高电荷态 Kr^{q+} 与 Al 表面碰撞发射可见光的研究*

杨兆锐1) 张小安1)2)† 徐秋梅2) 杨治虎2)

1)(咸阳师范学院与中国科学院近代物理研究所联合共建离子束与光物理实验室,咸阳 712000)

2)(中国科学院近代物理研究所,兰州 730000)(2012年6月27日收到;2012年9月18日收到修改稿)

利用低速 ($V \approx 0.01V_{Bohr}$)高电荷态 Kr^{q+} (q = 8, 10, 13, 15, 17)离子轰击金属 Al 表面,获得了碰撞过程产生的 300—600 nm 的光谱. 实验结果表明: 低能大流强 (μ A/cm² 量级)离子束入射金属表面,可产生溅射原子、离子和入 射离子中性化后发射的可见光. 随着入射离子势能 (电荷态)增加,碰撞过程中发射谱线的强度增强. 与激发态 3d 能 级相比,较高的势能可以有效地激发 Al 原子的电子到较高 4s 能级.

关键词:高电荷态离子,可见光发射,离子与表面作用 PACS: 34.80.Dp, 32.30.Jc, 79.20.Rf, 79.60.Bm

DOI: 10.7498/aps.62.043401

1 引 言

低速(入射离子速度小于玻尔速度2.19× 10⁶ m/s) 高电荷态离子在与固体表面相互作用过 程中可以产生许多新的物理现象,因此成为学术界 广泛关注的问题之一[1-4]. 高电荷态离子携带很 高的势能,在数值上等于离子电离能的总和.例如 Xe⁵⁴⁺ 所携带的势能是将 Xe 原子核外 54 个电子 全部电离所需要的总能量,约为 202 keV. 低速单电 荷态离子与固体表面作用,主要存在 Aguer 中性化 过程,在此过程中以电子发射实现间接退激和直接 退激^[5]. 而低速高电荷态离子与固体表面作用中, 入射离子俘获金属导带电子,可以形成高激发态空 心原子或高激发态的离子,它们可以通过辐射 X 射 线、可见光和红外光形式退激,同时伴随电子发射. 另一方面,入射离子在瞬间(纳秒量级)将携带的 能量沉积于靶表面,溅射出大量的处于激发态的原 子和离子,它们通过光辐射退激^[5,6].在以往的研究 中,大多数实验工作聚焦在入射离子中性化过程中 形成的高激发态原子退激过程中的电子发射和 X 射线发射的测量,对可见、红外光谱研究较少,近 年来,中国科学院近代物理研究所的科学工作者在 ECR 离子源上进行了探索性的实验研究,尤其在 X 射线发射、可见光发射已取得了初步实验结果^[6]. 实验发现,离子与固体表面作用发射的可见光是非 常弱的,带光电倍增器(增益高达约 10⁷)的光谱仪 更适合离子与固体表面作用的光谱测量.

目前,高电荷态离子与固体表面作用过程中可 见光发射的实验研究,对于理解碰撞导致原子的激 发态形成机制具有重要的意义,这种相互作用过程 产生的光谱数据,可以为天体物理中的谱线甄别以 及热核聚变反应堆中受迫辐射冷却研究提供重要 依据^[7].

2 实验装置和方法

实验是在中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态离子综合研究实验平台上进行的,实验研 究平台如图 1 所示.离子源提供确定电荷态的离 子,束流在不同的引出电压 (不小于 15 kV)下引出, 利用二极偏转磁铁和四极磁铁将离子输送到实验 平台,经过 Φ5 光栏的准直,进入高真空靶室.实验 过程中,通过法拉第筒电流来确定入射离子流强,

* 国家自然科学基金 (批准号: 11075135, 11174296)、陕西省自然科学基金 (批准号: 2012JM1009) 和陕西省教育厅科研计划 (批准号: 12JK0984) 资助的课题.

http://wulixb.iphy.ac.cn

[†]通讯作者. E-mail: zhangxiaoan2000@yahoo.com.cn

通过测量靶电流来监测束流强度的变化. 靶架子 上安装有荧光靶, 通过观察荧光靶上的束斑形状, 确定束流打靶的位置. 为了确保离子与干净的靶表 面相互作用, 实验过程中靶室真空一直保持在 2× 10⁻⁸ mbar. 束流与靶表面法线成 45° 角斜入射于金 属 Al 表面,利用 LRS-II 型单色仪在垂直于束流方向进行探测.实验前,利用标准的钠光灯对谱仪进行了校准.为了降低本底,测量工作在暗室条件下进行.



