

01;02

## „Обратная задача“ теории торможения быстрых многозарядных ионов в веществе

© В.В. Балашов, А.В. Бибииков

Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д.В. Скобельцына  
Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова,  
119992 Москва, Россия  
e-mail: balvse@anna19.npi.msu.su

(Поступило в Редакцию 10 января 2003 г.)

Предложенный ранее авторами метод связанных кинетических уравнений для описания прохождения быстрых многозарядных ионов через вещество применен к задаче извлечения парциальных (разрешенных по зарядовому состоянию иона) параметров их торможения из экспериментальных данных о распределениях потерянной ионами энергии на выходе из мишени.

### Введение

Возрастающая роль исследований с пучками быстрых многозарядных ионов в различных областях науки (ядерная и атомная физика, физика твердого тела, наука о материалах, биология, медицина и др.) делает все более актуальной задачу надежного определения параметров торможения многозарядных ионов при прохождении через вещество. Отличительной особенностью такого процесса при сопоставлении с процессом прохождения через вещество протонов или других элементарных заряженных частиц является непрерывный обмен электронами между проходящим ионом и средой, в результате которого заряд иона и, следовательно, параметры его торможения стохастически меняются по мере прохождения пучка через вещество. Учет перезарядки осложняет теоретическое описание энергетических спектров ионов по выходе из мишени. Это относится в первую очередь к случаю прохождения пучка ионов через тонкие слои вещества, когда статистическое равновесие между различными зарядовыми фракциями пучка еще не успевает установиться.

В текущих исследованиях основным приемом расчета кинетики прохождения многозарядных ионов через вещество, в том числе и при вычислении характеристик торможения пучка, является статистическое моделирование этого процесса по методу Монте-Карло ([1,2] и ссылки в них). Хорошо известно, что этот метод громоздок и требует очень большого объема компьютерной работы. Другая сторона проблемы состоит в том, что выполнение статистического моделирования кинетики процесса требует определенного набора входных данных, связанных с эффективными сечениями элементарных процессов взаимодействия иона с атомами среды — это скорости элементарных процессов перезарядки и отнесенные к каждому зарядовому состоянию иона параметры его эффективного торможения. Теория ион-атомных столкновений, хотя и интенсивно развивается в настоящее время как на квантовой основе, так и при использовании методов классической механики,

не дает еще готовых ответов для получения надежных данных такого рода. Поэтому сложилось представление (см., например, [3]), что, наоборот, изучение процессов торможения пучков многозарядных ионов при прохождении через вещество и есть при всей их сложности путь к получению данных о „базовых“ параметрах торможения. Здесь мы подходим к концепции „обратной задачи“: как извлечь требуемые параметры из экспериментов по прохождению и как правильно организовать сами эти эксперименты, чтобы они максимально соответствовали требованиям „обратной задачи“.

Принципиальный ответ на эти вопросы заложен в фундаментальных работах Ландау [4] и Винтербона [5]. Он заключается в том, что в характерных для очень многих исследований условиях прохождения многозарядных ионов через вещество количественное описание их торможения не требует знания всех деталей их взаимодействия с атомами среды. Оно может быть обеспечено заданием лишь нескольких первых моментов распределения потерь энергии частицы в элементарном акте неупругого ион-атомного столкновения (в диффузионном приближении это — эффективное торможение  $S_i(E)$  и параметр энергетического стретглинга  $\Omega_i^2(E)$  для каждого из рассматриваемых зарядовых состояний иона). Таким образом, „обратная задача“ сводится в принципе к стандартной процедуре подгонки конечного (хотя и немалого) числа параметров теории под результаты измерений. Дело за наличием адекватной теории торможения как таковой, которая описывала бы верно кинетику прохождения пучка ионов через вещество в условиях сильной перезарядки.

