

文章编号: 1007-4627(2005)02-0193-05

载能团簇离子诱发的非线性二次离子发射^{*}

史 平, 丁富荣[#], 王 尧, 聂 锐, 马宏骥

(北京大学物理学院技术物理系, 北京 100871)

摘 要: 载能团簇离子进入固体时, 由于集体相互作用, 在入射路径上产生非常高的能量沉积密度。实验发现, 载能团簇离子的作用结果并不等于团簇中各原子独立作用的总和, 而是具有非线性效应。就二次离子发射而言, 这种非线性通常与团簇的能量、团簇的大小、离子的电荷态以及靶物质的结构有关。通过研究二次离子发射有助于理解载能团簇离子与物质相互作用过程中的能量沉积与释放机制。

关键词: 团簇; 二次离子发射; 非线性效应; 能量损失; 电荷态

中图分类号: O571.33 **文献标识码:** A

1 引言

载能单原子离子与靶原子的作用过程是相互独立的, 其结果为所有单原子离子作用的总和。当载能团簇离子进入固体时, 它们的束缚电子被剥离, 由于相互排斥的库仑作用, 运动着的带电团簇成分将逐步散开。如果团簇成分之间的距离比较小, 团簇成分之间仍然保持着一定的空间关联, 则会在入射路径上产生非常高的能量沉积密度, 在固体中造成局部高温和高压的环境。由于团簇成分的这种集体作用或近邻效应, 载能团簇离子的作用结果并不等于团簇中各原子独立作用的总和, 而是具有非线性效应。有关团簇离子在固体中的非线性能量损失我们已经在本刊进行了介绍^[1]。而另一种非线性效应就是载能团簇离子诱发的二次离子或电子的发射^[2]。由于加速器产生团簇离子的种类和能量上的各种限制, 虽然世界上有许多研究组从事该领域的研究, 但系统的实验结果还相当缺乏, 实验结果的一致性也存在一些问题, 也还没有成熟的理论。一般来说, 载能团簇离子诱发的非线性二次离子发射与团簇的种类和能量、团簇的大小、离子的电荷态以及靶物质的结构有关。对二次离子发射的研究有助于理解载能团簇离子与物质相互作用过程中的能量沉积与释放机制。本文主要对载能团簇离子诱发

非线性二次离子发射中的有关问题进行简要评述。

2 实验方法

实现载能离子诱发二次离子的发射通常采用透射法或反射法。透射法是测量在靶的出射面一侧产生的二次离子, 反射法则是测量在靶的入射面一侧产生的二次离子。对二次离子的测量方法主要有: 飞行时间法、石英晶体振动法和沉积法。

飞行时间法 载能离子轰击靶样品时产生二次离子, 如果二次离子的能量和飞行的距离一定, 则它飞行的时间由二次离子的质量决定。因此, 通过测量二次离子的飞行时间谱就可以计算出所产生的二次离子的种类和产额。飞行时间法是测量二次离子发射最常用的一种方法。MeV 能量的离子诱发二次离子发射的研究通常在加速器上进行, 所以这种测量装置有时又称为加速器飞行时间谱仪。

石英晶体振动法 靶物质以真空镀膜方式镀在一个石英晶体振动器的表面, 镀膜的厚度大于载能离子的射程, 以避免载能离子对石英晶体的辐照损伤。镀膜也不能太厚, 否则将影响石英晶体振动频率的灵敏度。实验前对石英晶体振动器的振动频率随镀膜厚度的变化关系进行刻度。当载能离子轰击靶物质时, 由于二次离子的发射导致镀膜厚度的减

收稿日期: 2004-12-06; 修改日期: 2005-03-14

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10175005); 北京大学重离子物理研究所资助项目

作者简介: 史 平(1982-), 男(汉族), 陕西咸阳人, 研究生, 从事团簇离子与物质相互作用研究。

联系人: 丁富荣, E-mail: frding@pku.edu.cn

少,从而改变石英晶体振动器的振动频率。根据振动频率的变化可以计算出镀膜厚度的减少,即二次离子发射的数量。此方法只能用于二次离子发射的总量测量,不能确定所发射的二次离子的种类。

