

重离子轰击 Ta 靶引起的多电离效应*

王兴¹⁾²⁾ 赵永涛^{1)†} 程锐¹⁾ 周贤明¹⁾ 徐戈¹⁾ 孙渊博¹⁾ 雷瑜¹⁾ 王瑜玉¹⁾
任洁茹¹⁾ 虞洋¹⁾ 李永峰¹⁾ 张小安³⁾ 李耀宗³⁾ 梁昌慧³⁾ 肖国青¹⁾

1) (中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

2) (西安交通大学理学院, 西安 710049)

3) (咸阳师范学院物理与电子工程学院, 咸阳 712000)

(2011年12月21日收到; 2012年4月1日收到修改稿)

在兰州重离子加速器国家实验室分别测量了 H^+ , He^{2+} , Ar^{11+} 和 Xe^{20+} 离子轰击 Ta 表面过程中辐射的 X 射线谱, 并得到了 Ta 特征 X 射线谱中 $M_\gamma (M_3 N_5)$ 和 $M_{\alpha\beta} (M_{4,5} N_{6,7})$ 线的强度, 即 I_γ 和 $I_{\alpha\beta}$. 分析结果表明, 强度比值 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 随着入射离子原子序数的增加而显著增加, 这是由于碰撞过程中 Ta 原子的多电离效应使 M_3 支壳层的荧光产额 ω_3 产生了显著增强.

关键词: X 射线, 荧光产额, 高电荷态离子, 多电离效应

PACS: 32.30.Rj, 34.50.Fa, 34.80.Dp, 79.20.Rf

1 引言

近几十年来, 带电离子入射引起靶原子内壳层电离的研究工作得到了广泛的关注并取得了重要的进展 [1–8]. 当具有一定能量的带电离子入射到固体表面上发生非弹性碰撞过程时, 入射离子会损失部分能量, 这部分能量将主要通过以下几种方式耗散: 固体表面电子发射 [9–11] (由背散射电子和二次电子组成)、光子发射 (固体原子内壳层的受激电子退激发)、等离子元激发、声子及表面振动的激发. 测量从物质中产生的不同粒子 (它携带着表面物质的信息, 如光子、电子、离子等), 就可以推知物质的诸多物理和化学性质.

在离子原子碰撞过程中, 测量 X 射线发射是研究靶原子内壳层电子电离的一个重要方法. 在较轻离子 ($Z_p < 3$) 与靶原子碰撞过程中, 靶原子内壳层空穴产生的主要机理是直接库仑电离 [12,13]. 而在高电荷态重离子与原子碰撞过程中, 靶原子内壳层

空穴的产生主要包括单电离、多重电离、单次俘获、多电子俘获及分子轨道跃迁等物理机理 [14], 这个过程中可能产生多个内壳层空穴, 实验分析和理论解释的难度较大. 靶原子内壳层电离度较高时, 会产生一些与单电离情况不同的实验现象, 例如: 1) 通过非辐射跃迁, 即俄歇电子发射来填充空穴的概率就会变小, 而通过辐射跃迁发射 X 射线来填充空穴的概率就会增加; 2) 碰撞过程发射的 X 射线谱存在许多复杂的伴线结构. 迄今为止, 入射离子引起 K 壳层和 L 壳层电离的有关研究在实验和理论方面已经较为深入和全面 [15–18], 而对高电荷态离子引起靶原子 M 壳层多电离的研究则相对比较少 [19–22], 特别是在近玻尔速度入射的情况下还有很多工作要做.

我们在兰州重离子加速器国家实验室电子回旋共振离子源 (ECR)320 kV 高电荷态离子综合研究平台上, 分别选择 H^+ , He^{2+} , Ar^{11+} 和 Xe^{20+} 离子束轰击 Ta 靶表面, 测量了离子与表面作用过程中的 X 射线谱, 并研究了 Ta 特征 X 射线谱中 M_γ

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2010CB832902)、国家自然科学基金 (批准号: 10805063, 11075125, 11075135, 11075192)、陕西省自然科学基金 (批准号: 2010JM1012) 和陕西省教育厅科研计划项目 (批准号: 2010JK895) 资助的课题.

† E-mail: zhaoyt@impcas.ac.cn

和 $M_{\alpha\beta}$ 线的强度, 以及强度比值 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 分别随着入射离子动能和原子序数的变化关系.

