低速⁸⁴ $Kr^{15+,17+}$ 离子轰击GaAs单晶*

杨变¹⁾²⁾ 杨治虎^{1)†} 徐秋梅¹⁾ 郭义盼¹⁾²⁾ 武晔虹¹⁾²⁾ 宋张勇¹⁾ 蔡晓红¹⁾

(中国科学院近代物理研究所,兰州 730000)
 2)(中国科学院大学,北京 100049)

(2013年9月18日收到;2013年11月20日收到修改稿)

用 345 keV的 Kr¹⁵⁺和 340 keV的 Kr¹⁷⁺离子以 45°角入射 n型 GaAs 单晶 (100)面,测量了表面形貌的 变化和发射的 375—500 nm Ga I和 Kr II 的特征光谱线. Kr^{q+} (q = 15, 17)离子轰击后表面形貌的变化主 要取决于入射离子的电荷态 q.离子沉积到靶表面的能量引起 Ga 原子激发,其辐射光谱为 Ga I 403.2 nm 和 Ga I 417.0 nm.入射离子中性化过程中俘获 GaAs 导带电子形成高激发态原子,通过级联退激填充 3p, 4d 等 空穴, P 壳层电子跃迁发射谱线为 Kr II 410.0 nm, Kr II 430.4 nm, Kr II 434.0 nm 和 Kr II 486.0 nm, Kr II 486.0 nm 为较强谱线.实验结果表明,入射离子与 GaAs 单晶相互作用发射的可见光产额与入射离子的电荷 态密切相关,较高电荷态 Kr¹⁷⁺离子入射产生的光辐射产额大约为 Kr¹⁵⁺离子的两倍.

关键词:表面形貌,光谱,高激发态 PACS: 32.30.Jc, 34.80.Dp, 61.80.Jh

DOI: 10.7498/aps.63.053201

1引言

GaAs单晶是直接带隙半导体材料, 禁带宽度 大(室温下为1.43 eV), 有较高的发光效率, 其带隙 位于红外光范围, 广泛应用于发光二极管、红外光 源、半导体激光器等领域^[1,2].载能离子束引起的 注入、溅射等效应, 推进了GaAs辐照损伤和GaAs 微波场效应管等器件的研究^[2-7].

高电荷态离子逼近金属或半导体表面过程中, 表面极化产生镜像电荷,使入射离子获得能量增 益^[8,9].当入射离子与表面间的势垒低于费米面时, 金属或半导体表面的导带电子会大量共振转移到 入射离子的高激发态,形成高激发态的里德堡原 子,它可通过俄歇跃迁、X射线发射或可见光辐射 等方式退激^[9-13].入射离子进入靶表面后,在约 10⁻¹³ s时间尺度俘获大量电子而被屏蔽,将势能 沉积在表面1 nm²、几个原子层的空间尺度,引起 电子、离子及原子的溅射^[2,9,12],以及X射线的发射 [14,15]. 当入射离子电荷态较低时, 表面附近被俘获 电子的光辐射跃迁速率比自电离和俄歇跃迁的速 率小约6个数量级^[16],因此光辐射退激过程可以忽 略. 文献 [17-20] 从实验上研究了单电荷态离子与 金属表面相互作用的可见光发射. 低速单电荷态离 子入射金属表面主要是俄歇中性化过程^[21].高电 荷态离子与表面相互作用的可见光谱主要有两种, 分别为靶原子、靶离子的光辐射和入射离子中性化 过程中的跃迁光谱^[22,23].目前,高电荷态离子与固 体相互作用的研究多集中于高里德堡态原子的电 子和X射线发射的研究,对于入射离子中性化过程 中的可见光辐射实验研究很少. 入射离子与固体 相互作用过程中形成的高里德堡原子的高激发态 上电子通过光辐射退激的速率随核电荷数的4次方 激增,而自电离和俄歇跃迁与核电荷数的关系不大 [24]. 高电荷态离子轰击金属或半导体材料的光辐 射研究,有助于深入理解离子入射表面的能量转移 机理,特别是相互作用过程中形成的高里德堡原子

* 国家自然科学基金(批准号: 11174296)和国家重点基础研究发展 973 计划(批准号: 2010CB832901)资助的课题.