沉积法 载能离子轰击靶样品,所发射的二次离子被沉积到收集器上(如薄片)。通过称重或者卢瑟福背散射方法测量收集器上沉积物的数量,从而得出二次离子发射的产额。沉积法装置非常简单,还可以测量二次离子发射的角分布及中性粒子的发射,在二次离子的测量中被广泛使用。称重法不能鉴别二次离子发射的种类,并且测量精度也受到一定的限制。卢瑟福背散射测量方法也不能区分同一种元素的不同离子。因此,沉积法也只能用于二次离子发射的总量测量。

3 二次离子发射与团簇离子能量的依赖关系

图 1 给出了 Au_1 , Au_3 和 Au_4 离子分别轰击 CsI 样品时所产生的 $(Cs_2I_3)^-$ 二次离子的产额随能量/原子的变化关系^[3]。对于单原子 Au_1 入射,总的二次离子发射产额比较低,并且随能量增加而非常缓慢的增加。对于 Au_3 和 Au_4 团簇离子入射,总的二次离子发射产额比较高,能量低时,二次离子的发射产额随能量升高而迅速增加,在 40—100 keV/atom 时达到极大值,然后随能量升高而减小,在大约 1 000 keV/atom 附近有一个极小值,当能量大于 1 000 keV/atom 时,二次离子发射的产额又逐渐增加。为了探讨单原子和团簇离子诱发二次离子发射的这种差异性与它们的能量损失机制的关系,利用 SRIM2000 程序^[4] 计算了 Au 轰击 CsI 样品时的电子阻止本领 $(dE/dx)_{ele}$ 和核阻止本领 $(dE/dx)_{nuc}$ 随入射能量的变化曲线(见图 2)。比较图 1 和图 2,可以看出二次离子发射的产额与阻止本领具有非常相似的变化规律。因此可以认为单原子 Au_1 诱发的 $(Cs_2I_3)^-$ 二次离子发射主要受电子阻止过程控制,而团簇离子诱发的 $(Cs_2I_3)^-$ 二次离子发射则有所不同。能量在 1 000 keV/atom 以上时,电子阻止过程对团簇离子诱发的二次离子发射起主导作用,其产额约正比于 $(n \cdot dE/dx)_{ele}^{1.5}$, n 为团簇中原子的个数。扣除电子阻止本领的贡献后,能量在 1 000 keV/atom 以下时,二次离子的发射则主要由核阻止过程决定,二次离子的产额约正比于 $(n \cdot$

$dE/dx)_{nuc}^2$, 拟合曲线分别见图 1 中的点线。类似的实验结果还有 Au_n ($n=1-4$) 轰击苯丙氨酸样品时二次离子 $(M-H)^-$; $m/z=164.2$ 的发射产额随能量的变化^[3], 对于团簇离子,能量在 1 000 keV/atom 以上时,二次离子的产额正比于 $(n \cdot dE/dx)_{ele}^2$, 能量在 1 000 keV/atom 以下时,二次离子的产额则正比于 $(n \cdot dE/dx)_{nuc}^2$ 。

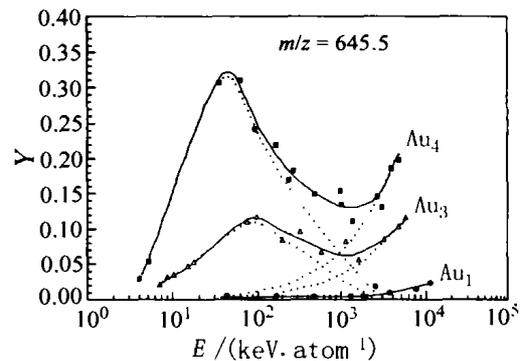


图 1 Au_3 和 Au_4 轰击碘化铯样品时,二次离子 $(Cs_2I_3)^-$ 的产额随能量的变化^[3]

