

30 keV H<sup>+</sup> 在聚碳酸酯微孔膜中动态输运过程的实验和理论研究

牛书通 潘鹏 朱炳辉 宋涵宇 金屹磊 禹楼飞 韩承志 邵剑雄 陈熙萌

Experimental and theoretical research on the dynamical transmission of 30 keV H<sup>+</sup> ions through polycarbonate nanocapillaries

Niu Shu-Tong Pan Peng Zhu Bing-Hui Song Han-Yu Jin Yi-Lei Yu Lou-Fei Han Cheng-Zhi Shao Jian-Xiong Chen Xi-Meng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 203401 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20181062

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20181062>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I20>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[100 keV 质子与低高能质子在绝缘微孔中输运特性的对比分析](#)

Simulation analyses of 100-keV as well as low and high energy protons through insulating nanocapillary  
物理学报.2018, 67(1): 013401 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.20171701>

[20 keV 质子在聚碳酸酯微孔膜中传输的动态演化过程](#)

Dynamic evolution of 20-keV H<sup>+</sup> transmitted through polycarbonate nanocapillaries  
物理学报.2017, 66(9): 093401 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.093401>

[100-keV 质子在聚碳酸酯微孔膜中传输的动态演化过程](#)

Dynamic evolution of 100-keV H<sup>+</sup> through polycarbonate nanocapillaries  
物理学报.2016, 65(10): 103401 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103401>

[近玻尔速度氙离子激发钒的K壳层X射线](#)

Vanadium K-shell X-ray emission induced by xenon ions at near the Bohr velocity  
物理学报.2016, 65(2): 027901 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.027901>

[Mg-CO\(X<sup>1</sup>Σ<sup>+</sup>\) 体系的冷碰撞动力学](#)

Collision dynamic behaviors of CO(X<sup>1</sup>Σ<sup>+</sup>) molecule with Mg atom in cold and ultracold temperatures  
物理学报.2015, 64(10): 103402 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.103402>

# 30 keV $H^+$ 在聚碳酸酯微孔膜中动态输运过程的实验和理论研究\*

牛书通 潘鹏 朱炳辉 宋涵宇 金屹磊 禹楼飞 韩承志  
邵剑雄<sup>†</sup> 陈熙萌<sup>‡</sup>

(兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000)

(2018年5月30日收到; 2018年7月27日收到修改稿)

测量了30 keV的 $H^+$ 入射倾斜角度为 $-1^\circ$ 和 $-2^\circ$ 的聚碳酸酯微孔膜后, 出射粒子二维分布图、角度分布、相对穿透率以及出射 $H^+$ 电荷态纯度随沉积电荷的演化. 实验中30 keV的 $H^+$ 在微孔膜中输运特性与之前其他能区离子在微孔膜中输运特性有显著不同, 实验中直接观测到出射粒子导向部分和散射部分的动态演化过程, 出射的 $H^+$ 由沿微孔孔轴方向的导向 $H^+$ 和沿入射束流方向的散射 $H^+$ 两部分组成, 随着微孔内电荷斑的沉积, 出射的导向 $H^+$ 的占比不断减小, 出射散射 $H^+$ 占比不断增加; 出射 $H^0$ 占总出射粒子的比例不断减小, 其中心方向逐步向入射束流方向偏转. 微孔膜处于不同倾斜角度时, 微孔内沉积电荷斑的位置和电场强度是不同的. 同时模拟计算了入射 $H^+$ 在微孔内部的运动轨迹、微孔内部电荷斑电势和场强分布, 实验结果和理论结果得到了很好的验证. 对出射离子导向部分和散射部分的动态演化过程的观测和理论解释, 使得对中能区离子在微孔膜中输运机制有更好的认识.

**关键词:** 输运特性, 动态演化, 理论模拟

**PACS:** 34.50.-s, 79.20.Rf, 68.49.Sf

**DOI:** 10.7498/aps.67.20181062

## 1 引言

由于微孔膜材料的独特性能和应用潜力<sup>[1,2]</sup>, 利用离子束流在微孔膜中的输运过程的研究成为观测微孔膜的电特性和控制微束<sup>[3,4]</sup>的一种重要手段. 不同的研究组利用不同能量的不同类型的离子与微孔膜的输运过程中发现了不同的实验现象和物理机制<sup>[5-8]</sup>.

Stolterfoht等<sup>[5]</sup>在研究低能( $10^0$  keV量级)离子在微孔中的输运过程时发现“导向效应”, 他们使用3 keV的 $Ne^{7+}$ 离子入射一定倾斜角度的聚对苯二甲酸乙二醇酯微孔膜, 实验发现离子沿微孔孔轴方向出射并且电荷态保持不变. 研究表明微孔内壁随着时间演化逐个形成的自组织电荷斑倾向于抵消入射离子横向动量, 从而使入射离子沿微孔孔轴方向出射<sup>[9-14]</sup>. 高能区(MeV量级)离子在微孔中

的输运过程同样得到研究, 当高能离子入射锥形玻璃管时发现微孔内壁沉积的电荷斑对高能离子穿过微孔没有影响<sup>[8,15,16]</sup>. 这是由于入射离子的能量过大, 微孔内沉积的电荷斑不能使入射高能离子的轨迹发生偏转, 入射离子直接进入微孔内壁以下并发生多次随机非弹性碰撞过程.

为了研究中能区( $10^1-10^2$  keV量级)离子在微孔中的输运特性, 周旺等<sup>[17]</sup>开展了100 keV的 $H^+$ 在聚碳酸酯(PC)微孔膜中输运过程的研究, 出射粒子的中心峰位从微孔孔轴方向逐步偏转到入射束流方向. 随后的研究发现无电荷斑时, 主要是以表面以下的随机二体碰撞为传输机制; 当达到充放电平衡后, 主要传输机制为电荷斑辅助的近表面镜面散射行为<sup>[18]</sup>.

由于中能离子的横向动量大于低能离子的横向动量而小于高能离子的横向动量, 因此微孔内壁沉积电荷斑和离子在表面原子层散射作用对中能

\* 国家自然科学基金(批准号: 11675067)资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: shaojx@lzu.edu.cn

<sup>‡</sup> 通信作者. E-mail: chenxm@lzu.edu.cn

离子的出射方向有重要影响. 出射离子中散射离子部分和导向离子部分之间的动态演化过程以及微孔中电势和电场的演化过程还没有很好的模拟解释, 同时中能离子微束在离子注入和单细胞辐照等领域有广阔的应用前景, 因此中能离子在微孔中的运输过程的解释仍需要进一步完善.

在本工作中, 我们测量了 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  和  $-2^\circ$  的 PC 微孔膜后的二维分布图, 出射粒子相对穿透率及电荷态纯度分布随时间的演化特性. 出射的  $H^+$  由沿微孔孔轴方向出射的导向  $H^+$  和沿入射束流方向出射的散射  $H^+$  两部分组成, 随着微孔内沉积电荷的增加, 出射的导向  $H^+$  占比不断减小, 散射  $H^+$  占比不断增加. 实验结果很好地呈现了中能离子在微孔中的导向离子和散射离子的动态演化过程, 并对这一过程进行很好的理论解释, 对研究中能离子在微孔膜的运输过程有更好的帮助.

## 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上进行的, 实验示意图如图 1 所示. 由 14.5 GHz 电子回旋共振离子源产生 30 keV  $H^+$  经过两个狭缝和前偏转板的准直后轰击到倾斜的 PC 微孔膜上. PC 微孔膜的厚度为 30  $\mu\text{m}$ , 孔的直径为 200 nm (深宽比 150 : 1, 对应的几何张角为  $0.38^\circ$ ), 为防止束流在微孔膜表面形成的充电效应, 在微孔膜前后平面镀有 30 nm 厚的金层<sup>[19]</sup>. 图 1 (a) 为 PC 微孔膜的扫描电子显微镜图像. 同时靶室的真空稳定在  $10^{-6}$  Pa 左右, 出射离子经过垂直方向的静电偏转板的电荷分离后, 被二维位置灵敏探测器记录. 图 1 (b) 为二维位置探测器记录的出射粒子二维分布图, 其中上束斑为  $H^+$  离子, 下束斑为  $H^0$  原子.