Мы предлагаем для этой цели сформулированный нами [6] метод связанных кинетических уравнений для парциальных (отнесенных к определенным зарядовым состояниям) распределений энергетических потерь ионов. Ранее на его основе была дана интерпретация эволюции профиля таких распределений в неравновесном режиме прохождения пучка ионов через вещество [7], рассмотрен вопрос об эффективных зарядах быстрых многозарядных ионов в веществе [8], предложен метод

учета перезарядки при описании углового разброса пучка ионов [9], исследовано влияние промежуточных возбуждений быстрых многозарядных ионов на тормозные характеристики процесса их прохождения через вещество [10]. Эти исследования показали существенные преимущества нашего подхода перед методом Монте-Карло.

Обращаясь к „обратной задаче“, приходится учитывать, что прямые экспериментальные данные о парциальных энергетических распределениях ионов и других энергетических параметрах их прохождения через вещество в неравновесном режиме крайне скудны, а их публикация не дает, как правило, информации о непосредственных результатах выполненных измерений, включая анализ погрешностей, что необходимо при использовании таких результатов в „обратной задаче“. Поэтому на данном этапе мы опираемся на использование псевдоэкспериментальных (полученных теоретически) данных о прохождении многозарядных ионов через вещество, которые имитируют результаты реальных экспериментов.

## Теория

Мы отправляемся от общих уравнений Ландау–Винтербона [4,5] для разрешенных по зарядовому состоянию иона функций  $F_i(\Delta, x)$ ;  $i = 1, \dots, N$ , дающих распределение потерь его энергии  $\Delta = E_0 - E$  по прохождении расстояния  $x$  от входа в мишень

$$\frac{\partial F_i(\Delta, x)}{\partial x} = -\lambda_i^{\text{tot}} F_i(\Delta, x) + \int \lambda_{ii}(T) F_i(\Delta - T, x) dT + \int \sum_{j \neq i} \lambda_{ji}(T) F_j(\Delta - T, x) dT. \quad (1)$$

Здесь  $\lambda_{ii}$  — дифференциальная скорость потерь энергии ионом с зарядом  $i$  при столкновениях,  $\lambda_{i \rightarrow j}(T) \equiv \lambda_{ij}(T)$  — скорость перезарядки между соответствующей парой состояний иона,  $\lambda_i^{\text{tot}} = \int \sum_{j \neq i} \lambda_{ij}(T) dT$  — полная скорость переходов из состояния  $i$  в другие зарядовые состояния. Энергетическими входными параметрами расчетов являются параметры эффективного торможения  $S_i = \int \lambda_{ii}(T) T dT$  и стретглинга  $\Omega_i^2 = \int \lambda_{ii}(T) T^2 dT$  для иона, „замороженного“ в каждом из состояний  $i$ . Они являются коэффициентами разложения распределений  $F_i(\Delta - T, x)$  в ряд Тейлора вокруг  $\Delta$ . Когда по прохождении некоторого расстояния  $x$  от входа в мишень характеристическая потеря энергии ионом в одном акте столкновения, определяемая распределением  $\lambda_{ii}(T)$ , становится малой по сравнению со средней потерей энергии ионом  $\langle \Delta \rangle$  на этом расстоянии (диффузионное приближение), мы опускаем в этом разложении все более высокие ( $n > 2$ ) моменты  $\int \lambda_{ii}(T) T^n dT$ , начиная с параметра „косости“ („skewness“)  $N_i = \int \lambda_{ii}(T) T^3 dT$ . Если, кроме того, принять приближение фиксированной потерянной энергии в одном акте перезарядки:

$\lambda_{ij}(T) = \lambda_{ij} \delta(T - \bar{\Delta}_{ij})$ ,  $i \neq j$ , то система уравнений (1) трансформируется в более простую, которая в интегральном представлении имеет вид [6]

$$F_i(\Delta, x) = e^{-\lambda_i x} \int g_i(\Delta - \Delta', x) F_i(\Delta', x = 0) d\Delta' + \sum_{j \neq i} \lambda_{ji} \int_0^x dx' \times \int e^{-\lambda_i(x-x')} g_i(\Delta - \bar{\Delta}_{ji} - \Delta', x - x') F_j(\Delta', x') d\Delta'. \quad (2)$$

Сюда входят характерные для диффузионного приближения гауссовы пропагаторы

$$g_i(\Delta - \Delta', x - x') = \frac{\exp \{ -[\Delta - \Delta' - S_i(x - x')]^2 / 2\Omega_i^2(x - x') \}}{\sqrt{2\pi\Omega_i^2(x - x')}}}, \quad (3)$$

показывающие, как происходили бы торможение и энергетический разброс пуска ионов, оставаясь он в определенных „замороженных“ по заряду состояниях  $i = 1, \dots, N$ .

