

H⁺ 和 Ar¹¹⁺ 激发 Si 的 K 壳层 X 射线发射研究*周贤明¹⁾ 赵永涛^{1)†} 程锐¹⁾ 王兴¹⁾ 雷瑜¹⁾ 孙渊博¹⁾ 王瑜玉¹⁾ 徐戈¹⁾
任洁茹¹⁾ 张小安²⁾ 梁昌慧²⁾ 李耀宗²⁾ 梅策香²⁾ 肖国青¹⁾

1) (中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

2) (咸阳师范学院物理与电子工程学院, 咸阳 712000)

(2012年11月21日收到; 2012年12月19日收到修改稿)

测量了 50—250 keV H⁺ 和 1.0—3.0 MeV Ar¹¹⁺ 轰击 Si 表面过程中辐射的 X 射线. 结果表明, 在 Ar¹¹⁺ 入射的情况下, 引起了 Si 的 L 壳层上 3, 4 个电子的多电离. 计算了 Si 的 K 壳层 X 射线产生截面, 并将两体碰撞近似 (BEA), 平面波恩近似, ECPSSR 理论计算与实验值进行了对比. ECPSSR 理论与质子产生的截面数据能够很好地符合; 而考虑多电离后, BEA 理论与 Ar¹¹⁺ 的实验结果符合较好.

关键词: X 射线, 高电荷态重离子, 多电离

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

DOI: 10.7498/aps.62.083201

1 引言

带电离子入射到固体表面会引起靶原子内壳层的电离, 相应空穴的退激伴随着 X 射线和俄歇电子的发射^[1-3]. X 射线辐射测量是研究离子原子碰撞过程的一种重要方法^[4,5]. 在高电荷态重离子与原子碰撞时, 伴随着 K 壳层电子的电离, L 以及更外壳层会发生多电离. 多电离原子发射的特征 X 射线具有更高的能量和更大的展宽. 另外, 由于外壳层电子的多电离, 俄歇跃迁和 Coster-Kronig 跃迁的几率会减小, 从而引起荧光产额的增加以及 X 射线分支比的变化^[6-8]. 与轻离子 ($Z \leq 2$) 相比较, 重离子激发 X 射线的产生截面更大, 引起内壳层的电离过程更为复杂, 这可以通过测量 X 射线的精细结构或频移进行研究.

对于内壳层电离的理论分析, 在某些碰撞系统中已有较为成熟的模型. 在 $Z_1 \ll Z_2$ (Z_1 是入射离子原子序数, Z_2 是靶原子序数) 的非对称碰撞系统中, 靶原子内壳层电离的主要机制是直接库仑电离, 这可以用两体碰撞近似 (binary counter

approximation, BEA)^[9], 平面波恩近似 (plane wave born approximation, PWBA)^[10] 和 ECPSSR (energy-loss coulomb-repulsion perturbed-stationary-state relativist) 模型^[11] 来描述. 特别是 ECPSSR 模型, 它在 PWBA 的基础上加入了炮弹离子的能量损失 (E)、库仑偏转 (C)、靶原子轨道电子的微扰处理 (PSS) 和电子质量相对论调整 (R) 等修正, 对于轻离子和中高能重离子引起内壳层的电离给出了比较准确的预言. 在 $Z_1 \approx Z_2$ 的对称碰撞系统中, 电子转移在内壳层空穴的产生过程中占主导地位, 准分子模型 (quasi-molecular-orbital, MO)^[12] 能够对其进行很好的描述. 但是, 对于 $Z_1 > Z_2$ 的低能非对称碰撞过程, 哪种理论更适合用来描述内壳层的电离尚未定论, 相关的实验研究报道也较少. 因此, 还需要进行深入的实验研究, 特别是在近玻尔速度碰撞能区还有很多工作要做.