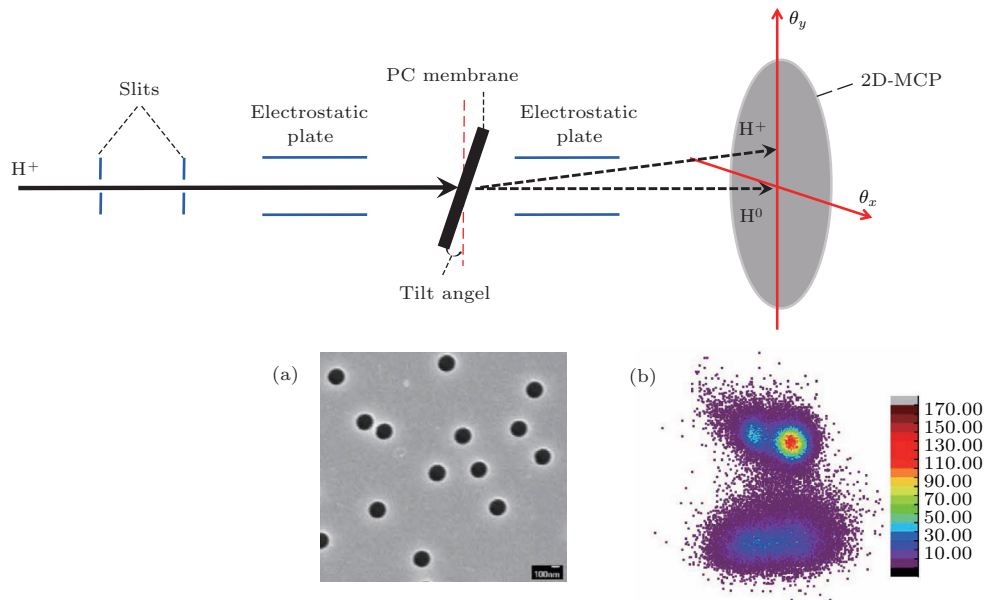


图 1 实验装置示意图 (a) PC 微孔膜扫描电子显微镜图像; (b) 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  的微孔膜后出射粒子二维分布图

Fig. 1. The schematic view of the setup for the ion transmission experiments: (a) Scanning electron microscope (SEM) image of the PC nanocapillary membrane; (b) the typical 2D spectrum of transmitted particles with 30 keV incident energy and with a tilt angel of  $-1^\circ$ .

## 3 实验结果

在这一部分展示 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  和  $-2^\circ$  的 PC 绝缘微孔膜后出射粒子的二维分布图和出射粒子在  $x$  轴投影谱图的演化过程.

### 3.1 30 keV 的 $H^+$ 在倾斜角度为 $-1^\circ$ 的 PC 绝缘微孔膜中的运输过程

图 2 给出了 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  的 PC 微孔膜后出射粒子的二维分布图和出射粒子角分布图演化过程. 在实验开始阶段时, 见图 2 (a), 出射粒子二维谱图由上束斑  $H^+$  束斑和下束斑  $H^0$  束

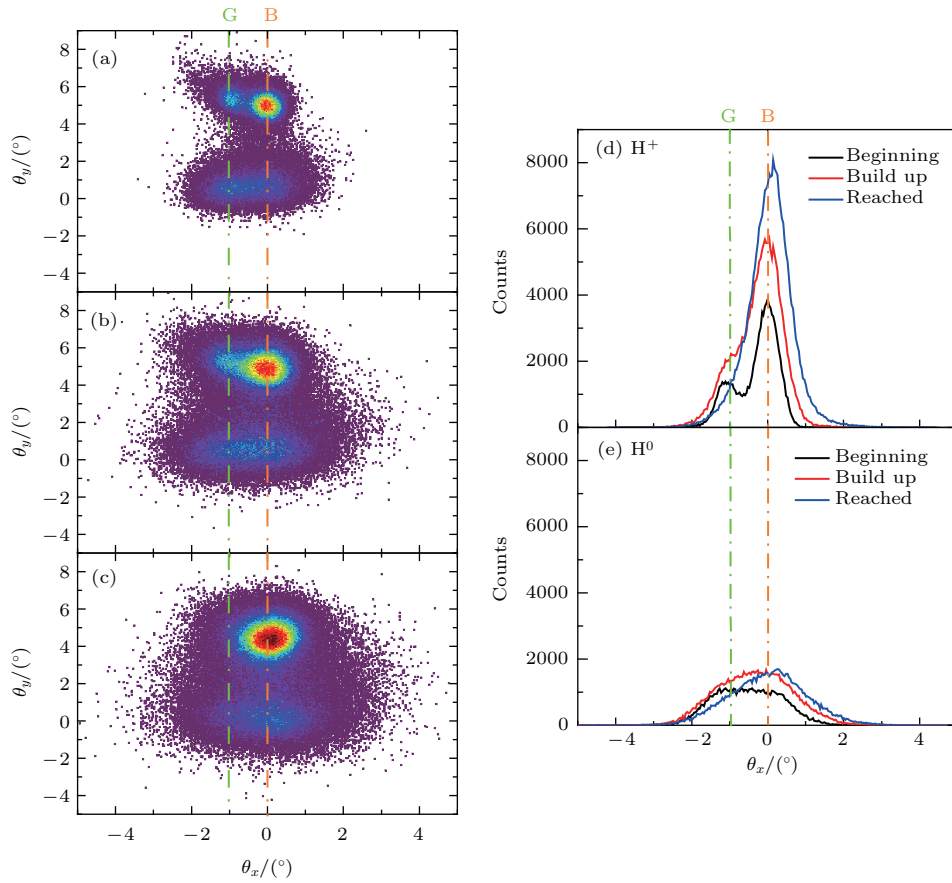


图2 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  的 PC 微孔膜后出射粒子的二维分布谱图以及出射  $H^+$  和  $H^0$  在  $x$  轴方向上的投影分布图 (a) 实验刚开始阶段的二维谱图; (b) 平衡建立阶段的二维谱图; (c) 达到平衡后的二维谱图; (d)  $H^+$  束斑在  $x$  轴方向的投影分布图; (e)  $H^0$  束斑在  $x$  轴方向的投影分布图; 图 (d), (e) 中黑线、红线和蓝线分别代表图 (a), (b) 和 (c) 的投影数据, 其中 B 线表示入射束流方向, G 线表示微孔孔道方向

Fig. 2. The typical two-dimensional spectrum and the projections of  $H^+$  and  $H^0$  in the  $x$ -axis direction of the transmitted particles after 30 keV  $H^+$  transmitted through the nanocapillaries with a tilt angle of  $-1^\circ$ : (a) 2D spectra were recorded at the beginning stage; (b) 2D spectra were recorded at the build up stage; (c) 2D spectra were recorded at the reached stage; (d) the projections of the 2D spectra of  $H^+$  along the  $x$ -axis direction; (e) the projections of the 2D spectra of  $H^0$  along the  $x$ -axis direction. The black, red, and blue solid lines present the projection data in (a), (b) and (c). The green dash dot lines and orange dash dot lines present the beam direction and guiding direction, respectively.

