



MeV 微集团束与物质的相互作用^{* 1}

卢希庭 沈定予 王雪梅 赵 强 赵子强

郑 涛 沈毅雄 夏宗璜[#] 江栋兴

(北京大学技术物理系, 重离子物理研究所 北京 100871)

摘 要 简述了有关 MeV 微集团离子束与物质表面相互作用研究的概况. 介绍了在北京大学技术物理系和重离子物理所 1.7 MV 串列加速器上开展的有关实验研究及取得的初步结果.

关键词 MeV 微集团束 集团区 集体效应

分类号 O571.33、O562.5

1 引言

团簇是指由 $2 \sim 10^4$ 个原子或分子组成的具有相对稳定结构的非刚性集合体. 它的主要物理与化学性质既不同于单个原子、分子, 又不同于大块固体物质, 是介于气态和固态间的一种新的过渡状态和物质结构的新层次^[1]. 团簇为一新的有限多体体系, 对这种有限多体体系的结构、内部相互作用及运动规律的研究具有重要的理论意义. 另一方面, 团簇还有诱人的应用远景, 不仅在团簇沉积和外延技术方面已取得了成功的应用, 更具吸引力的是提供了一种新的可能性: 即通过对各种团簇结构、性质的深入研究, 实现按照人们的理想和需要, 设计和制造出具有特殊性能或功能的材料或器件.

离化的团簇在电场中加速形成的载能团簇离子束是离子束的最新成员. 探索载能团簇离子束与物质相互作用, 是离子与物质相互作用过程研究的深入, 并将成为丰富的新现象的源泉. 载能团簇束与物质表面碰撞的基本特点是许多相关联的原子几乎同时到达物质表面. 在这一事件中, 许多原子和电子

在极短时间内作用于一个小区域, 使得局域能量沉积密度和质量密度极高. 这种极端条件下, 电子激发和核反冲相互作用导致在物质表面碰撞点及沿着团簇离子束径迹的弛豫过程中发生的效应, 相对于每个单个原子贡献的总和来说, 可能是非线性的. 近年来, 人们对团簇离子束产生了很大兴趣. 在很低能区 (eV/atom), 团簇束沉积外延膜技术已相当成功^[2]; 在 keV/atom 低能区, 对团簇束轰击样品表面产生的集体效应 (如表面离子溅射、电子发射的非线性) 已从实验与理论两个方面开展了许多研究工作^[3]. 但对 MeV/atom 高能区的碰撞相互作用研究还处于开始阶段. 目前, 国际上能够提供 MeV 团簇束并用于物理实验还仅限于法国、瑞士、德国、日本、美国等国的少数几家实验室. 对比 keV/atom 低能区的情况, MeV/atom 团簇离子束与物质相互作用在能量沉积过程中主要是由于电子激发和电离能损的贡献, 其能量沉积的体积大小与发射电子速度有关; 而与 MeV/u 重离子束与物质相互作用相比, 也存在很大差别. 表 1 以 18 MeV C_{60} 和 845

1998 - 04 - 30 收稿.

* 本工作部分得到北京大学重离子物理所开放课题资助.

执笔.

MeV Pb 为例^[4], 说明了当两者电子阻止 (dE/dX)_e 贡献可比拟的情况下, 前者核能损远大于后者, 而发射 δ 电子的最大能量远小于后者. 这意味着即使电子能损相当, 能

量沉积密度前者远高于后者. 由此可见, 利用 MeV 量级能量的团簇束即可达到 GeV 重原子离子在物质中的能量沉积密度, 因此拓宽了低能加速器的又一新的应用领域.

表 1 845 MeV Pb 离子与 18 MeV C₆₀ 团簇离子在 Ti 中能损参数及 δ 电子最大能量值 E_m 的比较^[4]

离子	入射能量(MeV)	$(dE/dX)_n/\text{keV} \cdot \text{nm}^{-1}$	$(dE/dX)_e/\text{keV} \cdot \text{nm}^{-1}$	E_m/eV
Pb	845	0.08	36	8 800
C ₆₀	18	18	43	50

2 MeV/atom 高能区研究进展

近年来, MeV/atom 团簇束与物质相互作用的研究已表明: 尽管团簇本身结构疏松, 易碎裂, 但在碰撞的物质近表面存在一个组成团簇的各原子组分互相关联, 各单独作用互相重叠的称之为 Cluster zone. 在此有限范围内组成团簇的各原子组分彼此靠近, 并协同行进保持在团簇离子的径迹中. Cluster zone 属高能团簇离子与物质表面碰撞过程的初始阶段, 存在于团簇中的各成分能量沉积叠加并伴有近邻效应. 但终因离子间的库仑排斥作用和离子在物质中能损的歧离效应, 使团簇的各原子成分散裂而分开. 这时各单个原子离子在它们自己的轨迹上分别运动, 直至停止在物质中. 以上这一相互作用的物理图像已得到实验的证实.

