

02;11;12

Эмиссия возбужденных ионов кадмия при бомбардировке α -частицами

© А.И. Миськевич, Чжао Сяолин

Московский государственный инженерно-физический институт (технический университет),
115409 Москва, Россия
e-mail: miskev@htsc.mephi.ru

(Поступило в Редакцию 27 ноября 2001 г.)

Приводятся результаты экспериментального изучения ионной эмиссии, возникающей при распылении металлического кадмия α -частицами ^{238}Pu . Исследования проводились в атмосфере гелия при различных температурах кадмиевой фольги (от 20 до 280°C) и при давлениях газа в камере (от 75 до 2200 Torr). Обнаружено, что процесс распыления металлического кадмия сопровождается эмиссией возбужденных ионов CdII в состояниях $4d^9 5s^2 \text{D}_{3/2,5/2}$ и $4d^{10} 6s^2 \text{S}_{1/2}$, причем при температурах выше 160°C наблюдается экспоненциальный рост заселенности этих состояний. Коэффициент распыления металлического кадмия при температуре 240°C и давлении гелия в камере 600 Torr равен $6.26 \cdot 10^{-14} \text{ g}/\alpha\text{-particle}$, что соответствует выбиванию из фольги одной α -частицей около 10^8 атомов кадмия. На основе полученных спектроскопических данных и результатов микрофотографического изучения поверхности металлических образцов наблюдаемые процессы объясняются исходя из двухступенчатой модели ионной эмиссии — образования высокотемпературного клина, выброса из него микрокапли металлического кадмия, последующей самодиффузии смещенных атомов кадмия в капле и выходе их на поверхность.

Бомбардировка поверхности твердого тела высокоэнергетичными частицами приводит к распылению материала мишени и испусканию вторичных частиц — электронов, ионов, нейтральных атомов [1,2]. Этот эффект используется в ряде технологических применений. Например, с помощью пучка тяжелых ионов Ag или Kг с энергией 10–14 keV осуществляется ионное травление полупроводниковых материалов [3]. Катодное распыление электронами позволяет получать концентрации паров металлов плотностью $\sim 10^{14} \text{ at}/\text{cm}^3$ в лазерных трубках с полым катодом [4], что достаточно для работы без внешнего подогрева лазера на парах меди [5] и других парометаллических лазеров [6].

Распыление материалов происходит и при бомбардировке ядерными частицами. Известно, что при вылете осколка деления урана из слоя делящегося вещества вместе с ним вылетают различные частицы, в том числе неразделившегося вещества подложки, в количестве до 100 атомов на одно деление [7].

Процесс распыления материалов сопровождается эмиссией фотонов, поскольку некоторая доля ионов и нейтральных атомов оказывается в возбужденном состоянии [1]. Используя высокоэнергетические продукты нейтронной $^3\text{He}(n, p)^3\text{T}$ ядерной реакции, в работах [8,9] наблюдали сильную световую эмиссию при распылении нанесенных на кварцевое стекло пленок Cd, Zn, Pb, Ag, Bi, Cs, причем интенсивность светового излучения значительно возрастала при подогреве кварцевых подложек до 70°C (Cs), 140–240°C (Zn, Pb, Bi, Cd) и 560°C (Ag). В работах [9] было показано также, что лазер с ядерной накачкой с такой кадмиевой пленкой, возбуждаемый продуктами $^3\text{He}(n, p)^3\text{T}$ ядерной реакции, может работать с низким порогом при температуре подложки 162–206°C на переходе $5s^2 \text{D}_{5/2} - 5p^2 \text{P}_{3/2}$ иона CdII ($\lambda = 442 \text{ nm}$).

В данной работе приводятся результаты экспериментального изучения люминесценции, возникающей при распылении металлического кадмия в виде фольги толщиной 1 mm α -частицами плутония-238. Во многих практических задачах применение толстой металлической фольги может оказаться более предпочтительным, чем тонких пленок, нанесенных на кварцевую подложку.

Исследования проводились на установке, описанной в работе [10]. Кадмиевая мишень в виде диска $\varnothing 40 \text{ mm}$ размещалась в камере из нержавеющей стали $\varnothing 80 \times 80 \text{ mm}$ вместе с плоским источником

