

生物厚靶的 He^+ 离子透射能谱^{*}

王瑞金 慕宇光

(山东大学光电子与信息工程系, 济南 250100)

夏曰源 谭春雨 张建华 刘向东 刘吉田

(山东大学物理系, 济南 250100)

余增亮

(中国科学院等离子体研究所, 合肥 230031)

(1998 年 12 月 15 日收到)

测量了 500 keV—1 MeV 的 He^+ 离子穿过 50—90 μm 厚度的玉米种皮、葡萄果皮和西红柿果皮的透射能谱. 结果表明这些生物厚靶是不均匀的, 存在着类似于“沟道”的开放通道, 沿着这些通道入射离子可以容易地透过靶材料. 虽然大多数离子停留在靶中, 但一部分透射离子只损失很少的能量. 透射能谱显示出一种纯粹的电子阻止特征. 30 μm 厚度样品的透射电子显微镜图谱(TEM)显示 150 keV 的电子可以穿过这些样品得到很清晰的图象. β -1, 4 葡聚糖是生物种皮或果皮细胞壁的重要组成部分, 计算了该分子链的电子结构, 指出了生物样品中可能存在的通道方向.

PACC: 6180M; 6180J; 8750G

1 引 言

低能离子束目前已成为一种作物诱变育种的有效方法^[1,2]. 研究表明, 30—50 keV 的 N^+ 离子注入水稻干种子, 当剂量达到 $(0.5-2) \times 10^{16} \text{ion}/\text{cm}^2$ 时可引起显著的诱变效应^[1]. 但是, 处于如此低能区的离子引起诱变效应的机制尚不清楚. 按照凝聚态物质的阻止本领理论^[3], 入射能量为 50 keV 的 N^+ 离子无法穿过典型厚度为 50—90 μm 的种皮. 离子束的溅射效应会引起受辐照细胞壁的刻蚀^[1], 但是, 按照溅射理论^[4], 诱变时采用的注入剂量仅能移去受辐照种皮厚度的一小部分. 因此, 如此低能量的入射离子如何穿透厚的种皮达到种子胚芽部分的细胞核并引起 DNA 结构的变化仍然是一个谜. 在探索低能离子束引起诱变效应的可能原因时, 探明生物靶与传统凝聚态物质靶结构之间的本质区别是非常重要的.

本工作测量了 He^+ 离子贯穿生物厚靶的透射能谱, 结合透射电子显微镜图谱(TEM)和生物靶分子结构的电子密度计算结果, 表明这些生物靶中存在很明显的通道.

^{*} 国家自然科学基金(No. 19890300)资助和国家教育部博士点基金(No. 96042208)部分资助的课题.

2 实 验

玉米种皮、葡萄果皮和西红柿果皮被仔细剥下以保持厚度尽可能均匀, 凉干后切成小片并固定在样品架上. 样品厚度在 $50-90\ \mu\text{m}$ 之间. 实验装置示于图 1. 由 $2 \times 1.7\ \text{MeV}$ 串列加速器产生的单一能量的准直 $^4\text{He}^+$ 离子束入射到样品上. 透射粒子(He 离子与中性 He 原子) 由固体探测器探测. 信号经前置放大器和放大器放大后进入工作在脉冲幅度模式下的多道分析仪. 分析仪的输出数据送往存储能谱的计算机. 对待分析的试样经过仔细的检验与分选, 当白光透过时没有针孔和微裂造成的干涉现象, 而且用 $600\ \text{keV}$ 质子束对选取的试样进行进一步的检验, 如果试样一旦有微孔或微裂, 那么就会在得到的透射谱中观察到一个尖峰, 其能量对应入射质子束的能量. 经过这样仔细的检验, 可以保证选出的试样没有任何的微孔或微裂. 实验测得的透射能谱将在下节讨论. 为避免样品过热, 实验中采用的束流小于 $3\ \text{nA}$. 另外, 样品架由紫铜制作, 一方面对样品提供散热, 另一方面也可以提供电荷漏放的通路, 避免分析束对样品的轰击造成的电荷积累. 除特别说明外, 每一个测试样品的 He^+ 离子入射积分电荷均为 $4.5\ \mu\text{C}$. 除透射能谱外, 对样品还做了 TEM 测量, 电子显微镜工作电压为 $150\ \text{keV}$, 型号为 Hitachi H-800. 为获得高质量的电子图象及电子衍射图谱, 选择了厚度为 $30\ \mu\text{m}$ 的较薄的样品, TEM 测量结果将在下节讨论.