Perez 等人^[5]利用 1.74 MeV/atom 的 C₃⁺、C₅⁺ 离子轰击 LiF 单晶. 在 $10^{12} \sim 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ 辐照剂量条件下, 测量了 F 心(光吸收带约 250 nm)和 F_2 心(光吸收带约 450 nm)的生长曲线, 得到了在 LiF 单晶近表面 Cluster zone 辐照缺陷形成的 F 、 F_2 色心浓度. 结果表明色心浓度随团簇大小而增长, 特别是 C₅⁺ 相对于相同能量(MeV/atom)及辐照剂量的 C₁⁺ 情况, 色心浓度的增加极明显. 作者指出, 这一缺陷浓度的非线性增强效应来自很高的电子激发能密度在缺陷形成的初始阶段的团簇效应. M. Dobeli 等人^[6]研究了

MeV/atom 量级的 C_{*n*}⁺ ($n \leq 8$) 和 Ge_{*n*}⁺ ($n \leq 3$) 离子在 Si 单晶表面产生的辐照损伤, 辐照剂量范围为 $10^{13} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-2}$. 利用离子沟道背散射分析方法估算出了在相同辐照剂量条件下, 不同大小团簇离子与单个离子在 Si 表面产生的辐照缺陷浓度之比值. 在近表面 100 ~ 200 nm 区间, 该比值的变化显现出辐照损伤的非线性效应. K. Boussofiane-Bandin 等人^[7]利用能量为 MeV/atom 量级的 Au_{*n*}⁺ ($n \leq 4$) 离子束轰击 CsI (约 100 nm 厚) 和 Phenylalanine 薄膜, 用 TOF 法测量了样品表面的二次离子(SI)发射质谱. 所得二次离子产额 Y 满足关系式:

$$Y = K \cdot n^\alpha \cdot v^2,$$

式中, K 为由二次离子决定的常数; n 为团簇中原子数目; v 为入射离子速度; α 与二次离子有关, 文献[7]介绍的 α 值介于 1~2 之间. 上式表明, 二次离子发射产额随入射离子的速度平方线性地增加, 而当入射离子速度相同时, 产额随团簇离子大小非线性增加. 有趣的是, 作者测量了同一样品透射式溅射的产额, 仍然观测到二次离子发射产额的非线性效应. 这是团簇离子在薄膜中破碎, 团簇碎片到达薄膜样品出射面的溅射结果. 此时二次离子发射的特征表明了刚离开薄膜出射处的团簇碎片存在着对入射时团簇尺寸的记忆效应. 因此透射式溅射的二次离子发射

产额不同于已经完全分裂散开的入射团簇离子的碎片的溅射行为. 此外, Ch. Tamaschko^[8]和 K. Narumi 等人^[9]还分别进行了 MeV 量级 C_n^+ ($n \leq 5$) 和 B_n^+ ($n \leq 4$) 团簇离子束在薄膜中的能损研究. 在 K. Narumi 的实验中, 对比了在相同厚度 C 膜中 B_n^+ ($n = 2, 3, 4$) 与单个 B 离子束能损情况. 他们的结果表明, 当 C 膜厚度 $\leq 2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 时, 观察到明显的能量损失的非线性, 并指出这一实验现象是团簇离子在物质表面的近邻效应^[9,10]导致的结果.

3 5SDH-2 Pelletron 上微集团束与物质相互作用的实验研究

对于团簇离子尺寸小者, 称其为微集团离子束. 自 1993 年^[11]在 1.7 MV 串列加速器上提取了 C_n^+ ($n \leq 8$) 微集团束后, 近年来又相继成功地引出了多种微集团离子束(见表

2), 并作为一种新型离子束用于与物质相互作用的实验研究.