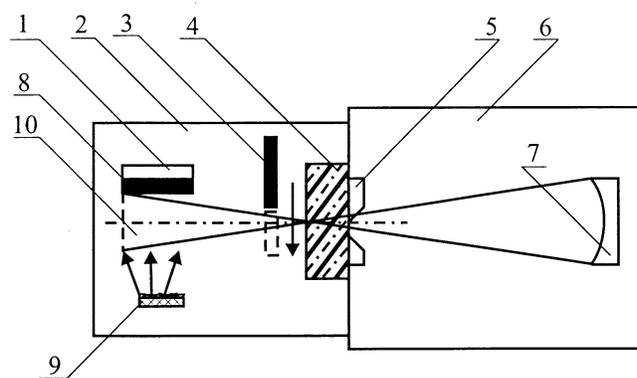


Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки для исследования люминесценции, возникающей при распылении металлического кадмия α -частицами с энергией 5.3 MeV. 1 — нагреватель, 2 — камера, 3 — подвижная заслонка, 4 — кварцевое окно, 5 — входная щель, 6 — монохроматор МДР-23, 7 — объектив монохроматора (зеркало 100 × 100 mm), 8 — металлический кадмий (фольга), 9 — источник α -частиц (^{238}Pu), 10 — область сбора света из камеры.

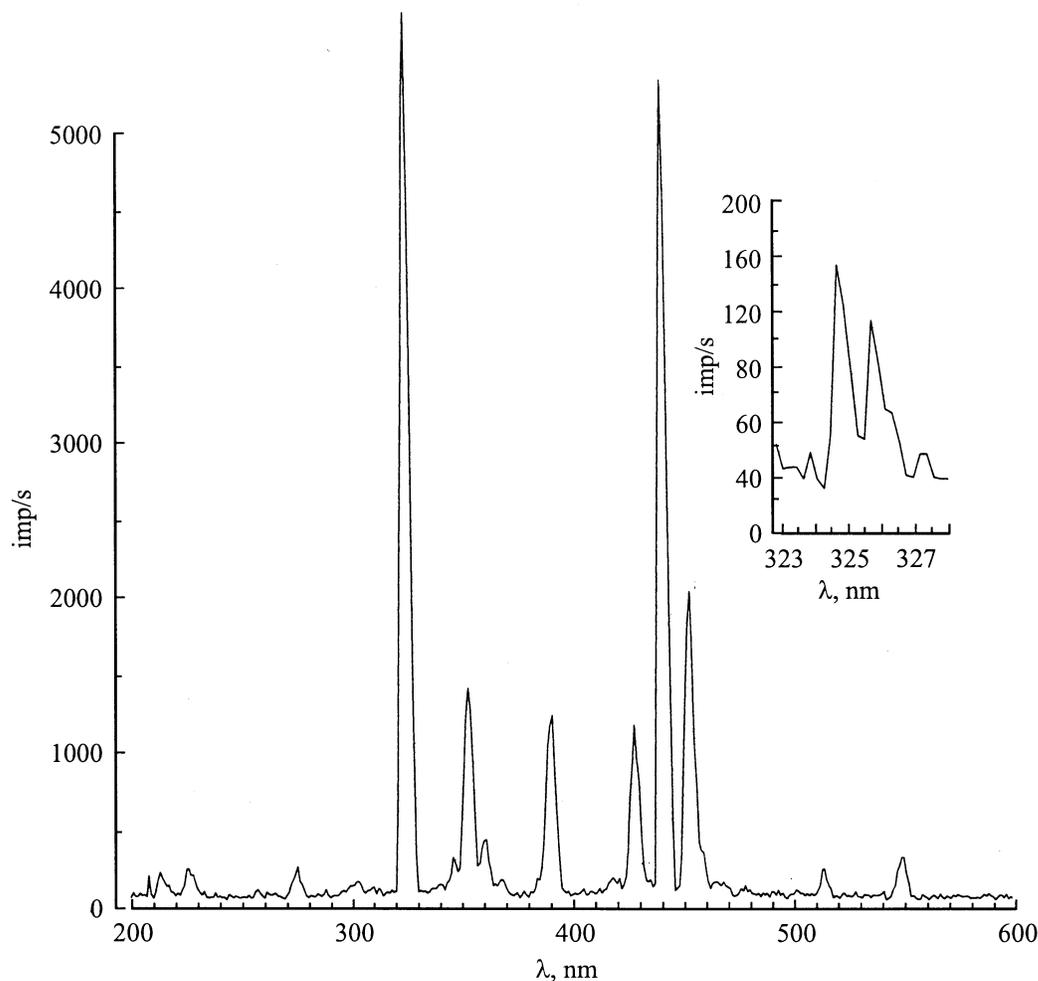


Рис. 2. Аппаратурный спектр люминесценции при распылении металлического Cd α -частицами в атмосфере гелия. Давление гелия 600 Torr, температура Cd 240°C. Ширина щелей монохроматора 2.2 mm, дифракционная решетка 1200-П (1200 grooves/mm). В верхней части рисунка показан участок спектра вблизи 325 nm, измеренный с высоким разрешением.

