

Ar¹⁶⁺ 和 Ar¹⁷⁺ 离子与 Zr 作用产生的 X 射线谱*

杨治虎^{1)†} 宋张勇¹⁾ 崔莹²⁾ 张红强²⁾ 阮芳芳¹⁾ 邵健雄²⁾ 杜娟²⁾
刘玉文²⁾ 朱可欣¹⁾ 张小安³⁾ 邵曹杰¹⁾ 卢荣春¹⁾ 于得洋¹⁾ 陈熙萌²⁾ 蔡晓红¹⁾

1) 中国科学院近代物理所, 兰州 730000)

2) 兰州大学现代物理系, 兰州 730000)

3) 咸阳师范学院物理系, 咸阳 712000)

(2007 年 3 月 3 日收到, 2007 年 5 月 24 日收到修改稿)

将超导离子源提供的 10—20 keV/q Ar¹⁶⁺ 和 Ar¹⁷⁺ 离子入射到 Zr 金属表面, 在相互作用中产生的 X 射线谱表明, 高电荷态 Ar¹⁶⁺ 离子在金属表面中性化过程中有可能存在多电子激发, 使 Ar¹⁶⁺ 的 K 壳层电子被激发形成空穴, 在退激过程中发射特征 K α -X 射线. 空心原子 Ar 的 K 层发射 X 射线强度随入射离子的动能而减弱, 靶原子 Zr 的 L 壳层发射 X 射线强度随入射离子动能的增加而增强. Ar¹⁷⁺ 的单离子的 K α -X 射线产额比 Ar¹⁶⁺ 单离子的 K α -X 射线产额大 5 个数量级.

关键词: 高电荷态离子, 空心原子, X 射线

PACC: 3450D, 3220R, 3270J

1. 引 言

高电荷态离子的核外大部分电子轨道处于空置状态, 在其逼近金属表面过程中, 当运动至临界距离 $R_c \approx \sqrt{2q/W}$ (a. u.) 时 (这里, q 代表电荷态, W 代表金属功函数), 入射离子与金属表面间的势垒高度低于费米面, 金属导电带电子会大量共振转移到入射离子的主量子数 $n \approx q/\sqrt{W}$ 高激发空态上, 形成空心原子 (hollow atom). 空心原子是复杂的多激发态原子, 其内壳层大多数为空穴, 电子处在准定态的高 Rydberg 态, 通过自电离和 Auger 退激发射大量电子, 通过级联退激到低激发态或基态辐射 X 射线. 衰变的空心原子进入表面过程中, 表面将其俘获的部分电子剥离又形成离子, 离子到达下表面, 金属中导电带电子使离子快速中和, 形成空心原子, 被称为第二代空心原子 (secondary hollow atom). 空心原子退激发射快速电子和 X 射线^[1-3], 同时在作用过程中, 受入射离子强库仑电场和势能表层沉积作用, 靶表层原子会被大量激发, 电离和溅射, 发射电子和 X 射线. 因此, 空心原子的内壳层空穴提供了研究级联退

激和能量转移过程的时间窗口, 特别是 X 射线的能量位置提供离子与表面相互作用进程和靶材料的重要信息. 在高电荷态离子与表面相互作用的过程中, 入射离子的电子组态和靶材料的脱出功决定着电子从固体表面转移进入离子能级的主量子数, 入射离子的速度和辐射衰变速率决定着离子在中性化过程中电子在不同量子态数目分布和时间演化进程.

另一方面, 高电荷态离子与固体表面相互作用过程中在飞秒时间内, 将携带的几十到几百 keV 能量沉积在固体表面纳米尺度空间, 使入射离子和靶原子激发和离化. 这种过程存在着单电子激发、双电子激发和多电子激发^[4]. 目前, 对高电荷态离子与固体表面相互作用发射的 X 射线的研究在材料微结构分析与修正、微型 X 射线源和 X 射线激光材料等方面有着重要意义.