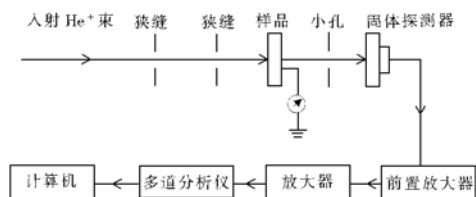


图 1 透射能谱测量装置示意图

3 结果与讨论

图 2 为 $618\ \text{keV}$ 的 He^+ 离子贯穿 $70\ \mu\text{m}$ 厚度玉米种皮的透射能谱. 箭头指向对应入射离子能量($618\ \text{keV}$) 的道数. 为了确定这个位置, 我们用一片有针孔的铝箔代替试样, 铝箔能阻止所有的 He^+ 离子穿过, 而从针孔穿过的 He^+ 离子直达探测器, 从而形成一个信号峰. 峰的位置对应入射离子的能量, 这个位置也经过了背散射实验证实. 很明显, 能谱的大部分(从 30 道到 200 道) 在半对数坐标中有几乎固定的斜率. 只要探测器的效率在测量的能量范围内没有显著变化, 这一结果表明随着透射能量的增加, 透射离子/原子数呈指数形式衰减. 因此, 我们可以合理地认为大多数透射离子/原子在贯穿过程中没有遇到近距离的核碰撞, 从而透射能谱具有能依据电子阻止理论解释的清晰特征. 该透射能谱的另一个特征是具有一个截止于 200 道左右的清晰的前沿, 这一截止道数非常接近于图 2 中箭头指向的对应 He^+ 离子入射能量的道数. 这就意味着一部分入射 He^+ 离子在贯穿种皮后仅损失很少一部分能量, 从图 2 中可以推测出 He^+ 离子的最小能量损失大约为 $46\ \text{keV}$. 利用微量天平测得 $70\ \mu\text{m}$ 厚度玉米种皮的质量厚度为 $8.105\ \text{mg}/\text{cm}^2$, 相当于 $36\ \mu\text{m}$ 厚度碳靶的质量厚度. 利用 TRIM96 可计算出 $618\ \text{keV}$ 的 He^+ 离子在碳靶中的投影射程