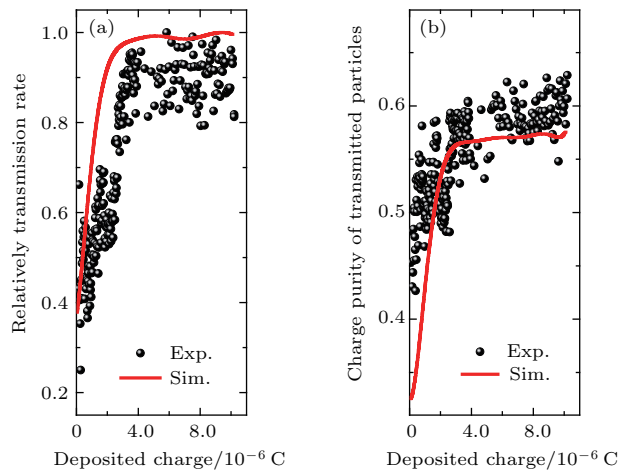


图3 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  的 PC 微孔膜后, 出射离子的相对穿透率和电荷态纯度随沉积电荷的演化过程 (a) 相对穿透率; (b) 电荷态纯度

Fig. 3. The evolution of the relatively transmission rate and the charge purity of the transmitted  $H^+$  ions for 30 keV  $H^+$  transmitted through the PC nanocapillary at the tilt angle of  $-1^\circ$ : (a) Relatively transmission rate; (b) charge purity.

斑两部分组成, 其中出射  $H^+$  束斑由沿  $0^\circ$  方向出射的散射  $H^+$  束斑和沿  $-1^\circ$  方向出射的导向  $H^+$  束斑两个峰组成. 在实验平衡建立阶段, 见图 2(b), 出射  $H^+$  的谱图演化为沿  $0^\circ$  方向出射的散射  $H^+$  主峰和沿  $-1^\circ$  方向出射导向  $H^+$  肩部的叠加. 当达到充放电平衡阶段时, 见图 2(c), 出射  $H^+$  束斑主要由散射  $H^+$  束斑组成. 出射  $H^0$  离子的角度分布演化过程见图 2(e), 随着微孔沉积电荷的增多, 出射  $H^0$  的中心角度逐渐偏转到入射束流方向, 出射  $H^0$  占总出射粒子的份额不断减少.

图 3(a) 和图 3(b) 分别给出 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  的 PC 微孔膜后, 出射粒子的相对穿透率和出射  $H^+$  的电荷态纯度随沉积电荷的演化

过程. 在测量初期, 出射粒子的相对穿透率在 25% 左右, 随着微孔内沉积电荷增加, 出射粒子的相对穿透率迅速增加到 90%, 并保持稳定; 出射  $H^+$  的电荷态纯度在 45%, 随着实验进行出射  $H^+$  的电荷态纯度增加到 60% 并保持稳定.

### 3.2 30 keV $H^+$ 在倾斜角度为 $-2^\circ$ 的 PC 绝缘微孔膜中的输运过程

图 4(a)–(e) 给出了 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-2^\circ$  的 PC 微孔膜后出射粒子的二维分布图和出射粒子角度分布图的演化过程. 从图 4 上得到  $H^+$  在倾斜角度为  $-2^\circ$  微孔膜中的演化过程与  $H^+$  在倾斜角度为  $-1^\circ$  微孔膜中的演化过程基本一致,

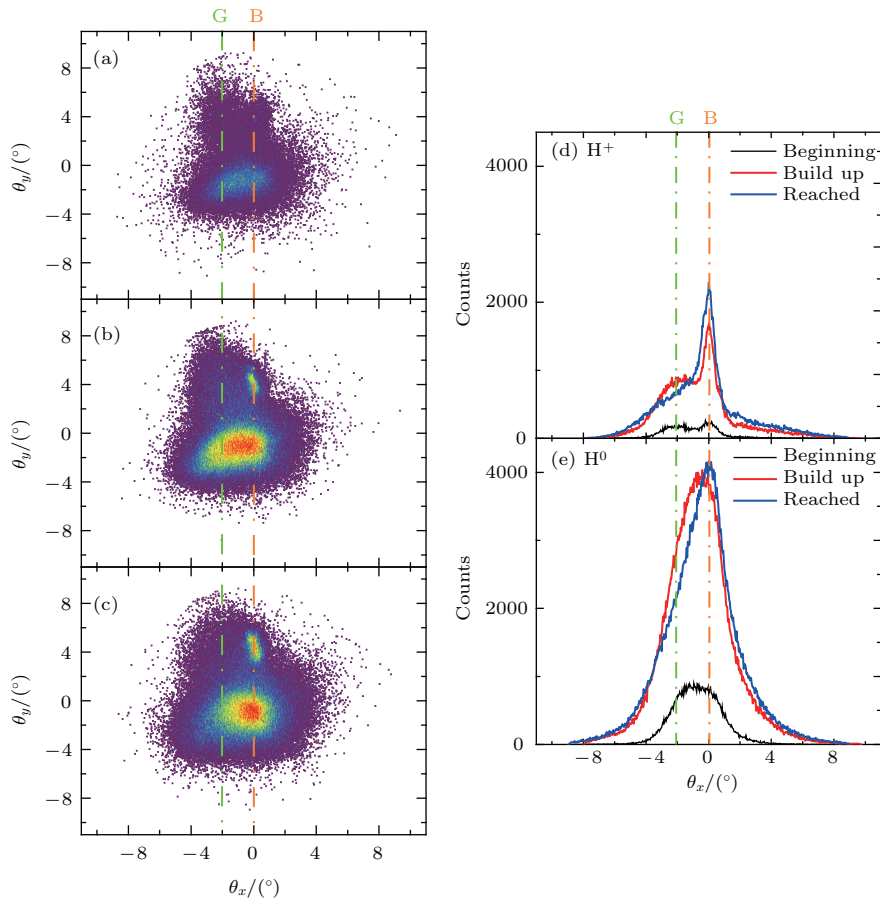


图 4 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-2^\circ$  的 PC 微孔膜后出射粒子的二维分布谱图以及  $H^+$  和  $H^0$  在  $x$  轴方向上的投影 (a) 实验刚开始阶段的二维谱图; (b) 平衡建立阶段的二维谱图; (c) 达到平衡后的二维谱图; (d)  $H^+$  束斑在  $x$  轴方向的投影分布图; (e)  $H^0$  束斑在  $x$  轴方向的投影分布图; 图 (d), (e) 中黑线, 红线和蓝线分别代表图 (a), (b) 和 (c) 的投影数据

Fig. 4. The two-dimensional spectrum and the projections of  $H^+$  and  $H^0$  in the  $x$ -axis direction of the transmitted particles after 30 keV  $H^+$  transmitted through the nanocapillaries with a tilt angle of  $-2^\circ$ : (a) 2D spectra were recorded at the beginning stage; (b) 2D spectra were recorded at the build up stage; (c) 2D spectra were recorded at the reached stage; (d) the projections of the 2D spectra of  $H^+$  along the  $x$ -axis direction; (e) the projections of the 2D spectra of  $H^0$  along the  $x$ -axis direction. The black, red, and blue solid line present the projection data in (a), (b) and (c). The green dash dot lines and orange dash dot lines present the beam direction and guiding direction, respectively.

即出射粒子束斑由出射H<sup>+</sup>束斑和H<sup>0</sup>束斑两部分组成. 实验开始时, 出射H<sup>+</sup>束斑由沿-2°方向出射的导向H<sup>+</sup>束斑和沿0°方向出射的散射H<sup>+</sup>束斑两部分组成; 随着微孔内充电过程的进行, 出射H<sup>+</sup>中导向H<sup>+</sup>的相对份额不断减小, 散射H<sup>+</sup>的相对份额不断增加, 同时出射H<sup>0</sup>的中心角度逐渐偏转到入射束流方向, 出射H<sup>0</sup>占总出射粒子的份额不断减少.