实验在兰州重离子加速器国家实验室超导离子源 SECRAL 原子物理实验平台上完成. 实验中利用 SECRAL 提供的不同能量的高电荷态 Ar¹⁶⁺ 和 Ar¹⁷⁺ 离子轰击 Zr 固体表面所产生的 X 射线进行了研究. 实验发现, 没有 K 空穴的 Ar¹⁶⁺ 产生的 K α -X 射线与 M 空穴的 Ar²⁺, Xe²⁶⁺ 和 U⁶²⁺ 离子产生的 M α -X 射线机理

* 国家自然科学基金 (批准号: 10274088, 10375080, 10574132) 资助的课题.

† E-mail: z. yang@impcas.ac.cn

不同,前者可能是多电子激发过程中发射的 $K\alpha$ -X 射线,后者是双电子激发过程中发射的 $M\alpha$ -X 射线^[5,6].

2. 实验装置和测量方法

图 1 是实验平台的示意图^[7].超导离子源 SECRAL 提供的高电荷态离子在不同的引出电压下引出,利用 90° 偏转分析磁铁将选定的离子引入原子物理实验平台,然后经过四极透镜和光栏的聚焦准直,离子进入内部具有电磁屏蔽功能的超高真空(约 10^{-8} Pa)靶室,与样品表面相互作用.在实验中, Ar^{16+} 和 Ar^{17+} 的能量范围为 $10\text{--}20$ kV/q,束斑控制在 $2\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ 范围,束流强度起伏的相对误差在 5% 左右.高电荷态离子以 45° 方向斜入射到经过净化处理的纯度为 99.99% 的 Mo 固体样品表面(表面积为 $19\text{ mm} \times 24\text{ mm}$,厚度为 1 mm),在与束流成 90° 方向上用 Si(Li)探测器探测作用过程中产生的 X 射线,探测器的几何立体角为 1.7×10^{-2} sr.为了保持靶室内的超高真空,探测器与靶室之间用 $50\text{ }\mu\text{m}$ 的 Be 窗分隔,处在大气中的 Si(Li)探测器尽可能接近 Be 窗,以减少 X 射线在空气中的损失.在这样的条件下, 2 keV 的 X 射线约被 Be 窗吸收 30% , 3 keV 的 X 射线约被 Be 窗吸收 20% .在实验前用放射源 ^{55}Fe 和 ^{241}Am 对探测器进行了刻度.在本实验中,探测器离靶点距离是 50 mm ,实验测量时间选为 5000 s .