表 2 几种微集团束的参数

团束种类	能量(MeV)	靶上流强(nA)
C_2^+	3.0	460
C_3^+	3.0	46
C_4^+	3.0	30
C_5^+	3.0	3.2
C_6^+	3.0	6
C_7^+	3.0	1
C_8^+	3.0	1
Al_2^+	3.0	350
Al_3^+	2.0	35
Al_4^+	2.0	3.3
Si_2^+	3.0	360
Si_3^+	3.0	22
Si_4^+	2.4	1.1
Ge_2^+	2.0	96
Ge_3^+	1.0	1.1

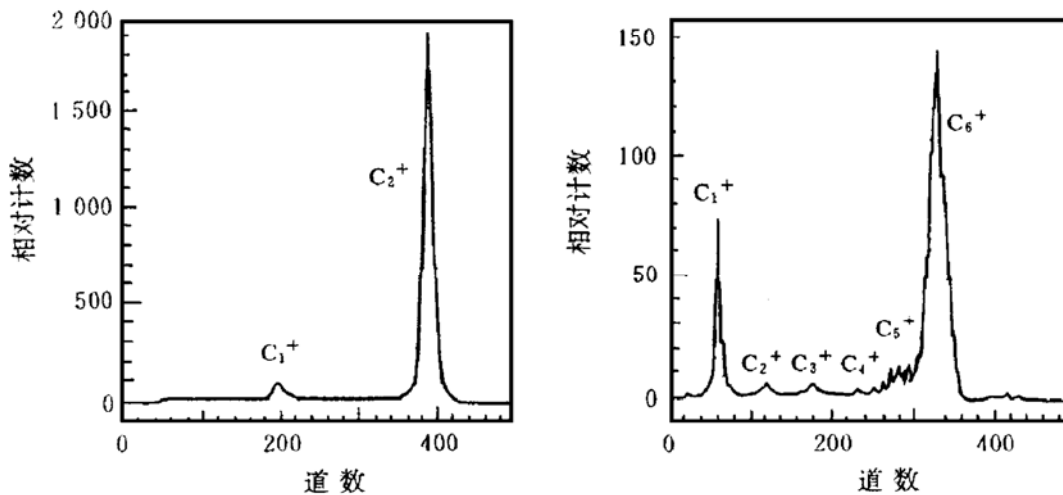


图 1 入射能量为 3.028 MeV 的 C_2^+ 和 C_6^+ 离子能谱

通常, 鉴别高能微集团离子束的团簇离子至关重要. 对于加速后经开关磁铁选择后的各种尺寸的团簇离子, 利用一个带有直径小于等于 0.2 mm 微孔光栏的金硅面垒探测器分别直接探测到了 C_n^+ ($n \leq 8$) (图 1)、 Si_n^+ ($n \leq 3$)、 Ge_n^+ ($n \leq 3$) 各种尺寸的微集团离子的能谱. 鉴别结果证明了 MeV 微集团离子束在束流线中可保持其原有稳定结构运输,

到达并进入固体表面, 被金硅面垒探测器记录. 沿用通常的离子束实验技术和方法开展了如下一些实验研究:

(1) 用 C_n^+ ($n \leq 7$) 微集团离子束轰击约 $40 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 金箔, 进行了卢瑟福背散射(RBS)谱测量^[12]. 在相同 MeV/atom 条件下, 各种尺寸微集团离子 RBS 谱的能量和散射谱峰的半高宽基本相同, 并与单个原子离子情况

无区别. 测量结果表明, 团簇离子与 Au 原子碰撞散裂为团簇离子的单个成分, 并具有相同的散射能量.

(2) 采用 Au 标记背散射法^[13] 测量了铝膜对 Si_n^+ ($n \leq 3$) 团簇离子的能损和阻止本领. 在 0.6~1 MeV/atom 能区的低能端, 观察到微集团 Si 离子比单个 Si 离子在 Al 中的能损和阻止本领明显增大, 支持了近邻多原子离子能量沉积的集体效应的存在(见图 2).

