

# 电子停止截面测量的优化 使用背散射方法

Victor Pires<sup>a</sup>, Arilson Silva<sup>a</sup>, Cleber L. Rodrigues<sup>a</sup>, Nemitala Added<sup>a</sup>,  
Manfredo H. Tabacniks<sup>a</sup>, Tiago F. Silva<sup>a,1</sup>,  
Flávio Matias<sup>b</sup>, Helio Yoriyaz<sup>b</sup>, Julian Shorto<sup>b</sup>

<sup>a</sup>*Instituto de Física da Universidade de São Paulo. Rua do Matão, 1371 - Cidade  
Universitária - São Paulo - Brazil.*

<sup>b</sup>*Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. Avenida Professor Lineu Prestes, 2242 -  
Cidade Universitária - São Paulo - Brazil.*

## Abstract

电子停止截面的准确确定对于推进核科学和材料研究至关重要。在这项工作中，我们提出了一种优化的方法论，用于通过背散射技术测量停止功率，并专注于最小化随机和系统不确定性。通过对不确定性的来源进行系统的分析并改进实验几何结构，我们建立了一个稳健的高精度测量框架。我们的方法应用于金薄膜中的氦离子停止功率，结果与 SRIM 和 ICRU-49 等参考模型表现出良好的一致性。结果显示，仔细选择的测量角度可以有效地平衡统计精度和系统准确性，在广泛的能量范围内实现总不确定性低于 3%。本研究提供了一种改进的停止功率确定策略，为离子束分析提供了有价值的改进，并对理论模型进行了基准测试。

**Keywords:** 停止截面, 背散射方法, 不确定性优化, 系统不确定性

## 1. 介绍

离子在物质中的电子停止能力在核科学及其应用起着关键作用。尽管对能量损失现象所涉及的物理过程的理论理解正在进步 [1–3]，专注于可

<sup>1</sup>通讯作者。电子邮件: tfsilva@usp.br

追溯实验测量的实验工作成为验证模型的关键。准确的实验数据也有助于改进半经验方法，生成用于模拟各种应用的表格。

在这项工作中，我们展示了对电子停止能力测量的优化以最小化背散射方法中的随机和系统不确定性。我们的方法包括估计不确定性的来源并通过选择有利于减少不确定性的最佳几何结构来改进该方法。

## 2. 方法

### 2.1. 背散射方法

有几种方法可以使用背散射数据测量停止功率 [4]。在这项工作中，我们采用了一种基于确定薄膜测量中峰宽的方法，如 [5] 中所述。图 1 显示了一个沉积在轻质基底上的纯金属薄膜的典型光谱。该峰值由从表面到薄膜-基底界面的所有散射离子形成。其宽度 ( $\Delta E$ ) 是薄膜表面原子散射的离子能量 ( $K \cdot E_0$ ，其中  $K$  为动力学因子， $E_0$  为入射束能量) 与从界面处被薄膜原子散射后重新出现的离子退出能量 ( $E_{out}$ ) 之间的差值。假设测试薄膜沿进入和退出路径均匀停止，能量差可以写成：

峰值宽度可以通过将离子进入薄膜过程中的能量损失和从其厚度为  $t$  的薄膜中退出时的能量损失相加来确定。假设沿着入口和出口路径的停止功率是均匀的，该表达式可以写成：

$$\Delta E = \frac{K \cdot t}{\cos(\theta_{in})} [\epsilon]_{in} + \frac{t}{\cos(\theta_{out})} [\epsilon]_{out} \quad (1)$$

其中：

$$\epsilon_j = \frac{1}{N} \frac{dE}{dx} \Big|_j \quad (2)$$

是在路径  $j$  中的停止截面，或者是薄膜的入口 (索引  $in$ ) 或出口 (索引  $out$ )。  $\theta_{in}$  和  $\theta_{out}$  分别代表离子入射和出射路径与表面法线之间的角度。  $N$  是材料的原子密度。