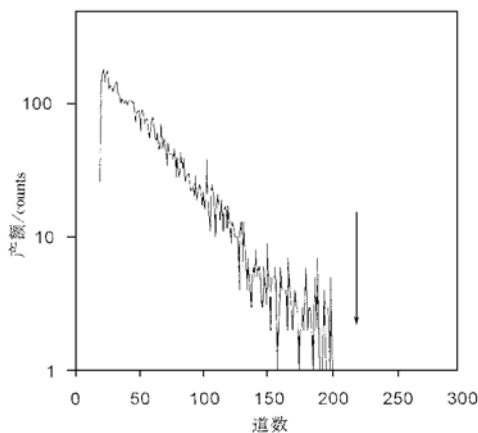


图 2 618 keV 的 He^+ 离子贯穿 70 μm 厚度玉米种皮的透射能谱

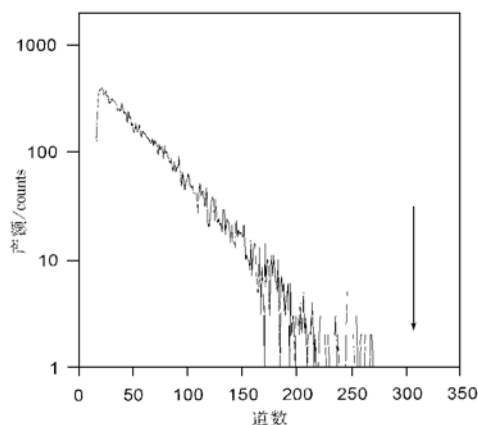


图 3 818 keV 的 He^+ 离子贯穿 70 μm 厚度玉米种皮的透射能谱

测量中采取了严格的条件控制, 排除了所有可能引起实验假象的因素, 例如, 样品的微孔、微裂、分析束的溅射效应、本底计数等, 从而给出了 He^+ 离子束透射厚生物试样的直接实验证据. 图 3 为 818 keV 的 He^+ 离子入射相同种皮的透射能谱. 能谱的形状与图 2 的能谱极为相似. 从中可以清楚地看出, 当入射能量从 618 keV 提高到 818 keV 后, 能谱的前沿移向更高的道数(能量), 同时透射能谱的积分面积也随之增大, 这表明当入射能量增加时, 有更多的 He^+ 离子/原子穿透样品. 这进一步表明, 所测得的能谱确实是透射粒子的能谱.

为证实生物样品的结构是否具有有一些共同的特征, 同时研究了 He^+ 离子贯穿葡萄果皮和西红柿果皮的透射能谱. 图 4 为 618 keV 的 He^+ 离子贯穿 85 μm 厚度葡萄果皮的透射能谱. 为记录更多的计数, 测量中的积分电荷增加到 6 μC . 该能谱的形状与图 2 和图 3 所示能谱的形状极为相似. 818 keV 的 He^+ 离子贯穿同样葡萄果皮样品的透射能谱示于

$R_p \approx 1.76 \mu\text{m}$, 射程离散 $\Delta R_p \approx 0.0728 \mu\text{m}$, 射程分布的歪扭度 $SK \approx -4.07$, 射程分布的峭度 $KT \approx 51.99$. 从这些射程参量可以看出, 618 keV 的 He^+ 离子明显无法穿透厚度大于 3 μm 的碳靶. 这也就意味着如果 70 μm 厚度的种皮具有与传统均匀凝聚态物质靶一样的均匀非晶结构, 那么 618 keV 的 He^+ 离子根本无法穿透这样的种皮. 但是, 图 2 显示有大量的 He^+ 离子穿过样品从而形成了宽的透射能谱, 这一结果是出乎人们预料的. 但它确实给出了透射粒子的能谱. 事实上, 我们在实验中排除了各种可能的意外因素对结果造成的影响. 例如, 在每个入射能量下都先后测两个能谱, 第一次测得的能谱与第二次测得的能谱是一致的, 在统计起伏的范围内观察不到任何差别. 这表明, He^+ 分析束本身在分析过程没有引起可观测到的样品变化. 这是可以理解的, 因为实验采用的 He^+ 束, 在分析所用的入射剂量下, 按照溅射理论^[4] 不应出现可观测到的溅射效应, 实验上证实了这一点. 在测得的能谱中, 扣除了本底的计数. 在本底谱的测量中, 采用一厚的铝箔代替试样, 铝箔阻止所有的 He^+ 离子到达探测器, 因此只测本底计数. 在 4.5 μC 的总入射电荷的条件下, 得到的本底谱是很低的. 在整个研究范围内, 本底计数不超过每道两个计数. 扣除本底后, 得到的能谱是纯净的透射粒子能谱. 总之, 在

图 5.

