

高电荷态离子 Ar^{q+} 与不同金属靶作用产生的 X 射线*

杨治虎^{1)†} 宋张勇¹⁾ 陈熙萌²⁾ 张小安³⁾ 张艳萍¹⁾ 赵永涛¹⁾
崔莹²⁾ 张红强²⁾ 徐徐²⁾ 邵健雄²⁾ 于得洋¹⁾ 蔡晓红¹⁾

1) 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

2) 兰州大学现代物理系, 兰州 730000)

3) 咸阳师范学院物理系, 咸阳 712000)

(2005 年 10 月 14 日收到, 2005 年 11 月 15 日收到修改稿)

研究了高电荷态离子 Ar^{q+} ($q = 16, 17, 18$) 入射金属 Be, Al, Ni, Mo, Au 靶表面产生的 X 射线谱. 实验结果表明, Ar 的 $K\alpha$ -X 射线是离子在与固体表面相互作用过程中固体表面之下形成空心原子发射的. 电子组态 $1s^2$ 的高电荷态 Ar^{16+} 离子在金属表面中性化过程中, 存在的多电子激发过程使 Ar^{16+} 的 K 壳层电子激发产生空穴, 级联退激发射 Ar 的 $K\alpha$ 特征 X 射线. Ar^{17+} 离子在金属表面作用过程中产生的 X 射线谱形与靶材料没有明显的关联, 入射离子的 $K\alpha$ -X 射线产额与其最初的电子组态有关. 靶原子的 X 射线产额与入射离子的动能有关.

关键词: 高电荷态离子, 空心原子, 多电子激发, X 射线

PACC: 3450D, 3220R, 3270J

1. 引言

低能高电荷态离子与固体表面相互作用的实验研究, 有助于了解高电荷态离子接近表面和进入固体中离子中性化过程的动力学机理. 高电荷态离子与固体表面作用过程中, 势能的沉积和 X 射线发射特别适合势能转移到表面的不同相互作用过程的研究. 核外大部分电子轨道处于空置状态的低能高电荷离子, 在与金属表面作用过程中, 当运动至临界距离 $R_c \approx \sqrt{2q/W}$ (a. u.) 时, 入射离子与金属表面间的势垒高度低于费米面, 金属导带中大量的电子会共振转移到入射离子的主量子数 $n \approx q/\sqrt{W}$ 高激发空态上, 形成空心原子 (hollow atom), 例如, Ar^{18+} 入射金表面, $R_c = 33$ a. u., $n = 20$; U^{92+} 入射金表面, $R_c = 65$ a. u., $n = 100$. 空心原子是复杂的多激发态原子, 其内壳层大多数为空穴, 电子处在准定态的高 Rydberg 态, 通过自电离和 Auger 退激发射大量电子, 通过级联 (cascade) 退激发射 X 射线. 在空心原子进入表面过程中, 表面将其俘获的部分电子剥离又

形成离子, 离子到达下表面, 金属中导带电子使离子快速中性化, 形成下表面的空心原子, 即所谓的第二代空心原子 (secondary hollow atom), 它会退激发射快速电子和 X 射线^[1-3]. 同时, 受入射离子的强库仑场和势能表层沉积作用, 靶表层原子会被大量激发, 电离和溅射, 发射电子和 X 射线. 因此, 空心原子的内壳层空穴提供了研究级联退激和能量转移过程的时间窗口, 特别是 X 射线的能量位置提供了离子与表面相互作用过程以及靶材料的重要信息. 高电荷态离子与表面相互作用过程中, 入射离子的电子组态、靶材料的脱出功支配着电子从固体表面转移进入离子能级的主量子数, 入射离子的速度、辐射衰变速率决定着离子在中性化过程中电子在不同量子态数目分布和时间演化进程.

高电荷态离子与固体表面相互作用过程中, 在飞秒时间内将携带的几十到几百 keV 能量沉积在固体表面纳米尺度空间, 使入射离子和靶原子激发和电离. 这种过程存在着单电子激发、双电子激发和多电子激发^[4]. 目前, 对高电荷态离子与固体表面相互作用发射的 X 射线的研究在材料微结构分析与修

* 国家自然科学基金 (批准号: 10274088, 10375080, 10574132) 科技部重大基础研究前期研究专项基金 (批准号: 2002CCA00900), 等离子体物理国家级科技重点实验室基金 (批准号: 51480020104ZK5101) 资助的课题.