本实验用 50—250 keV 质子和 1.0—3.0 MeV Ar¹¹⁺ 轰击 Si 靶表面, 测量了 Si 的 K 壳层 X 射线发射谱, 通过频移分析研究了 Ar¹¹⁺ 入射时 Si 原子的多电离. 计算了 X 射线产生截面, 并将 BEA,

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2010CB832902) 和国家自然科学基金 (批准号: 11275241, 11205225, 11105192, 11275238) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: zhaoyt@impcas.ac.cn

PWBA, ECPSSR 理论值与实验值进行了比较. 讨论了多电离荧光产额对理论模拟低速高电荷态离子引起 X 射线发射产额的影响.

2 实验方法

本实验是在中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态离子综合研究平台 1# 实验终端上完成的. 离子束由 14.5 GHz 电子回旋共振 (ECR) 离子源提供, 束流由不同的引出电压引出后进入 90° 的分析磁铁进行电荷态选择. 具有确定电荷态的离子经过加速管加速、四极铁聚焦和限束光阑准直后进入具有电磁屏蔽的超高真空球型靶室. 束流到达靶室中心的发散度大约为 0.7° , 束斑被限制为直径为 3 mm 的圆斑, 垂直入射到靶表面. 实验产生的 X 射线利用 AMPTEK 公司研制的 XR100SDD 型硅漂移探测器 (SDD) 进行探测. 探测器的铍窗厚度为 $12.5 \mu\text{m}$, 有效探测面积为 7 mm^2 , 在 5.9 keV 峰位处的能量分辨可达 136 eV, 当增益设为 100 时, 有效能量测量范围为 0.5—14 keV. 探测器探头对准靶室中心离靶中心 80 mm 并与靶表面形成 45° 夹角, 探测立体角为 0.0011 Sr. 实验前用 ^{55}Fe 和 ^{241}Am 放射源对探测器进行刻度. 实验选用 Si 靶的纯度为 99.99%, 厚度为 0.5 mm, 表面积为 $15 \times 20 \text{ mm}^2$.

3 实验结果与讨论

3.1 Ar^{11+} 引起 Si 原子的多电离

实验分别选用了能量为 50, 100, 125, 150, 175, 200, 225, 250 keV 的 H^+ 和 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0 MeV 的 Ar^{11+} 轰击 Si 靶表面, 主要观察到了 Si 的 K 壳层 X 射线. 图 1 给出了用入射离子数目归一的 X 射线谱. 对于同一种入射离子, 谱型相同, 随着入射能量的增加, X 射线的峰位保持不变, 而强度随之增大. 相比于 H^+ , Ar^{11+} 激发的 Si 的 K 壳层 X 射线具有更高的能量和更大的展宽, 并且谱型不对称, 在高端存在明显的延长.

为了研究轻离子和高电荷态重离子引起内壳层电离的不同, 本文以 2.5 MeV Ar^{11+} 和 200 keV H^+ 激发的 X 射线谱为例, 对谱线进行了高斯 (Gauss) 拟合对比, 如图 2 所示. 质子激发的 Si 的 K 壳层 X 射线能量为 1.744 keV, 与 Si 原子的

X 射线数据相符, 这说明质子和 Si 原子碰撞主要引起 Si 原子的单电离, 当一个 K 壳层的电子被电离时, 外壳层电子被同时电离的概率很小, 基本为满壳层排布.