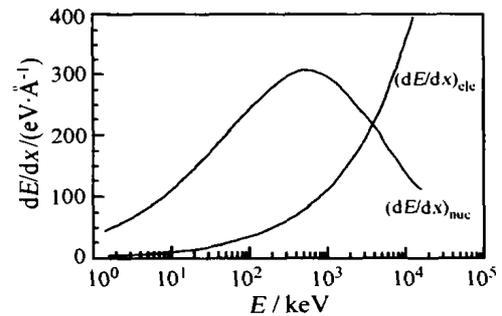


图 2 利用 SRIM2000 程序计算 Au 轰击 CsI 样品时的电子阻止本领 $(dE/dx)_{ele}$ 和核阻止本领 $(dE/dx)_{nuc}$ 随入射能量的变化曲线^[3]

单原子 Si 和团簇离子 Si_2 轰击碳纳米管时所产生的氢 (H , H_2 和 H_3) 离子发射的产额随速度(原子质量单位)的变化如图 3(b) 所示^[5]。可以看出, Si 诱发的氢离子发射产额随入射离子速度的增大而缓慢增加; Si_2 团簇离子诱发的氢离子发射产额在速度较低时明显增加,并随速度增大而迅速减小,在速度较大时,其产额与 Si 诱发的氢离子发射产额基本相同。同样,图 3(a) 给出了 SRIM2000 程序计算的不同能量的 Si 在碳中的电子阻止本领 $(dE/dx)_{ele}$ 和核阻止本领 $(dE/dx)_{nuc}$ 。图 3(b) 内的点线是利用 $Y=A(dE/dx)_{ele}^3+B(dE/dx)_{nuc}^4$ 的拟合曲线,其中, Y 为氢离子发射的产额, A 和 B 为拟合常数。可以

看出，电子阻止过程对单原子 Si 和能量较高的团簇离子 Si₂ 诱发的氢二次离子发射起主要作用。而在低能区，Si₂ 诱发的氢二次离子发射有明显的增强效应，因此，核阻止过程，特别是团簇离子在样品表面核能损的增强效应^[6]对团簇离子诱发的氢二次离子发射起主要作用。

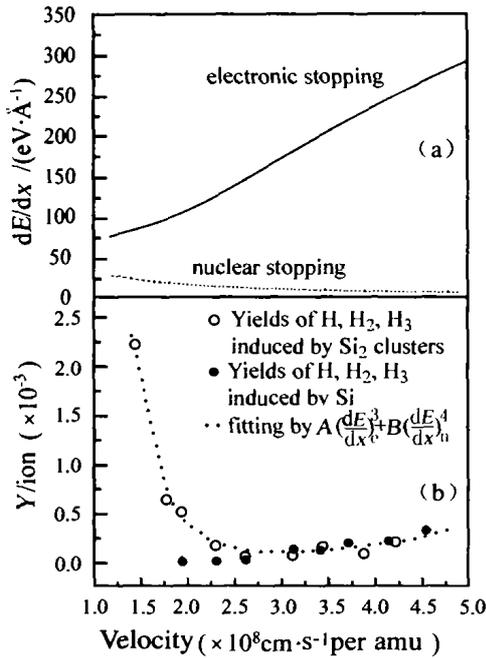


图 3 阻止本领和氢二次离子发射产额随入射离子速度的变化关系^[4]

从以上实验结果可以看出，二次离子的发射对团簇离子的能量有明显的依赖关系。一般来讲，入射离子在样品近表面的能量沉积密度是影响二次离子发射的决定因素。电子阻止过程对单原子入射和团簇离子能量较高时占优势，而能量的沉积主要依赖于电离过程中产生的二次电子。由于二次电子的作用范围比较大，因此电子阻止过程在样品表面所产生的能量沉积密度比较小，它所引起的二次离子的发射产额也相对低一些。对于能量较低的团簇离子，由于质量大和团簇成分的集体作用，核阻止过程对能量的沉积则占优势，同时团簇核能损的增强效应也将明显增加，在样品表面可以产生更高的能量沉积密度，增加了二次离子的发射产额。

