

质子在 α -LiIO₃ 单晶中的沟道效应研究

刘家瑞 章其初

(中国科学院物理研究所)

1986年2月13日收到

提 要

利用 MeV 能量的准直质子束,在不同的质子能量下,测定了 α -LiIO₃ 单晶 $\langle 001 \rangle$ 向的轴沟道参数角度半宽度 $\phi_{1/2}$ 和产额极小值 $\chi_{\min}$. 在 c 向静电场作用下,首次观察到入射质子与表面处的 I 原子沟道-背散射产额随电场作用时间而增加,并定量计算了表面无序 I 原子数随静电场作用时间的关系. 另外,入射质子与 ^7Li 原子沟道-核反应 [$^7\text{Li}(p, \alpha)^4\text{He}$] 产生的 α 粒子产额也随电场作用时间而增加.

一、引 言

自从沟道效应发现以来,很多种单原子晶体的沟道参数已被精确测定. Barrett 用蒙特-卡罗计算机模拟,得到了与实验结果符合得较好的沟道参数角度半宽度 $\phi_{1/2}$ 和产额极小值 $\chi_{\min}$ 的计算表达式^[1]. 此后,对数种双原子或多原子晶体的沟道参数进行了实验测量,并与 Barrett 公式的计算值比较,探讨其对多原子晶体的适用性. 已有实验表明,即使考虑了其它原子列对沟道连续势的贡献,双原子和多原子的沟道参数实验测量值与 Barrett 公式计算值在某些情况下符合得较差^[2]. 目前,正有待于对多种双原子和多原子单晶沟道参数进行精确实验测量,并由此得到多原子晶体沟道参数 $\phi_{1/2}$ 和 $\chi_{\min}$ 的较完善的计算表达式.

关于 α -LiIO₃ 单晶的沟道参数 $\phi_{1/2}$ 和 $\chi_{\min}$ 的测量已有报道^[3],但测得的 $\chi_{\min}$ 达 8.9%,其值偏大.

由于 α -LiIO₃ 单晶是一种离子导体,在静电场作用下,已观察到一系列的异常现象,引起了人们的极大注意^[4]. 关于静电场作用下 α -LiIO₃ 单晶的沟道行为已有人进行了实验研究^[5],但没有观察到沟道行为的变化.

本工作利用 MeV 能量的准直质子束,在三种不同的质子能量下,测量了不同样品的 $\langle 001 \rangle$ 向轴沟道角度半宽度 $\phi_{1/2}$ 和产额极小值 $\chi_{\min}$. 在 c 向静电场作用下,已观察到沟道行为的明显变化. 这里规定,电场方向与束方向相同称正向电场,反之,称反向电场. 在正向静电场作用下,观察到入射质子与 I 原子沟道-背散射产额增加,出现表面峰. 这表明,在样品表面处,在静电场作用下,已逐渐非晶化,并定量计算了非晶原子数随静电场作用时间的变化关系. 在反向静电场作用下,入射质子与 ^7Li 原子沟道-核反应 [$^7\text{Li}(p, \alpha)^4\text{He}$] 产生的 α 粒子产额也增加,这表明 Li 离子在直流电场作用下向阴极表面

迁移并富集。

另外,还用沟道-背散射研究了 MeV 能量质子束辐照 α -LiIO₃ 晶体引起的表面辐射损伤。

二、实 验

本工作利用准直的质子束入射到 α -LiIO₃ 单晶上进行沟道效应研究。入射质子除了会与单晶中的 I、O 和 Li 原子发生弹性散射外,还会与 ⁷Li 同位素发生 ⁷Li(p, α)⁴He 核反应,该反应可用来进行沟道-核反应研究 α -LiIO₃ 单晶中 Li 离子沟道行为。

α -LiIO₃ 晶体具有六角晶系布喇非结构,其空间群为 $C_6^2(P6_3)$, 点阵常数 $a=5.482 \text{ \AA}$, $c=5.171 \text{ \AA}$ 。利用晶体中 I 原子对 X 射线的反常散射效应进行 X 射线衍射分析,定出了 α -LiIO₃ 晶体有两种绝对构型——D 型和 L 型结构^[9]。图 1 给出了 $\langle 001 \rangle$ 轴向原子排列,由于不论 D 型还是 L 型结构,沟道连续势没有差别,故只给出了一种结构 (L 型) 的原子排列。实验用样品采用垂直 c 向切割的 L 型单晶,表面抛光后,再用真空镀膜法在其表面镀一层约几百埃的碳膜,然后装在样品架上。样品厚度约为 2mm。