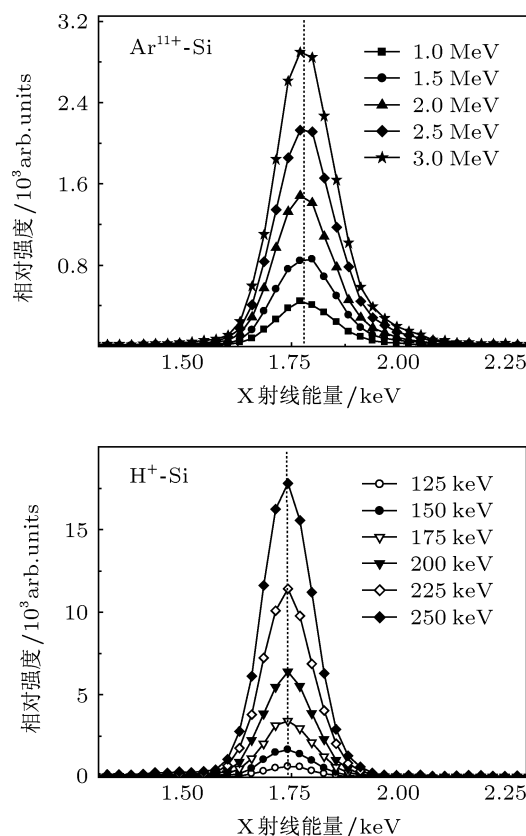


图 1 H^+ 和 Ar^{11+} 与 Si 表面相互作用激发 X 射线随能量变化的归一谱

Ar^{11+} 激发的 X 射线的能量为 1.780 keV, 比质子入射时高 36 eV; 其半高全宽为 136 eV, 比质子入射时大 18 eV. 高电荷态重离子与原子碰撞会引起靶原子内壳层的多电离, 多电离会扰动轨道电子的结合能, 减小轨道电子对原子的屏蔽, 导致 X 射线的发射向着高能方向移动^[13]. 另外, 多电离态改变了原有轨道电子的布局, 会引起辐射 X 射线半高全宽增大. 对于 Al, Si 等元素, L 壳层上缺少一个电子, 引起 K 壳层 X 射线能量增大大约 10 eV. 图 2 结果说明, 在 Ar^{11+} 与 Si 原子碰撞过程中, Si 原子除了 K 壳层的单电离, L 壳层发生了多电离, 即大约有 3, 4 个 L 壳层电子被电离.

K 空穴的填充主要有辐射跃迁和电子发射两种机制, 当 L 壳层电子被多电离时, 由于 L 壳层电子的减少, K-L 辐射跃迁 (K_α X 射线) 概率减小 (因为 K_α 发射与 2p 电子直接相关), KLL 俄歇跃迁概率减小, 相应的 K-M 辐射跃迁 (K_β X 射线) 会增强,

从而导致 K_β 对 K_α 射线的相对强度比增大 [6]. 对于单电离的 Si, K_β 射线的荧光产额比 K_α 射线的荧光产额大约小两个量级 [14]. 所以, 单电离情况下, K_α X 射线被认为是 K 壳层 X 射线的重要组成部分, 如图 2 中下图所示. Ar^{11+} 激发的 Si 的 K 壳层 X 射线在高端有一延长, 这是由 K_β X 射线的发射增强引起的. 这进一步证明了, 在高电荷态重离子 (Ar^{11+}) 与 Si 原子碰撞过程中, Si 原子被多电离.

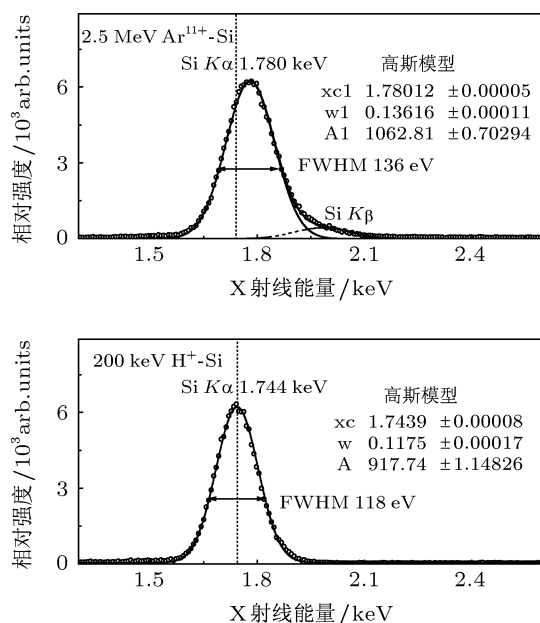


图 2 H^+ 和 Ar^{11+} 离子激发 Si 的 K 壳层 X 射线谱型比较

3.2 Si 的 K 壳层 X 射线产生截面

本实验中, H^+ 和 Ar^{11+} 在 Si 靶中的最大穿透深度分别为 2.4 和 2.15 μm , 远小于靶的厚度, 因此 X 射线的产生截面 σ_X 可以利用下面公式计算 [15]:

$$\sigma_X = \frac{1}{n} \frac{dY}{dE} \frac{dE}{dR} + \frac{\mu \cos \theta}{n \cos \varphi}, \quad (1)$$

$$Y = \frac{N_X}{N_p \eta (\Omega/4\pi)}, \quad (2)$$

其中 n 为靶原子数密度 (cm^{-3}), dY/dE 是产额对入射能量的导数 ($1/\text{keV}$), dE/dR 是入射离子的能损 (keV/cm), 可由 SRIM 计算得到 [16], μ 是靶材对 X 射线的吸收系数 ($1/\text{cm}$) [17], θ 是离子入射方向与靶面法线的夹角, φ 是 X 射线探测方向与束流方向夹角; Y 是 X 射线的单粒子产额, N_X 是探测立体角内 X 射线计数, N_p 是入射离子计数, Ω 是探测立体角, η 是探测效率. 实验误差主要来源于 X 射线计数统计 (5%), 入射离子计数 (3%), 探测立体角 (2%), 能

损计算 (10%), 所以产额的最大不确定度为 6%, 截面的最大不确定度为 12%.

表 1 和 2 分别给出了 H^+ 和 Ar^{11+} 激发的 Si 的 K 壳层 X 射线单粒子产额和产生截面数据. 正如图 1 所示, 随着入射能量的增加, X 射线的产额和产生截面都随之增加. 2.0 MeV 的 Ar^{11+} 的单核子能量为 50 keV/u , 其激发 Si 的 K 壳层 X 射线的产生截面约为 50 keV H^+ 入射时的 3000 倍, 即单核子能量相同的情况下, 重离子引起 X 射线发射截面比质子入射时要大的多.

表 1 H^+ 激发 Si 的 K 壳层 X 射线产额和产生截面

入射能量/keV	产额	截面/barn
50	$6.49 \pm 0.39 \times 10^{-9}$	0.036 ± 0.004
100	$4.51 \pm 0.27 \times 10^{-7}$	1.150 ± 0.140
125	$1.31 \pm 0.08 \times 10^{-6}$	2.520 ± 0.300
150	$3.30 \pm 0.20 \times 10^{-6}$	4.990 ± 0.600
175	$6.88 \pm 0.41 \times 10^{-6}$	8.430 ± 1.010
200	$1.30 \pm 0.08 \times 10^{-5}$	13.200 ± 1.600
225	$2.31 \pm 0.14 \times 10^{-5}$	20.000 ± 2.400
250	$3.69 \pm 0.22 \times 10^{-5}$	27.800 ± 3.300

表 2 Ar^{11+} 离子激发 Si 的 K 壳层 X 射线产额和产生截面

入射能量/keV	产额	截面/barn
1.0	$1.01 \pm 0.06 \times 10^{-4}$	42.6 ± 5.1
1.5	$2.21 \pm 0.13 \times 10^{-4}$	81.3 ± 9.8
2.0	$3.62 \pm 0.22 \times 10^{-4}$	112.8 ± 13.5
2.5	$5.35 \pm 0.32 \times 10^{-4}$	146.4 ± 17.6
3.0	$7.20 \pm 0.43 \times 10^{-4}$	177.2 ± 21.3

3.3 理论计算结果与实验截面的比较

X 射线产生截面的理论值可由内壳层电离截面得到 [18]: $\sigma_X = \sigma_i \cdot \omega$, 其中 σ_i 是内壳层电离截面, ω 是荧光产额. 对于 Si, 单电离的荧光产额为 0.05 [14]. 图 3 分别给出了 H^+ 和 Ar^{11+} 激发 Si 的 K 壳层 X 射线产生截面的不同理论值 (BEA, PWBA, ECPSS) 与实验值的比值随入射能量的变化, 其中理论值为单电离理论值.

