energy Loss of Slow Ions in Mrtals, Phys. Rev. Lett., 1999. 82:1048-04

- [3] 李耀宗等. 用屏蔽法计算较轻元素原子的高次电离能. 原子分子物理学报, 2010. **27**:1-18
- [4] 王立等. 高电荷态离子入射 A1 表面库仑势对靶原子特征谱线强度的影响. 物理学报, 2008. **57**:137-06
- [5] H. D. Hagstrum, Theory of Auger Ejections from Metals by Ions, Phys. Rev. B, 1954. **56**:336-365
- [6] Delaunay M. et al., Electron Emission from a Metal surface Bombarded by Slow Highly Charged Ions. Phys. Rev. B, 1987. 35:4232
- [7] J. Burgdörfer et al., Above-surface neutralization of highly charged ions The classical over-the-barrier model. Phys. Rev. A, 1991. 44:5674
- [8] E. P. Arilis, Radiation effects under multiply charged ions impacts, Nucl. Instrum. Meth. B, 1996. 116:478
- [9] F. Aumayr and H. Winter, Slow Highly Charged Ions—A New Tool for Surface Nanostructuring, e-J. Surf. Sci. Nanotech., 2003. 1:171—174
- [10] T. Schenkel et al., Ablation of GaAs by intense, Ultrafast Electronic Excitation from Highly Charged Ions, Phys. Rev. Lett., 1998. 81:2590-2593
- [11] T. Schenkel et al., Interaction of slow, very highly charged ions with surfaces, Progress in Surface Science, 1997. **61**:23—84
- [12] G. Xiao et al. Indications of Nuclear-Track-Guided Electrons Induced by Fast Heavy Ions in Insulators, Phys. Rev. Lett., 1997. 79:1821
- [13] D. Niemann et al., Plasmon excitation by multiply charged Ne<sup>q+</sup> ions interaction with an Al surface, Phys. Rev. Lett., 1998. **80**:3328
- [14] T. Schenkel et al., Interaction of slow very highly charged ions with surfaces, Prog. Surf. Sci., 1999. 61:23
- [15] J. D. Gillaspy et al., Masked ion beam lithography with highly charged ions, J Vac. Sci. Technol. B, 1998.16:3294
- [16] 彭海波、王铁山等. 高电荷态离子与 Si (110) 晶面碰撞的沟道效应研究. 物理学报, 2008. 57:2161-04
- [17] J.I.Juaristi et al., Charge State Dependence of the Energy Loss of Slow Ions in Metals, Phys. Rev. Lett., 1999. 82:1048-04
- [18] 杨治虎、张艳萍等. 高电荷态离子与表面相互作用的研究. 原子与分子物理学报, 2003. **20**:451-05
- [19] 张小安,肖国青等.高电荷态离子与固体相互作用.原子核物理评论,2002.19:342

-05

- [20] Aumayr and Hannspeter Winter, Potential sputtering, Phil. Trans. R Soc. lond A, 2004. 362:77—102
- [21] Aumayr, F. Kurz et al., Emission of electrons from a clean gold surface-induced by slow, very highly charged ions at the image charge acceleration limit, Phys. Rev. Lett., 1993. 71:1943—1946
- [22] Winter et al., Image acceleration of highly charged Xenon ions in front of a metal-surface, Phys. Rev. Lett., 1993. 71:1939—1942
- [23] Meyer et al., Projectile image acceleration, neutralization and electron-emission during grazing interactions of mult-charged ions with Au(110), Nucl. Instrum. Meth. B, 1995. 98:441—444
- [24] 杨福家. 原子物理学. 第二版. 北京市: 高等教育出版社, 2001. 7:55
- [25] 张泊丽等. 20-50MeV 0<sup>5+</sup>离子引起 Au 的 L 壳层的 X 射线产生截面研究. 物理学报, 2009. **58**:6113-04
- [26] J. Miranda et al., X-ray production induced by heavy ion impact: challenges and possible uses, Revista Mexicana DE FíSICA, 2007. s53:29-32
- [27] D. Mitra, A. C. Mandal et al., M X-ray production cross-section of gold and lead by 4to 12MeV Carbon ions, Nucl. Instrum. Meth. B, 2001. 183:171-177
- [28] S. Ouziane, A. Amokrane et al., Experimental measurements of X-ray production cross-sections by protons of energies between 1 and 2.3MeV and comparison with theoretical predictions of PWBA and ECPSSR models, Nucl. Instrum. Meth. B, 2000. 161-163:141-144
- [29] Yeshpal Singh et al., M-shell X-ray production cross-section of Bi induced by highly charged F ions, Nucl. Instrum. Meth. B, 2005. 205:794-798
- [30] H. Zhang, X. Chen et al., Molybdenum L-shell X-ray production by 350-600keV  $Xe^{q+}(q=25-30)$  ions, Nucl. Instrum. Meth. B, 2010. **268**:1564-1567
- [31] Yongtao Zhao et al., X-ray emission of hollow atoms formed by highly charged argon and xenon ions below a beryllium surface, Nucl. Instrum. Meth. B, 2007. 258:121-124
- [32] 张小安等. <sup>129</sup>Xe<sup>4</sup>入射金属表面激发的 X 射线谱. 中国科学 G 辑, 2007. **37**:464-471
- [33] 杨治虎等. Ar<sup>16</sup>和 Ar<sup>17</sup>离子与 Zr 作用产生的 X 射线谱. 物理学报, 2008. **57**:803-05

- [34] 李耀宗等. 高电荷态离子 129 Xe<sup>29+</sup>与不同金属表面作用产生的 X 射线谱. 原子与分子物理学报, 2009. **26**:777-06
- [35] 梁昌慧等. 高电荷态离子 <sup>129</sup>Xe<sup>28+</sup>与 Au 和 Mo 表面作用产生的 X 射线谱. 原子核物理 评论, 2007. **24**:214-04
- [36] M. W. Clark et al., Xe L and M X-ray emission following  $Xe^{44-48+}$  ion impact on Cu surfaces, Phys. Rev. A, 1993. 47:3983-15
- [37] 杨福家. 原子物理学. 第二版. 北京市: 高等教育出版社, 2001. 7:257-264