† E-mail: z. yang@impcas.ac.cn

正、微型 X 射线源和 X 射线激光材料等方面具有重要意义。

实验在兰州重离子加速器国家实验室电子回旋共振离子源 (the electron cyclotron resonance ion source, ECRIS) 上完成. 实验利用 150—400 keV 范围的不同能量高电荷态 Ar^{q+} ($q = 16, 17, 18$) 离子轰击 Be, Al, Ni, Mo, Au 固体表面产生的 X 射线, 结合 Ar^{2+} , Xe^{26+} 和 U^{62+} 等离子体的电子组态没有 M 空穴而产生的 $M\alpha$ -X 射线机理^[5,6], 对没有 K 空穴的 Ar^{16+} 的 $K\alpha$ -X 射线的产生机理、入射离子的电子组态与 X 射线产额的关系、相互作用过程中靶原子的 X 射线产额与入射离子动能的关系作了分析. 分析认为 Ar^{16+} 离子与固体表面作用, Ar 的 $K\alpha$ -X 射线发射可能存在着多电子激发过程. Ar^{17+} 离子与固体表面作用过程中, 产生的 Ar 的 $K\alpha$ -X 射线谱形与靶材料无明显的关联.

2. 实验装置和测量方法

图 1 是实验装置的示意图, 可参考文献 [7]. 高电荷态离子 Ar^{q+} 由 ECRIS 产生, 束流在不同的引出电压下引出, 经 90° 偏转磁铁分析, 经过四极透镜和光栏的聚焦准直, 离子进入具有电磁屏蔽功能的超高真空 (约 10^{-5} mPa) 靶室, 与靶表面作用.

在本实验中, 束流的束斑可控制在 $2\text{mm} \times 2\text{mm}$ 范围内, 束流强度为 enA 量级, 离子以 45° 方向入射于经表面净化处理的化学纯度为 99.9% 的不同金属表面, 其表面积为 $19\text{mm} \times 24\text{mm}$, 厚度为 0.1mm.

入射离子与固体表面相互作用所产生的 X 射线谱利用 Si(Li) 探测器进行观测. 实验前利用放射源 ^{241}Am 和 ^{55}Fe 对探测器进行了刻度, 其能量探测范围为 1—60keV. Fe^{55} 源能量为 5.89keV 时, 能量分辨为 0.16keV, 相对探测效率为 93%. 本实验中, 探测器与入射束流方向成 45° 角, 与靶表面垂直; 探测器与靶室之间用 0.05mm 的 Be 窗分开, 以保持靶室始终处于高真空. 实验中, 当 X 射线能量为 3keV 时, Be 窗的透射率约为 83%. 探测器直径为 10mm, 距靶点 80mm, 实验测量时间选为 5400s 和 4000s.

3. 实验结果与讨论

3.1. Ar^{16+} 入射 Be, Al, Ni, Mo, Au 表面产生的 X 射线谱

图 2(a)(b)(c)(d)(e) 分别为 300keV 和

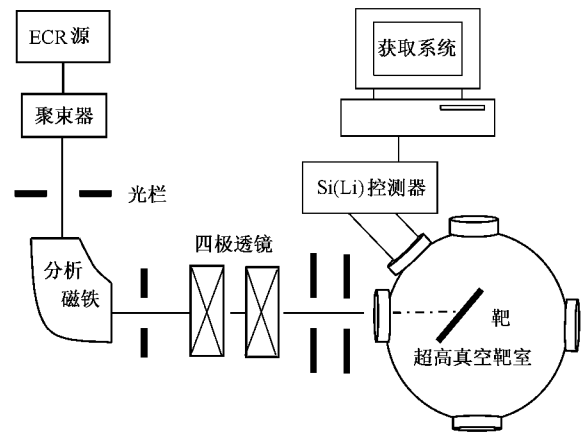


图 1 实验测量示意图

350keV 能量的高电荷态离子 Ar^{16+} 入射 Be, Al, Ni, Mo, Au 表面过程中产生的 X 射线谱的典型实验测量图. 图 2(b), (c), (d), (e) 明显存在 X 射线双峰结构, 即 Ar 的 $K\alpha$ -X 射线和靶原子的 X 射线, 只有 (a) 呈现单峰. (a) 呈现单峰, 这是由于 Be 靶的 $K\alpha$ -X 射线能量是 0.108 keV, 在探测器能量范围的最低段, 加上稍高的本底, 实验探测不到明显的 Be 靶的 $K\alpha$ -X 射线.