α -частиц \varnothing 25 mm. Мишень и источник устанавливались вертикально и параллельно друг другу на расстоянии 40 mm так, что их плоскости были ориентированы вдоль осевой линии камеры параллельно входной щели монохроматора. Кадмиевая мишень была установлена вблизи осевой линии камеры, однако ее поверхность не просматривалась фотоприемником. Источник α -частиц был сильно смещен к боковой стенке камеры и не мог просматриваться фотоприемником. Световое излучение собиралось на фотоприемник из области, расположенной между кадмиевой мишенью и α -источником, причем границы области отстояли на ± 10 mm от осевой линии камеры.

Между входной щелью монохроматора и мишенью размещалась подвижная заслонка, позволяющая изменять положение границы со стороны кадмиевой мишени (рис. 1). Суммарный поток α -частиц, падающих на всю поверхность кадмиевой мишени, составлял $3.75 \cdot 10^7$ α -particle/s, а их энергия зависела от давления газа в камере.

В камере имелся нагреватель, с помощью которого можно было повышать температуру кадмиевой фольги от 20°C до 280°C. Температура фольги контролировалась хромелькопелевой термопарой.

Регистрация светового излучения производилась фотоумножителями ФЭУ-100 в диапазоне 200–800 nm и ФЭУ-112 — в диапазоне 600–1200 nm. Оба фотоумножителя охлаждались до -60°C для уменьшения уровня шумов и работали в режиме счета отдельных фотонов. После глубокой откачки камера обычно заполнялась каким-либо газом или газовой смесью до давления 75–2200 Torr, и эти газы непрерывно очищались разогретой до 600–700°C титановой губкой в течение всего времени измерения для устранения тушащего действия примесных газов (H_2O , N_2 , CO_2 и др.), десорбируемых со стенок камеры. Обычно использовался чистый He, поскольку другие инертные газы (Ne, Ar или их смеси) обладали сильным тушащим действием $5s^2 2D$ уровней иона CdII. Следует отметить, что из-за высокой начальной энергии α -частиц (5 MeV) их пробег в гелии даже

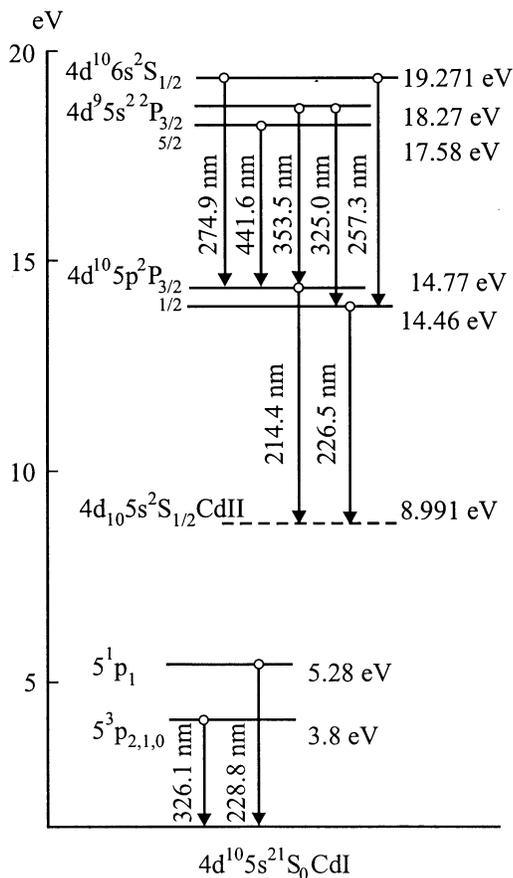


Рис. 3. Диаграмма энергетических уровней атома CdI и иона CdII. Стрелками отмечены наблюдаемые переходы.

при максимальном давлении 2200 Торр превышал 4 см и α -частицы всегда достигали кадмиевой мишени.

Типичный спектр люминесценции, возникающий при бомбардировке кадмиевой фольги α -частицами с He буферным газом, показан на рис. 2. Спектр содержит преимущественно линии иона CdII, связанные непосредственно или через каскадные переходы с бейтлеровскими уровнями $5s^2D_{5/2,3/2}$ CdII — 325, 441.6, 214.4, 226.5, 353.6 nm.

Из атомарных линий в спектре присутствуют только резонансные линии CdI с длинами волн 326.1 и 228.8 nm, а из других ионных линий — только переходы с $6s^2S_{1/2}$ уровня CdII. Диаграмма энергетических уровней атома и иона кадмия приведена на рис. 3, где указаны наблюдаемые переходы.