从图 3 可以看出, H^+ 入射时, 在能量为 50 keV 处, BEA 和 PWBA 理论值比实验值大约高一个量级, 随着入射能量的增加, 理论和实验之间的差别减小, 但是在实验能量范围内, 仍然高于实验值. 对

于 ECPSSR 理论值, 50 keV 时与实验的偏差最大约为 25%, 其他能量时的偏差不超过 8%, 在整个实验范围内都与实验值符合得较好. 这表明, 在 10^2 keV 的低能碰撞系统中, ECPSSR 仍然是预测轻离子激发 X 射线发射截面最合适的理论.

Ar^{11+} 入射时, ECPSSR 理论至少低估了实验 6 个量级, 说明此理论对于入射离子能量和轨迹以及靶原子轨道电子束缚能和质量的修正过于严重, 不适合用来描述低速高电荷态离子引起的靶原子内壳层电子的电离. PWBA 理论虽然在 2 MeV 时跟实验值较为接近, 但在能量低于 2 MeV 时低估了实验值, 而在能量大于 2 MeV 时又高估了实验值, 随着能量的增加, 理论值的增加要比实验值的增加快的多. 在同一量级内 BEA 理论整体低估了实验值.

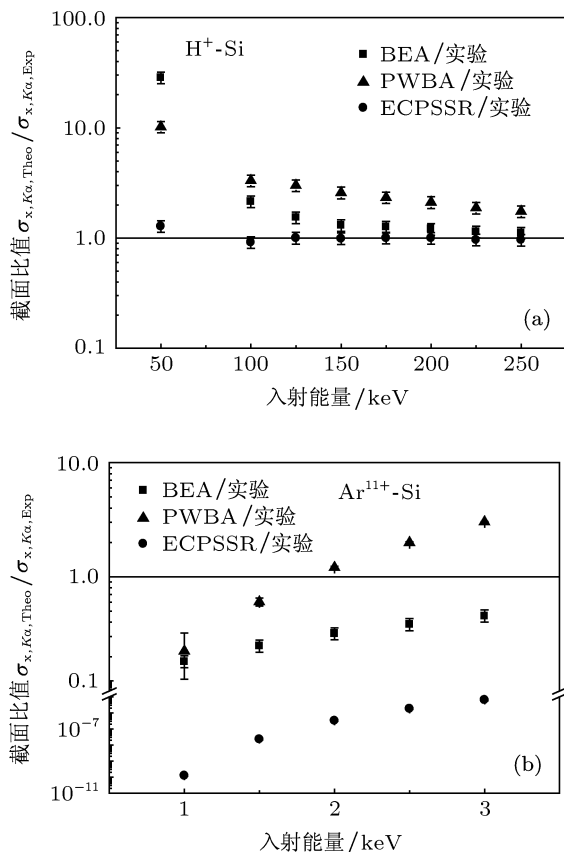


图3 离子激发 Si 的 K 壳层 X 射线发射截面理论值和实验结果的比值 (a) H^+ ; (b) Ar^{11+}

正如 3.2 节讨论, 重离子碰撞会引起靶原子多电离, 在估算 X 射线产生截面时应该考虑到这一点. Banes 等 [19] 已经通过实验证明, 当 L 以及更外壳层的电子被多电离时, K 空穴无辐射退激的几率会减小, K 壳层 X 射线的荧光产额会增加, 从而导致 X 射线的产生截面增大, 这种现象对于较轻靶原

子来说更为明显. 如果考虑多电离对荧光产额的影响, PWBA 将会整体高估实验值; 而 ECPSSR 理论, 即便是考虑全电离的极限情况 ($\omega = 1$), 依然比实验值最少低 4 个量级. 所以, 这里我们利用考虑多电离后的 BEA 理论 (BEA+MI) 与实验结果进行对比.