2 实验方法

本实验在中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态离子综合研究平台上, 分别选择 H^+ (0.1 MeV), He^{2+} (0.2 MeV), Ar^{11+} (1.2 MeV) 和 Xe^{20+} (1.2 MeV, 2.4 MeV, 3.0 MeV, 3.6 MeV 和 6.0 MeV) 作为入射离子进行研究. 离子束由 14.5 GHz 电子回旋共振离子源 (ECRIS) 提供, 束流在不同电压下引出, 经过聚束装置的聚焦和光阑的准直, 进入 90° 的偏转分析磁铁进行选择. 选择出的具有确定电荷态的离子束经过四极磁铁的聚焦和光阑的准直, 最后进入内部具有电磁屏蔽的高真空间球形靶室, 到达靶室中心的离子束的发散度大约为 0.7°. 实验装置在文献 [23] 中有更详细的表述. 实验中选择的 Ta 靶厚度为 3 mm, 面积约为 15 mm × 15 mm; 通过调节光阑, 束斑面积被限制为 7 mm × 7 mm, 垂直轰击在靶表面中心位置. 实验中所选择的 X 射线探测器为 AMPTEK 公司研制的 XR100SDD 型硅漂移探测器, 探头对准靶表面的中心位置, 并与入射束流方向成 45° 夹角, 束流和探测器均位于靶面同一侧. 该探测器的探测立体角为 0.0066 sr, 在 5.9 keV 峰处分辨率可达 136 eV (FWHM). 为了实现所测得的靶特征 X 射线峰 $M_{\alpha\beta}$ 处的峰值计数均达到 20000 以上, 我们对 H^+ , He^{2+} , Ar^{11+} 和 Xe^{20+} 离子入射时的 X 射线谱探测时间均采取为 100 s 左右.

3 实验结果与讨论

3.1 Ta 靶特征 X 射线谱随 Xe^{20+} 入射离子能量的变化

实验中分别选择了入射能量为 1.2 MeV, 2.4 MeV, 3.0 MeV、3.6 MeV 和 6.0 MeV 的 Xe^{20+} 离子, 0.1 MeV 的 H^+ 离子, 0.2 MeV 的 He^{2+} 离子和 1.2 MeV 的 Ar^{11+} 离子, 作用于 Ta 靶表面. 在归一化入射粒子数目之后, 图 1 给出了 Ta 靶的特征 X 射线谱随离子入射能量的变化, 主要包括 $M_{\alpha\beta}$ ($M_{4,5}N_{6,7}$) 和 M_γ (M_3N_5) 两个特征线, 这两条特征 X 射线的峰值能量分别为 1.71 keV, 1.97 keV. 需要注意的是, 图 1 中的 X 射线谱并没有扣除实验背

景, 为了尽量减小统计误差的影响, 实验中所测得的 X 射线谱在 $M_{\alpha\beta}$ 处的峰值计数均达到 20000 以上. 由图 1 可以看出, 在我们的实验能量范围内, 随着离子入射能量的增加, Ta 的特征 X 谱线强度也会随之增加.