从图 2 至图 5 可以看出, 随着透射能量的增加, 透射能谱都近似地按指数规律衰减. 所有能谱的截止道数都非常接近于对应入射能量的道数. 这一实验证据表明, 在本实验所采用的入射能量下部分 He^+ 离子可以穿透这些厚生物样品, 并且其中一部分离子在贯穿样品后仅损失很少一部分能量. 如前所述, 如果这些样品与传统均匀凝聚态物质靶一样是

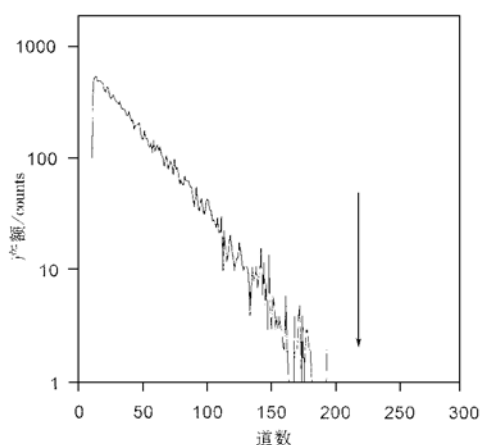


图 4 618 keV 的 He^+ 离子贯穿 $85\ \mu\text{m}$ 厚度葡萄果皮的透射能谱

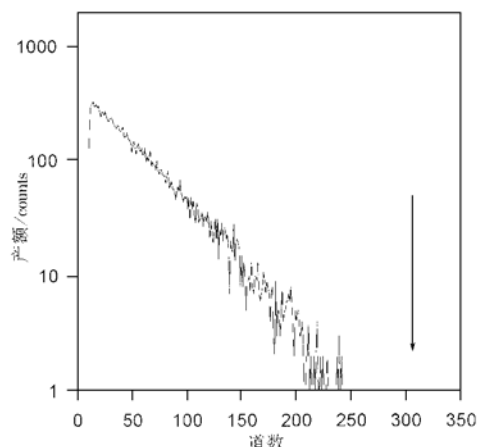


图 5 818 keV 的 He^+ 离子贯穿 $85\ \mu\text{m}$ 厚度葡萄果皮的透射能谱

均匀的, 那么 He^+ 离子根本无法穿透这样厚的样品. 因此, 这些生物样品的质量分布肯定是不均匀的, 且存在着一些对入射离子非常开放的通道. 穿过这些通道的离子通过传递能量给低密度电子气, 因此仅损失很小一部分能量. 但是, 由于 He^+ 离子在贯穿过程中碰撞的随机性, 通过定域核散射和定域的碰撞参量有关的电子能量损失过程^[5,6], He^+ 的弹道和每次碰撞所损失的能量是复杂的, 只有极小一部分离子可以保持在通道

中心. 由于那里的电子密度很低, 也不会遭受核碰撞, 所以只损失很少的能量, 但这种离子的数量是很少的, 所以计数很少. 因此, 能谱的指数衰减行为可用这种开放通道和纯粹电子能量损失来解释.

既然实验中部分 He^+ 离子可以很容易地穿透这些厚生物样品, 那么入射能量约为 100 keV 量级的电子束也应容易地贯穿这些样品, 因此同时作了 TEM 测量. 图 6(a) 和 (b) 分别为玉米种皮和西红柿果皮的 TEM 图象. 电子显微镜型号为 Hitachi H-800, 工作电压