该方法的基本原理是通过在两种不同的几何配置（即两个  $\theta_{in}$  和  $\theta_{out}$  的值对）下测量相同入射能量的峰宽，可以获得一个方程组。 $[\epsilon_{in}]$  和  $[\epsilon_{out}]$  的解给出了两种不同平均能量下的停止截面。在矩阵形式中，这可以表示为：

$$\begin{pmatrix} \Delta E^A \\ \Delta E^B \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{K \cdot t}{\cos(\theta_{in}^A)} & \frac{t}{\cos(\theta_{out}^A)} \\ \frac{K \cdot t}{\cos(\theta_{in}^B)} & \frac{t}{\cos(\theta_{out}^B)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} [\epsilon]_{in} \\ [\epsilon]_{out} \end{pmatrix} \quad (3)$$

其中指标  $A$  和  $B$  表示两次不同的测量。为了更好地限定问题，我们施加条件  $\theta_{in}^A = \theta_{out}^B = \Theta_1$  和  $\theta_{in}^B = \theta_{out}^A = \Theta_2$ 。这一假设是必要的，以减少变量的数量，从而增强结果的可视化并简化实验程序。值得注意的是，因子  $K$  隐含地依赖于散射角，在整个分析过程中该角度保持不变。因此，实验过程涉及将样品倾斜，使得在第一次测量中入射角为  $\Theta_1$  而出射角为  $\Theta_2$ ，而在第二次测量中角度反转，入射角设置为  $\Theta_2$  而出射角为  $\Theta_1$ 。确定薄膜入口和出口路径的平均能量有不同的近似方法 [5]。这里，我们采用以下近似方法：

$$\begin{aligned} \bar{E}_{in} &= E_0 - \frac{1}{4} \Delta \bar{E} \\ \bar{E}_{out} &= K \cdot E_0 - \left( \frac{2 \cdot K + 1}{4} \right) \Delta \bar{E} \end{aligned} \quad (4)$$

与  $\Delta \bar{E} = (\Delta E^A + \Delta E^B)/2$ 。这是一个基于在 [5] 中提出的对称平均能量近似定义的替代方案，这使得实验方法更为便捷。无论是假设均匀的能量损失，还是用于计算离子进入和离开薄膜路径上平均能量的近似方法，都引入了系统误差。这些假设没有考虑到停止截面曲线的非线性特性。这些近似方法对最终结果的影响将在第 2.3 节中进行评估。

## 2.2. 考虑随机不确定性

从方程 3，我们可以利用协方差矩阵的定义将  $\Delta E_j$  的不确定性传播到  $[\epsilon_j]$  的值：

$$V_{\bar{A}} = (X^T V^{-1} X)^{-1} \quad (5)$$

其中：

$$X = \begin{pmatrix} \frac{K \cdot t}{\cos(\Theta_1)} & \frac{t}{\cos(\Theta_2)} \\ \frac{K \cdot t}{\cos(\Theta_2)} & \frac{t}{\cos(\Theta_1)} \end{pmatrix} \quad (6)$$

$$V = \begin{pmatrix} \sigma_A^2 & 0 \\ 0 & \sigma_B^2 \end{pmatrix} \quad (7)$$

令  $\sigma_A$  和  $\sigma_B$  分别为测量  $\Delta E_A$  和  $\Delta E_B$  的不确定性。在这项工作中，我们假设  $\sigma_A = \sigma_B = G/\sqrt{6}$ ，其中  $G$  是光谱的增益校准（参见附录 A）。这提供了从直方图数据确定峰宽精度的一个保守估计。

调整后的停止截面的测量值由公式 8 给出。

$$\begin{pmatrix} [\epsilon]_{in} \\ [\epsilon]_{out} \end{pmatrix} = (X^T V^{-1} X)^{-1} \cdot X^T \cdot V^{-1} \cdot \begin{pmatrix} \Delta E^A \\ \Delta E^B \end{pmatrix} \quad (8)$$