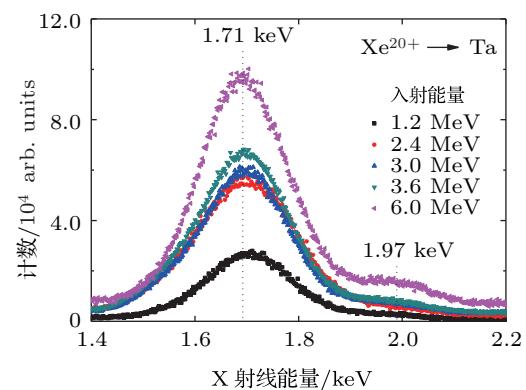


图 1 Xe^{20+} 与 Ta 表面相互作用产生的 X 射线谱随入射能量的变化

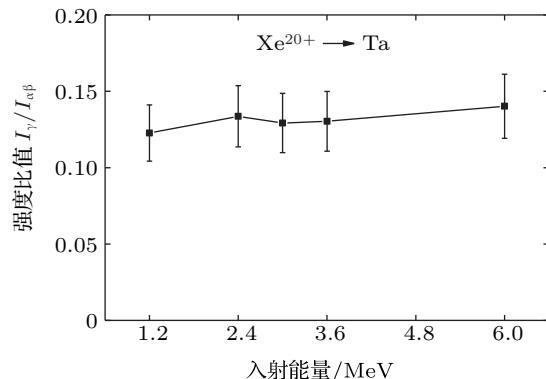


图 2 1.2—6.0 MeV 的 Xe^{20+} 离子入射 Ta 靶发射 M_γ 和 $M_{\alpha\beta}$ 射线的强度比值

3.2 Ta 特征 X 射线 M_γ 和 $M_{\alpha\beta}$ 的强度比值随入射能量的变化

利用 OriginLab 软件对实验测得的 X 射线谱进行高斯多峰拟合, 可以得到 $M_{\alpha\beta}$ 和 M_γ 的峰面积. 本实验所选择的探测器在 X 射线能量为 1.71 keV($M_{\alpha\beta}$) 和 1.97 keV(M_γ) 处的探测效率分别为 0.567 和 0.621. 假设靶 X 射线的发射是各向同性的, 并考虑上探测器在不同能量下的探测效率, 就可以从拟合的峰面积得出 $M_{\alpha\beta}$ 和 M_γ 线对应的 X 射线强度. 图 2 给出了 Ta 特征 X 射线 M_γ 和 $M_{\alpha\beta}$ 的强度比值 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 随 Xe^{20+} 离子入射能量的变化. 本实验所得到的 X 射线强度误差约为 15%, 主要包括 X 射线的计数统计误差 (2%)、X

射线谱中实验背景所引起的误差(5%)、拟合靶特征X射线谱时由于伴线位置的不确定度所引起的误差(10%)。可以看出,随着离子入射能量的增加,强度比值 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 的变化不大,平均值约为0.13,在3.3节中将会对这一实验现象进行详细解释。

3.3 Ta特征X射线 M_γ 和 $M_{\alpha\beta}$ 的强度比值随入射离子原子序数的变化

为了研究 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 随着入射离子原子序数的变化规律,我们同时测量了 H^+ (0.1 MeV), He^{2+} (0.2 MeV)和 Ar^{11+} (1.2 MeV)离子入射引起的X射线谱,并计算了强度比值 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 。图3给出了该比值随着入射离子原子序数增加时的变化规律,可以看出,当原子序数增加时, $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 从0.02逐渐增加到0.13。为了解释这种现象,下面首先给出了原子内壳层中空穴退激时可能发生的过程。

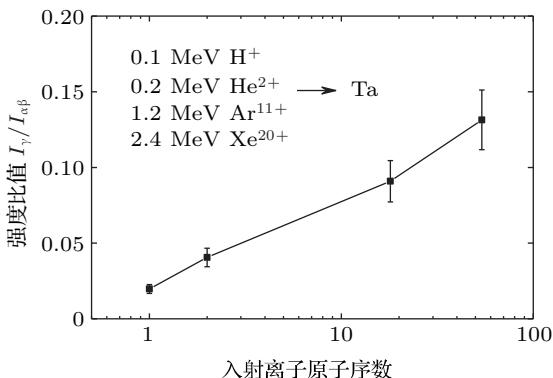


图3 Ta靶发射 M_γ 和 $M_{\alpha\beta}$ 射线的强度比值随入射离子原子序数的变化

假如在原子的M壳层中有了一个空穴,当N层的一个电子跃迁到M层时,多余的能量可以释放X射线,也可以不释放X射线,而把能量传递给另一层(例如N层或者O层)中的一个电子,这个电子就可以脱离原子,并被称为俄歇电子;还有一种情况是M层空穴被同一个主壳层内的电子填充,多余的能量可用于激发更高壳层(Coster-Kronig跃迁)或者同一主壳层的电子(超级Coster-Kronig跃迁)。若原子M壳层中的某一支壳层有了空穴后产生X射线的概率为荧光产额 ω_i ,产生俄歇电子的概率为俄歇产额 a_i ,产生CK跃迁的概率为 f_i ,产生超级CK跃迁的概率为 S_i ,则有

$$\omega_i + a_i + f_i + S_i = 1. \quad (1)$$

对于M壳层X射线的产生截面理论上可由以下公

式得到:

$$\begin{aligned} \sigma_{M_\alpha}^X = & [\sigma_{M_5} + f_{45}\sigma_{M_4} + (S_{35} + S_{34}f_{45})\sigma_{M_3} \\ & + (S_{25} + S_{23}S_{35} + S_{24}f_{45} + S_{23}S_{34}f_{45})\sigma_{M_2} \\ & + (S_{15} + S_{12}S_{25} + S_{13}S_{35} + S_{14}f_{45} \\ & + S_{12}S_{23}S_{35} + S_{12}S_{24}S_{45} + S_{13}S_{34}S_{45} \\ & + S_{12}S_{23}S_{34}f_{45})\sigma_{M_1}] \omega_5 \Gamma_{M_\alpha} / \Gamma_{M_5}, \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{M_\beta}^X = & [\sigma_{M_4} + S_{34}\sigma_{M_3} + (S_{24} + S_{23}S_{24})\sigma_{M_2} \\ & + (S_{14} + S_{12}S_{24} + S_{13}S_{34} \\ & + S_{12}S_{23}S_{34})\sigma_{M_1}] \omega_4 \Gamma_{M_\alpha} / \Gamma_{M_4}, \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{M_\gamma}^X = & [\sigma_{M_3} + S_{23}\sigma_{M_2} + (S_{13} + S_{12}S_{23})\sigma_{M_1}] \\ & \times \omega_3 \Gamma_{M_\gamma} / \Gamma_{M_3}, \end{aligned} \quad (4)$$

其中 σ_{M_i} 为对应 M_i 支壳层的电离截面, $\sigma_{M_i}^X$ 为 M_i 支壳层空穴通过辐射跃迁产生X射线的截面。 Γ_{M_i} 是第*i*个支壳层的辐射宽度^[24]。 f_{ij} 和 S_{ij} 分别表示 M_j 支壳层的电子填充 M_i 支壳层空穴产生CK跃迁和超级CK跃迁的概率。需要指出的是,只有当 $Z \leq 36$ 时, M 壳层空穴退激才有可能发生超级CK跃迁^[25]。Ta靶 M 壳层空穴退激时不会产生超级CK跃迁,因此,本文中所提到的 S_{ij} 实际对应的是产生CK过程的概率。

靶原子 M_i 次壳层电子的电离截面依赖于入射离子的速度和原子序数,因此由(2)–(4)式可知,强度 I_γ 和 $I_{\alpha\beta}$ 分别可以看做入射离子原子序数,入射能量以及碰撞作用后靶原子参数(包括荧光产额、CK跃迁概率等)的函数,这里的靶原子参数依赖于入射离子原子序数 Z_1 。根据两体碰撞近似(BEA)^[12,17],靶原子 M_i 支壳层电子的电离截面与 $Z_1^2 G(V)$ 成正比例关系,其中 Z_1 为入射离子的原子序数, $G(V)$ 是入射离子速度的函数。结合(2),(3),(4)式可知,强度比值 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 可以作为一个新的函数,这个函数中的 Z_1 和 $G(V)$ 决定着 M_3 和 $M_{4,5}$ 次壳层电子的电离截面。但是电离截面中的 $Z_1^2 G(V)$ 项均可以被约掉,所以只有碰撞作用后的靶原子参数会对该比值产生影响。对 Z_1 相同的炮弹离子而言,作用过程中对应的靶原子参数是不变的,因此强度比值 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 是不随相同 Z_1 离子的入射能量变化的,这也与我们实验中所观察到的现象是一致的,而对于强度比值 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 随入射离子原子序数增加而增加的现象,则只需要考虑不同 Z_1 所引起的原子参数变化对这个比值的影响。下面详

细分析入射离子原子序数的改变是如何对靶原子参数产生影响的。

重离子入射到固体表面会与靶原子中的多个电子同时作用引起靶原子内壳层多电离的发生,所以在 Xe 离子与 Ta 相互作用的过程中,靶原子内壳层的电子数目将会减少(和单电离相比较而言)。 M_γ 射线对应 M_3N_5 的辐射跃迁过程,当 M 壳层之外电子数目减少时, M_3 支壳层空穴退激后通过无辐射跃迁产生俄歇电子的概率就会降低,而通过辐射跃迁产生 X 射线的概率就会增加,最终使得发射出 X 射线的强度也随之增加^[26]。为了更清楚的看到 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 增加的原因,表 1 给出了 Ta 原子支壳层的荧光产额和 CK 跃迁因子,表中的荧光产额和 CK 跃迁因子均取自文献[25]。