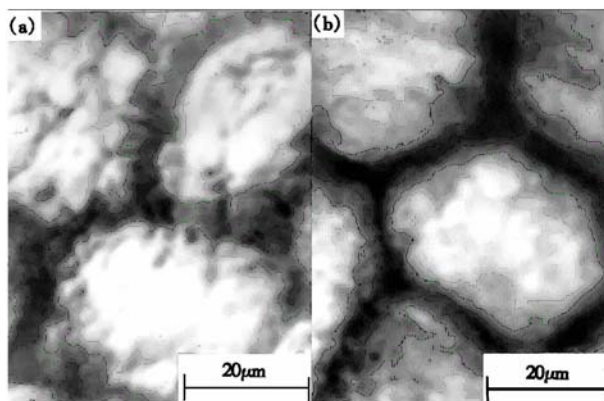


图 6 TEM 图象 (a) 为 $30\ \mu\text{m}$ 厚度玉米种皮样品; (b) 为 $30\ \mu\text{m}$ 厚度西红柿果皮样品

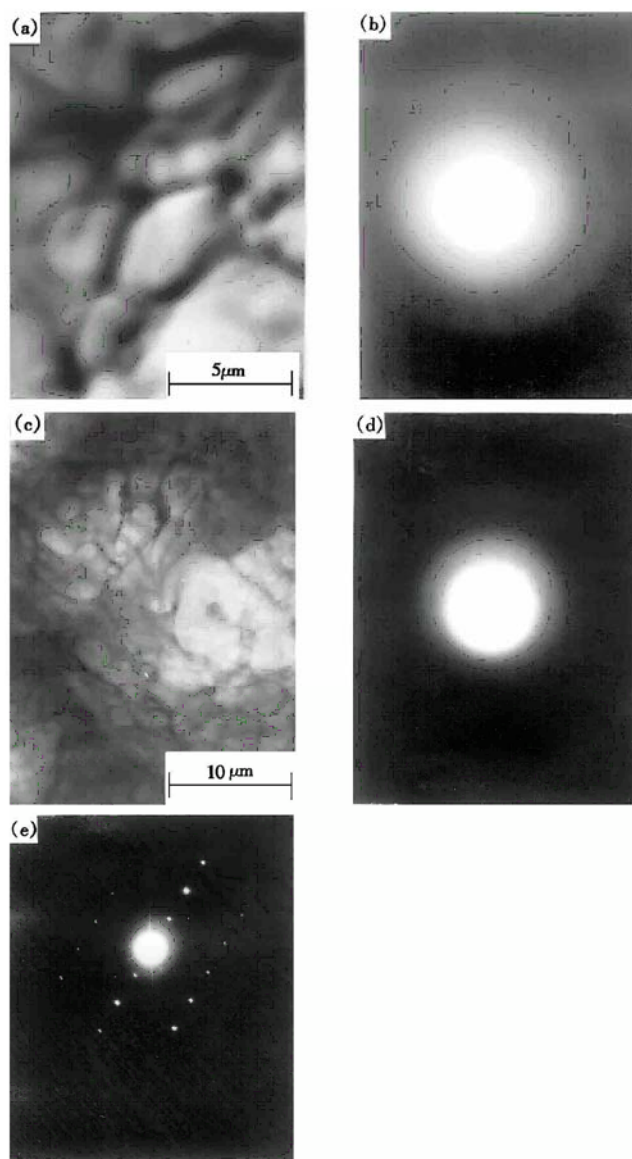


图7 (a)为玉米种皮高放大倍数TEM图象;(b)为玉米种皮的选区电子衍射图谱;(c)为西红柿果皮高放大倍数TEM图象;(d)为西红柿果皮的选区电子衍射图谱;(e)为经离析减薄的西红柿果皮的电子衍射图谱

为 150 keV, 样品厚度均为 30 μm . 尽管样品很厚, 仍然获得了高质量 TEM 图象. 从图 6 中可以明显看出, 在这些样品中存在很多电子束容易穿过的微区, 这些易透过区域为一些不易透过区域所环绕. 图 7(a) 和 (b) 分别为玉米种皮在更高放大倍数下的 TEM 图象和选区电子衍射图谱. 图 7(c) 和 (d) 分别为西红柿果皮在更高放大倍数下的 TEM 图象和选区电子衍射图谱. 拍摄衍射图谱时的“照相机”长度(camera length)为 800 mm. 这些衍射图谱与均匀凝聚物质的衍射图谱不同. 从图 7(b) 和 (d) 可以看出, 衍射图谱中有对应非晶态结构的扩散德拜环, 也有很多对应复杂长程有序晶态结构的衍射斑点. 因此, 这些生物样品具有复杂的非均匀多相结构, 存在很多电子束容易穿过的开放通道. 为了证实这一点, 我们把上述样品用 1:1 的冰醋酸和双氧水混合液离析减薄到 10–20 μm , 这时可以去掉一些无序成分, 结果可以得到单一的有序结构的电子衍射图谱. 图 7(e) 给出了这样处理后的西红柿果皮的选区电子衍射图谱. 该图谱显示出了单晶结构, 得到这一图谱时的电子显微镜电压为 200 keV. 从十分密集的衍射斑点可以看出, 在这些试样中存在面间距很大的有序结构. 根据电子显微镜工作电压、“照相机”长度和衍射参量, 可以估计出有