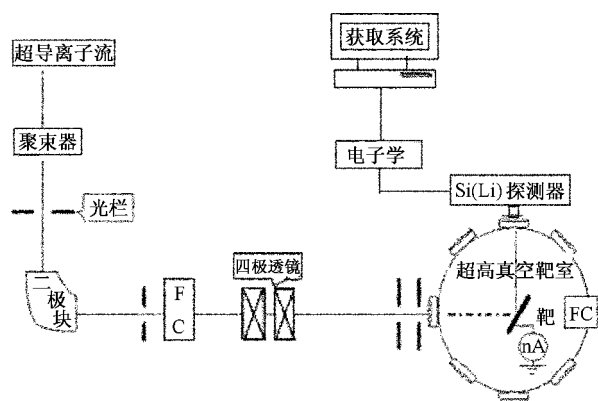


图 1 高电荷离子与固体表面作用 X 射线测量实验装置示意图

3. 实验结果与讨论

3.1. Ar^{16+} 入射 Zr 表面产生的 X 射线谱

不同能量的高电荷态离子 Ar^{16+} 入射 Zr 表面过

程中产生的 X 射线谱中存在 Zr 的 $L\beta$ 和 Ar 的 $K\alpha$ -X 射线,图 2 是动能为 192 keV 和 240 keV 的典型实验测量图. Ar 的 $K\alpha$ -X 射线是 $2p \rightarrow 1s$ 的偶极跃迁. X 射线的产生机理主要有直接电离或激发,准分子激发和双电子激发等.对本实验来说,入射离子的最大速度为 0.59 a.u. ,因此 Ar 的 K 壳层电子直接激发的概率很小.本实验研究的弹靶系统属于不对称系统,空穴分享的概率很小,估计低于 10^{-20} ^[8],因此在实验观测到的 X 射线中准分子激发的贡献很小.至于由于入射离子的亚稳态发射的 X 射线谱的贡献,我们可以排除,因为取掉靶子时,观测不到 X 射线谱,而且从超导离子源到靶的距离大于 10 m ,离子的最大速度为 0.59 a.u. ,任何亚稳态的入射离子到达靶的时间都要长于 10^{-6} s ,亚稳态的非辐射衰变和辐射衰变均发生在到达靶以前.假设本实验产生的 X 射线是由内部双电子激发产生的,那么按照内部双电子激发理论^[6],要求处于高 n 态的电子跃迁到 L 层(M 层)的能量应与 K 层和 L 层(L 层和 M 层)之间的跃迁能量相等.在本实验研究的系统中,即使 $n = \infty$,处于 n 态的电子跃迁到 L 层(M 层)的能量也小于 K 层和 L 层(L 层和 M 层)之间的跃迁能量.因此,内部双电子激发不足以产生 Ar 的 K 层空穴,内部双电子激发理论不能解释观察到的 X 射线.对于本实验产生的 X 射线,我们认为有可能是多电子激发的结果.在这个作用过程中,没有 K 壳层空位的 Ar^{16+} ,俘获的电子退激只能填充 L, M 等有空位的壳层,似乎不可能产生 $K\alpha$ -X 射线.在分析中,初步认为, Ar 的 $K\alpha$ -X 射线是离子进入表面后形成的第二代空心原子发射的,因为在当低速高电荷态离子入射金属表面过程中,离子与表面的距离达到如下临界距离^[1]时开始俘获金属导带电子:

$$R_c = \frac{1}{2W} \sqrt{8q + 2}, \quad (1)$$

俘获的电子进入离子与导带匹配的能级:

$$n_c \approx \frac{q}{\sqrt{2W}} \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{q - 0.5}{\sqrt{8q}}}}, \quad (2)$$

n_c 一般很大. Ar^{16+} 离子第一次俘获电子的临界距离为 $R_c \approx 38\text{ a.u.}$,在我们的实验动能下,离子的速度 $v \approx 0.45\text{ a.u.}$,离子在靶的上表面经历的时间为 $t = 20.34 \times 10^{-16}\text{ s}$,Ar 原子的 K, L, M 的能级寿命为 $(6 \pm 2) \times 10^{-16}\text{ s}$ ^[9],在上表面形成的空心原子的高激发态电子有足够的时间退激到 K, L 壳层.离子与固体表面作用中,俘获电子后形成的空心原子过程

中释放势能,加之入射离子的动能的作用会使靶产生快速电子,多个快速电子的共同作用使入射离子 Ar¹⁶⁺ 的一个 K 壳层电子激发,形成空穴,然后布居在 L 壳层的电子填充 K 壳层的空穴,发射 K α -X 射线.我们对没有 K 壳层空位的 Ar¹⁶⁺ 离子与金属表面作用产生的 K α -X 射线的分析是初步的,分析结果的合理性还需要进一步研究和探讨.在这本实验中,测量的 Ar 原子的 K α -X 射线的能量为 $E_{K\alpha} = 3.053 \pm 0.042$ keV,依据 Moseley 公式:

$$E_{K\alpha} = hRc(Z-1)^2 \left(\frac{1}{1^2} - \frac{1}{2^2} \right) \approx \frac{3}{4} \times 13.6 \times (Z-1)^2, \quad (3)$$