© 2014 中国物理学会 Chinese Physical Society

[†]通讯作者. E-mail: z.yang@impcas.ac.cn

外壳层空穴引起的多电子组态间的跃迁.目前,高 电荷态离子入射半导体材料的可见光发射实验数 据相对缺乏.

基于以上考虑,我们从实验上研究了Kr^{q+} (q = 15, 17)离子轰击GaAs单晶(100)面的表面形 貌的变化和可见光发射.

2 实验装置与测量方法

实验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平台进行. Kr^{q+} (q = 15, 17) 离子由电子回旋共振离子源 (ECRIS) 提供, 经平台 上 90°分析磁铁、90°二极偏转磁铁、四极磁透镜组、 光栏组等, 进入超高真空 (~ 2 × 10⁻⁸ mbar (1 bar = 10⁵ Pa)) 靶室.

如图 1 所示 ^[21,23], 炮弹离子以 θ = 45°方向入 射到纯度为99.99%的 GaAs 单晶 (100) 面上. 样品 表面积为 20.5 mm × 18.5 mm, 厚度为 0.5 mm. 束 斑直径控制在 5 mm 内, 束流强度约为 250 nA.



图 1 Kr^{q+} (q = 15, 17) 离子入射 GaAs 单晶 (100) 面的 实验示意图

Kr^{q+} (q = 15, 17)离子与GaAs(100)面相互 作用发出的可见光先用距其35 mm的透镜聚焦, 后由入射、出射狭缝均为500 µm的LRS-2/3型光 谱仪收集分析,最后被光电倍增管和单光子计数 器组成的数据获取系统接收.单色仪的光栅常数 为1200 g/mm,闪耀波长为500 nm,有效扫描范围 为200—800 nm,色散为2.7 nm/mm.当狭缝为10 µm时,其分辨率为0.5 nm.光谱仪入射狭缝与出 射光子束方向垂直,与靶表面夹角为 $\beta = 45^{\circ}$.光 谱仪的步进电机由一台计算机控制,以0.2 nm的 扫描步长和1 s的积分时间来累积光谱.实验波长 扫描范围为375—500 nm,每段光谱的测量时间为 625 s.实验测量之前,用钠灯的589.0 nm和589.6 nm谱线校准光谱仪,重复测量了二十次,谱线强度 误差小于10%. 实验中束流强度保持在约240—260 nA之间. 为了尽量降低光谱测量时的本底,实验在暗室中 进行.

利用原子力显微镜 (AFM) 观测了 Kr^{q+} (q = 15, 17) 离子束轰击 GaAs 单晶 (100) 面后表面形貌 的变化. AFM 的型号为 MFP-3D-SA, 分辨率为 10 nm, 测量样品尺寸为 80 μ m × 80 μ m.

3 实验结果与讨论

3.1 Kr^{q+} (q = 15, 17)离子轰击GaAs 单晶 (100) 面的表面形貌变化

图 2 所示为 Kr^{q+} (q = 15, 17) 离子束以 45° 角入射 n型 GaAs 单晶 (100) 面后的表面形貌.由 于有限的制备和清洁工艺,未辐照 GaAs 单晶 (100) 面的均方根粗糙度 RMS^[25] 约为 0.76 nm,凹陷与凸 起高度 h 在 -2.92— 3.24 nm之间,如图 2 (a) 所示. Kr¹⁵⁺ 离子束入射 GaAs(100) 面后的表面形貌如 图 2 (b) 所示,样品表面的 RMS 增加至约 3.80 nm,



图 2 Kr^{q+} (q = 15, 17) 离子轰击后的 GaAs 表面相貌 (a) 未辐照; (b) 剂量为 8.28×10^{13} cm⁻², 能量为 345 keV 的 Kr¹⁵⁺ 斜入射; (c) 剂量为 7.31×10^{13} cm⁻², 能 量为 340 keV 的 Kr¹⁷⁺ 斜入射

表面纳米结构幅度增大, h的范围增大, e-14.95—9.27 nm之间. 当 Kr^{17+} 辐照时, 随着 电荷态的增加, 表面粗糙度RMS增加至约 4.87 nm, 表面凸起密度及高度均明显增加, h约 在 -14.97—25.64 nm之间, 凸起的最大横向宽度 约为3000 nm, 如图 2 (c) 所示.