沟道效应实验是在本所 $2 \times 1.7 \text{ MV}$ 串列加速器 (general ionex corp., USA) 上进行的。实验装置和测量系统如图 2 所示。从加速器得到的 MeV 能量的质子束,经三单元四极透镜聚焦后,再通过开关磁铁进入沟道实验的束流管道和靶室。图 2 中 S1 和 S2 为可调缝宽准直器,本实验中,狭缝分别调成 $0.6 \times 0.6 \text{ mm}^2$ 和 $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$ 。两准直器相距约 1.2m, 这样,准直束的最大张角为 0.04° 。装有 α -LiIO₃ 单晶的样品架 A 装在三维转动的定角器 (panmure instruments ltd., GB) 上,转动角精度为 0.01° 。图 2 中还给出了样品上加直流电压和束流积分器 C 的连接方式。在样品和探测器之间还装有次级电子抑制电极 (图中未画出),加 300V 电压就可完全抑制质子打在样品上产生的次级电子。背散射质子由有效直径为 3mm 的金硅面垒探测器 D1 接收,分辨率 FWHM 为 16keV (对于 5.5MeV α 粒子)。核反应产生的 α 粒子由有效直径为 20mm 的金硅面垒探测器 D2 接收,分辨率 FWHM 为 20keV (对于 5.5MeV α 粒子)。由于 ⁷Li(p, α)⁴He 核反应截面较小,因此采用了大面积探测器,以提高核反应产生的 α 粒子计数。该核反应是放热反应,反应能 Q 等于 17.346 MeV ^[6],反应产生的 α 粒子能量远大于入射质子的能量。如本实验中采用入射质子能量 E_p 为 1.5MeV 时,计算得到出射角 $\theta = 160^\circ$ 的方向上的 α 粒子能量为 7.65MeV。由探测器 D2 测得的散射质子和核反应产生的 α 粒子能谱上,质子的二次堆积信号对 α 粒子能谱也没有影响。另外,减小与探测器 D2 相接的放大器的放大倍数,使进入多道分析器背散射质子计数下降,使总计数率不太高。ADC2 (ND580 ADC, nuclear data inc., USA) 为固定时间 ADC,转换时间为 $10 \mu\text{s}$,它与粒子能量,转换增益和数据传送时间无关。在 ADC2 后还接有无计数损失单元 LFC (ND599 LFC,

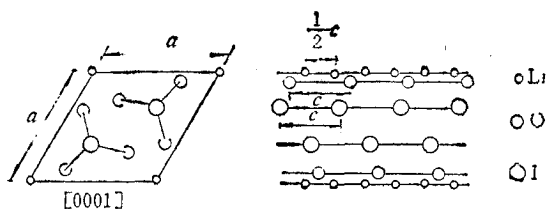


图 1 α -LiIO₃ 单晶的 $[001]$ 面和 $\langle 001 \rangle$ 轴向原子排列
在 $\langle 001 \rangle$ 轴向原子排列中省去了四排氧原子

nuclear data inc., USA), 用于系统计数损失实时修正。这样, 在对准沟道和随机入射两种情况下, 探测器 D2 探测到总计数率相差较大时, 计数损失对测量的影响可忽略不计。数据采集和处理用 ND76 计算机多道分器器 (nuclear data inc., USA)。实验时质子流强约 2nA。靶室由涡轮分子泵抽真空, 真空度为 $2-7 \times 10^{-6}$ Torr。

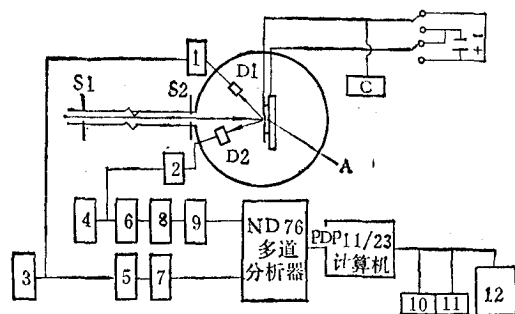


图2 沟道实验装置和测量系统示意图 1, 2 为前放; 3, 4 为高压电源; 5, 6 为主放; 7 为 ADC1; 8 为 ADC2; 9 为无计数损失单元 LFC; 10 为软盘驱动器; 11 为温盘驱动器; 12 为打印机

变化。不采集能谱数据时, 切断离子束, 以避免辐射损伤的影响。

用类似方法, 测量质子辐照 α -LiIO₃ 单晶引起的表面辐射损伤。使质子束对准〈001〉轴向入射, 在一定的时间间隔采集沟道对准谱, 而质子束在实验中一直照射在晶体同一点上。