Интенсивность ионных линий зависит от температуры поверхности Cd фольги: с увеличением температуры наблюдается резкий рост интенсивности всех линий, однако форма спектра при этом не меняется и соотношение между интенсивностями отдельных линий остается постоянным. На рис. 4 показан температурный рост интенсивности линии 441.6 nm и двух неразрешенных линий 325 + 326.1 nm. Логарифм интенсивности построен в зависимости от обратной температуры кадмиевой фольги. Экспоненциальный рост люминесценции начи-

нается при температурах, превышающих 150–160°C, и хорошо аппроксимируется выражением

$$I \sim \exp(-A/kT), \quad (1)$$

где A — энергия активации данного процесса, $k = 8.6153 \cdot 10^{-5}$ eV/K — постоянная Больцмана, T — абсолютная температура кадмиевой фольги. Для неразрешенных линий (325 + 326.1) nm $A = 0.85$ eV, что в пересчете на 1 mol Cd соответствует 20.41 kJ/mol. Для линии 441.6 nm $A = 0.749$ eV или 17.98 J/mol. Все эти цифры достаточно хорошо совпадают (с учетом ошибки измерения) с энергией активации Q коэффициента самодиффузии в металлическом Cd, равной соответственно 18.2–19.1 kcal/mol [2]. Таким образом, можно предположить, что изменения интенсивности ионных линий CdII при распылении α -частицами связаны с увеличением скорости самодиффузии атомов Cd в кадмиевой фольге.

Поскольку глубина проникновения α -частиц в кадмиевую фольгу зависит от их энергии и угла падения, то наблюдаемый рост интенсивности всех линий Cd при увеличении давления буферного газа (табл. 1) возможно объясняется уменьшением глубины проникновения α -частиц в подложку за счет снижения их начальной энергии при прохождении через буферный газ.

Мы провели контрольные опыты по определению вклада люминесценции, связанной с возбуждением паровой фазы Cd, поскольку при наших рабочих температурах (200–260°C) парциальное давление паров Cd

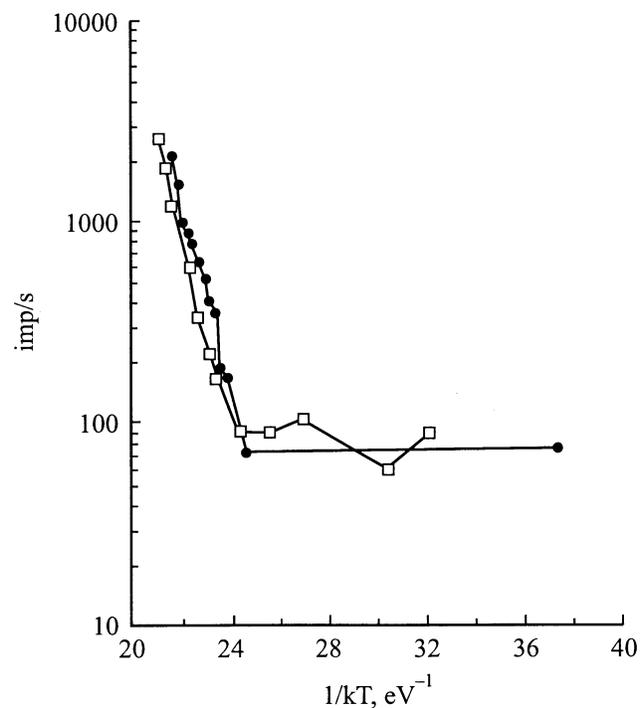


Рис. 4. Температурный рост интенсивности бейтлеровских линий CdII при распылении металлического кадмия α -частицами. \square — 441.6 nm, буферный газ — He, давление 300 Торр; \bullet — 325.0 nm (вместе с неразрешенной резонансной линией 326.1 nm), буферный газ — He, давление 50 Торр.