其中 h 是普朗克常量, R 是里德伯常量, c 是光速.由(3)式计算可得 $E_{K\alpha} = 2.948$ keV,实验值在误差范围,与理论值符合的较好.图 2 中的 L β -X 射线是相互作用过程中 Zr 的 L 壳层产生空穴, M 壳层的电子填充 L 壳层的空穴时发射的.实验发现,对于不同动能的入射离子,当入射离子动能增加时,Ar 原子的

X 射线的强度有下降的趋势(半高宽和峰计数减小).这是由于入射离子的动能增加,即速度增加,则相互作用的时间减小,X 射线的产额减小,如图 2(b)在 240 keV 入射离子能量时,3.053 keV 的 Ar α X 射线的强度已很弱了.

携带大量势能的高电荷态离子与固体表面相互作用过程中,能量沉积与靶表面,使靶原子 L 壳层的电子被激发或电离,形成 L 壳层的空穴.另一方面,在相互作用过程中,发生共振电子转移和发射大量电子,靶原子失去电子,特别是失去内壳层 L 壳层上的电子形成空穴,当电子填充这些 L 空穴时发射 L-X 射线.在这个过程中,入射离子随入射离子能量的增加,激发靶原子内壳层电子的概率增加.图 3 给出了 Zr 靶原子的 X 射线的强度与入射离子动能的变化曲线,从图可看出靶原子的 X 射线强度随着入射离子的动能的增加明显增强,在这条曲线上 192 keV 的能量点的 X 射线强度低于 176 keV,这是由于流强变化和电子学漂移造成的.192 keV 能量点的 X 射线强度有 20% 的误差,其他能量点的 X 射线强度误差在 5% 之内.

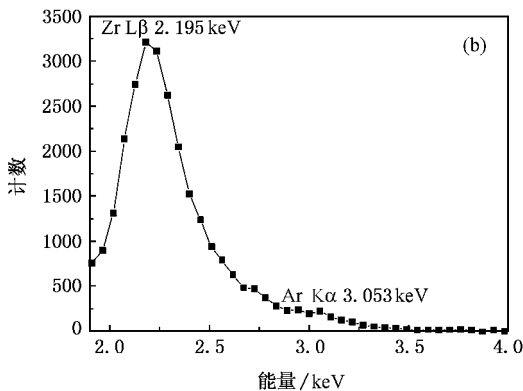
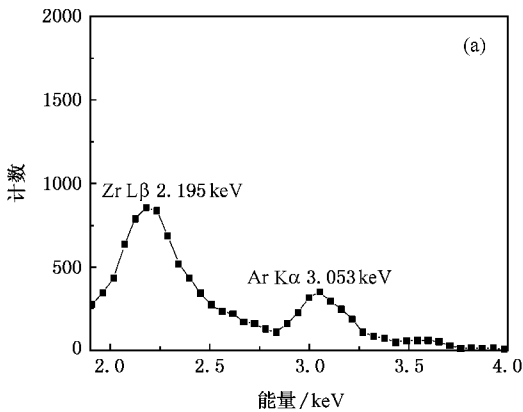