请注意，以这种方式排列矩阵  $X$  暗示入口和出口路径在相同入射光束能量下的两个连续测量中的角度交替为  $\Theta_1$  和  $\Theta_2$ 。公式 5 导致一个对角线包含我们系统不确定性的矩阵：

$$\sigma_{[\epsilon]_{in}} = \frac{G}{\sqrt{6}Kt} \cdot \frac{\sqrt{\sec^2(\Theta_1) + \sec^2(\Theta_2)}}{|\sec^2(\Theta_1) - \sec^2(\Theta_2)|} \quad (9)$$

$$\sigma_{[\epsilon]_{out}} = \frac{G}{\sqrt{6}t} \cdot \frac{\sqrt{\sec^2(\Theta_1) + \sec^2(\Theta_2)}}{|\sec^2(\Theta_1) - \sec^2(\Theta_2)|} \quad (10)$$

并且外对角线结果给出了  $[\epsilon]_{in}$  和  $[\epsilon]_{out}$  值之间的协方差，用于计算相关因子  $\mathbf{r}$  如下：

$$\mathbf{r} = \frac{\mathbf{cov}([\epsilon]_{in}, [\epsilon]_{out})}{\sigma_{[\epsilon]_{in}} \cdot \sigma_{[\epsilon]_{out}}} = -\frac{2 \sec(\Theta_1) \sec(\Theta_2)}{\sec^2(\Theta_1) + \sec^2(\Theta_2)} \quad (11)$$

注意相关因子总是负的，无论  $\Theta_1$  和  $\Theta_2$  的组合如何。

### 2.3. 系统误差的考虑

为了估计系统不确定性，我们测试了方程 4 和 8 对比 SRIM 曲线。峰值宽度  $\Delta E$  直接使用积分（如公式 12 所示）形式和 SRIM 数据进行了计算，而第 2.1 节中描述的方法用于通过公式 8 确定  $[\epsilon]$ 。这些值然后与通过公式 4 给出的平均能量插值得到的 SRIM 值进行比较。插值结果和矩阵计算输出之间的差异被认为是系统误差。这解释了由于表面近似或在入射和出射路径中计算平均能量而引入的系统误差。

$$\begin{aligned} E_1 &= E_0 - \int_0^{t/\cos(\theta_{in})} \left[ \frac{1}{N} \frac{dE}{dx}(E(x), x) \right]_{E(0)=E_0} dx \\ E_{out} &= K \cdot E_1 - \int_0^{t/\cos(\theta_{out})} \left[ \frac{1}{N} \frac{dE}{dx}(E(x), x) \right]_{E(0)=K \cdot E_1} dx \\ \Delta E &= K \cdot E_0 - E_{out} \end{aligned} \quad (12)$$

这种方法是合理的，因为 SRIM 数据提供了当前对该过程了解程度下停止值的可靠近似。新的测量旨在通过限制不确定性来改善这种知识状态。由于我们的目标是尽量减少不确定性，因此该方法有助于识别我们假设仍然有效的几何形状。

$$s([\epsilon]_j) = [\epsilon]_j - \mathbf{SRIM}(\bar{E}_j) \quad (13)$$

其中  $s([\epsilon]_j)$  为系统误差， $\mathbf{SRIM}(\bar{E}_j)$  为能量  $\bar{E}_j$  处的 SRIM 插值。 $j$  是一个表示 *in* 或 *out* 的索引。

#### 2.4. 寻找最佳几何结构

通过对  $[\epsilon]$  确定情况下的随机和系统不确定性进行定义，总不确定性可以被定义为：

$$\sigma_{total} = \sqrt{s([\epsilon]_j)^2 + \sigma_{[\epsilon]_j}^2} \quad (14)$$

请注意，在统计不确定性中的公共因子对于  $[\epsilon]_{in}$  和  $[\epsilon]_{out}$  而言，如方程 9 和 10 所示，可以写成函数  $f(\Theta_1, \Theta_2)$  的形式：

$$f(\Theta_1, \Theta_2) = \frac{\sqrt{\sec^2(\Theta_1) + \sec^2(\Theta_2)}}{|\sec^2(\Theta_1) - \sec^2(\Theta_2)|} \quad (15)$$

当  $\Theta_1 \approx \Theta_2$  时，其发散。特别地，当  $\Theta_1 = \Theta_2$  系统在方程 3 中变为不定。 $f(\Theta_1, \Theta_2)$  在  $\Theta_1 = 0$  和  $\Theta_2 = \pi/2$  或  $\Theta_1 = \pi/2$  和  $\Theta_2 = 0$  处达到最小值。然而，当  $\Theta_1$  或  $\Theta_2$  接近  $\pi/2$  时，相应离子在进入或退出时的路径长度增加，导致系统误差增大。