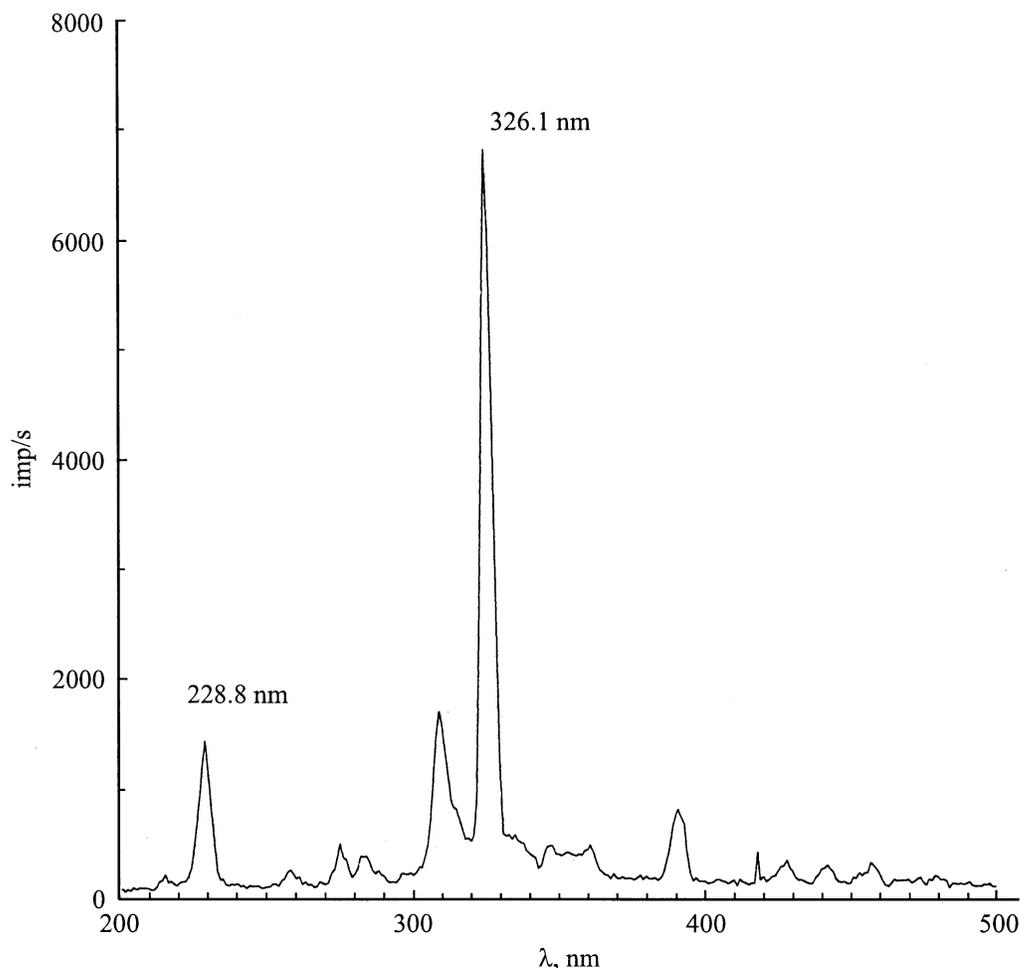


Рис. 5. Аппаратурный спектр люминесценции при распылении металлического Cd α -частицами в атмосфере неона. Давление неона 360 Torr, температура Cd 240°C. Ширина щелей мнوخроматора 2.2 mm, дифракционная решетка 1200-II (1200 grooves/mm).

в гелии отличалось от нуля и составляло порядка (или менее) 10^{-3} Torr. При этих условиях заселение бейтлеровских уровней CdII могло происходить в реакциях Пеннинга и перезарядки с He^+ , He_2^+ , He^* , He_2^* , образующихся при прохождении α -частицы. Проведенные измерения показали, что в случае, когда α -частицы не могли взаимодействовать непосредственно с металлической фольгой, но свободно проходили через газовый объем, вклад люминесценции, связанной с возбуждением паров кадмия, при температурах подложки 200–260°C был в 5–6 раз меньше вклада от прямого распыления α -частицами.

Форма спектра люминесценции при бомбардировке α -частицами зависит от природы буферного газа. На рис. 5 и 6 показаны спектры, полученные при заполнении камеры чистым Ne (рис. 5) и чистым Ar (рис. 6). Различия спектров обусловлены тушащим действием самого буферного газа на ионную эмиссию из Cd фольги и возможным участием возбужденных состояний буферного газа в распылении Cd. Для оценки тушащего действия атомов Ne и Ar на ионный уровень $5s^2^2D$ измерялось изменение интенсивности

линии 325 nm (переход $5s^2^2D_{3/2} - 6pP$ CdII) при добавлении в He буферный газ небольших количеств Ne или Ar. При увеличении концентрации примесного газа в обоих случаях наблюдалось монотонное тушение люминесценции, причем коэффициенты скоростей реакций тушения $5s^2^2D_{3/2}$ уровня CdII оцениваются как $1.8 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ (Ar) и $10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ (Ne), а $5s^2^2D_{5/2}$ — как $1.3 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ (Ar) и $10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ (Ne). Эти результаты согласуются с работой [13], где наблюдалось повышение порога и снижение выходной мощности генерации на

Таблица 1. Зависимость интенсивности линий иона CdII от давления буферного газа. Температура Cd — 220°C

Давление He, Torr	Интенсивность линий, а.е.		
	$\lambda = 325 \text{ nm}$	$\lambda = 442 \text{ nm}$	$\lambda = 275 \text{ nm}$
150	2584	1494	775
300	3170	1780	643
600	3930	1839	842
1900	4443	1658	724