做沟道实验时, 先转动定角器, 使入射束接近垂直入射到样品上, 然后交替改变两个倾角 θ 和 ϕ , 使入射束对准晶体〈001〉轴, 这时就可进行沟道角扫描测量。当采用较高能量的质子时, 质子与 O 和 Li 原子弹性散射截面远大于卢瑟福散射截面, 因此, 在背散射的能谱上可明显看到 O 和 Li 的散射谱。

做加 c 向静电场作用下的沟道实验时, 先使入射质子束对准〈001〉轴, 然后加静电场, 观察并记录沟道对准谱的变化。

三、结果和讨论

我们用 1.1, 1.5 和 2.1 MeV 能量的质子束, 对几块样品分别进行了〈001〉轴沟道角扫描测量。图 3 是 1.1 MeV 质子束与距表面两个不同深度处的 I 原子背散射角扫描归一化产额曲线, 可以看出, 离表面愈深, $\phi_{1/2}$ 变小, $\chi_{\min}$ 变大。图 4 为 I 原子的 $\phi_{1/2}$ 和 $\chi_{\min}$ 随深度变化的曲线, 入射质子能量为 1.5 MeV。该实验曲线外推可得到表面处的〈001〉轴沟道 $\phi_{1/2}$ 和 $\chi_{\min}$ 值。表 1 列出了我们用三种不同能量的质子实验测得并外推到表面处的〈001〉轴沟道 $\phi_{1/2}$ 和 $\chi_{\min}$ 值。为了比较, 表中还附上了文献 [3] 给出的测量值, 其

表 1 I 原子的〈001〉轴沟道 $\phi_{1/2}$ 和 $\chi_{\min}$ 测量值

E_p (MeV)	$\phi_{1/2}$ (°)	$\chi_{\min}$ (%)
1.1	0.73 ± 0.08	3.2
1.5	0.59 ± 0.08	3.0
2.1	0.52 ± 0.08	3.6
1.0*	0.63 (样品 3) 0.62 (样品 4)	9.7 8.9

* 该能量下的数据为文献 [3] 给出的测量值。

$\chi_{\min}$ 接近 10%。当测得 $\chi_{\min}$ 偏大时, $\phi_{1/2}$ 会变小。文献 [3] 的 $\phi_{1/2}$ 值明显小于我们

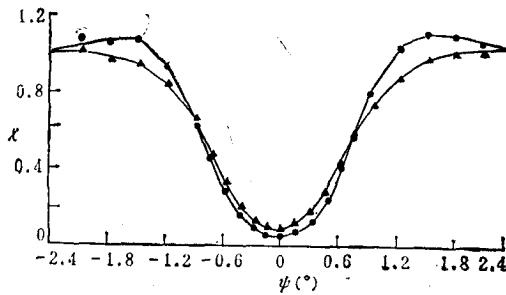


图3 绕 $\langle 001 \rangle$ 轴沟道角扫描归一化产额曲线 ●和▲分别表示与不同深度处 ($\Delta E = 15, 40\text{keV}$) 的 I 原子散射产额