Кинетические уравнения (2) решаются численно с использованием соответствующих начальных условий для входа пучка ионов в мишень  $F_i(\Delta, x = 0)$ , откуда вместе с функциями распределения потерянной энергии  $F_i(\Delta, x)$ ,  $i = 1, \dots, N$  мы получаем значения относительного веса всех зарядовых фракций проходящего пучка  $f_i(x) = \int F_i(\Delta, x) d\Delta$ , соответствующие средние значения потерянной энергии  $\langle \Delta \rangle_i(x) = \int F_i(\Delta, x) \Delta d\Delta / f_i(x)$ , парциальные параметры стретглинга и показатели тормозной способности среды при регистрации каждого из зарядовых состояний ионов в пучке

$$\left( -\frac{dE}{dx} \right)_i(x) = \frac{d}{dx} (\langle \Delta \rangle_i(x)). \quad (4)$$

Через эти характеристики мы определяем средний статистический заряд пучка ионов

$$q^{(\text{stat})}(x) = \sum_{i=1}^N q_i f_i(x), \quad (5)$$

а также так называемый „эквивалентный заряд“ пучка, связанный с его энергетическими характеристиками,

$$q^{(\text{equiv})}(x) \equiv \sqrt{\left\langle -\frac{dE}{dx} \right\rangle(x) / \left( -\frac{dE}{dx} \right)_p}, \quad (6)$$

где

$$\left\langle -\frac{dE}{dx} \right\rangle(x) = \sum_i \left( -\frac{dE}{dx} \right)_i(x) \cdot f_i(x)$$

— тормозная способность среды, усредненная по распределению зарядовых фракций в пучке;  $\left( -\frac{dE}{dx} \right)_p$  — эффективное торможение для протонов.

При работе с очень тонкими пленками тормозная способность вещества определяется особо (см., например, [1]): не по формуле (4), а как отношение конечных разностей

$$\left(-\frac{\Delta E}{\Delta x}\right)_i(x) = \langle \Delta \rangle_i(x)/x.$$

В связи с этим мы вводим [8] в дополнение к (6) модифицированный эквивалентный заряд, обозначаемый далее как  $Q^{(equiv)}(x)$ , где  $\langle -(\Delta E/\Delta x) \rangle(x)$  используется вместо  $\langle -(dE/dx) \rangle(x)$  в (6).

## Торможение и перезарядка ионов кислорода $O^{q+}$ при прохождении тонкой углеродной пленки

Мы выбрали для рассмотрения процесс, который был исследован экспериментально, а также с помощью моделирования по методу Монте-Карло группой Ш. Датца при энергии падающего пучка 10–24 MeV [1]. Остановимся на энергии в 24 MeV и, следуя работе [1], возьмем в качестве базиса для построения системы уравнений (2) следующий набор зарядовых состояний:

$$O^{q+} = O^{4+}; O^{5+}; O^{6+}; O^{7+}; O^{8+}, \quad (7)$$

отвлекаясь для простоты от учета промежуточных возбужденных состояний ионов в процессе торможения