X 射线谱中 Ar 的 $K\alpha$ -X 射线, 即 $2p \rightarrow 1s$ 的偶极跃迁. 实验中高电荷 Ar^{16+} 离子与固体靶作用, 不可能存在直接激发 K 壳层电子, 按照原子结构理论, Ar^{16+} 的电子组态为 $1s^2$, 没有 K 壳层空穴, 俘获的电子退激只能填充 L, M 等有空穴的壳层, 似乎不会产生 $K\alpha$ -X 射线. 实际上, 根据经典过垒模型, 当低速高电荷态离子入射金属表面过程中, 离子与表面的距离达到临界距离^[1]

$$R_c = \frac{1}{2W} \sqrt{8q + 2} \quad (1)$$

时, 开始俘获金属导带电子, 俘获的电子进入离子与导带匹配的能级 n_c , 即

$$n_c \approx \frac{q}{\sqrt{2W}} \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{q - 0.5}{\sqrt{8q}}}}, \quad (2)$$

n_c 一般很大. 以 Au 为例, 由 (1) 式可得出 Ar^{16+} 第一次俘获电子的临界距离 $R_c \approx 30$ a.u., 按照离子的动能 300 keV 计算, 离子的速度 v 为 3.6×10^7 m/s, 离子在靶的上表面经历的时间为

$$t = \frac{R_c}{v}. \quad (3)$$

由 (3) 式计算 $t = 4.42 \times 10^{-17}$ s, 而 Ar 原子的 K, L, M

的能级寿命为 $(6 \pm 2) \times 10^{-16} \text{ s}^{[8]}$, 因此, 在上表面形成的空心原子的高激发态电子没有时间退激到 K, L 壳层的机会, Ar 的 $K\alpha$ -X 射线是离子进入表面后形成的第二代空心原子发射的. 我们认为, 在离子进入表面过程中, 俘获电子后形成空心原子过程中释放势能, 加之入射离子的动量转移使靶中产生快速电子, 多个快速电子共同作用使入射离子 Ar^{16+} 的一个 K 壳层电子激发, 形成空穴, 布居 L 壳层的电子填充 K 壳层的空穴, 发射 $K\alpha$ -X 射线. 本实验中, Ar 原子的 $K\alpha$ -X 射线的能量为 2.956 keV. 根据 Moseley 公式

$$E_{K\alpha} = hR_c(Z-1)^2 \left(\frac{1}{1^2} - \frac{1}{2^2} \right) \approx \frac{3}{4} \times 13.6 \times (Z-1)^2, \quad (4)$$

计算出 Ar 原子的 $K\alpha$ -X 射线的能量为 $E_{K\alpha} = 2.9478 \text{ keV}$, 与本实验的 2.956 keV 比较, 实验值与理论值符合得较好. 对于不同的金属靶, Ar 的 $K\alpha$ -X 射线产额与金属的功函数 W 有关. 从实验测量图 2 中可以看出, 当入射离子动能增加时, Ar 原子的 X 射线的产额有下降的趋势(半高宽和峰计数减小). 分析认为, 这可能是由于入射离子的动能增加, 即速度增加, 则相互作用的时间减小, X 射线的产额减小.