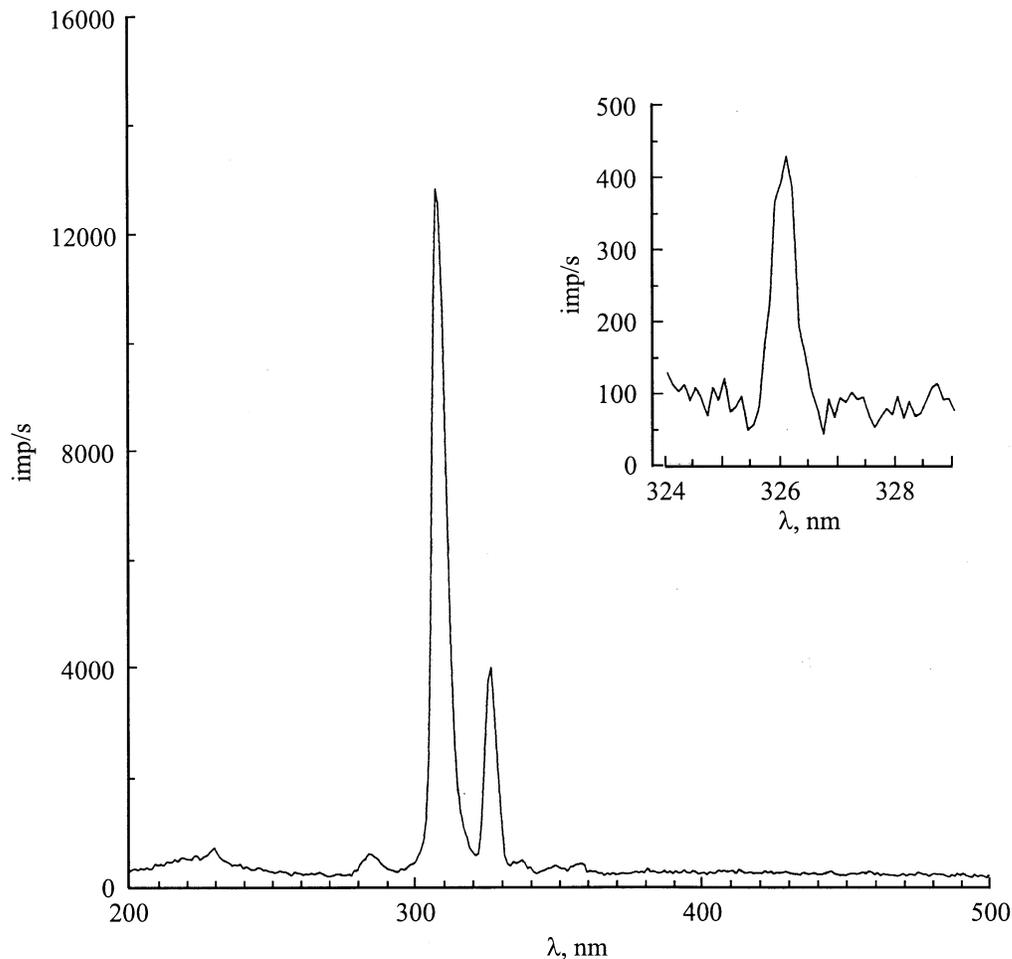


Рис. 6. Аппаратурный спектр люминесценции при распылении α -частицами Cd фольги в атмосфере аргона. Давление аргона 300 Torr, температура Cd 240°C. Ширина щелей монохроматора 2.2 mm, дифракционная решетка 1200-П (1200 grooves/mm). В верхней части рисунка показан участок спектра вблизи 325 nm, измеренный с высоким разрешением.

линии 441.6 nm иона CdII при добавлении в гелий небольших количеств Ar или Ne.

Бейтлеровские уровни $5s^2 2D$ иона CdII имеют большое время жизни. Согласно [11,12], коэффициент спонтанного испускания для линии 442 nm равен $1.4 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ (переход $5s^2 2D_{5/2} - 5p^2 P_{3/2}$ CdII) и $2.85 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ — для линии 325 nm (переход $5s^2 2D_{3/2} - 5p^2 P_{1/2}$ CdII). Эти уровни используются для получения лазерной генерации, в том числе при накачке продуктами ядерных реакций [13,14]. Эффективность заселения ионных уровней CdII при распылении металлической фольги можно оценить, сравнивая кадмиевые спектры со спектрами люминесценции He-Ne-Ar (He — 760 Torr, Ne — 15 Torr, Ar — 7.5 Torr) и Ar-Xe-CCl₄ смесей (Ar — 760 Torr, Xe — 76 Torr, CCl₄ — 3.8 Torr), измеренными в одинаковых условиях. Следуя методике, описанной в работе [10], мы получили, что величина порога генерации кадмиевого лазера с ядерной накачкой, использующего эффект эмиссии возбужденных ионов при бомбардировке ядерными частицами, сравнима с порогом He-Ne-Ar лазера с ядерной накачкой — около