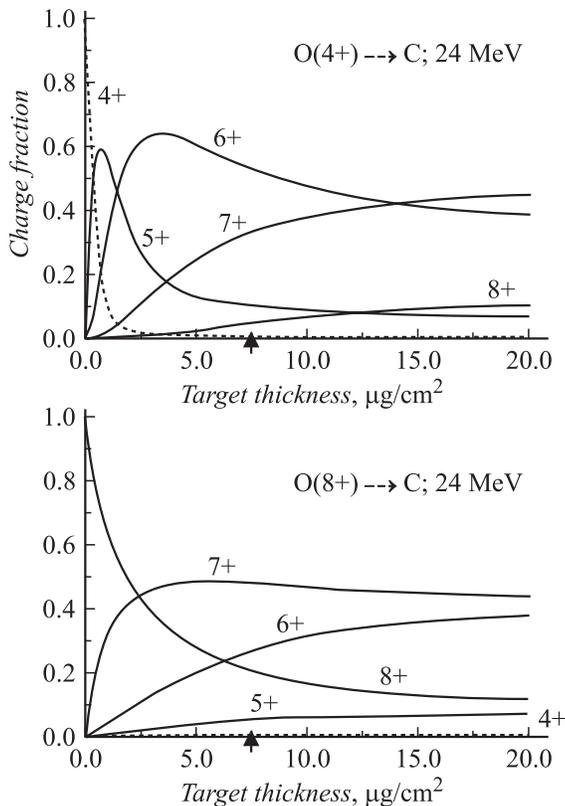


Рис. 1. Зависимость зарядовых фракций  $O^{4+}$ ,  $O^{5+}$ ,  $O^{6+}$ ,  $O^{7+}$ ,  $O^{8+}$  от толщины мишени.

Таблица 1. Скорости переходов  $\lambda_{ij}$ ,  $[\mu\text{g}/\text{cm}^2]^{-1}$

$\lambda_{i \rightarrow j}$	$O^{4+}$	$O^{5+}$	$O^{6+}$	$O^{7+}$	$O^{8+}$
$O^{4+}$	0.	2.5389	0.	0.	0.
$O^{5+}$	0.0853	0.	0.8002	0.	0.
$O^{6+}$	0.	0.1338	0.	0.1281	0.
$O^{7+}$	0.	0.	0.1019	0.	0.0567
$O^{8+}$	0.	0.	0.	0.2354	0.

Таблица 2. Число испытаний (частиц на входе в мишень) и число зафиксированных событий  $O^{q+} \rightarrow O^{q+}$  при моделировании в варианте 2

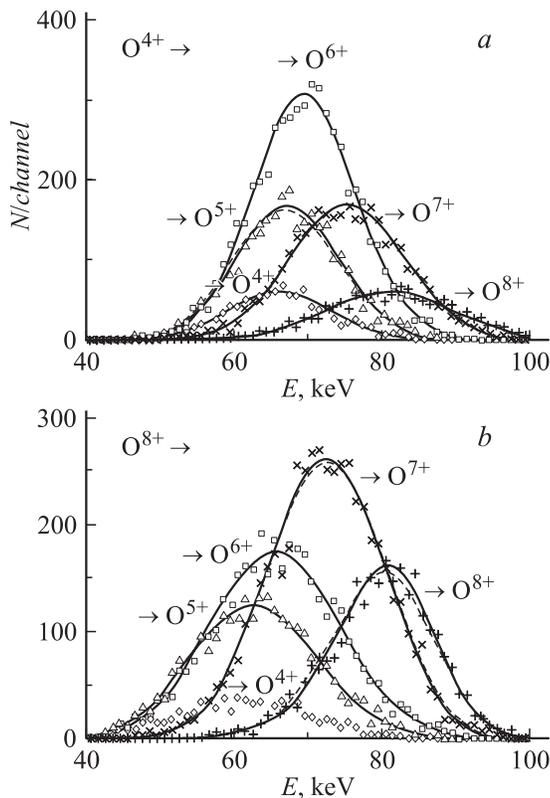
	Число испытаний	Зафиксировано событий
$O^{4+} \rightarrow O^{4+}$	500 000	1702
$O^{5+} \rightarrow O^{5+}$	30 000	2910
$O^{6+} \rightarrow O^{6+}$	10 000	4797
$O^{7+} \rightarrow O^{7+}$	10 000	5341
$O^{8+} \rightarrow O^{8+}$	10 000	2693