在高电荷态离子与固体表面相互作用过程中, 有两种可能性. 一种是携带大量势能的高电荷态离子能量沉积于靶表面, 使靶原子电子被激发或电离, 形成原子或离子壳层的空穴. 另一种是发生共振电子转移和发射大量电子, 靶原子失去电子, 特别是失去内壳层电子形成空穴. 这两种可能性都会存在电子填充这些空穴时发射 X 射线. 在本实验的图 2 中, Ar^{16+} 离子与 Al, Mo, Au 作用过程中形成 Al 的 K 壳层空穴、 Mo 的 L 壳层空穴和 Au 的 M 壳层空穴, 电子填充 Al 的 K 壳层空穴、 Mo 的 L 壳层空穴和 Au 的 M 壳层空穴发射 $Al K\alpha, Mo L\alpha$ 和 $Au M\alpha$ -X 射线, 发射 X 射线产额随入射离子的动能增加而增强. 我们认为, 在 Ar^{16+} 离子与与这些金属靶相互作用过程中, 随着入射离子动能的增加, 入射离子激发靶原子内壳层电子的概率增加, X 射线的产额增加. 图 3 给出了 Mo 和 Au 靶原子的 X 射线的产额与入射离子动能的典型变化关系. 从图可以看出靶原子的 X 射线的产额随着入射离子的动能的增加而增加, 而且增加趋势明显. 入射离子的电荷态和能量相同的条件下, 在相互作用过程中, 对于核电荷数较小、原子质量较轻的靶原子能够激发内壳层的电子而产生 X 射线, 而核电荷

数较大的靶原子只能激发较外壳层的电子而产生 X 射线, 如图 2 中的 (b) (d) (e), 即 $Al (Z=13)$ 为 K 壳层, $Mo (Z=42)$ 为 L 壳层, $Au (Z=79)$ 为 M 壳层. 这是因为对于核电荷数较大、原子质量较重的原子激发深层的电子需要更高的能量. 图 2 (c) 中 1.715 keV 峰, 它不是 Ar^{16+} 离子和 Ni 作用而产生 Ni 的 X 射线, 但又服从本实验中 Ar^{16+} 离子与 Al, Mo, Au 作用过程中, 靶原子的 X 射线产额随入射离子能量增加而增强, 而 Ar 的 $K\alpha$ -X 射线发射产额下降趋势的结果. 1.715 keV 峰的能量接近 Si 的 $K\alpha$ -X 射线能量 (1.739 keV), 经分析, 是否是有可能 Ni 靶, 含 Si 的成分, 或其他因素, 有待于进一步的实验研究.

3.2. Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 入射 Be, Al, Ni, Mo, Au 表面的 X 射线谱

在这个实验中, 我们分别测量不同入射能量的 Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 离子与 Be, Al, Ni, Mo, Au 表面作用产生的 X 射线, 实验发现 Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 离子与这些靶表面作用产生的 X 射线谱形与靶材料无关, 在本实验测量的能量范围, 没有出现能移现象. 图 4 和图 5 分别给出了动能为 272 keV 的 Ar^{17+} 和动能为 450 keV 的 Ar^{18+} 入射 Mo 表面产生的 X 射线谱.

根据 (3) 式, 离子在上表面经历的时间在 10^{-17} s 量级, 离子只能在下表面俘获金属导带电子形成多激发态的空心原子, 电子填充内壳层发射 X 射线. Ar^{17+} 的电子组态为 $1s^1$, K 壳层有空穴, 俘获在 L 壳层的电子填充空穴, 发射 Ar 的 $K\alpha$ -X 射线. 由于 Ar^{17+} 的 K 壳层有 1 个空穴, Ar^{18+} 的 K 壳层有 2 个空穴, 所以 Ar 的 $K\alpha$ -X 射线产额非常高, 在图 4 和图 5 中的 X 射线测量过程中, 束流强度较小, Ar^{17+} 流强为 0.24 enA, Ar^{18+} 的流强为 0.18 enA. 稍大流强, 就会引起探测器因计数率过高而发生探测器阻塞, 出现峰位堆积, 这是由于 Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 离子与 Be, Al, Ni, Mo, Au 作用过程中, Ar 的 $K\alpha$ -X 射线产额非常高的原因. 靶原子的 X 射线产额比 Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 离子与靶作用形成空心原子发射 X 射线产额低得多, 在测量时间内无法探测到, 当然, 只要延长足够的测量时间, 是有可能测量出靶原子的 X 射线.

