

Исследование зоны энерговыделения потока тяжелых ионов в наноматериалах методами рентгеновской спектроскопии многозарядных ионов

В. П. Ефремов⁺, С. А. Пикуз мл.⁺¹⁾, А. Я. Фаенов*, О. Розмей^{□2)}, И. Ю. Скобелев*, А. В. Шутов[△],
Д. Х. Х. Хоффманн^{□2)}, В. Е. Фортон⁺

⁺Объединенный институт высоких температур РАН, 127412 Москва, Россия

* Центр данных по спектрам многозарядных ионов ВНИИФТРИ, 141570 Менделеево, Московская обл., Россия

□ Gesellschaft für Schwerionenforschung, D-64291, Darmstadt, Germany

△ Институт проблем химической физики РАН, 142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 15 марта 2005 г.

Представлены экспериментальные данные о состоянии кремниевой аэрогелевой среды (SiO_2) под воздействием потока ионов Ni с энергией 4.7 МэВ/нуклон, полученные с использованием рентгеновской спектроскопии. Регистрировалось излучение переходов электронов на K-оболочку в многозарядных ионах Si с пространственным разрешением вдоль направления распространения пучка в среде. Проведенные расчеты ионизационного состояния и населенности возбуждаемых уровней атомов кремния мишени позволяют получить оценку электронной температуры $T_e = 120\text{--}70$ эВ среды в области трека иона. Оценки на основе двумерных гидродинамических расчетов для тех же условий дают значения $T_e = 116\text{--}60$ эВ при плотностях возбужденной среды мишени $2.5\text{--}0.5$ г/см³.

PACS: 32.30.Rj, 52.25.-b, 52.50.Gj, 52.65.-y

1. Взаимодействие быстрых тяжелых ионов с конденсированным веществом приводит к образованию треков в твердых телах (см., например, обзоры [1, 2]). Поперечный размер трека много больше диаметра самого иона, что говорит о существовании интенсивной нагрузки, превышающей предел текучести материала, на расстояниях даже достаточно удаленных от оси трека.

Численное моделирование, проведенное в работе [3], показало, что скорость и величина энерговыделения иона в твердом теле столь велики, что в течение первых фемтосекунд после пролета иона в зоне взаимодействия образуется плазма с температурой порядка сотни эВ, давлением в десятки мегабар и плотностью твердого тела. Однако существующими методами диагностики измерение теплофизических параметров в зоне энерговыделения сразу после пролета тяжелых ионов через вещество обычно невозможно, что объясняется чрезвычайно высокой скоростью всех процессов, происходящих в такой плазме, и генерацией сопутствующих электромагнитных помех. В этой связи экспериментальная информация, касающаяся давления, температуры, зарядового

состояния среды в зоне энерговыделения, может существенно уточнить параметры возмущений, генерируемых в веществе мишени (обычно – это тепловые и ударные волны, распространяющиеся в мишени), и помочь как адекватному теоретическому описанию состояния вещества в начальный момент трекообразования, так и в расчете конечных размеров образующихся треков в зависимости от параметров налетающих ионов и материала мишени.

В последние годы при исследованиях воздействия импульсных потоков энергии (пучки электронов или ионов, лазерные пучки) на вещество применяются пористые (пространственно-неоднородные) мишени, состоящие из частиц (кластеров), причем размеры этих твердотельных кластеров могут меняться от единиц до сотен нанометров [4–8]. Такие пористые среды поглощают энергию только в областях мишени с высокой плотностью, при этом увеличивается длина зоны энерговыделения, что может быть использовано как для детального исследования пробега частиц, так и для построения моделей поведения пористой среды. Особенности наноструктурных мишеней в полной мере смогут проявиться, если длительность воздействующего потока энергии τ (например, длительность фемтосекундного лазерного излучения или релятивистского пучка тяжелых ионов)

¹⁾ e-mail: pikuz@mem3.phys.msu.ru

²⁾ О. Rosmej, D. H. H. Hoffmann.

лежит в субпикосекундном диапазоне и не превосходит времени газодинамического разлета наночастицы. То есть если для длительности импульса τ в процессе облучения выполняется условие $\tau \ll R/C(T)$ ($C(T)$ – объемная скорость звука, R – радиус наночастицы), то происходит изохорический нагрев наночастицы и при достаточной мощности излучения образуется плазма твердотельной плотности [9, 10].