图 2 192 keV Ar¹⁶⁺ 入射 Zr 表面(a)和 240 keV Ar¹⁶⁺ 入射 Zr 表面(b)产生的 X 射线谱

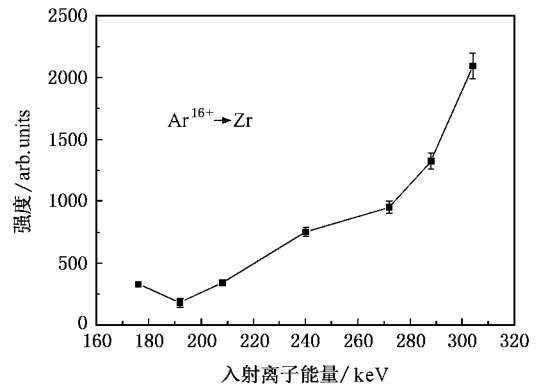


图 3 靶原子 Zr 产生的 X 射线强度与离子动能的关系

3.2. Ar¹⁷⁺ 入射 Zr 表面的 X 射线谱

图 4 给出了动能为 240 keV 的 Ar¹⁷⁺ 入射 Zr 表面产生的典型 X 射线谱.根据(3)式,离子在上表面经历的时间在 10^{-16} s 量级,离子俘获金属导电电子形成多激发态的空心原子,通过级联退激辐射光子,电子填充内壳层退激辐射 X 射线. Ar¹⁷⁺ 的电子组态为 $1s^1$, K 壳层有空穴,俘获在 L 壳层的电子填充空穴,发射 Ar 的 K α -X 射线. Ar 的 K α -X 射线产额非常高,在测量 X 射线过程中,束流强度较小,稍大的流强,就会引起探测器因计数率过高而发生阻塞,出现

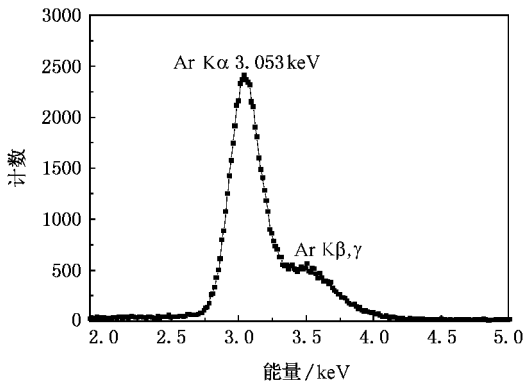


图4 240 keV Ar¹⁷⁺入射 Zr 表面产生的 X 射线谱

峰位堆积,相互作用过程中,由于靶原子的 X 射线产额比 Ar 的 K α -X 射线产额低的多,没有探测到 Zr 靶原子的 X 射线. Ar^{q+} 作用于 Zr 表面的单离子 X 射线产额,可根据下式计算:

$$Y = \frac{C}{N} = 2.7 \times 10^{-6} \times \frac{qvA}{I_{\text{beam}} \Delta t}, \quad (4)$$

其中 C 为总计数, N 为总粒子数, q 是入射离子的电荷态, μ (单位 keV) 和 A 分别是高斯拟合给出的半高宽度和峰总计数, I_{beam} 表示靶流强(单位是 nA), Δt 是测量时间. 利用(4)式, 计算入射离子能量为 192 和 209.1 keV 下的 Ar¹⁷⁺, Ar¹⁶⁺ 单离子产额, Ar¹⁷⁺ 的单离子的 K α -X 射线产额为 8.52×10^{-3} ,

Ar¹⁶⁺ 单离子的 K α -X 射线产额为 3.25×10^{-8} , Ar¹⁶⁺ 单离子的 K α -X 射线产额要比 Ar¹⁷⁺ 的小 5 个数量级,这是由于 Ar¹⁶⁺ 离子在与表面相互作用中存在上述多电子激发的过程,而 Ar¹⁷⁺ 有 1 个 K 壳层空穴,布居在 L 壳层的电子直接退激填充 K 壳层发射 X 射线,所以 Ar¹⁶⁺ 单离子的 K α -X 射线产额要比 Ar¹⁷⁺ 的小.

从 Ar¹⁶⁺, Ar¹⁷⁺ 产生的 X 射线谱图 2 和图 4 可以看出,在 Ar 的 K α 线右旁有一包,根据其能量可知,是 Ar 的 K β 和 K γ 线,要将其分辨开,需要更高分辨的探测器.