根据本次实验和测量条件, 假定 X 射线发射是各向同性的, 由此可以给出 Ar^{q+} 作用于靶表面的单离子 X 射线产额^[9]

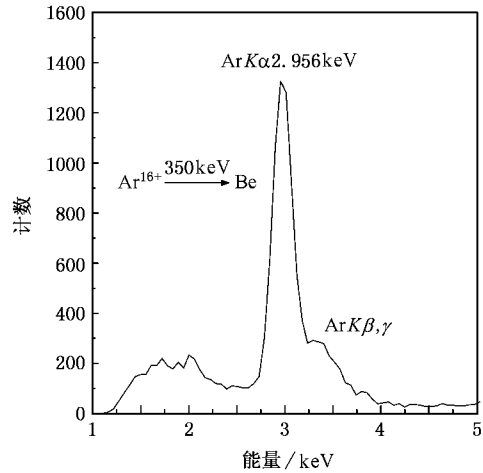
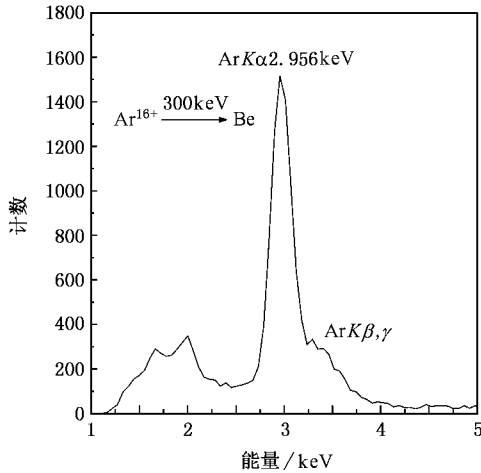
$$Y = \frac{C}{N} = 2.7 \times 10^{-6} \times \frac{q \times w \times A}{I_{\text{beam}} \times \Delta t}, \quad (5)$$

这里, C 为总计数, N 为总粒子数, q 是入射离子的

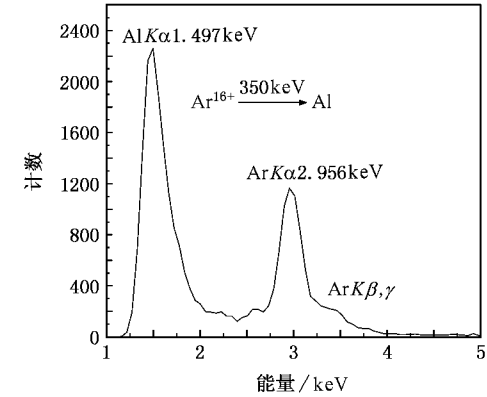
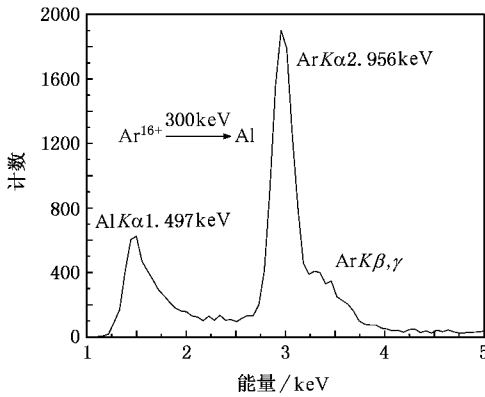
电荷态 μ (单位 keV) 和 A 分别是半高宽度和峰总计数, I_{beam} 是靶电流强度 (单位是 nA), Δt 是测量时间. 利用 (4) 式, 计算出 Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 的单离子的 $K\alpha$ -X 射线产额分别为 1.8×10^{-3} 和 3.8×10^{-3} , Ar^{18+} 的产额大约是 Ar^{17+} 的 2 倍, 其 K 空穴数正好是 Ar^{17+} 的 2 倍, 这说明 Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 在俘获金属导带电子形成的空心原子在级联退激过程, L 壳层的电子退激填充 K 壳层的概率与 K 壳层的空穴数具有强的

相关性.