При использовании ионных пучков, ускоренных до субрелятивистских скоростей, время их взаимодействия с плотными областями (кластерами) пористого материала также будет много меньше времени газодинамического разлета таких областей (время пролета иона через конденсированную среду – частицу аэрогеля с размерами 1–10 нм будет составлять ~ 0.05 – 0.5 фс). То есть возникающая после пролета иона неразгруженная плазма мишени будет иметь твердотельную плотность. Если при этом общая интенсивность падающего пучка будет низкой, то каждый последующий ион пучка будет взаимодействовать с уже отрелаксировавшей средой.

В настоящей работе исследована плазма, образующаяся при взаимодействии пучка ионов никеля с энергией 4.7 МэВ/нуклон с пористой SiO_2 -мишенью (аэрогелем). Использование метода рентгеновской спектроскопии с пространственным разрешением [11] позволило определить состояние аэрогельной мишени в процессе ее взаимодействия с ионами Ni. Ранее аналогичный метод применялся для диагностики состояния ионов пучка, распространяющегося в твердотельной среде [12, 13].

2. Экспериментальные исследования были выполнены на линейном ускорителе тяжелых ионов UNILAC в GSI, Дармштадт, Германия. Схема эксперимента показана на рис.1а. Исследовалось взаимодействие ионов Ni^{+14} с SiO_2 -аэрогельными мишенями плотностью 0.04 г/см^3 в вакуумной камере при остаточном давлении 10^{-6} мбар. Аэрогельная мишень представляла собой пористый материал, формируемый цепями SiO_2 -зерен, каждое из которых имело размер 4 нм. Общая толщина мишени выбиралась из условия полной остановки в ней ионного пучка. Ионы с энергией 4.7 МэВ/нуклон ($v/c \approx 0.1$) фокусировались в пятно диаметром 1–2 мм на край мишени, положение которой задавалось точным манипулятором. Интенсивность пучка менялась в пределах 0.2–0.5 мкА, время экспозиции при этом составляло 2–3 ч. Небольшое значение среднего тока пучка статистически задает интервал следования ионов, равный ~ 10 пс. В этом случае вероятность попадания двух ионов в одно зерно за время, меньшее длительности разлета плазмы, пренебрежимо мала, и можно

Место для тонового рисунка

Рис.1. (а) Схема эксперимента; (б) спектр излучения SiO_2 -аэрогельной мишени плотностью 0.04 г/см^3 и ионов Ni с исходной энергией 4.7 МэВ/нуклон

рассматривать весь процесс как нагрев зерна одной единственной высокоэнергетичной заряженной частицей.

Спектры рентгеновского излучения в области 6.1–7.3 Å регистрировались спектрографом со сферически изогнутым кристаллом кварца $10(-1)0$ ($2d = 8.512 \text{ Å}$). Радиус кривизны составлял $R = 100$ мм, а размер рабочей области – 10×28 мм. Рентгеновское излучение регистрировалось пленкой Kodak DEF. От видимого и ультрафиолетового излучений пленка защищалась двумя слоями полипропиленовой пленки толщиной 1 мкм и покрытой слоем алюминия толщиной 0.2 мкм. Дисперсионная схема была настроена на работу в первом и четвертом порядках отражения, что позволяло одновременно наблюдать линию He_α и ее диэлектронные сателлиты (вплоть до K_α -линии нейтрального атома) многозарядных ионов Si (излучение мишени) и Ni (налетавшие тяжелые ионы). Спектры регистрировались с одномерным пространственным разрешением, причем направление распространения пучка налетавших тяжелых ионов внутри

мишени лежало в плоскости пространственного разрешения (см. рис.1а).

Типичные спектры излучения SiO_2 -аэрогельной мишени плотностью 0.04 г/см^3 и ионов Ni с исходной энергией 4.7 МэВ/нуклон на различных расстояниях по ходу взаимодействия налетающих ионов представлены на рис.1б. Наблюдаемые спектры содержат диэлектронные сателлиты $2p-1s$ -перехода в ионах Si различной кратности ионизации. Хорошо видно, что хотя значения потоков энергии налетающих ионов крайне малы, в спектре излучения мишени наблюдаются спектральные линии, соответствующие переходам в многозарядных ионах вплоть до Li-подобных, причем средний заряд ионов Si в образовавшейся плазме равен 9. Как видно из рис.1б, наряду со спектрами ионов мишени одновременно были зарегистрированы спектры переходов на K-оболочку в ионах пучка, сдвинутые в длинноволновую сторону в соответствии с эффектом Доплера (подробнее см. [12, 13]). Это обстоятельство позволяет проводить сравнительный анализ интегральной интенсивности излучения как ионов мишени, так и пучка.