总之，电子阻止过程和核阻止过程在样品表面的能量沉积导致二次离子的发射。电子阻止过程和核阻止过程的作用程度依赖于团簇离子的能量，当然，与团簇的种类和大小也有密切关系。

4 二次离子发射与团簇大小的关系

当能量一定时，改变入射团簇离子的大小，会发现二次离子发射的产额与团簇大小之间具有一定的依赖关系。图 4 给出了 Au_n (n=1-5) 轰击 Au 样品时二次离子的产额随团簇大小 n 的变化^[7]。图 4(a) 的纵坐标为二次离子产额 Y 除以团簇中原子的个数 n。当能量/原子相同时，团簇中每个原子所产生的二次离子产额 Y/n 随团簇中原子个数 n 的增加而增加。团簇的原子个数 n 愈多，它所引起的非线性二次离子发射就愈显著。图 4(b) 是我们根据图 4(a) 的数据点整理的，它的纵坐标为二次离子产额 Y 除以团簇中原子个数 n 的平方。当能量/原子相同时，不同大小的团簇离子所产生的 Y/n² 值变化不大，这说明团簇诱发的二次离子的产额与团簇大小的 n² 成正比。根据弹性碰撞机理，Sigmund 等^[8]提出了二次离子发射的热峰效应原理：二次离子的

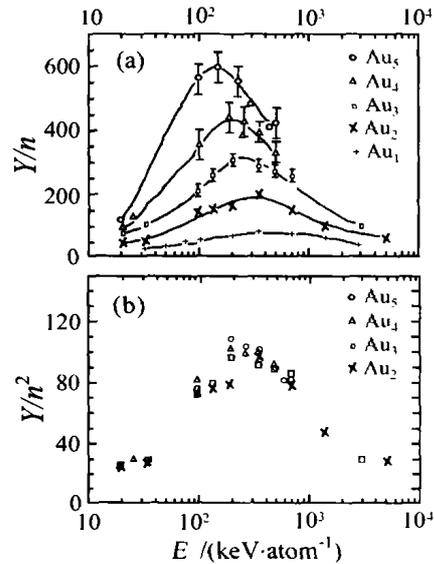


图 4 Au_n (n=1-5) 轰击 Au 样品时，(a) 二次离子的产额 Y/n 和 (b) 二次离子产额 Y/n² 随 (能量/原子) 的变化曲线^[7]

溅射产额正比于单位路径上沉积能量的平方，而沉积的能量正比于 $n (dE/dx)_{\text{nuc}}$ ，n 为团簇的大小，所以二次离子的溅射产额与团簇大小的 n² 成正比。上述实验结果与 Sigmund 等人的理论是一致的。另外，德国一个实验小组分别用 C_n (n=1-12，每个原子能量为 0.714 MeV)，Ag_n (n=1-7，每个原子能量为 1.1 MeV) 和 Au_n (n=1-5，每个原子能量

为 2.0 MeV) 轰击 CsI 样品, 实验结果表明, 所产生的二次离子 Cs, (CsI)Cs 和 (CsI)₂Cs 的产额则与团簇大小的 n^α ($\alpha \approx 2.5-3.19$) 成正比^[9]。尽管不同作者在实验上给出的二次离子发射产额对团簇的大小的依赖程度有些差异, 但团簇离子诱发的二次离子发射产额对团簇的大小确有密切关系。由于团簇成分在样品表面仍保持着一定的空间关联并产生集体作用, 造成团簇能量损失的非线性, 特别是团簇的核能损具有一定的增强效应, 在样品表面产生非常高的能量沉积密度。团簇越大, 团簇成分的空间关联越紧, 则团簇能量损失的非线性越明显, 二次离子发射对团簇大小的依赖关系也更显著。