图5(a)和图5(b)分别给出30 keV的H<sup>+</sup>入射倾斜角度为-2°的PC微孔膜后出射粒子的相对穿透率和出射H<sup>+</sup>的电荷态纯度随沉积电荷的演化过程. 在实验测量初期出射粒子相对穿透率从55%迅速增加到95%左右并保持稳定. 出射H<sup>+</sup>的电荷态纯度从20%增加到25%并保持稳定, 对于处于-2°微孔膜的出射H<sup>+</sup>电荷态纯度小于-1°.

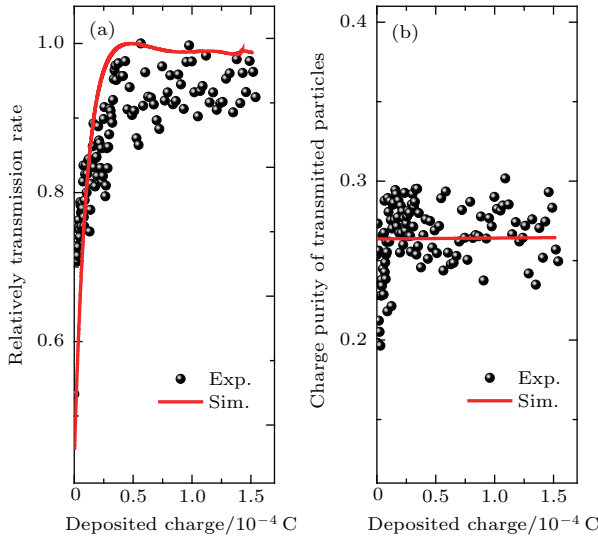


图5 30 keV的H<sup>+</sup>入射倾斜角度为-2°的PC微孔膜后, 出射离子的相对穿透率和电荷态纯度随沉积电荷的演化过程 (a) 相对穿透率; (b) 电荷态纯度

Fig. 5. The evolution of the relatively transmission rate and the charge purity of the transmitted H<sup>+</sup> ions for 30 keV H<sup>+</sup> transmitted through the PC nanocapillary at the tilt angle of -2°: (a) Relatively transmission rate; (b) charge purity.

通过对30 keV的H<sup>+</sup>入射倾斜角度为-1°和-2°的PC微孔膜的实验结果分析, 出射H<sup>+</sup>束斑由沿微孔孔轴方向出射的导向H<sup>+</sup>束斑和沿入射束流方向出射的散射H<sup>+</sup>束斑两部分组成, 随着微孔内电荷沉积, 导向H<sup>+</sup>束斑相对份额不断减小, 而散射H<sup>+</sup>束斑相对份额不断增加, 即直接在实验中观察到微孔内导向部分和散射部分之间的演化过程; 出射H<sup>0</sup>中心角度逐步偏转到入射束流方向, 出射H<sup>0</sup>相对份额不断减小. 当微孔膜倾斜角度为-1°

时, 出射的H<sup>+</sup>占总出射粒子的大部分, 出射的H<sup>0</sup>占小部分; 当微孔膜倾斜角度为-2°时, 出射的H<sup>0</sup>占总出射粒子的大部分, 出射的H<sup>+</sup>占小部分. 这种不同是由于入射的H<sup>+</sup>在-2°时横向动量大于在-1°时的横向动量, 需要沉积更多的电荷才能避免入射H<sup>+</sup>与微孔内表面发生电荷交换.

#### 4 理论模型

为了解释30 keV的H<sup>+</sup>入射倾斜角度为-1°和-2°的PC微孔膜演化特性, 需对30 keV的H<sup>+</sup>入射倾斜角度为-1°和-2°的PC微孔膜的输运过程进行理论解释.

30 keV的H<sup>+</sup>在微孔膜输运过程中受到三种类型的作用, 入射的H<sup>+</sup>在距离微孔内表面较远时会受到微孔内表面沉积电荷斑的库仑排斥作用, 库仑排斥作用抵消入射H<sup>+</sup>横向动量, 使入射H<sup>+</sup>沿微孔孔轴方向出射; 随着入射H<sup>+</sup>运动到微孔内壁的近表面区域时, 会受到微孔内表面几层原子的短程集体散射的作用, 使入射H<sup>+</sup>以类似“镜面掠射”方式从入射束流方向出射; 当H<sup>+</sup>入射到微孔内表面以下时, 粒子与表面以下的靶原子会发生多次碰撞, 在碰撞过程中使入射粒子忘记入射时初始信息, 使粒子运动更加无规则<sup>[17,18]</sup>. 下面对这三个过程进行进一步分析.

当30 keV的H<sup>+</sup>运动到微孔表面以上并进入电荷交换距离附近时, 入射的H<sup>+</sup>从微孔内壁的原子中俘获电子, 同时在微孔内壁形成一个带正电荷的电荷斑. 微孔内沉积的电荷势H<sub>G</sub>为

$$H_G = \frac{Z_p}{4\pi\epsilon_0} \sum \frac{q_i}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|}, \quad (1)$$

其中Z<sub>p</sub>为入射H<sup>+</sup>的核电荷数, q<sub>i</sub>和r<sub>i</sub>为沉积第i个入射离子的电荷态和位置矢量.

同时通过研究发现微孔内沉积的电荷斑以体扩散的方式进行缓慢衰减<sup>[20,21]</sup>. 其在dt时间内衰减规律为

$$Q(t + dt) = Q(t) e^{-dt/\tau_d}, \quad (2)$$

其中Q(t)为t时间内沉积的电荷量, τ<sub>d</sub>为微孔膜的放电常数, 在模拟计算中取τ<sub>d</sub>为5 min<sup>[22]</sup>.

当入射的H<sup>+</sup>接近到微孔的表面时, 微孔内表面的原子会对入射H<sup>+</sup>离子有集体散射力的作用. 模拟中采用散射势为Molier势H<sub>S</sub><sup>[23]</sup>,

$$H_S = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum \frac{Z_p Z_t}{r_i} (0.35 e^{-0.3r_{si}/p} + 0.35 e^{-1.2r_{si}/p} + 0.35 e^{-6.0r_{si}/p}), \quad (3)$$

$$p = 0.8853a_0(Z_p^{2/3} + Z_t^{2/3})^{-1/2}, \quad (4)$$

其中  $r_{si}$  为入射离子与微孔内表面第  $i$  个表面原子的距离,  $Z_t$  为靶原子的核电荷数,  $p$  为屏蔽长度,  $a_0$  为玻尔半径.

结合以上分析, 当入射能量为  $E_k$  的  $H^+$  在微孔表面以上运动时, 主要受到微孔沉积电荷斑的库仑排斥作用和微孔内表面原子的集体散射作用. 其哈密顿量  $H_U$  为

$$H_U = E_k + H_G + H_S. \quad (5)$$

当入射  $H^+$  接近微孔内表面并到达电荷交换距离时, 入射  $H^+$  从微孔内表面原子中俘获电子变为氢原子, 这时只受到微孔内表面原子的集体散射作用, 其哈密顿量  $H_U$  为

$$H_U = E_k + H_S. \quad (6)$$

通过求解哈密顿方程 (5) 和 (6) 得到入射  $H^+$  在微孔表面运动方程的广义坐标  $q_a$  和广义动量  $p_a$  为

$$\dot{q}_a = \frac{\partial H_U}{\partial p_a}, \quad (7)$$

$$\dot{p}_a = -\frac{\partial H_U}{\partial q_a}. \quad (8)$$

当 30 keV 的  $H^+$  进入到微孔内表面以下时, 主要作用是微孔内表面以下原子的多次随机非弹性碰撞过程, 使用蒙特卡罗模拟计算  $H^+$  与微孔内原子核的库仑相互作用. 两者之间的卢瑟福散射截面为

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{b^2}{16\sin^4(\theta/2)}, \quad (9)$$

$$b = \frac{Z_p Z_t e^2}{4\pi\epsilon_0 E_c}, \quad (10)$$

其中  $b$  为碰撞距离,  $\theta$  为离子的散射角,  $E_c$  为质心系下的碰撞能量.