(этот вопрос рассмотрен отдельно в работе [10]). Воспользовавшись в расчетах данными работы [1] для матрицы скоростей перезарядки между выбранными состояниями  $\lambda_{ij}$  (табл. 1), рассчитаем распределение зарядовых фракций (7) в зависимости от толщины мишени. Из рис. 1 видно, что равновесное распределение, не зависящее от начального зарядового состояния пучка, достигается где-то по прохождении слоя в 20–25  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , а выбранная в работе [1] толщина пленки в 7.5  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  хорошо соответствует условиям исследования процесса торможения в предравновесном режиме. Отметим также, что при этой толщине доля бериллийподобных ионов  $O^{4+}$  оказывается исключительно малой не только когда на мишень направляется пучок полностью лишенных электронов голых ядер  $O^{8+}$ , но и когда входное зарядовое состояние — это сами ионы  $O^{4+}$ .

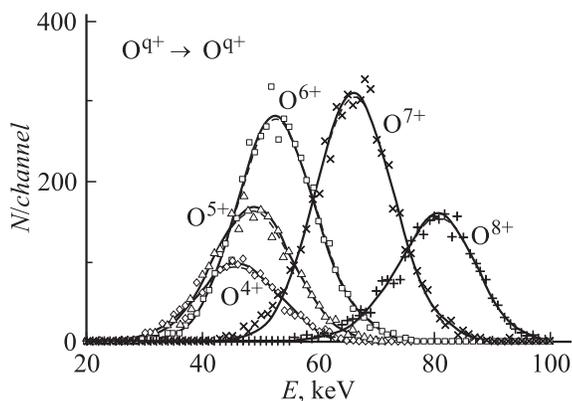
При выборе параметров торможения ионов в „замороженных“ зарядовых состояниях будем опираться на результаты расчетов, выполненных для эффективных зарядов ионов  $q_i^{\text{stop}}(E)$  и  $q_i^{\text{rtag}}(E)$  в рамках диэлектрической теории торможения, широко применяемой для учета эффекта частичного экранирования ядра иона его электронной оболочкой при прохождении иона через вещество [11–14]. Соответствующие им значения тормозной способности  $S_i(E)$  очень близки к тем, что используются в работе [1]. Они приведены в табл. 2 (2-й столбец) вместе с параметрами стретглинга  $\Omega_i^2(E)$ , которые берем по Н. Бору [14].

1) Примеры постановки и решения „обратной задачи“. С изложенным набором параметров мы рассчитываем спектры потери энергии ионами кислорода при толщине 7.5  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  в двух вариантах. В каждом из них это делается дважды. Первый раз — по методу связанных кинетических уравнений (штрихо-

вые кривые на рис. 2 и 3) для сопоставления профилей парциальных спектров потерь в разных зарядовых фракциях. Цель второго расчета (который выполняется с теми же базовыми параметрами) — имитация экспериментальных результатов. Это мы делаем, проводя моделирование по методу Монте-Карло. По спектру вышедших из пленки ионов в зарядовых состояниях (7) строятся гистограммы с шагом по энергии 1 keV/channel



**Рис. 2.** Результаты расчетов в варианте 1 ( $O^{4+} \rightarrow O^{q+}$  и  $O^{8+} \rightarrow O^{q+}$ ). Значки — результаты моделирования по Монте-Карло; парциальные спектры, рассчитанные с параметрами, заложенными в моделирование (штриховая кривая), и с параметрами, извлеченными из анализа спектров (сплошные кривые).



**Рис. 3.** То же, что на рис. 2, но в варианте 2: ( $O^{q+} \rightarrow O^{q+}$ ).

**Таблица 3.** Число зафиксированных событий  $O^{4+} \rightarrow O^{q+}$  и  $O^{8+} \rightarrow O^{q+}$  при моделировании в варианте 1

Зарядовое состояние на выходе	Входное состояние $O^{4+}$	Входное состояние $O^{8+}$
$O^{4+}$	1019	819
$O^{5+}$	2863	2666
$O^{6+}$	5297	3803
$O^{7+}$	3263	5139
$O^{8+}$	1303	2693

в диапазоне 0–100 keV. Статистический разброс приведенных данных дает представление о разбросе данных соответствующего эксперимента.