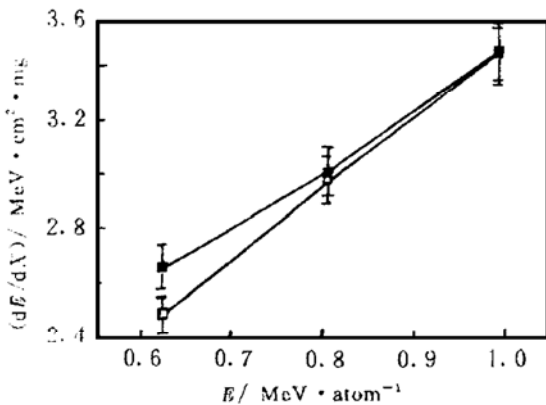


图 2 在 0.6~1.0 MeV/atom 能区, Si_3^+ 和 Si_1^+ 在 Al 中的阻止本领
■ Si_3^+ , □ Si_1^+ .

(3) 在相同注入剂量和剂量率条件下, 利用 1 MeV/atom 的微集团 Si_n^+ ($n \leq 3$) 束注入单晶硅. 应用沟道背散射技术测量和分析了未注入和 Si^+ 、 Si_2^+ 及 Si_3^+ 注入 Si 样品的随机性与沟道谱, 提取了相对损伤量^[14]. 图 3 给出了在单晶 Si 表面下约 100~200 nm 区间内, 微集团离子束辐照与单个离子辐照产生的缺陷浓度之比 $n_d(A_n)/n_d(A)$. 缺陷浓度比随团簇尺寸变化曲线的走向, 反映了缺陷产生率和局域热效应造成退火的缺陷复合率的综合团簇效应. 综合近期有关研究报道^[6,15] 的结果, 将数据点按电子阻止 $(dE/dX)_e$ 与核阻止 $(dE/dX)_n$ 之比 $F = (dE/dX)_e / (dE/dX)_n$ 进行分类, 归纳出非线性效应的特征与 F 值有关, 随 F 值减小, $n_d(A_n)/n_d(A) = 1$ 的位置向小团簇方向移动. 图中 Si_n^+ 虚线为应用 T. A. Tombrello 模型^[16] 拟合的结果. 该模型是基于高能重离子在金属中的损伤实

验数据建立的. 损伤截面中计入了电子激发能对损伤的贡献.

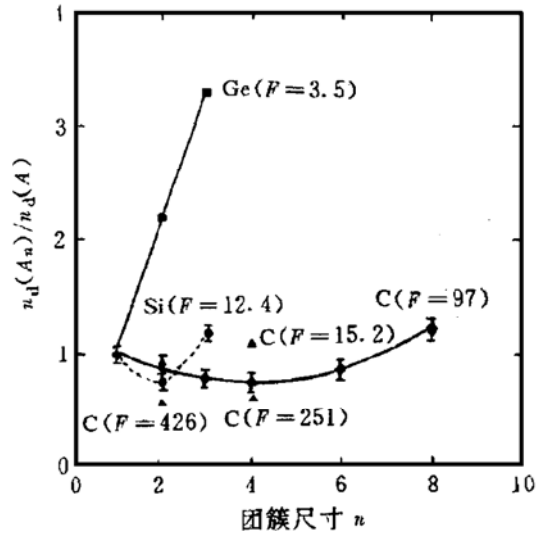


图 3. 各种 F 值时的相对缺陷浓度比随团簇尺寸变化的关系曲线
 $F = (dE/dX)_e / (dE/dX)_n$, · Si, ■ $Ge^{[6]}$, ○ $C^{[6]}$, ▲ $C^{[15]}$.

(4) 分别测量了 2.8 MeV C_2^+ 和 1.4 MeV C^+ 离子束在薄 Cu 膜靶 (~40 nm) 中引发的 Cu K-X 射谱, 并从 X 射线谱得到 Cu K-X 射线分支比值 $K_\alpha / (K_\alpha + K_\beta)$ ^[17]. 结果表明, 两者诱导的 K-X 射线发射谱几乎完全相同; 在误差范围内分支比值互相接近.

4 结束语

国内外有关高能团簇离子束与物质相互作用研究的现状, 说明了 MeV 微集团离子束在物质表面的碰撞及其弛豫过程产生的相关现象及效应明显地有别于单个离子的情况. 对于 MeV 微集团离子束与物质表面相互作用, 仅考虑单位长度上总能损不足以解释现有的实验事实. 换句话说, 必须考虑到同时多个原子离子碰撞产生的集体效应. 值得一提的是, 高能区的团簇离子中原子组份在物质中的射程远大于低能区的情况, 由此有可能制备合适靶材料和适当厚度的薄膜样品, 研究 Cluster zone 内外团簇离子碎片与

物质相互作用的特征, 而微集团离子束其结构较简单, 实验技术如提取、加速、鉴别及探测等以及理论分析也相对简便易行. 因此, 开展高能微集团束与物质相互作用的研究, 在这一新的机遇与挑战中占有重要的位置.