载能 Kr¹⁵⁺ 离子束接近 GaAs 单晶 (100) 面时, 其强库仑场作用使其俘获负电荷, GaAs 晶格结 构因而发生变化,样品表面Ga-As化学键断裂、 As被析出,在样品表面形成Ga的填隙和As的空 位^[2,25-28]. Kr¹⁷⁺入射时,随着入射离子束势能 的增加(Kr¹⁵⁺和Kr¹⁷⁺离子的势能分别为2974 eV 和4105 eV),离子在逼近GaAs表面时,在极短时间 (fs 量级)内受瞬时强库仑场作用会俘获更多电子而 中性化,使晶体表面很小体积内正电荷积累并相互 排斥,引起粒子大量溅射^[25,27,28].由于级联碰撞与 点缺陷的运动^[2],晶体表面可能出现更多Ga和As 的集团.因此样品表面的凸起高度无规则,凸起密 度增加. 通过程序TRIM的计算,离子动能在340 keV时,总能损约为1.988 keV/nm. 由于两种炮弹 离子的入射角相同、入射动能相差很小、入射剂量 的数量级相同,所以表面形貌的变化主要来自于电 荷态的差异.

3.2 Kr^{q+} (q = 15, 17)离子轰击GaAs 单晶 (100) 面的可见光光谱

图 3 (a) 和 (b) 所示为Kr¹⁵⁺和Kr¹⁷⁺离子斜入 射GaAs单晶(100) 面发射的可见光光谱. 跃迁谱 线有两种, 分别为Ga原子和Kr⁺离子的跃迁光谱. 本底主要是光电倍增管的暗计数. 波长与跃迁 类型的标定均参照美国国家标准局数据库(NIST database)^[29], 波长偏差在0.1—0.4 nm之间. 靶原 子 Ga 的受激辐射跃迁如图 4 所示, 入射离子中性 化的光辐射跃迁如图 5 所示.



图 3 Kr^{q+} (q = 15, 17) 离子轰击 GaAs 单晶 (100) 面 的可见光光谱 (实验观测的波长范围为 375—500 nm,两 条 Ga 原子激发跃迁谱线为 Ga I 403.2 nm 和 Ga I 417.0 nm,四条 Kr⁺ 离子的光辐射谱线分别为 Kr II 410.0 nm, Kr II 430.4 nm, Kr II 434.0 nm 和 Kr II 486.0 nm, Ga I 417.0 nm 和 Kr II 486.0 nm 谱线较强, 谱线的半高全宽 $\Delta l_{\rm FWHM} \sim 2.0$ nm) (a) 345 keV 的 Kr¹⁵⁺ 入射; (b) 340 keV 的 Kr¹⁷⁺ 入射







图 5 Kr^{q+} (q = 15, 17) 离子轰击 GaAs 单晶 (100) 面, Kr⁺ 离子的辐射跃迁示意图

340 keV的Kr¹⁵⁺离子入射GaAs单晶(100)面 过程中,离子与表面的距离达到临界距离^[10,12] $R_{\rm c} \approx 31.9 \text{ a.u.}$ 时开始俘获导带电子, 然后逐次俘 获GaAs导带多个电子,并释放其所携带的大部分 (~ 90%)势能到靶表面^[30],使表面Ga原子处于激 发态, 退激辐射Ga I 403.2 nm 和Ga I 417.0 nm 两条跃迁谱线, 光强比 I(403.2 nm)/I(417.0 nm) 约为1:1.88,如图3(a)所示.从对应跃迁的电子 组态和谱项(图4)可以看出, Ga I原子的两条谱 线的上能级是同一组态4s²5s,下能级是同一组态 3d¹⁰4s²4p 的不同谱项. 当Kr¹⁷⁺离子入射时, 随 着炮弹离子电荷态的升高,沉积到表面原子的能量 增加,而激发靶原子电子的能态相同,光辐射产额 增加至Kr¹⁵⁺入射时光产额的1.8倍,如图3(b)所 示. 由于实验测量范围的限制, 没有观测到As原子 的跃迁光谱线 As I 506.898 nm. 实验为低能入射, 且实验中溅射离子的产额远远低于溅射原子的产 额^[2,31],未观测到任何电离靶原子Ga II和Ga III 的退激谱线.