Как это видно из рис.1б, уменьшение светимости налетающих ионов происходит быстрее, чем возбужденной среды. При этом ионизационный состав мишени по мере потери налетающим ионом своей энергии существенно изменяется в сторону более высоких кратностей ионизации (см. рис.2). Если в на-

гораздо менее ионизованных O-подобных ионов, то с потерей ионом Ni своей энергии по мере проникновения в глубь мишени (энерговклад в мишень при этом нарастает – смотри рис.2) ситуация изменяется, и концентрация Be-подобных ионов Si начинает превышать концентрацию O-подобных ионов. Как видно из этого же рисунка, такой же характер имеет и изменение концентрации C-подобных ионов в мишени.

Зависимость энергетических потерь пучка по мере его проникновения в мишень вычислена по коду SRIM (The Stopping and Range of Ions in Matter) [14], основанному на расчете по уравнению Бете–Бора–Блоха

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\rho Z_{\text{eff}}^2 e^4 c(Z-y)}{m\nu^2 A m_A} (L_{be} - \ln(1-\beta^2) - \beta^2),$$

где m, e – масса и заряд электрона соответственно; Z_{eff}, ν – эффективный заряд и скорость налетающего иона; $\beta = \nu/c$, где c – скорость света; A, Z, y – масса, атомный номер и степень ионизации атомов среды; $Z-y$ – число связанных электронов, приходящихся на один атом среды, ρ – объемная плотность мишени, m_A – атомная единица массы; L_{be} – кулоновский логарифм для связанных электронов.

Сравнительный анализ приведенных данных позволяет сделать вывод о том, что рост степени ионизации ионов мишени может быть вызван увеличением энерговклада иона Ni в единицу объема вещества при изменении его энергии с 4.7 до 1 МэВ/нуклон . Далее приведена интерпретация наблюдаемых спектров с точки зрения импульсного энергетического возбуждения и релаксации области трека ионов в веществе нанометровых размеров за характерные времена в единицы фемтосекунд.

3. В целом, изучаемую экспериментальную ситуацию можно разбить по времени на следующие элементарные физические процессы: время пролета иона (время энерговыведения) через частицу аэрогеля ($d = 4 \text{ нм}$) $\sim 0.2 \text{ фс}$; время высвечивания K_α -перехода в ионах кремния мишени – 1 фс ; время высвечивания сателлитов K_α -перехода в O-, N-, C-, B-, Be-, Li-подобных ионах кремния мишени $\sim 50 \text{ фс}$; время существования сверхвысокого давления в частице кремния $\sim 20 \text{ фс}$; время между воздействием единичных ионов на исследуемый объем 10 пс .

Как видно из представленных данных, фактически каждый ион взаимодействует с неизменной средой и наблюдаемые параметры излучения среды можно отнести к процессу взаимодействия одного иона с твердыми участками мишени. Используя гидродинамический код, развитый в [3], были проведены двумерные расчеты эволюции плотности и темпера-

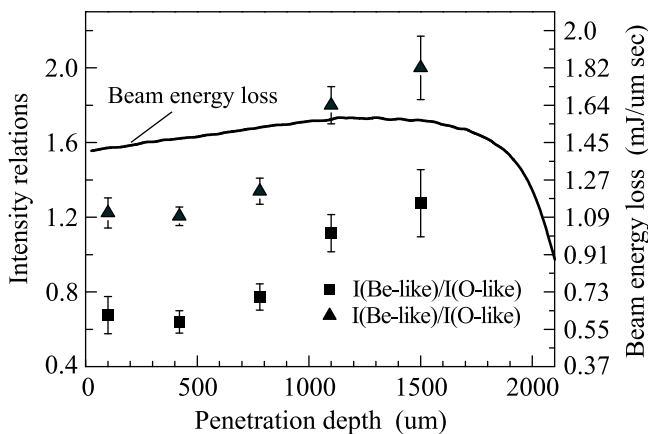


Рис.2. Энергетические потери ионного пучка в среде (код SRIM) и измеренные отношения интенсивностей спектральных линий излучения O-, C- и Be-подобных ионов Si мишени в зависимости от глубины проникновения ионов в аэрогель плотностью 0.04 г/см^3

туре мишени, где ион Ni имеет максимальную энергию (при этом энерговклад в мишень минимальный), концентрация более ионизованных Be-подобных ионов Si минимальна по сравнению с концентрацией

туры от времени для взаимодействия иона Ni с частицами аэрогеля (шариками SiO₂ диаметром 4 нм).