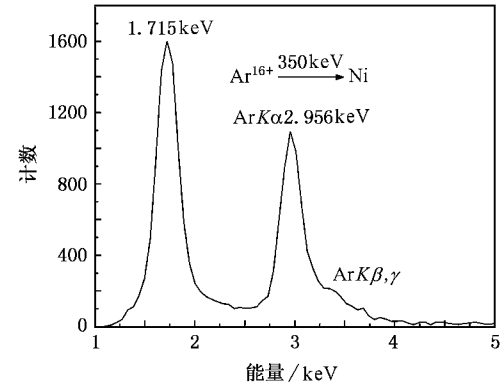
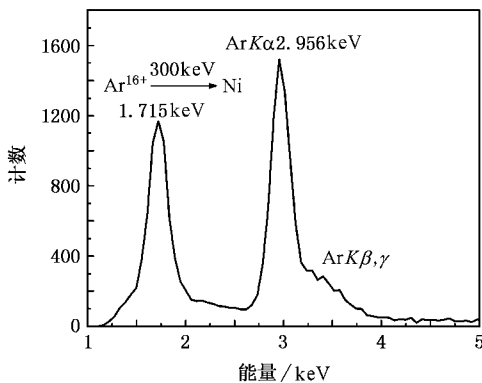
Ar^{16+} 单离子的 $K\alpha$ -X 射线产额比 Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 的小 5 个量级, 这是由于 Ar^{16+} 离子在与表面相互作用中存在上述多电子激发 K 壳层电子产生空穴的过程, 而 Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 分别就有 1 和 2 个 K 壳层空穴, 布居在 L 壳层上的电子直接退激填充 K 壳层发射 X 射线, 以致 Ar^{16+} 单离子的 $K\alpha$ -X 射线产额要比 Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 的小得多.



(a)



(b)



(c)