$10^{15} \text{ tn/cm}^2 \cdot \text{s}$ [15]. Сравнение заселенностей $2p_1$ уровня NeI, $5s^2 2D$ уровня CdII и B -состояния молекулы XeCl* показало, что они соотносятся между собой, как 0.011 (Ne):1 (Cd):18.2 (XeCl*). Таким образом, распылительный механизм заселения ионных уровней CdII обладает близкой к эксимерным средам эффективностью преобразования ядерной энергии в световую.

Ограничивая с помощью заслонки телесный угол сбора света (рис. 1), были измерены пространственные распределения плотности возбужденных ионов, излучающих на длинах волн 325, 441.6 и 274.9 nm (рис. 7). Несмотря на большие различия во времена высвечивания этих уровней (почти в 300 раз) все три кривые достаточно хорошо совпали между собой. Поскольку линия 274.9 nm (переход $6s^2 S_{1/2} - 5p^2 P_{3/2}$ CdII) никак не связана с долгоживущими бейтлеровскими уровнями каскадными переходами, объяснить данный факт можно только если предположить двухступенчатый механизм ионной эмиссии. На первом этапе при торможении в кадмии α -частица взаимодействует с атомами кристаллической решетки и выбивает некоторые из них в

Таблица 2. Коэффициенты распыления металлического кадмия α -частицами с энергией 5.3 MeV в атмосфере гелия при разных давлениях газа

Давление He, Торг	Температура Cd, °C	Коэффициент распыления, g/α -particle
0	20	$4.43 \cdot 10^{-18}$
150	200	$2.55 \cdot 10^{-14}$
300	200	$3.57 \cdot 10^{-14}$
600	200	$6.26 \cdot 10^{-14}$
1900	200	$3.21 \cdot 10^{-14}$

междуузлия. Некоторая часть смещенных атомов может находиться в возбужденном состоянии. За счет кинетической энергии α -частицы происходит быстрый нагрев ограниченной области кристаллической решетки и последующий выброс микрокапли разогретого металла, содержащей смещенные из узлов кристаллической решетки атомы кадмия.

Размер капли и ее начальная скорость зависят от энергии α -частицы, температуры фольги и угла падения α -частицы на поверхность.

На втором этапе за счет самодиффузии смещенных атомов происходит испускание из летящей капли возбужденных ионов в состояниях $5s^2\ ^2D$ CdII ($\lambda = 325, 442$ nm) и $6s\ ^2S_{1/2}$ CdII ($\lambda = 274.9, 257.3$ nm). Смещенные атомы кадмия диффундируют внутри капли в поисках вакансий. При температурах кадмия ~ 160 – 260°C

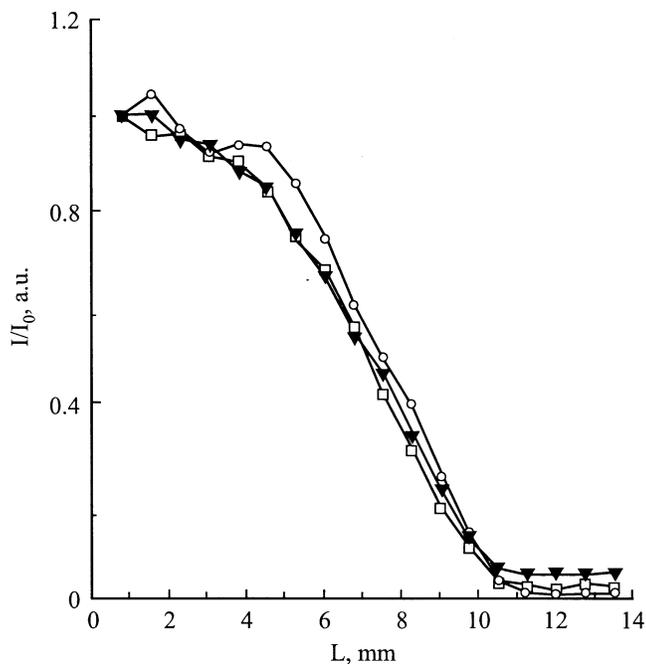


Рис. 7. Пространственные распределения плотности возбужденных ионов CdII при распылении металлического кадмия α -частицами в атмосфере гелия. L — расстояние от поверхности Cd. Давление гелия 1900 Торг, температура кадмиевой фольги 220°C ; λ , nm: \square — 325, \circ — 441.6, \blacktriangle — 274.9.