的面间距在 1 nm 量级. 这么大的面间距对于离子束来说是十分开通的. TEM 与能谱测量结果一致证实了这些生物样品中存在着电子束和离子束容易穿过的通道. 而且我们这里所说的“通道”不仅仅是有序结构中存在的单晶通道, 而且可能存在一些低质量密度的更加宽的开通区域.

如前所述, 我们同时计算了作为细胞壁重要组成部分的 β -1, 4 葡聚糖分子链的电子密度分布. 图 8 为 β -1, 4 葡聚糖分子链的空间结构, 图 9 为利用 Hartree-Fock 自洽场方法

计算出的在垂直于分子链方向的平面上的电子密度分布. 图 9 中明显存在低电子密度区域, 贯穿电子或离子在其中具有较小的能量损失率. 电子密度分布沿某些方向近似按指数规律衰减. 根据 He^+ 离子在物质中的阻止本领数据^[7], 具有本实验中入射能量的 He^+ 离

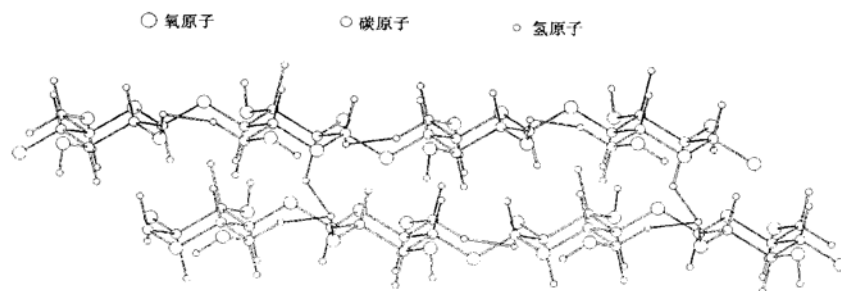


图 8 β -1,4 葡聚糖分子链的空间结构

子即使沿沟道方向的中心位置也难以穿透如此厚的样品. 因此, 肯定存在着比图 9 所示更开放的结构. 值得注意的是, 我们这里主要是研究植物种皮和果皮中存在的可能使低能离子束容易通过的结构, 而不是研究细胞的结构. 我们将种皮从种子上剥下显然会断裂原来的细胞组织, 但从微观的离子束贯穿的角度看, 剥下的种皮的原子分子结构没有发生根本改变, 对于入射离子而言, 它只是一种阻止的介质, 不管它在种子上, 还是被剥下来, 其阻止本领行为应该是确定的. 所以我们所提供的实验证据, 能为低能离子束的转基因效应提供一些物理上的认识.

以上我们测量了入射能量为 500

keV —1 MeV 的 He^+ 离子贯穿玉米种皮、葡萄果皮和西红柿果皮等生物样品的透射能谱. 发现 He^+ 离子可以很容易地穿透这些 100 μm 量级厚度的样品, 形成按指数形式衰减的能谱. TEM 结果表明, 入射能量为 150 keV 的电子束很容易贯穿这些样品获得对比度很好的图谱. 以上实验结果表明, 这些生物样品中存在着电子束和离子束容易穿过的开放的通道结构. 生物靶的结构是非常复杂的, 采用模型生物分子结构的电子结构计算结果无法定量解释本实验中发现的贯穿现象, 需要更进一步的实验和理论工作以期更好地了解生物样品的结构和低能离子束诱变效应的机制.