图 1 高电荷态离子与固体表面相互作用研究平台示意图

实验中选择 Kr^{q+} 能量为 260 和 340 keV, 电荷态分别取 8, 10, 13, 15, 17. 利用不同电荷态的离子轰击洁净的金属 Al 样品, 测量碰撞过程发射的 300—600 nm 范围的谱线, 并把测量谱线与 NIST 数据库数据对比.

3 实验结果与分析

图 2 为本实验中 260 keV 的高电荷态 Kr¹³⁺ 轰 击金属 Al 表面的实验光谱图, 图上的标注为原子 和离子的跃迁谱线, 包括了入射离子中性化后的光 谱线和靶表面溅射原子、离子的谱线. 图 2 中 Kr III (324.5 nm) 和 Kr II (465.8 nm) 是未分辨的光谱 线, 属于 Kr III 和 Kr II 的多条谱线的跃迁元素, Al III (452.8 nm) 和 Kr II (452.8 nm) 处于相同的波长 位置, 也是弱谱线跃迁. 根据文献 [8], 我们的初步 分析结果见表 1 和表 2.

图 2 的实验测量靶电流为 230 nA. 从图 2 中可 以看出, 溅射 Al 原子和离子发射的谱线与 Reinke 等^[9] 和 Qayyum 等^[10] 的结果符合. 入射离子 Kr 的 可见光发射来自入射离子俘获靶导带电子中性化 过程中, 例如, 324.5 nm 的谱线对应 Kr¹³⁺ 俘获电 子形成 Kr²⁺ (4s²4p³ (⁴S⁰)5p) 后, 处于 5p(⁵P) 能级 的一个电子跃迁到 5s(⁵S) 发出的. Kr⁺ 最外层一个 电子由 5p 退激跃迁至 5s, 形成多条复杂跃迁谱线. Kr 原子的基态电子组态为 4s²4p⁶(¹S), 587.9 nm 的 谱线对应最外层一个激发态电子在级联跃迁的过程中,由 5p 跃迁到 5s 能级发出的.

Al 原子属于 IIIA 族, 基态电子组态为 $1s^22s^22p^63s^23p$ (${}^{2}P_{1/2}$). 从图 2 中可以看出对于 Al 靶来说, 较强的两条谱线 (309.0 和 396.1 nm) 分别 对应 Al 原子从激发态 $3s^23d$ 和 $3s^24s$ 跃迁到基态 $3s^23p$ 发射的, 后者强度约为前者的 4 倍. 一价 Al⁺ 的基态电子组态为 $1s^22s^22p^63s^2({}^{1}S)$, 其最外层一个 电子处于非稳态由激发态向基态级联跃迁, 其中 4f 跃迁到 3d 态时发射 358.5 nm 的谱线. 452.8 nm 的 谱线对应 Al⁺ 一个最外层电子由 4d 跃迁到 4p 发 射的, 这两条谱线的强度约为 309.0 nm 谱线的一 半. 表 1 列出了 Al I (Al⁰⁺) 和 Al II (Al¹⁺) 发射谱线 相应的信息.



图 2 260 keV 的 Kr¹³⁺ 与 Al 表面相互作用发射的光谱

| 粒子 | 实验波长 /nm | NIST 波长 /nm | 电子组态 | 态项 | 跃迁角动量 J | |
|-------|----------|-------------|---------------------------------------|---------------------------|---------|--|
| ALI | 309.0 | 308.2 | 3s ² 3p—3s ² 3d | ${}^{2}P^{0}$ — ${}^{2}D$ | 1/2—3/2 | |
| 7111 | | 309.2 | $3s^23p$ — $3s^23d$ | ${}^{2}P^{0}$ — ${}^{2}D$ | 3/2-5/2 | |
| Al II | 358.5 | 358.6 | 3s3d—3s4f | ${}^{3}D$ — ${}^{3}F^{0}$ | 3—4 | |
| Al I | 396.1 | 396.1 | 3s ² 3p—3s ² 4s | ${}^{2}P^{0}$ — ${}^{2}S$ | 3/2—1/2 | |