4. 结 论

超导离子源 SECRAL 能够产生稳定的高电荷态强流离子束流,实验中无需进行归一测量,本文工作中所有测量 X 射线谱是在稳定流强下完成的实验测量.入射离子中性化过程中 X 射线产额与其最初的电子组态(壳层空穴数)有关,其中靶原子的 X 射线强度随入射离子的动能增加而增强. Ar¹⁷⁺ 离子与固体表面相互作用过程中,发射的 K α -X 射线谱形状与靶材料无明显的关系.实验中低速高电荷态 Ar¹⁶⁺ 离子与金属表面相互作用过程中存在多电子激发过程的解释合理性还需进一步的研究和分析.

[1] Burgdörfer J, Lerner P, Meyer F W 1991 *Phys. Rev. A* **44** 5674
 [2] Grether M, Niemann D, Spieler A, Stolterfoht N 1997 *Phys. Rev. A* **56** 3794
 [3] Thomaschewski J, Bleck-Neuhaus J, Grether M, Spieler A, Stolterfoht N 1998 *Phys. Rev. A* **57** 3665
 [4] Winter H, Aumayr F 1999 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **B** **32** 39
 [5] Machicoane G A, Schenkel T, Niedermayr T R, Newmann M W, Hamza A V, Barnes A V, McDonald J W 2002 *Phys. Rev. A* **65** 042903

[6] Schuch R, Schneider D, Knapp D A, DeWitt D, McDonald J, Chen M H, Clark M W, Marrs E 1993 *Phys. Rev. Lett.* **70** 10737
 [7] Yang Z H, Song Z Y, Chen X M, Zhang X A, Zhang Y P, Zhao Y T, Cui Y, Zhang H Q, Xu X, Shao J X, Yu D Y, Cai X H 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2221 (in Chinese) [杨治虎, 宋张勇, 陈熙萌, 张小安, 张艳萍, 赵永涛, 崔莹, 张红强, 徐徐, 邵建雄, 于得洋, 蔡晓红 2006 物理学报 **55** 2221]
 [8] Meyerhof W E 1973 *Phys. Rev. Lett.* **31** 1341
 [9] Briand J P, Billy L de, Charles P, Essabaa S 1990 *Phys. Rev. Lett.* **65** 159



X-ray spectra produced by interaction of Ar¹⁶⁺ and Ar¹⁷⁺ with Zr *

Yang Zhi-Hu^{1)†} Song Zhang-Yong¹⁾ Cui Ying²⁾ Zhang Hong-Qiang²⁾ Ruan Fang-Fang¹⁾ Shao Jian-Xiong²⁾
Du Juan²⁾ Liu Yu-Wen²⁾ Zhu Ke-Xin¹⁾ Zhang Xiao-An³⁾ Shao Cao-Jie¹⁾ Lu Rong-Chun¹⁾
Yu De-Yang¹⁾ Chen Xi-Meng²⁾ Cai Xiao-Hong¹⁾

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

2 *Department of Modern Physics ,Lanzhou University ,Lanzhou 730000 ,China)*

3 *Department of Physics ,Xianyang Normal College ,Xianyang 712000 ,China)*

(Received 3 March 2007 ; revised manuscript received 24 May 2007)

Abstract

The 10—20 qkeV Ar¹⁶⁺ and Ar¹⁷⁺ ions produced by SECRAL enter on metallic surface of Zr. In this interaction ,the multi-electron excitation possibly occurred in the neutralization of the highly charged Ar¹⁶⁺ ions ,which produced vacancy in the K shell. Electron of the high n state de-excited to K vacancy gives off X-ray. The experimental results show that X-ray intensities for the Ar hollow atom decrease with increase of incidence energy ,and L β X-ray intensities of target atom Zr increase with increasing incidence energy. K α X-ray yield per ion for Ar¹⁷⁺ was five orders of magnitude greater than that for Ar¹⁶⁺ .

Keywords : highly charged ion , hollow atom , X-ray emission

PACC : 3450D , 3220R , 3270J

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China(Grant Nos. 10274088 ,10375080 ,10574132).

† E-mail : z. yang@impcas. ac. cn