5 二次离子发射与离子电荷态的依赖关系

图 5 给出了 2 MeV 的 N 轰击 LiF 样品, 在不考虑样品表面层有污染的情况下, 不同靶温度时所发射的 Li 二次离子的产额随入射离子在样品近表面处预平衡电荷态变化的实验结果^[10]。预平衡电荷态与入射离子电荷态及靶温度的关系在文献[10]中有详细描述。可以看出, 二次离子的发射产额与入射离子的预平衡电荷态 Q^3 成正比。图 6 给出了 300 keV 不同电荷态的 Xe 离子分别轰击 Al, Ni, Cu 和 Si 样品时二次离子发射的实验结果, 二次离子发射的产额近似与电荷态 $Q^{1.1}$ 成正比^[11]。不同能量和不同电荷态的 Ta 离子在 Au 靶表面引起的二次电子发射产额的实验结果也表明与电荷态基本上成正比关系^[12]。当入射离子入射到样品表面时, 它可能被电离损失电子, 同时也可能从靶中俘获电子, 这种过程称为电荷交换。一般来讲, 电荷交换与入射离子的种类、所带的电荷态和能量及靶物质有关。电荷交换过程将引起入射离子的有效电荷发生变化, 从而影响入射离子与靶原子相互作用的程度, 即影响入射离子在靶表面的能量损失或能量沉积。所以靶表面所发射的二次离子或电子的产额对入射离子的电荷态非常灵敏并有一定的依赖关系。相对于重离子, 轻离子有效电荷的相对变化要大一些, 因此, 二次离子发射对入射离子电荷态的依赖程度也更明显一些。遗憾的是不同电荷态的团簇离子诱发二次离子发射的实验结果至今未见报道, 其原因可能是从加速器上能够得到的高电荷态的团簇束流太小, 实验上有一定的困难。可以推测, 由于团簇离子与

物质相互作用的近邻效应, 入射团簇电荷态的不同, 必定影响团簇离子在物质近表面有效电荷的变化, 进而影响团簇离子诱发的二次离子发射。在北京大学, 我们研究组对不同电荷态的团簇离子诱发二次离子发射的实验目前正在准备进行中。

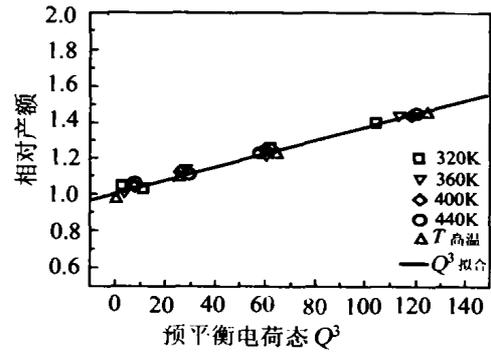


图 5 2 MeV 的 N 轰击 LiF 靶样品, 不同温度下所发射的 Li 二次离子的产额随入射离子的电荷态变化^[10]

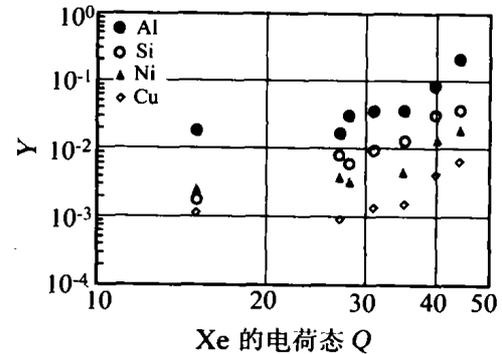


图 6 300 keV 不同电荷态的 Xe 离子分别轰击 Al, Ni, Cu 和 Si 样品时二次离子发射^[11]

6 二次离子发射与靶物质的依赖关系

图 7 给出了不同能量的 $^{14}N^{3+}$ 分别轰击 LiF, NaCl 和 CsI 样品时二次离子发射的产额曲线^[13]。同样, 从图 6 也可以发现相同能量和相同电荷态的 Xe 离子轰击不同样品时二次离子发射的产额也不相同。可以看出, 二次离子发射的产额随靶物质的不同而变化, 质量小的二次离子发射的产额相对高一些。一般来讲, 不同物质结构的靶原子在样品表面和晶格中具有不同的束缚能, 它们的电子在物质中的状态和在原子中的结合能也不相同。相同入射离子在不同靶物质表面所沉积的能量密度也不一样, 因此就造成了二次离子或电子的发射对靶物质的依赖关系。