Вариант 1. Пусть результатом эксперимента является полный набор парциальных спектров потерь энергии  $F_i(\Delta)$  для всех зарядовых фракций  $i = O^{4+}, \dots, O^{8+}$  на выходе из мишени при выборе состояний  $O^{4+}$  и  $O^{8+}$  в качестве начальных (рис. 2, *a* и *b*). Для обеспечения разумного с точки зрения статистики числа зафиксированных событий в каждом из состояний на выходе из мишени (табл. 3) полное число частиц во входном пучке бралось существенно разным для входных состояний  $O^{4+}$  ( $\sim 10^6$  частиц) и  $O^{8+}$  ( $\sim 10^4$  частиц).

Мы анализируем эти данные по методу минимизации  $\chi^2$ , решая на каждом шаге подгонки систему уравнений (2). Полученные значения параметров торможения с оценками ошибок их извлечения приведены в табл. 4 (3-й столбец), а соответствующие им рассчитанные спектры показаны сплошными кривыми на рис. 2, *a* и *b*.

Вариант 2. Здесь мы имитируем другую постановку эксперимента, когда результатом измерений является набор парциальных спектров  $F_i(\Delta)$  для ионов, вошедших в мишень в одном из зарядовых состояний  $O^{4+}, O^{5+}, O^{6+}, O^{7+}, O^{8+}$  и вышедших из нее в том же состоянии (табл. 2, рис. 3). Результаты извлечения базовых параметров торможения из такого „эксперимента“ приведены в табл. 4 (4-й столбец), а соответствующие им рассчитанные спектры показаны сплошными кривыми на рис. 3.

2) Обсуждение. Сформулируем выводы, вытекающие из сопоставления двух вариантов моделирования экспериментов.

а) Особенно сильные расхождения между параметрами торможения, заложенными в имитацию экспериментальных данных и извлеченными из „эксперимента“, а также наибольшие ошибки найденных параметров наблюдаются для зарядовой фракции 4+, которая при толщине мишени в  $7.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  является в распределении зарядовых фракций самой слабой (рис. 1).

б) Параметры торможения  $S_i$  и  $\Omega_i^2$  для наиболее сильных фракций 6+ и 7+ в обоих вариантах моделирования определяются хорошо, их значения наиболее близки к тем, что заложены в имитацию, а статистические ошибки минимальны.

Таблица 4. Параметры торможения

Параметры	Использованные при моделировании	Извлеченные из анализа спектров	
		$\{O^{4+}, O^{8+}\} \rightarrow O^{q+}$	$O^{q+} \rightarrow O^{q+}$
$S(q = 4+), \text{keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$	4.02	$4.450 \pm 0.14$	$3.718 \pm 0.23$
$S(q = 5+), \text{keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$	5.52	$5.603 \pm 0.03$	$5.674 \pm 0.04$
$S(q = 6+), \text{keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$	7.10	$7.060 \pm 0.02$	$7.062 \pm 0.02$
$S(q = 7+), \text{keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$	8.83	$8.790 \pm 0.02$	$8.833 \pm 0.02$
$S(q = 8+), \text{keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$	10.9	$10.928 \pm 0.02$	$10.930 \pm 0.02$
$\Omega^2(q = 4+), \text{keV}^2/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$	5.0	$10.46 \pm 1.5$	$3.56 \pm 2.0$
$\Omega^2(q = 5+), \text{keV}^2/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$	5.0	$3.35 \pm 0.3$	$5.16 \pm 0.4$
$\Omega^2(q = 6+), \text{keV}^2/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$	5.0	$5.05 \pm 0.2$	$4.88 \pm 0.2$
$\Omega^2(q = 7+), \text{keV}^2/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$	5.0	$4.71 \pm 0.2$	$4.80 \pm 0.2$
$\Omega^2(q = 8+), \text{keV}^2/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$	5.0	$4.45 \pm 0.2$	$4.66 \pm 0.2$

в) В обоих вариантах теоретические кривые для парциальных спектров, построенные с параметрами, извлеченными из данных „эксперимента“ (сплошные кривые на рис. 2 и 3), очень слабо отклоняются от кривых, рассчитанных с исходными параметрами (пунктир).