表 1 单电离情况下 Ta 原子 M_3 , M_4 , M_5 支壳层的理论荧光产额和 CK 跃迁因子

ω_3	S_{34}	S_{35}	ω_4	f_{45}	ω_5
2.14×10^{-3}	0.082	0.810	0.0130	0.411	0.0205

CK 跃迁因子 S_{35} 对应的是 M_5 壳层电子填充 M_3 壳层空穴并释放能量激发 N 壳层或者 O 壳层电子。若 Ta 原子内壳层只发生单电离, M_3 支壳

层荧光产额 ω_3 为 2.14×10^{-3} , 而 CK 跃迁概率 S_{35} 高达 0.810, 即 S_{35} 是 ω_3 的 380 倍; 当 Ta 原子 N 壳层发生多电离时, N 壳层电子数目减少, 会引起 S_{35} 对应的 CK 过程受到抑制, 即通过无辐射跃迁发射出电子的概率减小, 由(1),(4)式可知, 这将使辐射跃迁概率 ω_3 显著增大, 从而发射 X 射线的强度 I_γ 也随之急剧增加。而 $I_{\alpha\beta}$ 对应 $M_{4,5}N_{6,7}$ 的辐射跃迁过程, 当 M_4 支壳层的空穴退激时, 由于 ω_4 和 S_{45} 的数值相差不大(S_{45} 约为 ω_4 的 30 倍), 即使 CK 跃迁概率 S_{45} 减小, ω_4 的增加也远不如 ω_3 增加的快, 因此我们就会观察到 I_γ 的增加幅度远远超过了 $I_{\alpha\beta}$ 增加幅度的现象。

4 结 论

重离子入射到 Ta 固体表面过程中, 会与靶原子内壳层的多个电子相互作用使其激发或电离。我们在实验中发现了 Ta 特征 X 射线 M_γ 和 $M_{\alpha\beta}$ 的强度比值 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 随入射离子原子序数增加而增加, 这是由于碰撞过程中 N 壳层的多电离, 使得 M_3 支壳层退激后辐射跃迁概率增加, 即荧光产额 ω_3 增加, 而 ω_4 远没有 ω_3 增加的快, 最终引起强度比值 $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ 的明显增大。

- [1] Ouziane S, Amokrane A, Zilabdi 2000 *Nucl. Instr. Meth. B* **161-163** 141
- [2] Zhao Y T, Xiao G Q, Zhang X A, Yang Z H, Zhang Y P, Zhan W L, Chen X M, Li F L 2007 *Nucl. Instr. Meth. B* **258** 121
- [3] Chen X M, Jiang L J, Zhou P, Zhou C L, Gao Z M, Qiu X Y, Cui Y, Wang X A, Lou F J, Lü X Y, Jia J J, Chen L, Shao J X, Lü Ying, Wang F 2011 *Chin. Phys. B* **20** 013402
- [4] Dong C Z, Fu Y B 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 0107 (in Chinese) [董晨钟, 符彦飙 2006 物理学报 **55** 0107]
- [5] Lapicki G, Murty G A V R, Raju G J N, Reddy B S, Reddy S B, Vijayan V 2004 *Phys. Rev. A* **70** 062718
- [6] Singh Y, Tribedi L C 2003 *Nucl. Instr. Meth. B* **205** 794
- [7] Zhao Y T, Xiao G Q, Zhang X A, Yang Z H, Chen X M, Li F L, Zhang Y P, Zhang H Q, Cui Y, Shao J X, Xu X 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 85 (in Chinese) [赵永涛, 肖国青, 张小安, 杨治虎, 陈熙萌, 李福利, 张艳萍, 张红强, 崔莹, 邵剑雄, 徐徐 2005 物理学报 **55** 85]
- [8] Zhang X, Zhao Y, Hoffmann D H H, Yang Z, Chen X, Xu Z, Li F, Xiao G 2011 *Laser Part. Beams* **29** 265
- [9] McDonald J W, Schenkel T, Hamza A V, Schneider D H G 2005 *Nucl. Instr. Meth. B* **240** 829
- [10] Wang Y Y, Zhao Y T, Sun J R, Qayyum A, Liu J, Wang Z G, Xiao G Q 2011 *Nucl. Instr. Meth. B* **269** 977
- [11] Wang Y Y, Zhao Y T, Sun J R, Li D H, Qayyum A, Li J Y, Wang P Z, Xiao G Q 2011 *Chin. Phys. Lett.* **28** 053402
- [12] Gryziński M 1965 *Phys. Rev. A* **138** 336
- [13] Garcia J D 1970 *Phys. Rev. A* **1** 280
- [14] Song Z Y, Yang Z H, Xiao G Q, Xu Q M, Chen J, Yang B, Yang Z R 2011 *Eur. Phys. J. D* **64** 197
- [15] Lapicki G 1989 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **18** 111
- [16] Jitschin W, Materlik G, Werner U, Funke P 1985 *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **18** 1139
- [17] Zhang H, Chen X, Yang Z, Xu J, Cui Y, Shao J, Zhang X, Zhao Y, Zhang Y, Xiao G 2010 *Nucl. Instr. Meth. B* **268** 1564
- [18] Lépy M C, Plagnard J, Ferreux L 2008 *Appl. Radia. Iso.* **66** 715
- [19] Mitra D, Mandal A C, Sarkar M, Bhattacharya D, Sen P, Lapicki G 2001 *Nucl. Instr. Meth. B* **183** 171
- [20] Czarnota M, Banaś D, Braziewicz J, Semaniak J, Pajek M, Jaskóla M, Korman A, Trautmann D, Kretschmer W, Lapicki G, Mukoyama T 2009 *Phys. Rev. A* **79** 032710
- [21] Zhao Y, Xiao G, Xu H, Zhao H, Xia J, Jin G, Ma X, Liu Y, Yang Z, Zhang P, Wang Y, Li D, Zhao H, Zhan W, Xu Z, Zhao D, Li F, Chen X 2009 *Nucl. Instr. Meth. B* **267** 163
- [22] Wang X, Zhao Y, Cheng R, Zhou X, Xu G, Sun Y, Lei Y, Wang Y, Ren J, Yu Y, Li Y, Zhang X, Li Y, Liang C, Xiao G 2012 *Phys. Lett. A* **376** 1197