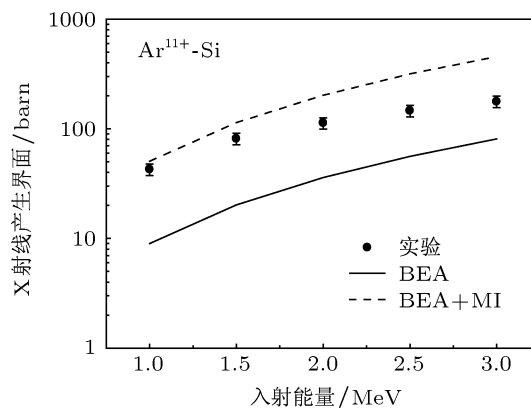


图4 Ar^{11+} 激发 Si 的 K 壳层 X 射线产生截面 BEA 理论值与实验值的对比: BEA 为单电离模拟, BEA+MI 为多电离模拟

根据 Tains 等 [20] 给出的 L 壳层多电离时 K 壳层 X 射线荧光产额计算公式, 以及 Karim 对不同电离态 Si 的荧光产额的计算值, 当 L 壳层有 4 个电子被多电离时, Si 的 K 壳层 X 射线荧光产额最大为 0.282, 约为单电离的 5.6 倍 [21]. 如图 4 所示, 当考虑多电离对荧光产额的最大影响时, BEA 理论整体高估了实验值, 实验值恰好处于单电离和多电离的理论值之间. 不同的多电离态对荧光产额的影响各不相同, 不同碰撞能下产生靶原子的多电离态可能各不相同, 使用合适的多电离荧光产额数据, BEA 理论将会对实验结果给出很好的预测. 因此, 我们认为低速高电荷态重离子引起靶原子内壳层的电离过程可以看成半经典的两体碰撞过程, 相应 X 射线的发射过程应该考虑多电离的影响.

4 结论

本文对比了低速 H^+ 和 Ar^{11+} 入射到 Si 固体表面时的 X 射线辐射, 计算了 Si 的 K 壳层 X 射线产生截面, 并将理论值与实验值进行了比较. 实验结果表明, 单核子能量相同时, Ar^{11+} 激发的 Si 的 K 壳层 X 射线产生截面比质子入射时约大 3 个量级. 质子入射时, X 射线辐射主要来源于单电离的 Si 原子; X 射线产生截面与用单电离的 ECPSSR 理论符合较好. 高电荷态 Ar^{11+} 重离子入射时, 引起了靶原子 L 壳层 3, 4 个电子的多电离, 使得 X 射线

向着高能方向移动约 36 eV; Si 原子 K 壳层的电离过程可以看成是 Ar^{11+} 与 K 壳层电子的两体碰撞过程, 在模拟 X 射线产生截面时应该用 BEA 模型并同时考虑多电离对荧光产额的影响.

感谢兰州重离子加速器国家实验室 320 kV 高电荷态离子综合研究平台全体工作人员的辛勤工作.