г) С учетом предыдущего наблюдения интересно дать „цену“ результатов, полученных в каждом из рассмотренных вариантов: в первом из них итоговые результаты получены на основании розыгрыша чуть более 1 миллиона траекторий частиц, во втором — около 550 000; относительное различие между ними невелико и не позволяет, на наш взгляд, считать какой-либо один из вариантов более предпочтительным.

Практика применения метода связанных кинетических уравнений для расчета парциальных спектров по заданному набору базовых параметров показывает, что он удобен в применении к решению „обратной задачи“ и требует на порядки меньшее время работы компьютера, чем метод Монте-Карло. Так, при использовании персонального компьютера на базе процессора Athlon XP 1800+ вся процедура поиска оптимальных параметров  $S_i$  и  $\Omega_i^2$  методом минимизации  $\chi^2$  (табл. 4) занимает 20 min в варианте 1 и около 1 h в варианте 2.

## Заключение

Развитие экспериментальных исследований в области взаимодействия быстрых многозарядных ионов с веществом и, в частности, систематическое выполнение измерений парциальных (разрешенных по зарядовому состоянию иона) спектров потерь энергии в неравновесном режиме торможения сдерживаются отсутствием теоретических разработок для практического извлечения базовых параметров торможения из результатов таких измерений. В настоящей работе на базе хорошо зарекомендовавшего себя ранее метода связанных кинетических уравнений для расчета кинетики прохождения быстрых многозарядных ионов через вещество сделан шаг в эту сторону. Разработан алгоритм и создана компьютерная программа, с помощью которой показаны

реальные возможности удобного решения „обратной задачи“ теории торможения в условиях, соответствующих типичным экспериментам последнего времени в рассматриваемой области.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант № 00-02-17207).

## Список литературы

- [1] Rosner B., Datz S., Wu W. et al. // Phys. Rev. 1998. Vol. A57. P. 2737.
- [2] Blazevic A., Bohlen H.G., von Oertzen W. // Nucl. Instr. and Meth. 2002. Vol. B190. P. 64.
- [3] Sigmund P. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 1992. Vol. B69. P. 113.
- [4] Landau L. // J. Phys. (USSR). 1944. Vol. 8. P. 201.
- [5] Winterbon K.B. // Nucl. Instrum. Meth. 1977. Vol. 144. P. 311.
- [6] Балашов В.В., Бибииков А.В., Бодренко И.В. // ЖЭТФ. 1997. Т. 111. С. 2226; Balashov V.V., Bibikov A.V., Bodrenko I.V. // JETP. 1997. Vol. 84. P. 1215.
- [7] Balashov V.V., Bodrenko I.V. // Phys. Lett. 1997. Vol. A232. P. 231.
- [8] Балашов В.В., Бибииков А.В., Бодренко И.В. // Вестник Моск. ун-та. Сер. 3. Физика. Астрономия. 2002. № 2. С. 28; Balashov V.V., Bibikov A.V., Bodrenko I.V. // Moscow University Physics Bulletin. 2002. Vol. 57. N 2. P. 34.
- [9] Balashov V.V., Bodrenko I.V. // Physica Scripta. 1999. Vol. T80. P. 254.
- [10] Balashov V.V. // Nucl. Instr. and Meth. In press.
- [11] Brandt W., Kitagawa M. // Phys. Rev. 1982. Vol. B25. P. 5631.
- [12] Kaneko T. // Phys. Rev. 1986. Vol. A33. P. 1602. Ibid. 1990. Vol. A41. P. 4889.
- [13] Балашова Л.Л., Кабачник Н.М. // Изв. Акад. наук. Сер. физ. 1998. Т. 62. С. 763.
- [14] Bohr N., Dan K. // Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 1948. Vol. 18. P. 8.