因此，选择  $\Theta_1$  和  $\Theta_2$  必须在减少随机不确定性的同时也尽量最小化系统误差。由于系统不确定性不能进行解析评估，这一过程必须以数值方式执行。

### 3. 结果与讨论

为了说明该方法的应用，我们计算了随机不确定性和系统不确定性以及相关因子，以优化旨在测量氦离子在金中电子停止截面的实验。这些计算中采用的薄膜厚度为 45 纳米。每个对总不确定度贡献的结果显示在图 2 的面板中。

如上所述，两种类型的不确定性表现出相反的行为，并且相关因子仅呈现负值（离子进入薄膜时停止截面的高估会导致其离开时的低估，反之亦然）。如果  $\Theta_1 > 60^\circ$  和  $\Theta_2 < 20^\circ$ ，相关因子会减弱。不相关的测量只有在特定角度组合下才能实现，这些组合导致系统误差较高，因此不推荐使用。

随机和系统不确定性相结合产生了如图 3 所示的总不确定性。我们还计算了入射能量分别为 500 千电子伏特和 5000 千电子伏特时的最终不确定性，结果分别呈现在图 4 和图 5 中。从这些结果来看，为了在整个能量范围内将总不确定度保持在 3% 以下， $\Theta_1$  应保持在  $50^\circ$  到  $80^\circ$  之间，并且  $\Theta_2$  应低于  $30^\circ$ 。此外，可以观察到在这个实验中总不确定度低于 1% 是不可行的。如果需要更高的精度，应该探索其他方法 [6]。

最后，我们进行了从 500 千电子伏特到 5100 千电子伏特入射能量范围的实验。选定的角度集为  $\Theta_1 = 0^\circ$  和  $\Theta_2 = 60^\circ$ 。这种选择导致对于 500 千电子伏特入射能量的测量最大总不确定度为 3%，而对于 1000 千电子伏特入射能量（在停止截面曲线的最大值处）的最小总不确定度为 2%。这一角度集的相关因子约为 0.7。

图 6 显示了使用我们的方法获得的实验数据与 SRIM 和 ICRU-49 数据的比较。图表中的黑点代表来自 IAEA 数据库的额外实验数据。在上图中，我们观察到我们的数据与半经验模型的整体一致，而在下图中，我们将相对残差以 SRIM 为参考进行展示。我们提供了密集分布的实验数据来更好地定义该方法的统计极限。在较低能量下，所有实验数据的残差幅度都落在了 4% 以内，这个值非常接近使用此处提出的方法计算出的最终不确定度。

在图 6 的残差图中，我们的实验数据被相应地标记以确定它们是通过入口路径（绿色）还是出口路径（红色）获得的。我们观察到两条路径确定的数据具有一致性。

与模型比较显示，在不确定度范围内的 SRIM 和 ICRU-49 均显示出合理的吻合，后者在残差图中更好地捕捉了数据分布的精细结构。

#### 4. 结论

在这项工作中，我们提出了一种新的优化方法，在使用背散射数据测量停用功率时提供了一种准确可靠的确定薄膜停止截面的方法。我们的方法基于对不确定性的系统处理，为在优化几何结构以进行精确测量的同时最小化随机和系统误差提供了稳健的框架。

实验结果是在金中氮的广泛入射能量范围内获得的，显示了与 SRIM 和 ICRU-49 等公认半经验模型的良好一致性，并突出了我们方法在实现接近理论极限的不确定性方面的有效性。几何的选择以及使用密集分布的数据点对于提高我们的测量统计精度至关重要，特别是在较低能量时。