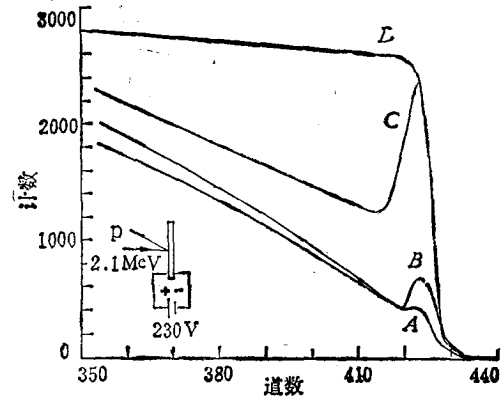


图5 A 为静电场作用前原始对准谱; B 和 C 分别为静电场作用 40 和 485min 时的对准谱; D 为随机背散射谱

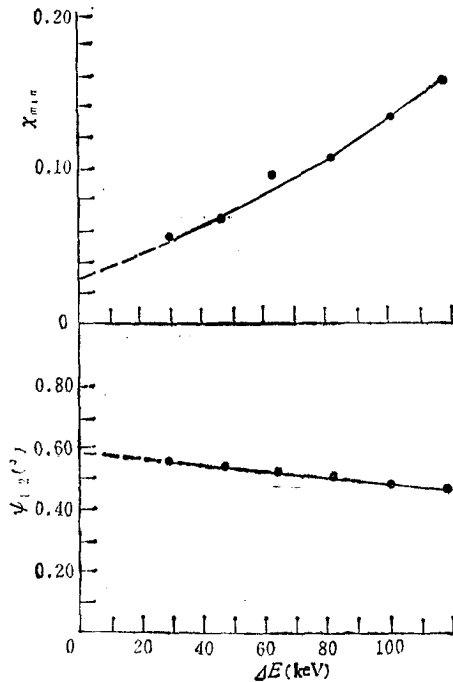


图4 $\psi_{1/2}$ 和 $\chi_{\min}$ 随深度的变化 深度用对应的 ΔE 表示

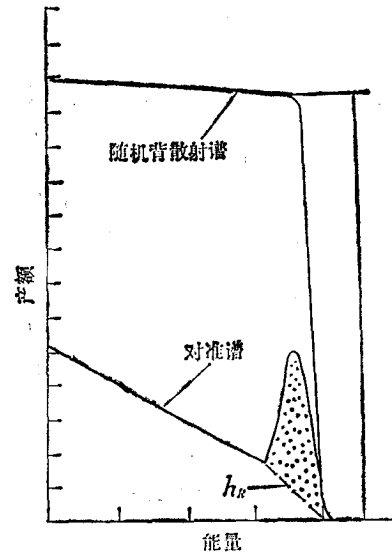


图6 利用对准谱中因表面局部非晶化引起的表面峰计算无序原子数的示意能谱

的测量结果。

图5为用2.1MeV质子入射到 α -LiIO₃上测得的随机背散射谱和在 c^* 向静电场作用前后沿 $\langle 001 \rangle$ 轴向对准谱。从图5中可明显看到,谱上对应样品表面处,在静电场作用下出现的表面峰。我们认为,这是由于在正向静电场作用下,Li离子输运到阴极,而阳极(质子束入射表面)缺少Li离子,引起 α -LiIO₃单晶框架结构局部破坏,出现无序的I原子,使入射质子与I质子沟道-背散射产额增加。从图5中还可看到,在表面非晶层后,单

晶的完整性基本上没有受到破坏;随着静电场作用时间增加,阳极表面处的非晶层逐步变厚. 从这实验可以了解 Li 离子在静电场作用下自迁移的空间图象.

利用测得的表面峰面积可计算得到无序的 I 原子数. 对于很薄的无序层,用图 6 中虚线所示的直线近似退沟道粒子对背散射产额贡献的份额 h_R , 则推得利用表面峰面积 A 计算无序 I 原子的面密度 N_D 的近似公式为

$$N_D = \frac{A \delta E_1}{H[\Sigma]_I^{\text{LiIO}_3}},$$

其中 H 为随机背散射谱的高度, δE_1 为背散射能谱上每道的能宽, $[\Sigma]$ 为背散射阻止截面因子.

图 7 是用上式计算得到的在正向静电场作用下, 表面处无序 I 原子数 N_D 随静电场作用时间 t 的变化. 从图 7 中可以看出, N_D 随 t 近似线性增加. 利用线性拟合可得到这比例系数, 它对应每秒 Li 离子从阳极迁移到阴极的数目, 从而可进一步得到 Li 离子自

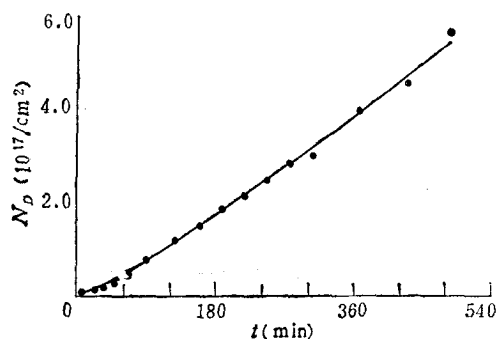


图 7 α -LiIO₃ 晶体在静电场作用下产生的表面无序 I 原子数 N_D 随电场作用时间 t 的变化曲线

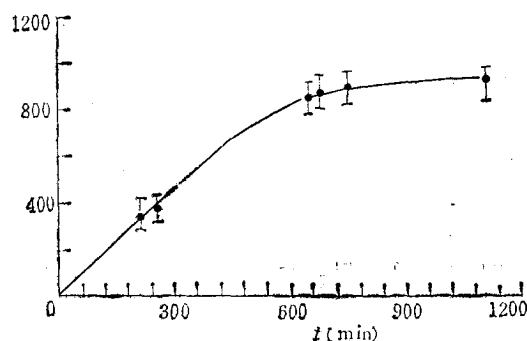


图 8 质子与 ${}^7\text{Li}\langle 001 \rangle$ 轴向沟道-核反应产生的 α 粒子产额增量 N 随静电场作用时间 t 的变化 质子能量为 1.5 MeV

迁移对总电导的贡献.