Результаты расчетов приведены на рис.3. Величина энергетических потерь налетающего иона пучка

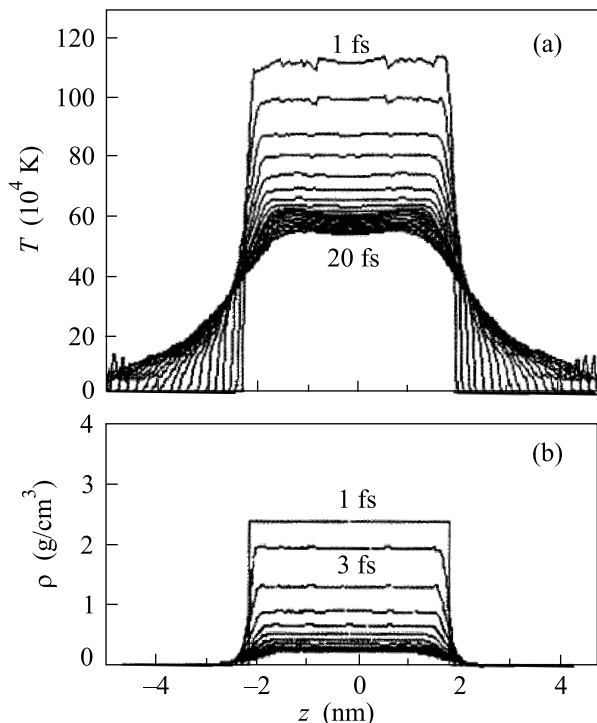


Рис.3. Расчетные значения электронной температуры (а) и плотности (б) в кварцевой аэрогелевой мишени вдоль траектории иона Ni на первые 20 фс с интервалом 1 фс после пролета иона

в кварце оценивалась по коду SRIM [14]. Предполагалось [2], что вся энергия иона в кварце выделяется мгновенно в небольшой цилиндрической области радиуса – R(нм) вдоль прямолинейной траектории иона, проходящей через центр мишени с распределением мощности энерговклада иона W по радиусу цилиндра, описываемой функцией Гаусса параметром

$$W = \begin{cases} 0, & \text{при: } R > 3, \\ W_{\max} \left(\exp \left(-\frac{R^2}{2 \cdot (0.15)^2} \right) \right), & \text{при: } 0 < R < 3. \end{cases}$$

Как видно из представленных на графиках рис.3 данных, электронная температура плазмы в начальный момент времени достигает значений порядка 110 эВ при твердотельной плотности образующейся плазмы. При этом делалось допущение, что изначально вся энергия налетающего иона передается электронному ансамблю, и равновесная температура среды соответствует температуре электронов.

Видно, что достаточно плотная и горячая плазма существует на протяжении нескольких десятков фемтосекунд. В то же время, как следует из проведенных расчетов, максимальная удельная энергия, выделяемая в такой аэрогелевой частице, достигает гигантских значений вплоть до 8000 кДж/г, максимальное давление достигает 6000 ГПа, максимальная скорость разлета плазмы вещества шара вдоль траектории иона – 170 км/с. Все эти данные свидетельствуют о том, что при пролете одиночного тяжелого иона через аэрогелевую мишень образуется уникальная твердотельная плазма, параметры которой сопоставимы с параметрами плазмы, образующейся при взаимодействии сверхмощного фемтосекундного лазерного импульса с аэрогелевыми или кластерными мишенями.