коэффициент самодиффузии возрастает на много порядков величины и это способствует выходу смещенных атомов из капли.

Преимущественное образование возбужденных ионов в $4d^9 5s^2\ ^2D$ CdII состояниях может быть связано, согласно [16], с распадом автоионизационных состояний возбужденного атома кадмия. Автоионизационные состояния кадмия образуются при возбуждении одного из электронов замкнутой $4d^{10}$ оболочки и имеют конфигурацию $4d^9 5s^2 5p$ CdI. При переходах $\text{Cd}^*(4d^9 5s^2 5p) \rightarrow \text{Cd}^+(4d^9 5s^2) + e + \Delta E$ будут создаваться нужные ионы.

Мы провели оценки размера микрокапель, определяя массу распыленного α -частицами металла для различных энергий α -частиц. Кадмиевая фольга взвешивалась на аналитических весах до и после ее облучения в камере, заполненной гелием при разных давлениях. Облучение производилось при постоянной температуре 240°C в течение фиксированного времени. Поскольку поток и энергия α -частиц, падающих на мишень, были известны, можно было определить массу металла, выбиваемого при данных условиях одной α -частицей. Результаты этих измерений представлены в табл. 2, в которой приведен коэффициент распыления металлического кадмия при комнатной температуре, измеренный в условиях вакуума в камере при двухмесячной экспозиции.

Микрофотографическое изучение поверхности облученной кадмиевой фольги показало, что при бомбардировке α -частицами выброс металла из фольги происходит из глубинных слоев. Для отдельной α -частицы область выброса имеет форму, близкую к цилиндрической, с поперечным размером около $1.0\ \mu\text{m}$ и продольным, соответствующим пробегу α -частицы. Таким образом, в зависимости от начальной энергии α -частицы будут создаваться микрокапли разных размеров, имеющие разную температуру. Эти факторы влияют на скорость самодиффузии ионов и на их выход из металла.

Список литературы

- [1] Thomas G.F. // Surface Science. 1979. Vol. 90. P. 381–416.
- [2] Физические величины: Справочник // Бабичев А.П., Бабушкина Н.А., Братновский А.М. и др. / Под ред. Григорьева И.С., Мейликова Е.З. М.: Энергоатомиздат, 1991. Гл. 25. С. 590.
- [3] Готра З.Ю. Технология микроэлектронных устройств. Справочник. М.: Радио и связь, 1991. С. 528.
- [4] Warner B.E., Persson K.B., Collins G.J. // J. Appl. Phys. 1979. Vol. 50. N 9. P. 5694–5703.
- [5] Шухтин А.М., Федотов Г.А., Мишаков В.Г. // Оптика и спектроскопия. 1976. Т. 40. Вып. 2. С. 411–412.
- [6] Карабут Е.К., Михалевский В.С., Папакин В.Ф., Сэм М.Ф. // ЖТФ. 1969. Т. 39. Вып. 10. С. 1923.
- [7] Александров Б.М., Баранов И.А., Кривоухватский А.С., Тутин Г.А. // Атомная энергия. 1972. Т. 33. Вып. 4. С.821–824.
- [8] Копай-Гора А.П., Мавлютов А.А., Миськевич А.И., Саламаха Б.С. // Опт. и спектр. 1989. Т. 67. Вып. 3. С. 526–532.

- [9] *Mavlyutov A.A., Mis'kevich A.I., Salamakha B.S.* // Laser Physics. 1993. Vol. 3. N 1. P. 94–102.
- [10] *Мавлютов А.А., Миськевич А.И., Чжао Сяолин* // Приборы и техника эксперимента. 2001. № 3. С. 114–119.
- [11] *Collins J.I.* // J. Appl. Phys. 1973. Vol. 44. P. 4633–4652.
- [12] *Дьяченко П.П., Дорофеев Ю.Б., Полетаев Е.Д., Тараско М.З.* // Тр. конф. „Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой. Обнинск 26–29 мая 1992 г.“. 1992. Т. 1. С. 166–177.
- [13] *Магда Э.П.* // Тр. конф. „Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой. Обнинск 26–29 мая 1992 г.“. 1992. Т. 1. С. 65–74.
- [14] *Миськевич А.И., Ильяшенко В.С., Саламаха Б.С.* и др. // ЖТФ. 1982. Т. 52. Вып. 2. С. 402–404.
- [15] *Копай-Гора А.П., Мавлютов А.А., Миськевич А.И., Саламаха Б.С.* // Письма в ЖТФ. 1990. Т. 16. Вып. 11. С. 23–26.
- [16] *Черепин В.Т., Васильев М.А.* Вторичная ионно-ионная эмиссия металлов и сплавов. Киев, 1975. 239 с.