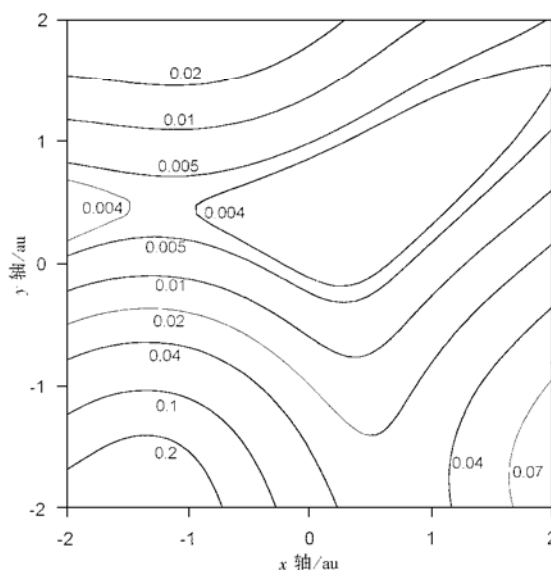


图 9 垂直于图 8 分子链方向的平面上的电子密度分布

- [1] Yu Zengliang, Deng Jianguo, He Jianjun, Huo Yuping, Wu Yuejin, Wang Xuedong and Liu Guifu, *Nucl. Instr. and Meth.*, **B59/60**(1991), 705.
- [2] Yu Zengliang, Yang Jianbo, Wu Yuejin, Cheng Beijun, He Jianjun and Huo Yuping, *Nucl. Instr. and Meth.*, **B80/81**(1993), 1328.
- [3] J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, ed. J. F. Ziegler (Pergamon, New York, 1985).
- [4] P. Sigmond, *Sputtering by Particle Bombardment I*, ed. R. Behrisch (Spring Verlag, Berlin, 1981), p. 63.
- [5] O. S. Oen and M. T. Robison, *Nucl. Instr. and Meth.*, **132**(1976), 646.
- [6] Yueyuan Xia and W. L. Lennard, *Nucl. Instr. and Meth.*, **B61**(1991), 423.
- [7] J. F. Ziegler, *Helium: Stopping Powers and Ranges in All Elemental Matter* (Pergamon, New York, 1977).

ENERGY SPECTRA OF He^+ IONS TRANSMITTING FROM THICK BIOLOGICAL TARGETS*

WANG RU-FJIN MU YU-GUANG

(Department of Photoelectronics, Shandong University, Jinan 250100)

XIA YUE-YUAN TAN CHUN-YU ZHANG JIAN-HUA LIU XIANG-DONG LIU JI-TIAN

(Department of Physics, Shandong University, Jinan 250100)

YU ZENG-LIANG

(Institute of Plasma Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031)

(Received 15 December 1998)

ABSTRACT

Transmitting energy spectra of 500 keV — 1 MeV He^+ ions penetrating 50 — 90 μm thick seed coat of maize, fruit peel of grape and of tomato are measured. The results indicate that these thick biological targets, as seen by penetrating ions, are inhomogeneous and there are open “channel like” paths along which the incident ions can transmit the targets easily. While most of the incident ions are stopped in the targets, some of the transmitting ions only lose a small fraction of their initial incident energy. The transmitting energy spectra show a pure electronic stopping feature. Transmission electron microscopic micrograph taken from these samples with thickness of 30 μm indicate that 150 keV electron beam can penetrate the thick samples to give very good images with clear contrast. The electronic structures of β -1, 4-glucosan molecular chains, which is deemed as the important constituent of the cell walls of seed coats and peels of fruits, are calculated to show the possible channeling directions existing in biological samples.

PACC: 6180M; 6180J; 8750G

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19890300) and in part by the Doctorate Foundation of the State Education Ministry of China (Grant No. 96042208).