

高电荷态离子 $^{126}\text{Xe}^{q+}$ 与 Ti 固体表面作用的激发光谱^{*}

赵永涛^{1,2)} 张小安^{1,2)} 李福利¹⁾ 肖国青²⁾ 詹文龙²⁾ 杨治虎²⁾

¹⁾ 西安交通大学应用物理系, 西安 710049)

²⁾ 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

(2003 年 2 月 10 日收到, 2003 年 3 月 18 日收到修改稿)

报道用 150 keV 的高电荷态离子 $^{126}\text{Xe}^{q+}$ ($6 \leq q \leq 30$) 轰击 Ti 固体表面产生 200—1000 nm 波段发射光谱的实验结果. 结果显示, 用电荷态足够高的离子作光谱激发源, 无需很强的束流强度 (nA 量级), 便可激发起样品表面的原子和离子在可见光波段的特征谱线. 当入射离子剥离度 $q > q_c \approx 20$ 时, Ti 原子及其离子的特征谱线强度突然显著增强; 不同金属靶, 特征谱线突然增强的 q_c 值不同. 理论分析表明, 这与 q 大于此临界值后, 单电子转移释放能量激发靶材料传导电子气体的表面等离激元密切相关.

关键词: 低速高电荷态离子, 特征谱线, 经典过垒模型, 等离激元

PACC: 3400, 3450D

1. 引言

近期研究表明, 在低速 ($\approx \text{keV/u}$) 高电荷态离子与固体金属表面相互作用过程中, 大量的导带电子会转移到入射离子的外壳层空位上形成“空心原子”, 并在飞秒时间尺度和纳米空间尺度范围内在固体表层沉积几十至几百千电子伏能量, 能流功率密度可达 10^{14} W/cm^2 , 致使表面形成纳米量级的蚀坑. 另外, 与单电荷态离子相比, 低速高电荷态离子引起的二次电子发射产额增加了一个数量级, 二次离子的溅射产额增加了近三个数量级^[1-4]. 这些特点可能为半导体芯片材料、太空耐高温材料的分析提供新的手段. 因此, 高电荷态离子与固体表面相互作用的研究受到许多著名实验室的高度重视^[5-7].

在高电荷态离子逼近固体表面过程中, 当入射离子与固体表面间的势垒高度低于费米面时, 导带中的电子共振转移到入射离子的外壳层空态形成空心原子, 它可通过自电离、Auger 过程、光辐射等方式退激. 在入射离子的电荷态不太高时, 光辐射的跃迁速率比自电离和 Auger 过程的速率小约 6 个数量级^[8], 所以通常光辐射退激过程不予考虑. 因此, 目前大多数实验和理论研究都集中在电子俘获过

程^[9]、电子发射产额、粒子溅射产额、Auger 过程和 x 射线发射等方面, 对可见光波段光谱的测量分析研究非常少^[10]. 当入射离子的电荷态不太高时, 因镜向加速, 其能量增加很好地服从逐次俘获电子的经典过垒 (staircase classical over-barrier (SCOB)) 模型, 而当电荷态超过一临界值, 能量的增加明显低于 SCOB 的估计值, 但趋于一次性完全俘获电子而中性化的经典过垒模型的估计值^[11, 12]. 这说明, 随电荷态增高, 入射离子一次性俘获多个电子的概率增加, 被俘获的电子可进入能量较低的状态, 使光辐射退激的概率增加. 事实上, 光辐射的速率随入射离子核电荷数的 4 次方增加而 Auger 过程却不强烈依赖入射离子核电荷数^[13]. 另一方面, 在高电荷态离子轰击固体表面过程中, 入射离子通过俘获电子释放所带势能, 当入射离子电荷态足够高时, 单电子俘获所释放的能量便足以激发起固体靶传导电子的集体纵振荡——等离激元, 等离激元可通过激发和发射低能束缚电子使靶原子受激而形成 100 nm 以上的靶原子的特征谱线. 同时, 随电荷态的增加, 受入射离子产生的强库仑电场 (场强约为 10^{16} V/cm) 和势能表层沉积作用, 靶原子会被大量离化和溅射, 在此过程中, 其内壳层电子被激发可形成靶原子、离子的特征谱, 其波段同时涵盖了 x 射线、紫外线和可见光. 总之,

* 国家自然科学基金 (批准号: 19804012 和 10274058) 和国家自然科学基金重点项目 (批准号: 10134010) 资助的课题.