综上所述, 影响载能团簇离子诱发的非线性二次离子发射的因素非常多, 作用过程也比较复杂, 有时多种因素共同起作用。一般来讲, 载能团簇离子诱发的非线性二次离子发射与团簇的种类、能量、团簇的大小、离子的电荷态以及靶物质的结构有关。到目前为止, 载能团簇离子与物质相互作用的机制还没有统一的理论, 因此, 提供更多的实验结果是十分必要的, 这也是该领域成为世界上研究热点的原因。

参 考 文 献:

- [1] 丁富荣, 史平, 王尧等. 原子核物理评论, 2004, **21**(3): 225.
- [2] Andersen H H. Matematisk-Fysiske Meddeleser, 1993, **B43**: 127.
- [3] Brunelle A, Della-Negra S, Depauw J, *et al.* Phys Rev, 2001, **A63**: 022902.
- [4] Ziegler J F, Biersack I P, Littmark H. The Stopping and Ranges of Ions in Solids. New York: Pergamon Press, 1985.
- [5] 丁富荣, 史平, 何卫红等. 原子核物理评论, 2004, **21**(1): 34.
- [6] He W H, Kang H S, Shen D Y, *et al.* Nucl Instr and Meth, 2003, **B201**: 449.
- [7] Andersen H H, Brunelle A, Della-Negra S, *et al.* Phys Rev Lett, 1998, **80**: 5 433.
- [8] Sigmund P, Claussen C. J Appl Phys, 1981, **52**: 990.
- [9] Tomaschko C, Herrmann K H, Káshammer, *et al.* Nucl Instr and Meth, 1997, **B132**: 371.
- [10] Leite C V B, Baptista G B, Pereira J M. Nucl Instr and Meth, 1998, **B140**: 55.
- [11] Sekioka T, Terasawa M, Mitamura T, *et al.* International Symposium on Atomic Process of Highly Charged Heavy Ions and Cluster Ions, 1998, A. 5. 1, Japan.
- [12] Pereira J A M, Castro C S C, Jeronymo J M F, *et al.* Nucl Instr and Meth, 1997, **B129**: 21.
- [13] Krása J, Láska L, Stöckli M P, *et al.* Nucl Instr and Meth, 2001, **B173**: 281.

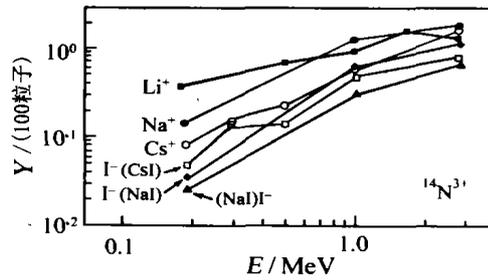


图 7 不同能量的 $^{14}\text{N}^{3+}$ 分别轰击 LiF, NaCl 和 CsI 样品时二次离子发射产额曲线^[13]

Non-linear Effect of Secondary Ion Emission Induced by Energetic Clusters*

SHI Ping, DING Fu-rong, WANG Yao, NIE Rui, MA Hong-ji

(Department of Technical Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: Using energetic cluster as projectile is a unique way to produce simultaneous impacts of several atoms and deposit extremely high energy density in a very small area. The cluster impingement on solids has exhibited some non-linear effects not presented in collisions of individual atoms with those solids. The study of the secondary ion emissions can give insight into the energy deposition and relaxation steps of the cluster-solid interaction. The dependence of the yields of secondary ion emission induced by clusters on the energy of clusters, cluster sizes, charge states and material structures of the targets was reviewed in this paper.

Key words: cluster; secondary ion emission; non-linear effect; energy loss; charge state

* Foundation Item: National Natural Science Foundation of China(10175005)