根据经典过垒模型(COBM)^[9-14],在相互作 用过程中, Kr¹⁵⁺离子第一次俘获电子的临界距 离^[10,12] $R_c \approx 31.9$ a.u., 俘获的电子进入离子 与导带匹配的能级^[10,12] $n_c \approx 17$,镜像电荷的 动能增益^[8,10,12] 为 $\Delta E_{im} \approx 64.50$ eV, 离子的速 度 $v \approx 0.40$ a.u., 离子在上表面经历的时间约为 19.29×10⁻¹⁶ s, 离子俘获靶表面导带电子形成 多激发态的高里德堡原子,通过级联退激辐射 光子^[32], 电子填充外壳层空穴辐射可见光. 可 见光的发射与类氢类氦离子与固体相互作用过 程中形成的空心原子中电子填充内壳层空穴退 激辐射X射线不同^[11,23]. Kr¹⁵⁺离子基态电子组 态为1s²2s²2p⁶3s²3p⁶3d³, 3d, 4p 壳层有空穴. 相 互作用过程中形成的高激发态原子级联退激使 P壳层中电子跃迁,发射可见光. 实验观测到 入射离子中性化过程中的四条跃迁谱线,分别 属于Kr II 410.0 nm (4d ${}^{4}F_{7/2}$ —5p ${}^{2}D_{5/2}^{o}$), Kr II 430.4 nm (5s ${}^{2}P_{3/2}$ —5p ${}^{4}S_{3/2}^{o}$), Kr II 434.0 nm (5p ${}^{4}D_{3/2}^{o}$ —4d ${}^{2}D_{3/2}$) 和 Kr II 486.0 nm (4d ${}^{4}D_{1/2}$ —5p $^{2}S_{1/2}^{o}$), 它们的强度比 I(410.0 nm) : I(430.4 nm) :I(434.0 nm) : I(486.0 nm) 约为1 : 1.35 : 2.86 :7.15. 当 Kr¹⁷⁺ 离子入射时, 开始俘获电子进入的 能级约为19,经级联退激发射光谱的能量位置没 有改变; 与较低电荷态 Kr¹⁵⁺ 入射时的光强度相 比, 谱线 Kr II 430.4 nm 的强度增至约1.6倍, Kr II 410.0 nm, Kr II 434.0 nm 和 Kr II 486.0 nm 的 强度增加至2倍多.实验测量的光谱线的半高全 宽 $\Delta l_{\rm FWHM} \sim 2.0$ nm.由于有限的光谱分辨率, 很难区分重叠的光谱线.Kr^{q+}离子完全中性化产 生的 Kr 原子的跃迁谱线在 Kr I 427.397 nm 和 Kr I 431.958 nm 处较强.所以图3中谱线 Kr II 430.4 nm 和 Kr II 486.0 nm 可能包含谱线 Kr I 427.397 nm 和 Kr I 431.958 nm.为了鉴别这些跃迁谱线, 光谱仪的分辨率需要在0.5 nm 内.高电荷态离子 与固体表面相互作用的可见光发射的详细机理有 待进一步深入研究.

4 结 论

室温下,实验测量了Kr^{15+,17+}离子轰击半导 体材料GaAs单晶(100)面的表面形貌变化和可见 光光谱. Kr^{q+} (q = 15, 17) 离子辐射 GaAs 单晶表 面后,表面膨胀凸起,凸起峰结构宽度、高度不规 则,表面形貌的变化主要由电荷态q决定.入射离 子Kr¹⁵⁺沉积到靶表面的能量激发Ga原子, 退激 发射光谱为Ga I 403.2 nm 和Ga I 417.0 nm. 入射 离子中性化过程中形成的高激发态原子级联退激 填充3p,4d等空穴,P壳层电子跃迁退激辐射四条 Kr+离子跃迁谱线. 当较高电荷态 Kr¹⁷⁺离子入射 时, 激发Ga原子电子跃迁的能级相同, 入射离子中 性化过程中形成的高激发态原子级联退激辐射光 子的能量位置未改变,光辐射产额大大增加.入射 离子与GaAs晶体相互作用发射的可见光强度与入 射离子的电荷态密切相关. 本工作有助于理解高电 荷态离子与固体表面相互作用过程中外壳层空穴 退激和能量转移过程.