-
- [1] Burgdorfer J, Lerner P, Meyer F 1991 *Phys. Rev. A* **44** 5674
- [2] 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.* **55** 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]
- [3] Xu Q M, Yang Z H, Du S B, Chang H W, Zhang Y P 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 093202 (in Chinese) [徐秋梅, 杨治虎, 杜树斌, 常宏伟, 张艳萍 2011 物理学报 **60** 093202]
- [4] Lugo-Licona M, Miranda J 2004 *Nucl. Instrum. Meth. B* **189** 8
- [5] Wang X, Zhao Y T, Cheng R, Zhou X M, Xu G, Sun Y B, Lei Y, Wang Y Y, Ren J R, Yu Y, Li Y F, Zhang X A, Li Y Z, Liang C H, Xiao G Q 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 193201 (in Chinese) [王兴, 赵永涛, 程锐, 周贤明, 徐戈, 孙渊博, 雷瑜, 王瑜玉, 任洁茹, 虞洋, 李永峰, 张小安, 李耀宗, 梁昌慧, 肖国青 2012 物理学报 **61** 193201]
- [6] Slabkowska K, Polasik M 2003 *Nucl. Instrum. Meth. B* **205** 123
- [7] Wanga P, MacFarlane J J, Moses G A 1995 *Laser Part. Beams* **13** 191
- [8] Bhalla C P, Richard P 1973 *Phys. Lett. A* **45** 19
- [9] McGuire C P, Richards P 1973 *Phys. Rev. A* **8** 1374
- [10] Liu Z Q, Cipolla S J 1996 *Comput. Phys. Commun.* **97** 315
- [11] Lapick Gi, McDaniel F D 1981 *Phys. Rev. A* **23** 975
- [12] Meyerhof W E, Anholt R, Saylor T K, Lazarus S M, Little A, Chase L F 1976 *Phys. Rev. A* **14** 1653
- [13] Awaya Y, Kambara T, Kanai Y 1999 *Int. J. Mass Spectrom.* **192** 49
- [14] Krause M O 1979 *J. Phys. Chem. Ref.* **8** 307
- [15] Garcia J D, Fortner R J, Kavanagh T M 1973 *Rev. Mod. Phys.* **45** 111
- [16] <http://www.srim.org/>
- [17] Hubbell J H 1969 *Lawrence Livermore National Laboratory Report UCRL-50174*
- [18] Miranda J, Lucio de O J, Lugo-Licona M F 2007 *Rev. Mex. Fis. S* **53** 29
- [19] Banas D, Pajek M 2002 *Nucl. Instrum. Meth. B* **195** 233
- [20] Tanis J A, Shafroth S M, Jacobs W W, Mcabee T, Lapicki G 1985 *Phys. Rev. A* **31** 750
- [21] Karim K K 2011 *J. Quant. Spectrosc. Rad. Trans.* **112** 1026

Study of Si *K*-shell X-ray emission induced by H^+ and Ar^{11+} ions*

Zhou Xian-Ming¹⁾ Zhao Yong-Tao^{1)†} Cheng Rui¹⁾ Wang Xing¹⁾ Lei Yu¹⁾
Sun Yuan-Bo¹⁾ Wang Yu-Yu¹⁾ Xu Ge¹⁾ Ren Jie-Ru¹⁾ Zhang Xiao-An²⁾
Liang Chang-Hui²⁾ Li Yao-Zong²⁾ Mei Ce-Xiang²⁾ Xiao Guo-Qing¹⁾

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

2) (*School of Physics and Electronic Engineering, Normal College of Xianyang, Xianyang 712000, China*)

(Received 21 November 2012; revised manuscript received 19 December 2012)

Abstract

The *L*-shell X-rays of Si, induced by 50–250 keV proton and 1.0–3.0 MeV Ar^{11+} ions impacting are measured. It is found that the X-ray induced by Ar^{11+} is about 36 eV higher than that induced by proton. That indicates that 3, 4 *L*-shell electrons of Si atom are multiply-ionized by Ar^{11+} ion impact. The X-ray production cross section is extracted from the yield data and compared with the results from the BEA, PWBA and ECPSSR models. With the same unit incident energy, the cross section induced by Ar^{11+} is about 3 orders of magnitude larger than that produced by proton. For proton impact, the ECPSSR model gives an accurate prediction to the cross section data. However, the BEA model, considering the change of fluorescence yield due to the multiple-ionization, presents the results that are in better agreement with the experimental results for Ar^{11+} ions.

Keywords: X-ray, highly charged heavy ion, multiple-ionization

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

DOI: 10.7498/aps.62.083201

* Projectile supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2010CB832902) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11275241, 11205225, 11105192, 11275238).

† Corresponding author. E-mail: zhaoyt@impcas.ac.cn