表1 All和All的谱线对应的跃迁能级

表 2 Kr I 和 Kr II 的谱线对应的跃迁能级

| 粒子 | 实验波长/nm | NIST 波长/nm | 电子组态 | 态项 | 跃迁角动量 J |
|-------|---------|------------|---|----------------------------|---------|
| Kr II | 409.9 | 409.8 | $4s^24p^4(^3P)5s-4s^24p^4(^3P)5p$ | ${}^{4}P_{}{}^{2}D^{0}$ | 1/2—3/2 |
| Kr II | 430.4 | 430.0 | $4s^24p^4(^3P)5s-4s^24p^4(^3P)5p$ | ${}^{2}P_{-}{}^{4}S^{0}$ | 3/2-3/2 |
| Kr II | 434.3 | 434.1 | $4s^24p^4(^3P)5p-4s^24p^4(^1S)4d$ | ${}^{4}D^{0}$ — ${}^{2}D$ | 3/2-3/2 |
| Kr II | 485.5 | 485.7 | $4s^24p^4(^3P)4d-4s^24p^4(^3P)5p$ | $^{4}D^{-2}S$ | 1/2—1/2 |
| Kr I | 587.9 | 587.0 | $4s^24p^5({}^2P_{3/2})5s-4s^24p^5({}^2P_{1/2})5p$ | ² [3/2]°-2[1/2] | 1—1 |

从以上可以看出,碰撞过程发射的谱线均为单 电子跃迁,参与跃迁的电子通过一步直接跃迁或 多步级联跃迁至基态.通过与文献 [10—12] 对比 可知,无论是单电荷态 Ar⁺和 Xe⁺,还是高电荷态 Kr¹³⁺ 轰击固体 Al 表面, 靶原子和离子发射的谱线 种类几乎没有差别.与单电荷态离子入射最大的不 同之处在于,高电荷态 Kr¹³⁺入射,发现了入射离子 中性化后发射可见光.这是由于高电荷态离子入射 固体表面俘获的电子处于高能级,处于高能级的电 子在向较低能级跃迁的过程中辐射可见光.图 3 给 出 340 keV 的 Kr^{q+} (q = 8, 10, 15, 17) 轰击金属 Al 表面, Kr II 离子在 486.3 nm 发射的谱线随电荷态 变化的典型图. 从图 3 中可以看出,谱线强度随着 电荷态 (势能)的增加谱线强度增强,尤其是入射离 子电荷态 q 等于 17,谱线的强度是 q = 15 的二倍.



图 3 340 keV 的 Kr⁸⁺, Kr¹⁰⁺, Kr¹⁵⁺, Kr¹⁷⁺ 与 Al 表面作用发 射的 Kr II 485.5 nm 谱线强度随电荷态的变化

从图 3 可以看出, 增加入射离子的电荷态, 入

射离子中性化后的原子和离子的光谱强度增强.对 于低速单电荷态离子与固体表面作用,入射离子中 性化后原子发射可见光的概率非常小,因为在这种 情况下主要是 Auger 中性化或共振转移过程^[13].

我们的实验结果,由角动量耦合法则^[14]可 知,Kr⁺的电子组态4s²4p⁴(³P)5s对应一个两重 态(²P)和一个四重态(⁴P),电子组态4s²4p⁴(³P) 5p对应6个态项(^{2,4}S,^{2,4}P,^{2,4}D).410.2,430.6, 435.4和486.3 nm 4条谱线对应相同电子组态 4s²4p⁴(³P)5s—4s²4p⁴(³P)5p不同态项之间的跃迁. 谱线有同一重态能级间的跃迁(⁴P—⁴D),还有不同 重态能级间的禁戒跃迁(⁴P—²D).