感谢中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态离 子综合研究平台工作人员提供实验束流.感谢于得洋博士、 张红强博士、张丽卿的有益讨论.

参考文献

- Memon A, Fakhro S Q 1987 Int. J. IR Millim Waves 8 1391
- [2] Wang G H 1988 Physics of particle interaction with solids (Beijing: Scientific Press) (in Chinese) [王广厚 1988 粒子同固体相互作用物理学(北京:科学出版社)]
- [3] Look D C 1987 J. Electrochem Soc. 134 2527
- [4] Williams J S 1998 Mater. Sci. Eng. 253 8

- [5] Pearton S J, Poate J M, Sette F, Gibson J M, Jacobson D C, Williams J S 1987 Nucl. Instrum. Meth. B 19 369
- [6] Pearton S J 1991 Solid State Phenomena $\mathbf{1}{-2}$ 247
- [7] Sharma B L 1989 Def. Sci. J. **39** 353
- [8] Winter H, Auth C, Schuch R, Beebe E 1993 *Phys. Rev.* Lett. **71** 1939
- Burgdorfer J, Morgenstern R, Niehaus A 1986 J. Phys. B: At. Mol. Phys. 19 L507
- [10] Burgdorfer J, Lerner P, Meyer F W 1991 *Phys. Rev. A* 44 5674
- [11] Schenkel T, Hamza A V, Barnes A V, Schneider D H 1999 Progress in Surface Science 61 23
- [12] Burgdorfer J, Reinhold C, Hagg L, Meyer F 1996 Aust. J. Phys. 49 527
- Briand J P, Giardino G, Borsoni G, Le Roux V, Bechu N, Dreuil S, Tuske O, Machicoane G 2000 Review of Scientific Instruments 71 627
- [14] Grether M, Niemann D, Spieler A, Stolterfoht N 1997 Phys. Rev. A 56 3794
- [15] Thomaschewski J, Bleck-Neuhaus J, Grether M, Spieler A, Stolterfoht N 1998 Phys. Rev. A 57 3665
- [16] Zhang X A, Xiao G Q, Wang W S, Mao R S 2002 Nucl. Phys. Rev. 19 342 (in Chinese) [张小安, 肖国青, 王武生, 毛瑞士 2002 原子核物理评论 19 342]
- [17] Lee C S, Chang Y C, Ji T Y 1997 Nucl. Instrum. Meth. B 132 391
- [18] Qayyum A, Akhtar M N, Riffat T 2005 Radiat Phys. Chem. 72 663
- [19] Rajasekar P, Scott D, Materer N F 2006 Nucl. Instrum. Meth. B 245 411
- [20] Cazalilla M A, Lorente N, Diez Muino R, Gauyacq J P, Teillet-Billy D, Echenique P M 1998 *Phys. Rev. B* 58 13991
- [21] Yang Z H, Xu Q M, Guo Y P, Wu Y H, Song Z Y 2013 Chin. Phys. Lett. 30 013201