通过对微分截面积分, 得到总反应截面  $\sigma_T$  为

$$\sigma_T = \int_{\theta_{\min}}^{\pi} \frac{d\sigma}{d\Omega} 2\pi \sin\theta d\theta. \quad (11)$$

为了避免微分截面在点出现歧离, 本次模拟中取一个最小角  $\theta_{\min}$ .

入射的离子散射到  $\theta$  角度的概率  $p(\theta)$  表示为

$$p(\theta) = \frac{1}{\sigma_T} \int_{\theta_{\min}}^{\theta} \frac{d\sigma}{d\Omega} 2\pi \sin\theta d\theta = \frac{(1 - \cos\theta_{\min})^{-1} - (1 - \cos\theta)^{-1}}{(1 - \cos\theta_{\min})^{-1} - 1/2}, \quad (12)$$

根据 (12) 式反推出离子出射角度  $\theta$  为

$$\theta = \cos^{-1} \left[ \frac{(1 - \cos\theta_{\min})^{-1} - (1 - \cos\theta)^{-1}}{(1 - \cos\theta_{\min})^{-1} - 1/2} \right]. \quad (13)$$

由于 30 keV 的  $H^+$  在 PC 材料中的射程为 366 nm,  $H^+$  进入微孔表面以下, 其运动距离超过射程认为离子在表面以下沉积; 对于重新进入到微孔中的离子通过蒙特卡罗随机抽样方法得到二体碰撞中的散射角和出射粒子电荷态, 并对出射粒子电荷态选择对应的哈密顿方程求解随后粒子的运动轨迹, 直至出射粒子从微孔穿出并记录其出射状态.

在模拟质子入射 PC 微孔膜时, 得到一系列出射粒子数并进行归一化处理, 从而得到模拟出射粒子的相对穿透率; 对于出射粒子部分在模拟中记录其出射时电荷态状态, 得到出射粒子的电荷态纯度.

## 5 讨论

下面将对 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  和  $-2^\circ$  的 PC 微孔膜的实验结果和模拟得到的结果进行分析讨论.

### 5.1 30 keV 的 $H^+$ 在倾斜角度为 $-1^\circ$ 的 PC 绝缘微孔膜中的运输过程

图 6 和图 7 分别模拟不同阶段 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  的 PC 微孔膜, 得到入射离子在微孔中运动轨迹、相应的微孔内电场和场强的分布以及出射粒子的角度分布情况.

30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  的 PC 微孔膜的横向能量为 9.1 eV. 在初期阶段, 几乎所有的入射  $H^+$  进入微孔膜内壁表面以下并进行多次的随机二体碰撞而中性化成  $H^0$ , 中性化的  $H^0$  在微孔中的轨迹非常曲折, 最终从微孔孔轴方向出射, 同时表面以下的随机二体碰撞导致出射  $H^0$  角度发散. 由于入射  $H^+$  在微孔入口处沉积导致在微孔入口 0—8  $\mu\text{m}$  的范围内形成了第一个电荷斑, 电荷斑的电势大小为 7 V 左右, 场强大小为  $1.4 \times 10^7$  V/m. 部分入射  $H^+$  在微孔内沉积电荷库仑排斥作用和微孔表面原子层的集体散射作用下, 使入射的  $H^+$  以类似镜面反射的方式出射进入到微孔后半部分,

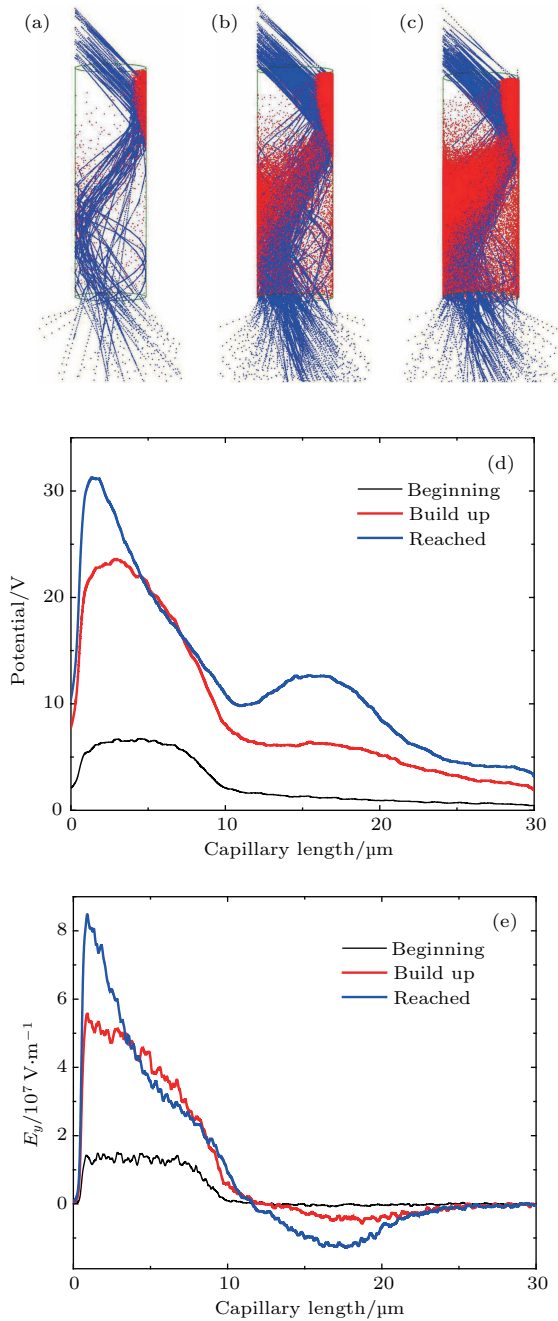


图6 模拟不同阶段 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  的 PC 微孔膜时, 入射  $H^+$  在微孔中的运动轨迹图以及相应的微孔内电场和场强的分布 (a) 开始阶段的运动轨迹图; (b) 平衡建立阶段的运动轨迹图; (c) 达到平衡阶段的运动轨迹图; (d) 微孔内电势随微孔长度的分布图; (e) 电场场强大小随微孔长度的分布图

Fig. 6. Simulated trajectories, potential distribution and electric field intensity distribution in the capillary of transmitted particles for 30 keV  $H^+$  transmitted through the PC nanocapillary at the tilt angle of  $-1^\circ$ : (a) Trajectories at the beginning stage; (b) trajectories at build up stage; (c) trajectories at reached stage; (d) the simulated potential distribution in the capillary; (e) electric field intensity distribution in the capillary during the beginning stage (the black line), build up stage (the red line) and the reached stage (the blue line).

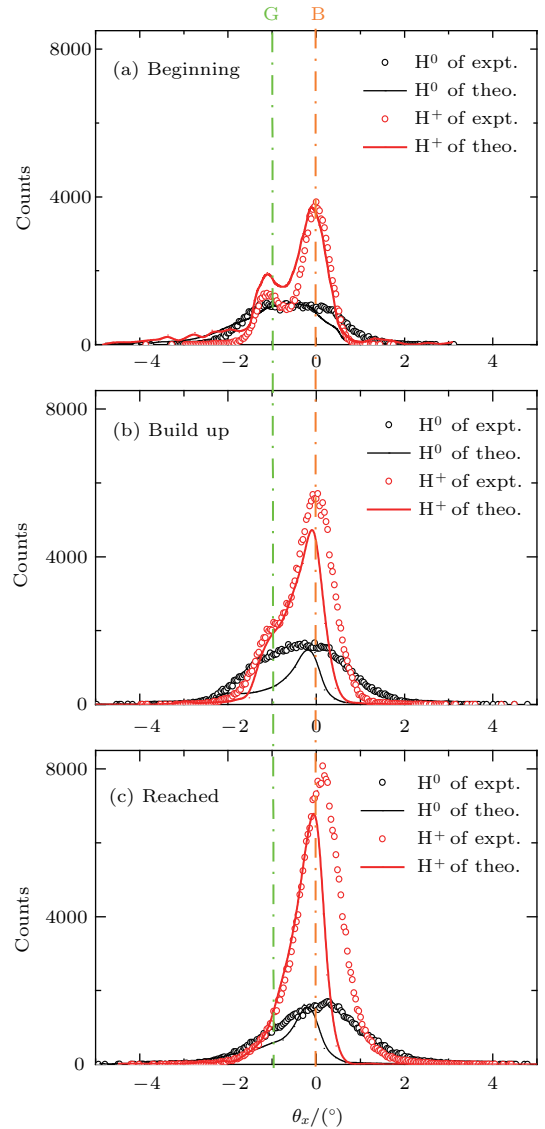


图7 模拟不同阶段 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  的 PC 微孔膜时, 出射粒子的角度分布图 (a) 实验开始阶段; (b) 实验平衡建立阶段; (c) 实验达到平衡阶段