4. Сравнение наблюдаемых на рис.1б спектров с результатами простого модельного расчета позволяет оценить температуру плазмы, образующуюся при взаимодействии пучка ионов с твердотельными зернами аэрогеля. Поскольку плотность молекул SiO₂ в зернах составляет $2.23 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, то при их ионизации до наблюдаемых кратностей электронная плотность плазмы достигает значения $4.7 \times 10^{23} \text{ см}^{-3}$, что достаточно для использования Саха-больцмановского распределения при описании ионизационного состояния и населенностей возбужденных состояний ионов в плазме (см., например, [15–17]). В этом случае распределение ионов по возбужденным уровням является больцмановским, $N_k/N_0 = g_k/g_0 \exp((E_0 - E_k)/kT_e)$, распределение по кратностям дается формулой Саха $N^{(Z+1)}/N^{(Z)} = g_{Z+1}/g_Z \cdot 2(mkT_e/2\pi\hbar^2)^{3/2} \cdot 1/N_e \exp(-E_Z/kT_e)$, где N_k, N_0 – населенности возбужденного с номером k и основного 0 уровней; g_k, g_0 – статистические веса возбужденного k и основного 0 состояний; E_k, E_0 – энергии возбужденного и основного состояний; kT_e – электронная температура плазмы; $N^{(Z+1)}, N^{(Z)}$ – населенности ионов Z + 1 и Z; g_{Z+1}, g_Z – статистические веса ионов Z + 1 и Z; N_e – электронная плотность; E_Z – энергия ионизации иона Z. Как видно из приведенных формул, излучаемый веществом спектр будет зависеть только от электронной температуры плазмы T_e .

Результаты расчета спектров диэлектронных сателлитов, использующего атомные константы [18], представлены на рис.4а при различных значениях T_e и собственных ширинах линий ~ 7.7 мÅ. Как видно из данного рисунка, при температурах ниже 100 эВ в излучательном спектре в основном представлены сателлитные линии, обусловленные переходами в O-, C- и N-подобных ионах кремния, в то время как при

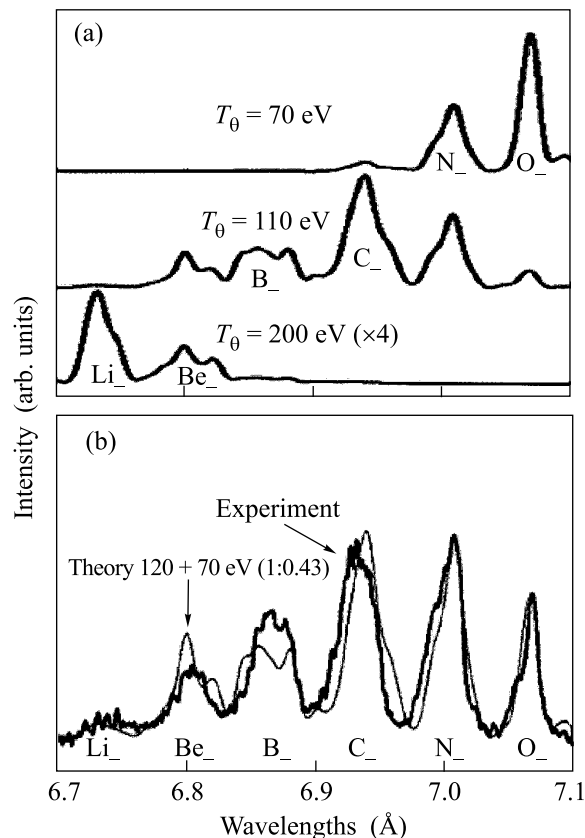


Рис. 4. (а) Результаты расчета спектров диэлектронных сателлитов ионов Si при различных значениях T_e и собственных ширинах линий ~ 7.7 мА. (б) Сопоставление экспериментального и модельного спектров излучения плазмы аэрогельной мишени в области длин волн 6.7–7.1 Å

$T_e > 150$ эВ максимум светимости приходится на Li- и Be-подобные сателлиты. В реальной ситуации следует ожидать, что плазма, образующаяся в различных зернах, будут иметь различную температуру, зависящую от того, с какой частью зерна провзаимодействовал налетающий ион. Поскольку наблюдаемый спектр является интегралом светимости по лучу зрения спектрометра, то он должен быть суперпозицией нескольких спектров, рассчитанных для разных значений T_e . Оказывается, что экспериментальные спектры достаточно хорошо воспроизводятся двухтемпературным приближением. На рис. 4б экспериментальный спектр промоделирован суммой двух спектров с температурами 120 эВ и 70 эВ и весовыми множителями 1:0,43. Как видно из представленного рисунка, модельный спектр достаточно хорошо воспроизводит наблюдаемый. Небольшое различие для наиболее заряженных Be- и B-подобных ионов, по-видимому, объясняется тем, что время ионизации B-подобного Si, составляющее 0.2 пс при $T_e =$

$= 120$ эВ и $N_e = 4.7 \cdot 10^{23}$ см $^{-3}$, несколько больше, чем время распада локальной плазмы, в результате чего концентрация Be-подобных ионов в действительности несколько ниже, а концентрация B-подобных ионов несколько выше их равновесных значений. Определенные таким образом значения параметров плазмы ($T_e = 120$ эВ и $N_e = 4.7 \cdot 10^{23}$ см $^{-3}$) характерны, безусловно, лишь для локальных областей аэрогельной мишени, в которых тяжелые ионы обуславливают возникновение подобных экстремальных состояний вещества при относительно малом общем энергетическом вкладе. О достаточно низкой средней температуре среды говорит и сохранение макроструктуры аэрогеля на протяжении нескольких часов его взаимодействия с ионным пучком.