4 讨论与结论

根据光辐射的 Einstein 理论, 受激发射系数和 吸收系数 ^[14],

$$B_{ji} = \frac{4\pi e^2}{3\hbar^2} \left| \left\langle r_{ji} \right\rangle \right|^2, \tag{1}$$

由上式可以得到电偶极辐射跃迁选择定则,对于 L-S 耦合,要求

$$\Delta L = 0, \pm 1,$$

 $\Delta J = 0, \pm 1 \quad (J = 0 \rightarrow J' = 0 \ \text{kpt}).$

靶表面溅射原子和离子的光谱是碰撞产生的,与入射离子的能量有关,可用碰撞级联理论描述^[15].在1991年,Burgdörfer等^[16]建立了高电荷态离子与固体(金属)表面相互作用的经典过垒

模型,根据此模型,当低速高电荷态离子接近固体 表面时,它与固体之间的作用势垒会随离子与固体 表面的距离减少而逐渐降低,当势垒等于或低于金 属电子的费米能级时,金属表面的电子会被共振俘 获到入射离子的高激发态. 高激发态的原子通过发 射 Auger 电子、光辐射过程回填到较低能级. 由于 离子在固体表面的镜像作用和已俘获电子对入射 离子的屏蔽作用,随着入射离子接近固体表面,离 子的能级上升,从而有更多的固体表面电子被共振 俘获到入射离子的低能级上. 另一方面, 带有较高 势能的高电荷态离子逼近金属表面,表面电子受到 感应而产生集体响应,形成像电荷,像电荷加速离 子向表面的运动,引起离子的动能增益,同时还改 变离子与金属表面之间的势垒以及入射离子的能 级结构. 当入射离子接近表面达到某一临界距离 Rc 时,固体表面处于导带的电子将会共振转移到入射 离子的较高能态上,此临界距离 R_c(q) 为

$$R_{\rm c} = \frac{e}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{\sqrt{8q+2}}{2W},\tag{2}$$

式中 q 是入射离子的电荷态 (无量纲数), W 是金属 的逸出功, e 是基本电荷电量, ε_0 是真空介电常数. 当 q 很大时, 上式近似为

$$R_{\rm c} \approx \frac{e}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{\sqrt{2q}}{W}.$$
 (3)

入射离子俘获一个电子,释放自身携带的势能为 E_p^[12]

$$E_{\rm p} = \frac{eq}{4\pi\varepsilon_0 R_{\rm c}(q)} - W \approx \frac{2qW}{\sqrt{8q+2}} - W. \tag{4}$$

- [1] Hu B T, Wang L L, Song Y S 2006 Nucl. Techniq. 29 499
- [2] Han L H, Zhang C H, Zhang L Q, Yang Y T, Song Y, Sun Y M 2010 Acta Phys. Sin. 59 4584 (in Chinese) [韩录会,张崇宏,张丽卿,杨义 涛,宋银,孙友梅 2010 物理学报 59 4584]
- [3] Lapicki G, Murty G A V, Naga Raju G J 2004 Phys. Rev. A 70 062718
- [4] Yang Z H, Song Z Y, Chen X M, Zhang X A, Zhang Y P 2006 Acta Phys. Sin. 55 2221 (in Chinese) [杨治虎, 宋张勇, 陈熙盟, 张小安, 张 艳萍 2006 物理学报 55 2221]
- [5] Zhang X A, Yang Z H, Wang D C, Mei C X, Niu C Y, Wang W, Dai B, Xiao G Q 2009 Acta Phys. Sin. 58 6920 (in Chinese) [张小安, 杨治 虎, 王党朝, 梅策香, 牛超英, 王伟, 戴斌, 肖国青 2009 物理学报 58 6920]
- [6] Lorente N, Cazalilla M A, Gauyacq J P, Teillet-Billy D, Echenique P M 1998 Sur. Sci. 411 L888
- [7] Baird W E, Zivitz M, Thomas E W 1975 Phys. Rev. A 12 876