尽管在此实验中无法实现低于 1% 的总不确定性，该方法提供了一个可靠的工具来规划停止截面测量，使得获得的实验值的变化范围得到更好的限制。

## 致谢

作者感谢 CNPq-INCT-FNA (项目编号 464898/2021-5) 提供的财政支持。TFS 感谢巴西资助机构 CNPq (项目编号 406982/2021-0) 的支持。FM 感谢 CNEN (项目编号 2020.06.IPEN.32) 的支持。本研究使用了圣保罗大学的离子束材料分析实验室 LAMFI-USP 的资源。作者感谢实验室工作人员在实验期间提供的帮助。

在准备这项工作时，作者使用了由 OpenAI 开发的 ChatGPT 来提高语言质量和可读性。使用该工具后，作者根据需要审查和编辑内容，并对出版物的内容负全部责任。

## 附录 A. $\Delta E$ 定量中的随机不确定性

为了确定薄膜峰值宽度的一半，需要确定在哪些通道中，在下降沿和上升沿处发生了一半高度。谨慎起见，我们可以在一个通道内假设均匀概率分布，从而得出  $\sigma_{\text{edge}} = 1/\sqrt{12}$ 。将  $\Delta E$  计算为下降沿和上升沿的通道差乘以增益因子  $G$ ，可以计算出  $\Delta E$  的不确定性为：

$$\sigma_{\Delta E} = G \cdot \sqrt{\left(\frac{1}{\sqrt{12}}\right)^2 + \left(\frac{1}{\sqrt{12}}\right)^2} = \frac{G}{\sqrt{6}} \quad (\text{A.1})$$

## References

- [1] A. A. Correa, Calculating electronic stopping power in materials from first principles, *Computational Materials Science* 150 (2018) 291–303.
- [2] M. A. Zeb, J. Kohanoff, D. Sánchez-Portal, E. Artacho, Electronic stopping power of h and he in al and lif from first principles, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 303 (2013) 59–61. Proceedings of the 11th Computer Simulation of Radiation Effects in Solids (COSIRES) Conference Santa Fe, New Mexico, USA, July 24-29, 2012.
- [3] D. Roth, B. Bruckner, G. Undeutsch, V. Paneta, A. I. Mardare, C. L. McGahan, M. Dosmailov, J. I. Juaristi, M. Alducin, J. D. Pedarnig, R. F. Haglund, D. Primetzhofer, P. Bauer, Electronic stopping of slow protons in oxides: Scaling properties, *Phys. Rev. Lett.* 119 (2017) 163401.
- [4] P. Bauer, How to measure absolute stopping cross sections by backscattering and by transmission methods: Part I. backscattering, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 27 (1987) 301–314.
- [5] W.-K. Chu, J. W. Mayer, M.-A. Nicolet, Chapter 9 - Energy-Loss Measurements, in: W.-K. Chu, J. W. Mayer, M.-A. Nicolet (Eds.), *Backscattering Spectrometry*, Academic Press, 1978, pp. 276–287.
- [6] M. V. Moro, T. F. Silva, A. Mangiarotti, Z. O. Guimarães-Filho, M. A. Rizzutto, N. Added, M. H. Tabacniks, Traceable stopping cross sections of Al and Mo elemental targets for 0.9 – 3.6-MeV protons, *Physical Review A* 93 (2016) 022704.