Fig. 7. The angular distributions of transmitted particles for 30 keV  $H^+$  transmitted through the PC nanocapillary at the tilt angle of  $-1^\circ$ : (a) The beginning stage; (b) build up stage; (c) reached stage.

在微孔后半部分以类似镜面反射的方式从入射束流方向出射; 小部分入射  $H^+$  在沉积电荷斑库仑排斥力作用下轨迹发生偏转并从微孔孔轴方向出射, 出射的  $H^+$  由沿  $-1^\circ$  方向出射的导向  $H^+$  小峰和沿  $0^\circ$  方向出射的散射  $H^+$  主峰两部分组成, 该输运特性趋势与图 6(a) 和图 7(a) 描述一致。

随着  $H^+$  的进一步沉积, 如图 6(b) 和图 7(b) 所示, 微孔内第一块电荷斑的电势增加为 24 V 左右, 场强增加到为  $5.4 \times 10^7$  V/m 左右, 在微孔深度为 13—23  $\mu\text{m}$  处形成第二个电荷斑, 电荷斑的电势大小为 6.5 V 左右, 场强大小为  $-0.4 \times 10^7$  V/m,



这里的负号是指第二个电荷斑与第一个电荷斑不在微孔的同一侧. 随着微孔内电荷斑的建立, 入射  $H^+$  进入到微孔内表面以下的概率逐渐减小, 出射  $H^0$  相对占比逐渐减小, 出射  $H^+$  的相对占比逐渐增加. 出射的  $H^+$  在微孔内电荷斑库仑排斥和表面原子的集体散射作用下, 沿  $-1^\circ$  方向出射的导向  $H^+$  相对占比逐渐减小, 沿入射束流方向的散射  $H^+$  相对占比逐渐增加, 出射  $H^+$  谱型为沿微孔孔轴方向的导向  $H^+$  峰肩部和沿入射束流方向的散射  $H^+$  主峰相叠加.

当微孔内充放电平衡后, 微孔内第一块电荷斑的电势增加为 32 V 左右, 场强增加到  $8.4 \times 10^7$  V/m 左右, 在微孔第二个电荷斑的电势大小为 13 V 左右, 场强大小为  $-1.3 \times 10^7$  V/m. 出射  $H^0$  沿入射束流方向出射; 在微孔内两块电荷斑作用下, 沿入射束流方向出射的散射  $H^+$  占总出射  $H^+$  的绝大部分, 沿微孔孔轴方向出射的导向  $H^+$  只占很小一部分, 即在微孔内充放电平衡后, 出射  $H^+$  基本上由沿入射束流方向的散射  $H^+$  组成, 这一点与图 6(c) 和图 7(c) 符合得很好.

图 3 中同样呈现了出射粒子的相对穿透率和电荷态纯度的理论计算结果, 我们发现模拟较好说明了实验的主要趋势. 随着微孔内沉积电荷增加, 有更多的入射离子经过近表面的镜面散射过程从微孔中出射, 这将大大增加入射离子的穿透概率, 电荷斑的库仑排斥作用阻止入射  $H^+$  进入电荷交换距离, 从而显著提高出射  $H^+$  的电荷态纯度.

### 5.2 30 keV 的 $H^+$ 在倾斜角度为 $-2^\circ$ 的 PC 绝缘微孔膜中输运过程

图 8 和图 9 分别展示了模拟不同阶段的 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-2^\circ$  的 PC 微孔膜时得到入射离子在微孔中运动轨迹和相应的微孔内电场和场强的分布以及出射粒子的角度分布情况.

对于 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-2^\circ$  的 PC 微孔膜的横向能量为 36 eV. 实验开始阶段, 如图 8(a) 和图 9(a), 大部分入射  $H^+$  进入微孔膜内壁表面以下并俘获电子转变为  $H^0$ , 出射的  $H^0$  最终从微孔孔轴方向出射, 出射角度发散. 由于微孔内沉积电荷, 在微孔入口 0—6  $\mu\text{m}$  处形成电势大小为 10 V 左右, 场强大小为  $2.4 \times 10^7$  V/m 的电荷斑, 出射的  $H^+$  一部分以类似镜面散射的方向从入射束流方向出射, 一部分  $H^+$  从微孔孔轴方向出射. 在模

拟开始阶段出射的  $H^0$  占总出射粒子的绝大部分, 其半高全宽较宽, 角度发散; 而出射的  $H^+$  占总出射粒子的很小部分, 并且由沿  $-2^\circ$  方向的导向  $H^+$  和沿  $0^\circ$  方向的散射  $H^+$  两部分组成.

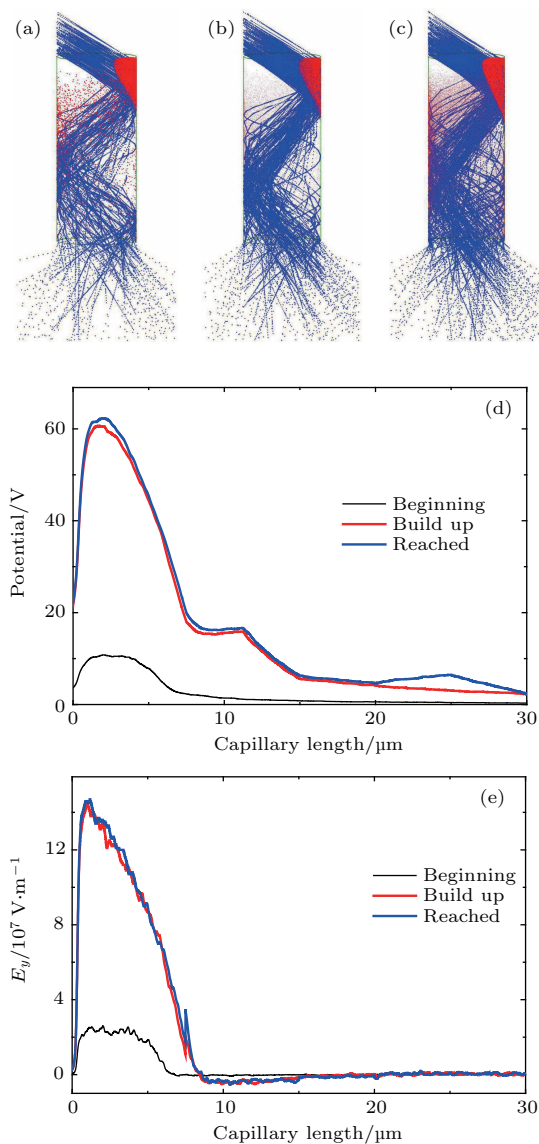


图 8 模拟不同阶段 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-2^\circ$  的 PC 微孔膜时, 入射  $H^+$  在微孔中运动轨迹图以及相应的微孔内电场和场强的分布 (a) 开始阶段的运动轨迹图; (b) 平衡建立阶段的运动轨迹图; (c) 达到平衡阶段的运动轨迹图; (d) 微孔内电势随微孔长度的分布图; (e) 电场场强大小随微孔长度的分布图

Fig. 8. Simulated trajectories, potential distribution and electric field intensity distribution in the capillary of transmitted particles for 30 keV  $H^+$  transmitted through the PC nanocapillary at the tilt angle of  $-2^\circ$ : (a) Trajectories at the beginning stage; (b) trajectories at build up stage; (c) trajectories at reached stage; (d) the simulated potential distribution in the capillary; (e) electric field intensity distribution in the capillary during the beginning stage (the black line), build up stage (the red line) and the reached stage (the blue line).