在加反向静电场作用下, 实验观察到入射质子与 α -LiIO₃ 单晶中的 ${}^7\text{Li}$ 同位素的沟道-核反应产生的 α 粒子产额也随静电场作用时间而增加, 结果如图 8 所示. 由于 Li 的 $\chi_{\min}$ 较大, 对应表面处约为 40%, 所以图 8 中给出的 α 粒子产额的误差较大. 另外, 在静电场作用 10h 后, 产额趋于饱和, 这是由于沟道-核反应产额与随机产额趋于相等, 所以用沟道-核反应测不出表面处再增加的 Li 离子. 这结果表明, Li 离子向阴极方向运动, 造成 Li 离子在束入射表面区富集.

我们还用质子沟道-背散射方法研究了实验用质子束辐照 α -LiIO₃ 单晶引起表面处的辐照损伤. 结果表明, 用 2.1 MeV 能量质子入射, 剂量达到 $6 \times 10^{16} \text{ atom/cm}^2$ 时, 沟道产额极小值几乎没有变化, 即表明表面处的辐射损伤很小. 由此可得到, 由于实验测量时入射质子辐射损伤的影响可忽略.

四、结 论

较精密地测定了质子在 α -LiIO₃ 单晶中 $\langle 001 \rangle$ 轴沟道参数 $\phi_{1/2}$ 和 $\chi_{\min}$. 用质子的

沟道-背散射技术观察到了在 c 向静电场作用下, α -LiIO₃ 单晶表面逐渐非晶化。定量计算表明, 非晶 I 原子数随静电场作用时间近似线性增加。非晶 I 原子出现是由于 Li 离子从阳极迁移到阴极, 造成质子束入射表面(阳极)因缺少 Li 离子引起单晶框架结构崩陷。在反向静电场作用下, 观察到了入射质子与 ${}^7\text{Li}$ 发生 ${}^7\text{Li}(p, \alpha){}^4\text{He}$ 的沟道-核反应产生的 α 粒子产额也随静电场作用时间而增加, 这直观地表明 Li 离子迁移到质子入射表面(阴极)处。这种沟道-背散射和沟道-核反应技术不破坏样品, 且灵敏度高, 只要有几个单原子层非晶化就可探测到, 并且可在加静电场同时较为直观研究 Li 离子的迁移过程。与化学方法和光谱分析方法^[7], 以及利用中子核反应 [${}^6\text{Li}(n, d)\text{T}$] 方法^[8]相比, 有其独特的优点。这种方法, 对于研究其它离子导体中离子迁移也有一定的适用性。

胡伯清提供了样品, 于桂菊帮助样品表面处理, 与许政一进行了有益的讨论, 在此一并感谢。

参 考 文 献

- [1] J. H. Barrett, *Phys. Rev.*, **B3** (1971), 1527.
- [2] D. S. Gemmell and R. C. Mikkelsen, *Phys. Rev.*, **B6**(1972), 1613.
- [3] 郭华聪、彭秀峰、王明华、龙先澹、何福庆, 原子核物理, **5**(1983), 305.
- [4] Li Yinyuan (李荫远), *Advances in Science of China-Physics*, vol. 1 pp. 45—78, ed. Zhu Hongyuan *et al.*, Science Press, Beijing, (1985); see also Li Yinyuan *Chinese Phys. Lett.*, **1**(1984), 49.
- [5] 李荫远、范海福、贾寿泉, 中国科学, (1)(1973), 96.
- [6] *Ion Beam Handbook for Materials Analysis*, eds., J. W. Mayer and E. Rimini, Academic Press, New York, (1977), p. 109.
- [7] 朱镛、张道范、成希敏, 物理学报, **26**(1977), 115.
- [8] 杨同华、包宗渝, 物理学报, **33**(1984), 1149.

CHANNELING OF PROTON IN α -LiIO₃ SINGLE CRYSTAL

LIU JIA-RUI ZHANG QI-CHU

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

The $\langle 0001 \rangle$ axial channeling parameters, axial half-angle $\psi_{1/2}$ and minimum yield $\chi_{\min}$, of α -LiIO₃ crystal have been measured by collimated MeV proton beam at different beam energies. Under the action of an electrostatic field along the c -direction of the crystal, the increase of channeling-backscattering yield from the surface I atoms, proportional to the duration of electrostatic field action, has been observed. The time-dependence of the amount of the random surface I atoms has been calculated quantitatively for different durations of electrostatic field action. The increase of the α -particle yield from proton induced ${}^7\text{Li}(p, \alpha){}^4\text{He}$ reaction-channeling with the duration of electrostatic field action has been observed as well.