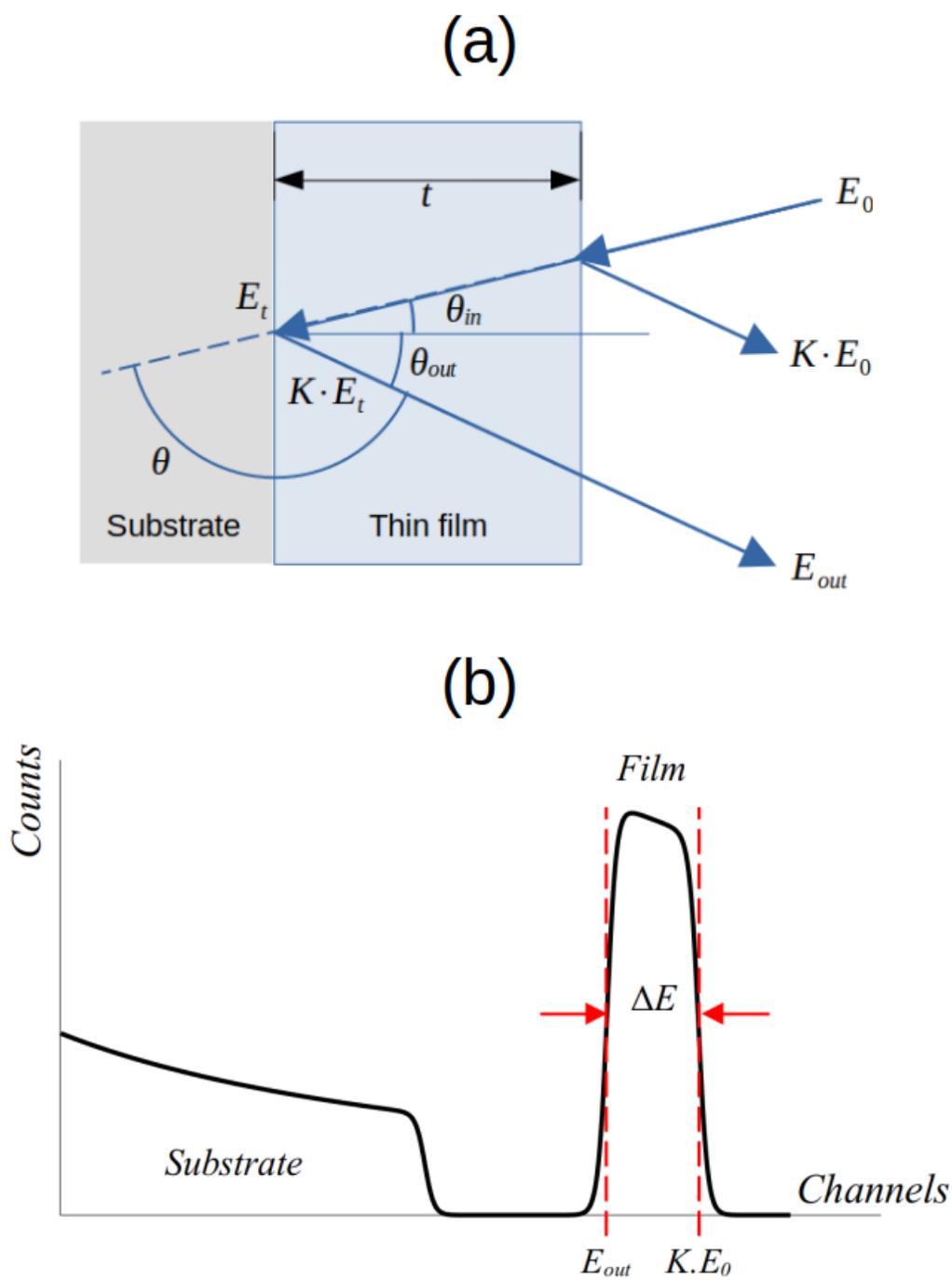


图 1: RBS 技术的示例光谱。

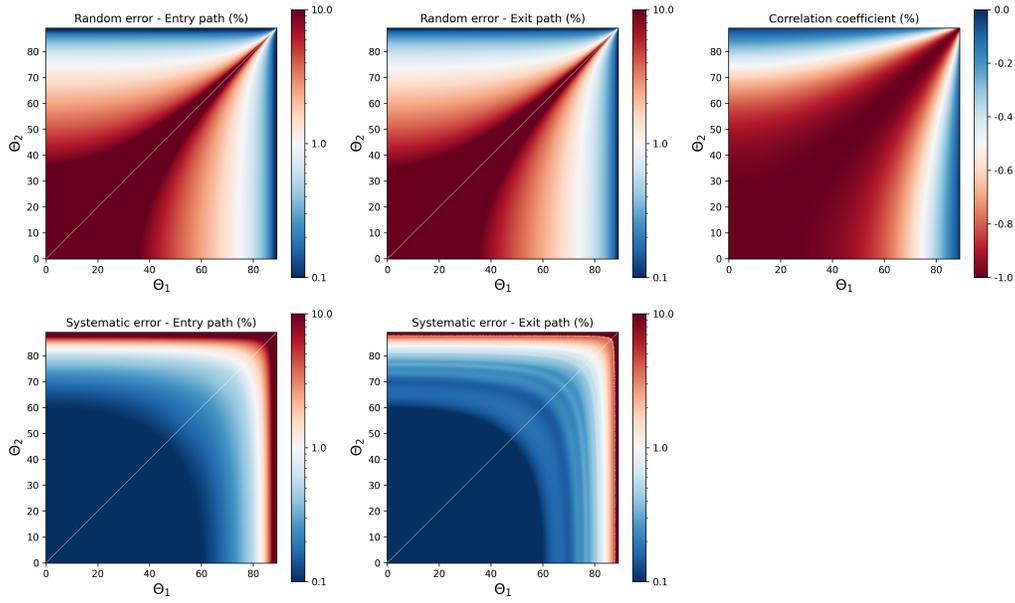


图 2: 展示假设在  $3 \times 10^{17} \text{at./cm}^2$  (45 nm) 厚金膜中测量氦停止截面的不同贡献到最终不确定性的面板。入射阿尔法束能量为 1000 keV, 检测器放置于  $120^\circ$  散射角度处。顶部线条显示了进入 (左) 和离开 (中) 薄膜的相对随机不确定性计算结果, 以及这两个值的相关因子 (右)。底部线条展示了进入 (左) 和离开 (中) 薄膜的系统不确定度。不确定性图中的颜色标度为对数尺度, 并饱和在 10% 以改善可视化效果。相关因子图中的颜色标度是线性的, 并且限制在 -1 和 0 之间, 因为其总是负值。

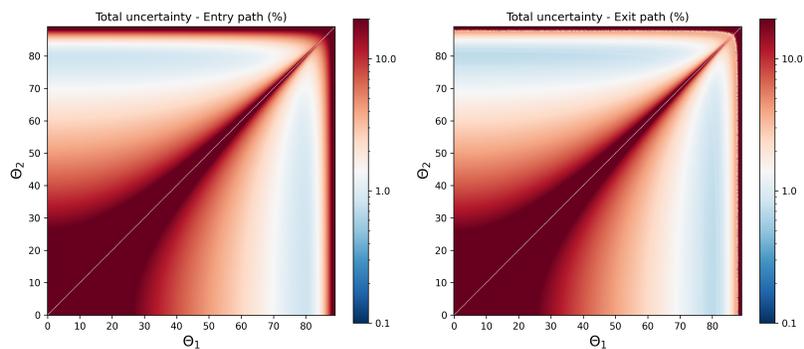