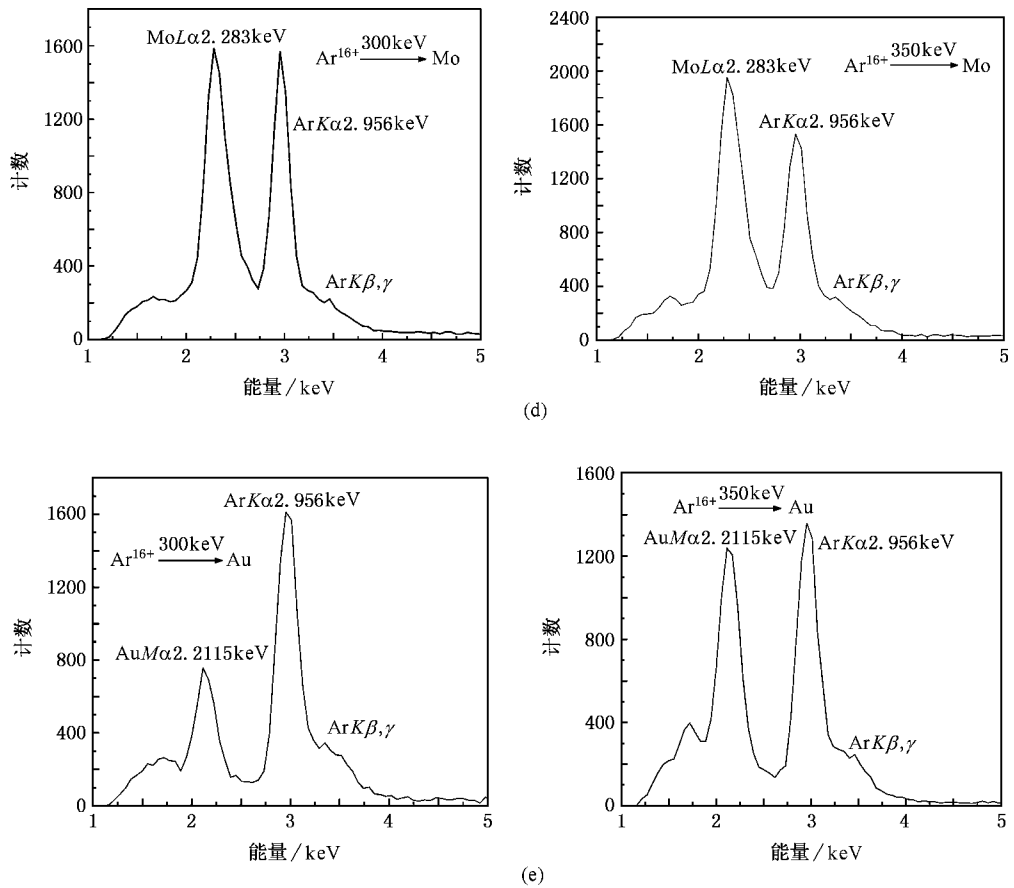


图 2 (a) 300 keV 和 350 keV Ar^{16+} 离子入射 Be 表面产生的 X 射线谱 (b) 300 keV 和 350 keV Ar^{16+} 离子入射 Al 表面产生的 X 射线谱 (c) 300 keV 和 350 keV Ar^{16+} 离子入射 Ni 表面产生的 X 射线谱 (d) 300 keV 和 350 keV Ar^{16+} 离子入射 Mo 表面产生的 X 射线谱 (e) 300 keV 和 350 keV Ar^{16+} 离子入射 Au 表面产生的 X 射线谱

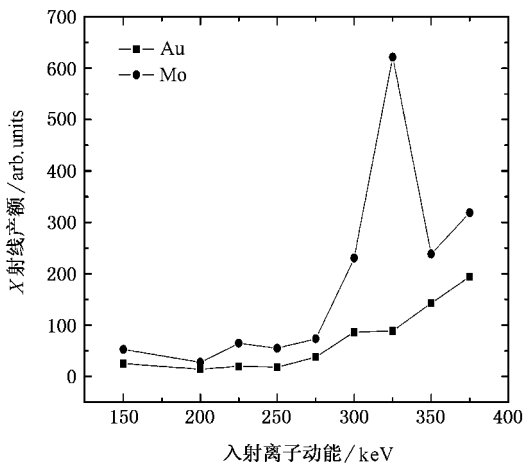


图 3 Ar^{16+} 入射金属表面激发靶原子产生的总 X 射线产额与离子动能的关系

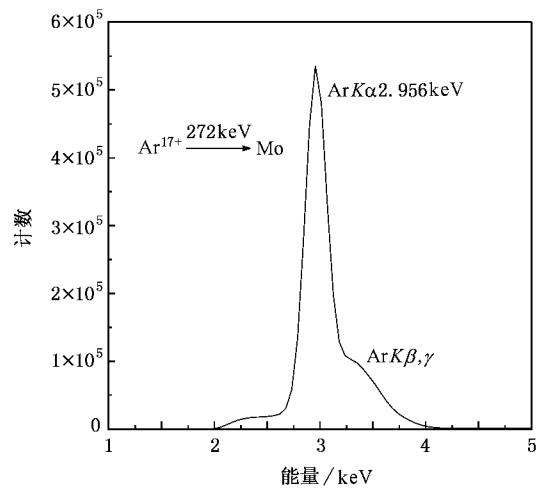


图 4 Ar^{17+} 入射 Mo 表面产生的 X 射线谱图

从 Ar^{16+} , Ar^{17+} 和 Ar^{18+} 产生的 X 射线谱图 2、图 3 和图 4 可以看出, 在 Ar 的 X- $K\alpha$ 射线右旁都有一

未分辨的谷包 这是 Ar 的 $K\beta$ 和 $K\gamma$ X 射线, 即 $3p-1s$ $4p-1s$ $5p-1s$ 跃迁. 要将其分辨开, 需要高分辨

的探测器.

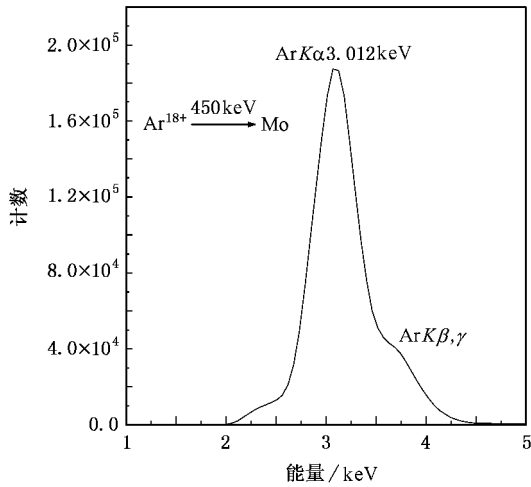


图5 Ar^{18+} 入射 Mo 表面产生的 X 射线谱

4. 结 论

高电荷态离子与固体表面作用是一种复杂的作用过程. 初步实验和分析, 本实验中高电荷态 Ar 离子与金属表面相互作用过程中, 发射的 $K\alpha$ -X 射线是离子进入固体表面下形成的, 入射离子中性化过程中 X 射线产额与其最初的电子组态(壳层空穴数)有关. 电子组态为 $1s^2$ 的 Ar^{16+} 离子在与固体表面相互作用过程中存在多电子激发过程, 其中靶原子的 X 射线产额随入射离子的动能的增加而增加. Ar^{17+} 离子与固体表面相互作用过程中, 发射的 $K\alpha$ -X 射线谱形状与靶材料无明显的关系, 没有出现谱形状随材料和能量的不同而改变的迹象.