- [23] Zhao Y T, Xiao G Q, Zhang X A, Yang Z H, Chen X M, Zhang Y P 2006 *J. Atom. Mole. Phys.* **23** 23 (in Chinese) [赵永涛, 肖国青, 张小安, 杨治虎, 陈熙萌, 张艳萍 2006 原子与分子物理学报 **23** 23]
- [24] Bhalla C P 1970 *J. Phys. B* **3** 916
- [25] McGuire E J 1972 *Phys. Rev. A* **5** 1043
- [26] Singh Y, Tribedi L C 2002 *Phys. Rev. A* **66** 062709

Multiple ionization effect of Ta induced by heavy ions*

Wang Xing¹⁾²⁾ Zhao Yong-Tao^{1)†} Cheng Rui¹⁾ Zhou Xian-Ming¹⁾ Xu Ge¹⁾
 Sun Yuan-Bo¹⁾ Lei Yu¹⁾ Wang Yu-Yu¹⁾ Ren Jie-Ru¹⁾ Yu Yang¹⁾
 Li Yong-Feng¹⁾ Zhang Xiao-An³⁾ Li Yao-Zong³⁾ Liang Chang-Hui³⁾
 Xiao Guo-Qing¹⁾

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

2) (*Department of Physics, School of Science, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China*)

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

(Received 21 December 2012; revised manuscript received 1 April 2012)

Abstract

The M X-ray spectra of Ta induced by H^+ , He^{2+} , Ar^{11+} and Xe^{20+} are measured in Heavy Ion Research Facility in Lanzhou. The intensities of M_γ (M_3N_5) and $M_{\alpha\beta}$ ($M_{4,5}N_{6,7}$), i.e. I_γ and $I_{\alpha\beta}$, are also derived from the spectra. It is found that the intensity ratio of $I_\gamma/I_{\alpha\beta}$ increases with the increase of projectile atomic number. The results show that the M_3 -subshell fluorescence yield ω_3 of Ta target is greatly enhanced, owing to multiple ionization effect in collision with heavy ions.

Keywords: X-rays, fluorescence yield, highly charged ions, multiple ionization effect

PACS: 32.30.Rj, 34.50.Fa, 34.80.Dp, 79.20.Rf

* Project supported by the Major State Basic Research Development Program of China (Grant No. 2010CB832902), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10805063, 11075125, 11075135, 11075192), the Natural Science Foundation of Shaanxi Province (Grant No. 2010JM1012), and the Science Foundation of Education Department of Shaanxi Province (Grant No. 2010JK895).

† E-mail: zhaoyt@impcas.ac.cn