图 3: 热图显示了假设在  $3 \times 10^{17}$ at./cm<sup>2</sup> (45 nm) 厚的金膜中测量氦气停止截面时计算出的总不确定性。入射能量为 1000 keV, 探测器放置于 120° 散射角处。入口 (左) 和出口 (右) 方式下的总不确定性。不确定性图中的颜色比例尺采用对数尺度, 并在 10% 时饱和以改善可视化。

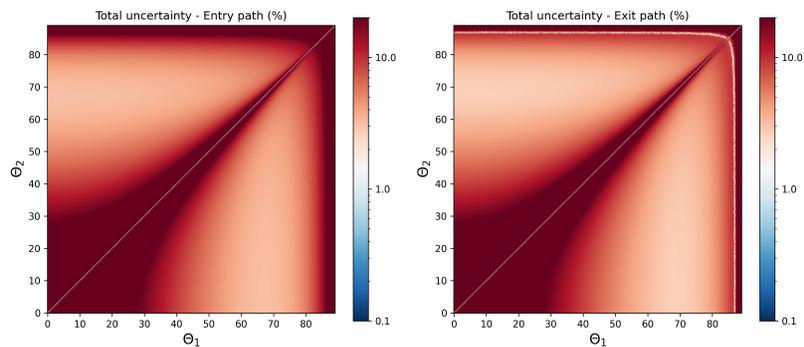


图 4: 热图显示了假设在厚度为  $3 \times 10^{17}$ at./cm<sup>2</sup> (45 纳米) 的金膜中测量氦停止截面时计算出的总不确定度。入射能量是 500 千电子伏, 探测器放置在 120° 散射角处。入口方向 (左) 和出口方向 (右) 的总不确定度。不确定性图中的颜色比例尺采用对数尺度, 并饱和于 10% 以改善可视化效果。