- [22] Yang Z R, Zhang X A, Xu Q M, Yang Z H 2013 Acta Phys. Sin. 62 043401 (in Chinese)[杨兆锐, 张小安, 徐秋 梅, 杨治虎 2013 物理学报 62 043401]
- [23] Yang Z H, Song Z Y, Cui Y, Zhang H Q, Ruan F F, Shao J X, Du J, Liu Y W, Zhou K X, Zhang X A, Shao C J, Lu R C, Yu D Y, Chen X M, Cai X H 2008 Acta Phys. Sin. 57 803 (in Chinese)[杨治虎, 宋张勇, 崔莹, 张 红强, 阮芳芳, 邵健雄, 杜鹃, 刘玉文, 朱可欣, 张小安, 邵 曹杰, 卢荣春, 于得洋, 陈熙萌, 蔡晓红 2008 物理学报 57 803]
- [24] Bethe H A, Salpeter E E 1977 Quantum Mechanics of One- and Two-electron Atoms (New York Plenum Publishing Corporation)
- [25] Zhang L Q, Zhang C H, Yang Y T, Yao C F, Sun Y M, Li B S, Zhao Z M, Song S J 2009 Acta Phys. Sin. 58 5578 (in Chinese)[张丽卿, 张崇宏, 杨义涛, 姚存峰, 孙友 梅, 李炳生, 赵志明, 宋书建 2009 物理学报 58 5578]
- [26] Kucheyev S O, Williams J S, Jagadish C, Li G, Pearton S J 2000 Appl. Phys. Lett. 76 3899
- [27] Yang Y T, Zhang C H, Sun Y M, Yao C F, Zhao Z M
 2007 Nucl. Technol. 30 318 (in Chinese) [杨义涛, 张崇
 宏, 孙友梅, 姚存峰, 赵志明 2007 核技术 30 318]
- [28] Zhang L Q, Zhang C H, Yang Y T, Yao C F, Li B S, Sun Y M, Song S J 2009 Chin. Phys. Lett. 26 036101
- [29] Kramida A, Ralchenko Y, Reader J, NIST ASD Team 2012 NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.0) [Online] (Available: http: //physics.nist.gov/asd; Gaithersburg: National Institute of Standards and Technology)
- [30] Machicoane G A, Schenkel T, Niedermayr T R, Newmann M W, Hamza A V, Barnes A V, McDonald J M, Tanis J A, Schneider D H 2002 *Phys. Rev. A* 65 042903
- [31] Sigmund P 1969 Phys. Rev. 184 383
- [32] Lee C S, Chang Y C, Chang Y H 1999 Nucl. Instrum. Meth. B 149 294

Slow ions ⁸⁴Kr^{15+,17+} bombardment on GaAs*

Yang Bian¹⁾²⁾ Yang Zhi-Hu^{1)†} Xu Qiu-Mei¹⁾ Guo Yi-Pan¹⁾²⁾ Wu Ye-Hong¹⁾²⁾ Song Zhang-Yong¹⁾ Cai Xiao-Hong¹⁾

1) (Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China)

2) (University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(Received 18 September 2013; revised manuscript received 20 November 2013)

Abstract

We have investigated surface morphology and visible light emission from slow ions $Kr^{15+,17+}$ colliding with GaAs (100). The surface disorder of GaAs films mainly depends on the charge state of incident ions. The two spectral lines of target atom Ga belong to transitions of Ga I 4p $^{2}P_{1/2}^{o}$ —5s $^{2}S_{1/2}$ at 403.2 nm and 4p $^{2}P_{3/2}^{o}$ —5s $^{2}S_{1/2}$ at 417.0 nm. Light emissions of target species depend on the energy of the incident ions deposited on the target surface atoms. During the neutralization process, the four spectral lines of Kr⁺ respectively can be attributed to the transitions of Kr II 4d $^{4}F_{7/2}$ —5p $^{2}D_{5/2}^{o}$ at 410.0 nm, 5s $^{2}P_{3/2}$ —5p $^{4}S_{3/2}^{o}$ at 430.4 nm, 5p $^{4}D_{3/2}^{o}$ —4d $^{2}D_{3/2}$ at 434.0 nm and Kr II 4d $^{4}D_{1/2}$ —5p $^{2}S_{1/2}^{o}$ at 486.0 nm. They are induced by cascade de-excitation after many electrons of the conductions band of the solid surface captured in highly excited states of the incident ion. Intensities of these six spectral lines from incident ions Kr¹⁷⁺ are obviously larger than Kr¹⁵⁺'s.

Keywords: surface morphology, spectrum, highly excited states

PACS: 32.30.Jc, 34.80.Dp, 61.80.Jh

DOI: 10.7498/aps.63.053201

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11174296), and the National Basic Research Program of China (Grant No. 2010CB832901).

[†] Corresponding author. E-mail: z.yang@impcas.ac.cn