参 考 文 献

- 1 Tembrello T A. Cluster-Solid Interaction. Nucl Instr and Meth, 1995, B99: 225~228
- 2 Yamada H, Usui H, Takai T *et al.* Bombarding Effects by Ionized Cluster Beams. Nucl Instr and Meth, 1988, B33: 108~111
- 3 Benguerba M, Brunelle A, Della-Negra S *et al.* Impact of Slow Gold Clusters on Various Solids; Nonlinear Effects in Secondary Ion Emission. Nucl Instr and Meth, 1991, B62: 8~22
- 4 Dammak H, Dunlop A, Lesueur D *et al.* Tracks in Metals by MeV Fullerenes. Phys Rev Lett, 1995, 74 (7): 1135~1138
- 5 Perez A, Dobeli M, Synal H A *et al.* Defect Creation in Tracks Produced by High Energy Carbon Clusters in LiF. Nucl Instr and Meth, 1994, B91: 187~191
- 6 Dobeli M, Ender R M, Fischer U S *et al.* Damage Production in Si by MeV Carbon Cluster Irradiation. Nucl Instr and Meth, 1994, B94: 388~394
- 7 Bonssofiane-Bandin K, Brunelle A, Chaurand P *et al.* Non-linear Sputtering Effects Induced by MeV Energy Gold Clusters. Nucl Instr and Meth, 1994, B88: 61~68
- 8 Tomaschko Ch, Brandl D, Kugler R *et al.* Energy Loss of MeV Carbon Cluster Ions in Matter. Nucl Instr and Meth, 1995, B103: 407~411
- 9 Narumi K, Nakajima K, Kimura K *et al.* Energy Loss of Clusters Trasmitted Through Carbon Foils. ICACS-17 Beijing, China, July 2~6, 1997, D05
- 10 Brant W, Ratkowski A, Ritchie R H *et al.* Energy loss of Swift Proton Clusters in Solid. Phys Rev Lett, 1974, 33(22): 1325~1328
- 11 Shen Dingyu, Jiang Dongxing, Wang Xuemei *et al.* Extraction of MeV C_2^+ - C_8^+ Cluster Beams. Nucl Instr and Meth, 1994, A348: 47~50
- 12 Wang Xuemei, Lu Xiting, Xia Zonghuang *et al.* Identification and Rutherford Backscattering of MeV Carbon Cluster Ions. Chin Phys Lett, 1997, 14(9): 712~714
- 13 Jin Changwen, Lu Xiting, Huang Xiaojing *et al.* Stopping Power of Mylar for Low-velocity B, C and O Ions. Phys Rev, 1993, B48: 46~48
- 14 Dingyu Shen, Xiting Lu, Zonghuang Xia *et al.* Damage Production in Silicon by MeV Si Cluster Irradiation. Nucl Instr and Meth, 1997, B129: 392~396
- 15 Dobeli M, Amers F, Ender R M *et al.* Defect Production by MeV Cluster Impacts. Nucl Instr and Meth, 1995, B106: 43~46
- 16 Tombrello T A. Damage in Metals from MeV Heavy Ions. Nucl Instr and Meth, 1995, B95: 501~504
- 17 Xia Zonghuang, Wang Qian, Shen Dingyu *et al.* MeV C_2^+ Ion Induced Cu K X-ray Emission. IJ of PLXE, 1995, 5(1): 21~25

MeV Microcluster Beam Interaction with Matter

Lu Xiting Shen Dingyu Wang Xuemei Zhao Qiang Zhao Ziqiang
Zheng Tao Shen Yixiong Xia Zonghuang[#] Jiang Dongxing
(Department of Technical Physics, Institute of Heavy Ion Physics,
Peking University, Beijing 100871)

Abstract The recent development on investigation of MeV microcluster beam interaction with matter is outlined. And based on 5SDH-2 Pelletron of Peking University, some relative experimental results, such as identification and Rutherford backscattering measurement of MeV carbon cluster ions, stopping power of MeV silicon microcluster ions in Al film, damage producted in silicon by MeV silicon microcluster irradiation, etc. are briefly introduced.

Key words MeV microcluster beam cluster zone collective effect