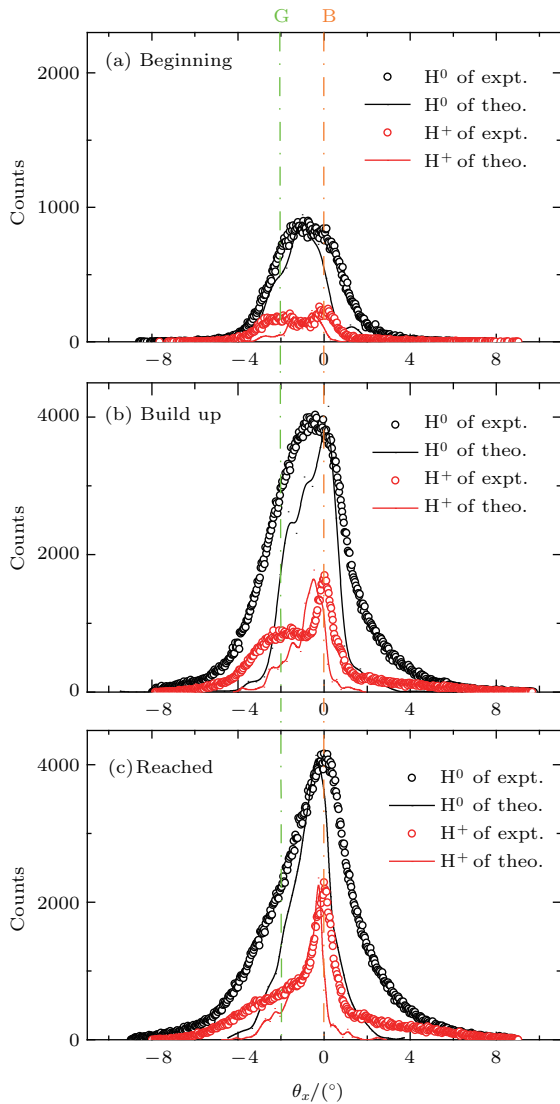


图9 模拟不同阶段的30 keV的H<sup>+</sup>入射倾斜角度为-2°的PC微孔膜时,出射粒子的角度分布图 (a)实验开始阶段;(b)实验平衡建立阶段;(c)实验达到平衡阶段  
Fig. 9. The angular distributions of transmitted particles for 30 keV H<sup>+</sup> transmitted through the PC nanocapillary at the tilt angle of -2°: (a) The beginning stage; (b) build up stage; (c) reached stage.

随着微孔内充电过程的进行,微孔入口处第一个电荷斑的电势大小为60 V,场强大小为 $1.2 \times 10^8$  V/m,同时在微孔内8—14 μm处形成第二个电荷斑,电势大小为15 V,场强大小为 $-0.4 \times 10^7$  V/m.大部分入射的H<sup>+</sup>仍然克服电荷斑的库仑排斥作用进入到微孔内表面以下,出射的粒子中H<sup>0</sup>仍占据很大部分.微孔内沉积电荷斑增加了入射H<sup>+</sup>在微孔内表面以上掠射通过的概率,沿入射束流方向出射的散射H<sup>+</sup>的占比不断增加,沿微孔孔轴方向出射的导向H<sup>+</sup>的占比不断减小,演化结果如图8(b)和图9(b)所示.

当微孔内电荷斑完全建立并达到充放电平衡后,如图8(c)和图9(c)所示,微孔入口处第一个电荷斑的电势大小为62 V,场强大小为 $1.5 \times 10^8$  V/m,在8—14 μm处第二个电荷斑的电势大小为16 V,场强大小为 $-0.5 \times 10^7$  V/m,在22—28 μm处形成第三个电荷斑的电势大小为6 V,场强大小为 $-0.1 \times 10^7$  V/m.在微孔内电荷斑和表面原子的集体散射作用下,出射的H<sup>+</sup>呈现在入射束流方向的尖锐出射峰和沿微孔孔径方向的平缓峰的相叠加的谱图中.

图5同时给出30 keV的H<sup>+</sup>入射倾斜角度为-2°的PC微孔膜后,理论模拟得到的出射粒子的相对穿透率和电荷态纯度随沉积电荷的演化过程.理论结果较好地说明了实验的主要趋势.

为了展示出射离子的电荷态纯度随微孔膜倾斜角度的变化过程,图10给出了30 keV的H<sup>+</sup>入射不同倾斜角度的PC微孔膜后,理论模拟得到的出射H<sup>+</sup>的电荷态纯度.随着微孔膜倾斜角度的不断增加,出射H<sup>+</sup>的电荷态纯度不断减小,这是由于随着倾斜角度的增加,入射H<sup>+</sup>的横向动量不断增加,微孔内需要沉积更多的电荷才能克服入射H<sup>+</sup>的横向动量,出射H<sup>+</sup>的比例不断减小,出射H<sup>+</sup>的电荷态纯度不断减小,理论结果较好地说明了实验的主要趋势.

通过分析30 keV的H<sup>+</sup>入射倾斜角度为-1°和-2°的PC微孔膜中的运输特性实验和理论结果表明,理论很好地解释了实验演化结果.处于不同倾斜角度的微孔膜,在微孔内沉积的电荷和形成电荷斑的数量和电场强度是不同的.

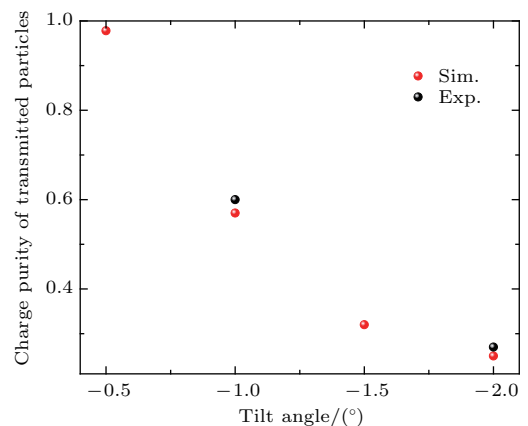


图10 模拟30 keV的H<sup>+</sup>入射PC微孔膜时,出射H<sup>+</sup>的电荷态纯度随微孔膜倾斜角度的变化  
Fig. 10. The simulated charge purity of the transmitted particles at various tilt angles for 30 keV H<sup>+</sup> transmitted through the PC nanocapillary.

## 6 结 论

测量了 30 keV 的  $H^+$  入射倾斜角度为  $-1^\circ$  和  $-2^\circ$  时穿过 PC 微孔膜后的二维分布图和出射粒子的角分布、电荷态纯度及穿透率随沉积电荷的演化. 实验观测到出射的  $H^+$  由沿微孔孔轴方向的导向  $H^+$  和沿入射束流方向的散射  $H^+$  两部分组成, 随着微孔内电荷斑的逐步形成, 出射的导向  $H^+$  的占比不断减小, 出射散射  $H^+$  占比不断增加; 同时出射  $H^0$  占总出射粒子的比例不断减小, 其中心角度逐步向入射束流方向偏转. 模拟计算得到入射  $H^+$  在微孔内部的运动轨迹和微孔内部电荷斑电势分布和场强分布, 不同倾斜角度下微孔内电荷斑的数量和电势以及场强分布是不同的, 实验结果和理论结果得到了很好的验证.