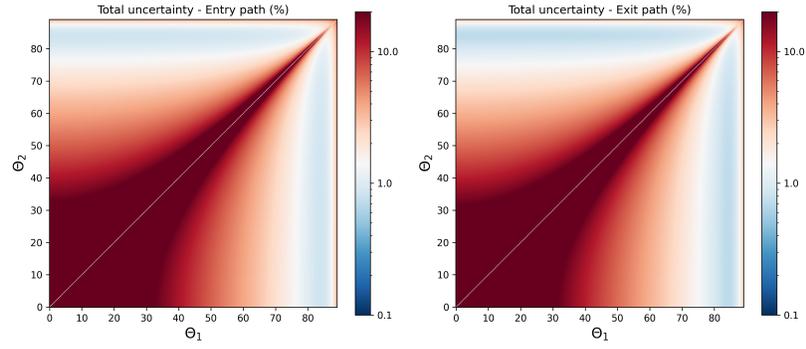


图 5: 热图显示了假设在厚度为  $3 \times 10^{17} \text{at./cm}^2$  (45 nm) 的金膜中测量氮停层截面时计算出的总不确定度。入射能量为 5000 keV, 探测器放置于散射角  $120^\circ$  处。进入方式 (左) 和离开方式 (右) 中的总不确定度。不确定度图的颜色比例尺采用对数尺度, 并在 10% 时饱和以改善可视化效果。

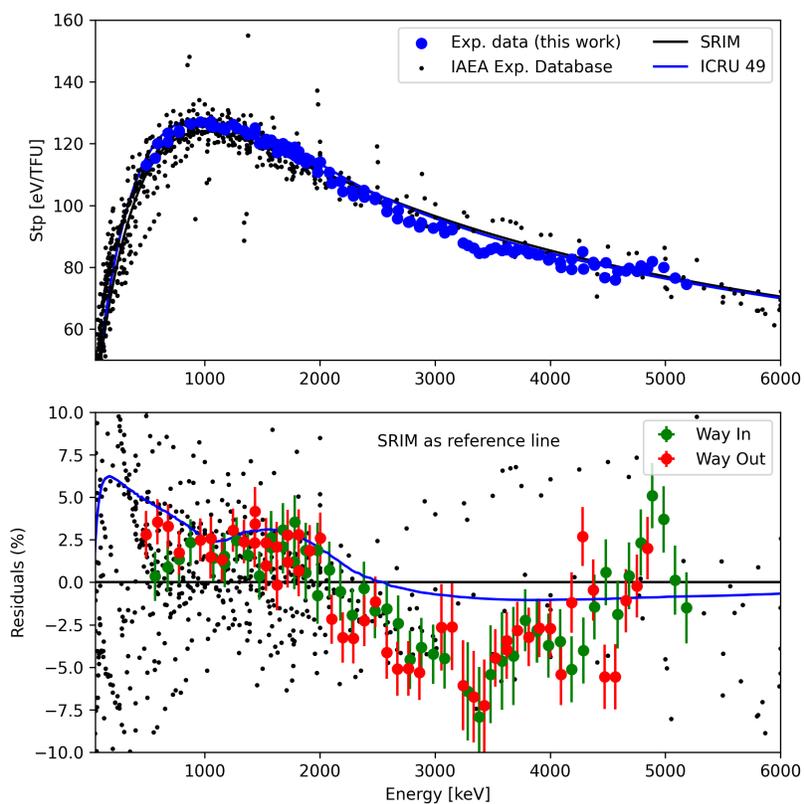


图 6: 停止截面测量了从金到氦离子 (上图) 和使用 SRIM 作为参考计算的相对残差 (下图)。使用的几何形状是根据这里报告的方法定义的。1 TFU =  $1 \times 10^{15}$  at./cm<sup>2</sup>。在残差中, 数据被标记为平均值使用的方式, 即, 进入或离开薄膜的方式。