兰州重离子加速器国家实验室 ECR 源全体人员在该项目实验期间的有效合作, 在他们的辛勤工作下, 首次成功引出了 Ar^{16+} , Ar^{17+} , Ar^{18+} 离子. 本课题组成员表示衷心的感谢.

- [1] Burgdörfer J, Lerner P, Meyer F W 1991 *Phys. Rev. A* **44** 5674
 [2] Grether M, Niemann D, Spieler A, Stolterfoht N 1997 *Phys. Rev. A* **56** 3794
 [3] Thomaschewski J, Bleck-Neuhaus J, Grether M *et al.* 1998 *Phys. Rev. A* **57** 3665
 [4] Winter H, Aumayr F 1999 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32** 39
 [5] Machicoane G A, Schenkel T, Niedermayr T R *et al.* 2002 *Phys. Rev. A* **65** 042903
 [6] Schuch R, Schneider D, Knapp D A *et al.* 1993 *Phys. Rev. Lett.*

70 1073

- [7] Zhang Y P, Yang Z H, Du S B *et al.* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3559 (in Chinese) [张艳萍、杨治虎、杜树斌等 2005 物理学报 **54** 3559]
 [8] Briand J. P, Billy L de, Charles P *et al.* 1990 *Phys. Rev. Lett.* **65** 159
 [9] Zhao Y T, Xiao G Q, Zhang X A, Yang Z H *et al.* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 85 (in Chinese) [赵永涛、肖国青、张小安、杨治虎等 2005 物理学报 **54** 85]

X-ray emission produced by interaction of highly ionized Ar^{q+} ions with metallic targets^{*}

Yang Zhi-Hu^{1)†} Song Zhang-Yong¹⁾ Chen Xi-Meng²⁾ Zhang Xiao-An³⁾ Zhang Yan-Ping¹⁾ Zhao Yong-Tao¹⁾
Cui Ying²⁾ Zhang Hong-Qiang²⁾ Xu Xu²⁾ Shao Jian-Xiong²⁾ Yu De-Yang¹⁾ Cai Xiao-Hong¹⁾

1) (*Institute of Modern Physics , Chinese Academy of Sciences , Lanzhou 730000 , China*)

2) (*Department of Modern Physics , Lanzhou University , Lanzhou 730000 , China*)

3) (*Xianyang Normal College , Xianyang 712000 , China*)

(Received 14 October 2005 ; revised manuscript received 15 November 2005)

Abstract

This paper studies the X-ray spectra produced by the interaction of highly charged ions of Ar^{q+} ($q = 16, 17, 18$) with metallic surface of Be, Al, Ni, Mo and Au respectively. The experimental results show that the $K\alpha$ X-ray emerges from under the surface of solid in the interaction of ions with targets. The multi-electron excitation occurred in the process neutralization of the Ar^{16+} in electronic configuration of $1s^2$ in metallic surfaces, which produces vacancy in the K shell. Electron from high n state transition to K vacancy gives off X-ray. We find that there is no obvious relation between the shape of X-ray spectra and the different targets. The X-ray yield of incident ions are associated with initial electronic configuration. The X-ray yield of target is related to the kinetic energy of the incident ions.

Keywords : highly charged ion , hollow atom , multi-electron excitation , X-ray emission

PACC : 3450D , 3220R , 3270J

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10274088 , 10375080 , 10574132) , Special Foundation for State Major Basic Research Program of China (Grant No. 2002CCA00900) and National Key Laboratory of Laser Fusion (Grant No. 51480020104ZK5101).

[†] E-mail : z. yang@impcas.ac.cn