感谢中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态离子物理实验平台上的员工提供高品质稳定的离子束.

## 参考文献

- [1] Iwai Y, Ikeda T, Kojima T M, Yamazaki Y, Maeshima K, Imamoto N, Kobayashi T, Nebiki T, Narusawa T, Pokhil G P 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 023509
- [2] Martin C R 1994 *Science* **266** 1961
- [3] Ikeda T, Kanai Y, Kojima T M, Iwai Y, Kambara T, Yamazaki Y, Hoshino M, Nebiki T, Narusawa T 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 163502
- [4] Cassimi A, Ikeda T, Maunoury L, Zhou C L, Guillous S, Mery A, Lebius H, Grygiel C, Khemliche H, Roncin P, Merabet H, Tanis J A 2012 *Phys. Rev. A* **86** 062902
- [5] Stolterfoht N, Bremer J H, Hoffmann V, Hellhammer R, Fink D, Petrov A, Sulik B 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 133201
- [6] Schiessl K, Tökési K, Solleder B, Lemell C, Burgdörfer J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 163201
- [7] Feng D, Shao J X, Zhao L, Ji M C, Zou X R, Wang G Y, Ma Y L, Zhou W, Zhou H, Li Y, Zhou M, Chen X M 2012 *Phys. Rev. A* **85** 064901
- [8] Hasegawa J, Jaiyen S, Polee C, Chankow N, Oguri Y 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 044913
- [9] Stolterfoht N, Hellhammer R, Bundesmann J, Fink D, Kanai Y, Hoshino M, Kambara T, Ikeda T, Yamazaki Y 2007 *Phys. Rev. A* **76** 022712
- [10] Stolterfoht N, Hellhammer R, Fink D, Sulik B, Juhász Z, Bodewits E, Dang H M, Hoekstra R 2009 *Phys. Rev. A* **79** 022901
- [11] Skog P, Zhang H Q, Schuch R 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 223202
- [12] Zhang H Q, Skog P, Schuch R 2010 *Phys. Rev. A* **82** 052901
- [13] Cassimi A, Maunoury L, Muranaka T, Huber B, Dey K R, Lebius H, Lelièvre D, Ramillon J M, Been T, Ikeda T, Kanai Y, Kojima T M, Iwai Y, Yamazaki Y, Khemliche H, Bundaleski N, Roncin P 2009 *Nucl. Instrum. Meth. B* **267** 674
- [14] Juhász Z, Sulik B, Rácz R, Biri S, J Bereczky R, Tökési K, Kövér Á, Pálincás J, Stolterfoht N 2010 *Phys. Rev. A* **82** 062903
- [15] Lemell C, Burgdörfer J, Aumayr F 2013 *Prog. Surf. Sci.* **88** 237
- [16] Simon M J, Zhou C L, Döbeli M, Cassimi A, Monnet I, Méry A, Grygiel C, Guillous S, Madi T, Benyagoub A, Lebius H, Müller A M, Shiromaru H, Synal H A 2014 *Nucl. Instrum. Meth. B* **330** 11
- [17] Zhou W, Niu S T, Yan X W, Bai X F, Han C Z, Zhang M X, Zhou L H, Yang A X, Pan P, Shao J X, Chen X M 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 103401 (in Chinese) [周旺, 牛书通, 闫学文, 白雄飞, 韩承志, 张鹏泉, 周利华, 杨爱香, 潘鹏, 邵剑雄, 陈熙萌 2016 物理学报 **65** 103401]
- [18] Zhu B H, Yang A X, Niu S T, Chen X M, Zhou W, Shao J X 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 013401 (in Chinese) [朱炳辉, 杨爱香, 牛书通, 陈熙萌, 周旺, 邵剑雄 2018 物理学报 **67** 013401]
- [19] Mo D 2009 *Ph. D. Dissertation* (Lanzhou: Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences) (in Chinese) [莫丹 2009 博士学位论文 (兰州: 中国科学院近代物理研究所)]
- [20] Stolterfoht N, Bremer J H, Hoffmann V, Hellhammer R, Fink D, Petrov A, Sulik B 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 133201
- [21] Schiessl K, Palfinger W, Lemell C, Burgdörfer J 2005 *Nucl. Instrum. Meth. B* **232** 228
- [22] Stolterfoht N, Hellhammer R, Sulik B, Juhász Z, Bayer V, Trautmann C, Bodewits E, Hoekstra R 2011 *Phys. Rev. A* **83** 062901
- [23] Yang F J 2008 *Atom Physics* (Beijing: Higher Education Press) p95 (in Chinese) [杨福家 2008 原子物理学 (北京: 高等教育出版社) 第 95 页]

# Experimental and theoretical research on the dynamical transmission of 30 keV $H^+$ ions through polycarbonate nanocapillaries\*

Niu Shu-Tong Pan Peng Zhu Bing-Hui Song Han-Yu Jin Yi-Lei Yu Lou-Fei  
Han Cheng-Zhi Shao Jian-Xiong<sup>†</sup> Chen Xi-Meng<sup>‡</sup>

(School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China)

( Received 30 May 2018; revised manuscript received 27 July 2018 )

## Abstract

The ions with different incident energies transmitting through insulating nanocapillaries are studied in various configurations. For the low energy ions transmitting through nanocapillaries, Stolterfoht *et al.* [2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 133201] have observed the guiding effect. Subsequent studies revealed that the self-organizing charge patches on the capillary wall inhibit charge exchange and the ions are transmitted along the capillary axis direction. The high energies of ions transmitting through nanocapillaries are measured, the main transmission mechanism is multiple random inelastic collisions below the surface, and the charge patches will not affect the transmitted ions trajectories.

The transmission features of the intermediate energy ions are different from those of the low and high energy ions. The ion beams with intermediate energies have many applications, so it is necessary to understand the transmission features of the intermediate energy ions through nanocapillaries. Recent studies have focused on the transmission of the intermediate energy ions through the nanocapillaries.

In the present work, we investigate the transmission features, such as the two-dimensional transmitted angular distributions, the charge states and position distributions, and the evolution of the relative transmission rate and the charge purity of 30 keV  $H^+$  transmitting through nanocapillaries in a polycarbonate membrane at the angles of  $-1^\circ$  and  $-2^\circ$ . The experimental data clearly show that the transmitted  $H^+$  ions consist of the transmitted scattering  $H^+$  ions, which are located around the direction of the incident beam, and the transmitted guiding  $H^+$  ions, which are located around the direction of the capillary axis. With the charges depositing in the capillary, the proportion of the transmitted scattering  $H^+$  ions increases and the proportion of the transmitted guiding  $H^+$  ion decreases, which directly demonstrates the dynamical evolution of the scattering ions and the guiding ions.

To understand the competition between the transmitted scattering ions and the transmitted guiding ions and the physical picture of the intermediate energy ions transmitting through the insulating nanocapillaries, the trajectories of the  $H^+$  ions in the capillary and the potential distribution and electric field intensity distribution in the capillary are numerically simulated. The results show that the potential distributions and electric field intensities are different for  $H^+$  ions transmitting through nanocapillaries at various tilt angles, and the simulation results are in good agreement with the experimental data. The experimental and simulation results give us a further insight into the mechanisms of guiding and scattering in intermediate energy ions transmitting through nanocapillaries.

**Keywords:** transmission feature, dynamical evolution, theoretical simulation

**PACS:** 34.50.-s, 79.20.Rf, 68.49.Sf

**DOI:** 10.7498/aps.67.20181062

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11675067).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [shaojx@lzu.edu.cn](mailto:shaojx@lzu.edu.cn)

<sup>‡</sup> Corresponding author. E-mail: [chenxm@lzu.edu.cn](mailto:chenxm@lzu.edu.cn)