5. Таким образом, в результате проведенных исследований предложен метод регистрации зарядового состояния вещества конденсированной мишени вдоль трека торможения тяжелого иона. Применение в качестве мишеней наноструктурных сред позволило регистрировать эволюцию скорости и зарядового состояния иона вдоль трека. Одновременная регистрация K_α -сателлитов мишени, с одной стороны, может не только усилить надежность регистрации эволюции налетающего иона, но, с другой стороны, может быть источником экспериментальной информации о состояниях ближней зоны вещества, прилегающей к треку торможения тяжелых ионов, в первые моменты после такого взаимодействия. Проведенные двумерные расчеты временной эволюции плотности и температуры вещества мишени при взаимодействии иона Ni с частицами аэрогеля (шариками SiO $_2$ диаметром 4 нм) продемонстрировали, что на протяжении первых фемтосекунд после пролета иона через мишень образуется твердотельная плазма с температурой в десятки эВ. Такие значения находятся в качественном согласии с экспериментальными данными о температуре, полученными из рентгеновских спектров мишени. Однако требуется дальнейшее улучшение как модели расчетов взаимодействия тяжелых ионов с веществом, так и моделей описания излучения рентгеновских спектров, регистрируемых из зоны взаимодействия тяжелых ионов с веществом. Авторы выражают признательность А. Д. Фертману, Б. Ю. Шаркову, М. М. Баско, А. А. Голубеву, И. В. Ломоносову за обсуждение работы и фонду Max Planck Award Cooperation Research Project "Physics of High Energy Density Plasmas".

1. А. М. Митереев, Успехи физических наук **172**, 1131 (2002).

2. Ф. Ф. Комаров, Успехи физических наук **173**, 1287 (2003).
3. А. В. Шутов, В. Е. Фортов, И. В. Ломоносов, *Физика экстремальных состояний вещества*, Сб. трудов, Черногоровка, 2004, с. 149.
4. T. Ditmire, J. Zweiback, V. P. Yanovsky et al., *Nature* **398**, 489 (1999).
5. В. В. Гаврилов, А. Ю. Гольцов, Н. Г. Ковальский и др., *Квантовая электроника* **31**, 1071 (2001).
6. И. Ю. Скобелев, А. Я. Фаенов, А. И. Магунов и др., *ЖЭТФ* **121**, 88 (2002).
7. Y. Fukuda, Y. Akahane, M. Aoyama et al., *JETP Lett.* **78**, 146 (2003).
8. K. B. Fournier, C. Constantin, J. Poco et al., *Phys. Rev. Lett.* **92**, 165005 (2004).
9. J. Abdallah, Jr., G. Csanak, Y. Fukuda et al., *Phys. Rev.* **A68**, 063201 (2003).
10. А. Я. Фаенов, Т. А. Пикуз, И. Ю. Скобелев и др., *Письма в ЖЭТФ* **80**, 860 (2004).
11. O. N. Rosmej, J. Wieser, M. Geissel et al., *NIM* **A495**, 29 (2002).
12. O. N. Rosmej, S. A. Pikuz, Jr., S. A. Magnitskii et al., *JETP Lett.* **78**, 827 (2003).
13. O. N. Rosmej, S. A. Pikuz, Jr., J. Wieser et al., *Rev. Sci. Instrum.* **74**, 5039 (2003).
14. <http://www.srim.org>
15. E. E. Fill, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 1687 (1986).
16. T. Fujimoto and R. W. P. McWhirter, *Phys. Rev.* **A42**, 6588 (1990).
17. Yu. A. Fadeev and D. Gillet, *Astron. & Astrophys.* **354**, 349 (2000).
18. A. Ya. Faenov, S. A. Pikuz, and A. S. Shlyaptseva, *Physica Scripta* **49**, 41 (1994).