从上式可以看出,入射离子在金属表面的势能沉积 与入射离子的电荷态和金属的逸出功密切相关.高 电荷态离子在上表面临界距离处开始俘获表面原 子的价电子,进入到下表面又开始俘获表面原子的 内壳层电子,这种俘获过程就是对固体表面原子的 激发和电离过程.沉积的势能使靶原子激发和电离, 对于确定的靶子,入射离子的电荷态越高,沉积在 表面的势能越多,溅射的靶原子和离子辐射的谱线 越强.根据经典过垒模型,当入射离子电荷态超过 临界值 qc 时,入射离子一次性俘获多个电子的概率 增加,原因是高电荷态离子在上表面俘获电子的同 时激发了表面等离激元.高电荷态离子一次性俘获 多个电子,被俘获的电子可能进入能量较低的状态, 使光辐射退激的概率增加.

高电荷态离子与金属表面相互作用,通过携带 不同势能的 Kr^{q+} 与 Al 原子碰撞交换能量,经过共 振俘获电子释放库仑势能于靶表面,使靶表面的原 子被激发和电离.高电荷态离子与金属表面相互作 用,不仅有效地激发靶原子和离子发射可见光,入 射离子会中性化发射可见光.随着入射离子势能的 增加,溅射靶原子和离子谱线,以及入射离子中性 化后发射的谱线强度增加,势能增加可以使靶原子 的外层电子更容易被激发到高能级.随电荷态的增 加,入射离子中性化后发射的谱线的相对强度增强, 其原因还有待于进一步的实验研究.

感谢中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态离 子综合研究平台的运行人员提供优质的束流.

- [8] Стриганов А Р, Свентицкии H C 1966 Neutral and Ionized Atoms. Table of Spectral Lines (Moscow: the Atom Press)
- [9] Reinke S, Hippler R 1992 Nucl. Instr. Meth. B 67 620
- [10] Qayyum A, Akhtar M N, Riffat T 2005 Radiat. Phys. Chem. 72 66
- [11] Institute of Metallurgical Information 1971 Wavelength Table of Spectrum Line (Beijing: China Industry Press) (in Chinese) [冶金工业部 科技情报产品标准研究所编译 1971 光谱线波长表 (北京: 中国工 业出版社)]
- [12] Hattass M, Schenkel T, Barnes A V 1999 Phys. Rev. Lett. 82 4795
- [13] Hagstrum H D 1954 Phys. Rev. 2 336
- [14] Yang J F 1985 The Atom Physics (Beijing: Higher Education Press) p215 (in Chinese) [杨家福 1985 原子物理学 (北京: 高等教育出版 社) 第 215 页]
- [15] Sigmund P 1969 Phys. Rev. 184 383
- [16] Burgdörfer J, Lerner P, Meyer F W 1991 Phys. Rev. A 44 5674

Visible light emission produced by interaction of highly ionized Kr^{q+} ions with a Al surface^{*}

Yang Zhao-Rui¹⁾ Zhang Xiao-An^{1)2)†} Xu Qiu-Mei²⁾ Yang Zhi-Hu²⁾

1) (Ion Beam and Optical Physical Joint Laboratory of Xianyang Normal University and Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences,

Xianyang 712000, China)

2) (Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China)
(Received 27 June 2012; revised manuscript received 18 September 2012)

Abstract

The spectrum range from 300 to 600 nm is measured with low energy ($V \approx 0.01 V_{Bohr}$) highly charged Kr^{*q*+} ions (q = 8, 10, 13, 15, 17) impacted on Al surface. The results show that the spectral lines are induced by the impact of low-energy ions on Al surface, and that these lines belong to the sputtered atoms, ions, and the incident ions which are neutralized. The intensity of emission line increases with the projectile potential. The electron of Al can be efficiently excited to the 4s state by the higher potential energy compared with the excited state of 3d.

Keywords: highly charged ion, visible light emission, ion-surface interaction

PACS: 34.80.Dp, 32.30.Jc, 79.20.Rf, 79.60.Bm

DOI: 10.7498/aps.62.043401

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11075135, 11174296), the Natural Science Foundation of Shaanxi Province, China (Grant No. 2012JM1009), and the Education Commission Foundation of Shaanxi Province, China (Grant No. 12JK0984).

[†] Corresponding author. E-mail: zhangxiaoan2000@yahoo.com.cn