随入射离子电荷态增高 ,光辐射退激可能成为入射离子释放所带势能的一个重要过程 ,通过对入射离子溅射产物在其去激发和中性化过程中发射的特征光谱进行测量和分析 ,将有助于了解入射离子所带势能转化为自身及其靶原子(离子)辐射能的机理 .

本文报道在中国科学院近代物理研究所兰州重离子加速器国家重点实验室电子回旋共振离子源原子物理实验平台上 ,用高电荷态¹²⁶Xe^{q+} (6 ≤ q ≤ 30) 离子作用于 Ti 固体表面所产生的 200—1000nm 波段光谱的实验测量结果 ,并利用等离激元理论和经典过垒模型(classical over-barrier model , COM)理论对实验结果进行了分析 .

2. 实验装置与测量方法

实验装置如图 1 所示 .高电荷态离子¹²⁶Xe^{q+} 由 18GHz 电子回旋共振离子源(ECRIS)提供 ,束流在不同的引出电压下引出 ,经过聚束器 ,利用 90°偏转分析磁铁将确定的电荷态离子引入原子物理实验平台 (对于¹²⁶Xe^{q+} ,q 可调范围为 6 ≤ q ≤ 30) 然后经过四极透镜和光栏的聚焦准直 ,离子进入内部具有电磁屏蔽功能的超高真空(约为 10⁻¹⁴ kPa)靶室 ,与样品表面相互作用 .

在本实验中 ,作用束流的束斑直径可控制在 10mm 范围 ,束流强度为 nA 量级 ,离子以 45°方向斜入射于经过表面净化处理的纯度为 99.99% 的 Ti 固体样品表面 ,其表面积为 19mm × 24mm ,厚度为 2mm .本文提到的 Al 样品 ,其纯度和表面大小与 Ti 样品相同 ,厚度为 50μm .

入射离子与固体表面相互作用所产生的激发光谱利用美国 ARC(Acton Research corporation)公司生产的单色仪 Spectrapro-500i 进行分析 .其光栅常数为 1200g/mm ,闪耀波长为 435.8nm ,此波长下狭缝为 10μm 时 ,分辨为 0.05nm ,有效扫描范围为 185—1200nm ,色散为 1.7nm/mm .单色仪入射狭缝与入射束流方向垂直 ,与靶表面成 45°角 .在本实验中 ,入射狭缝的宽度设定为 500μm ,曝光时间选为 10s(这是由探测光的强度决定的) .

3. 实验结果与讨论

图 2—图 5 是用入射能量为 150keV 的¹²⁶Xe³⁰⁺ 离子轰击 Ti 表面所测得的溅射粒子的发射光谱 .单

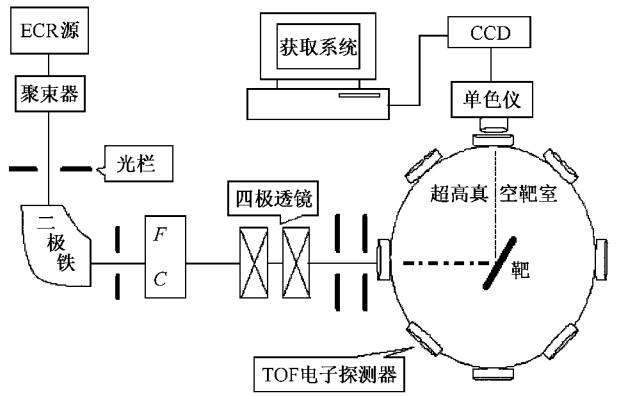


图 1 兰州重离子国家实验室(ECR 源)原子物理平台

色仪经过钠光灯和标准汞灯定标 ;各峰位的波长由软件 Winspec32 自动标示 .表 1 列出图 2—图 5 所示谱线与取自文献 [14] 的对应原子(离子)的特征谱线 .可以看到 ,在 0.05nm 误差范围内 ,图 2—图 5 所示谱线依次正是 TiI(Ti) ,XeII(Xe¹⁺) ,TiII(Ti¹⁺) 和 TiIII(Ti²⁺) 原子(离子)的特征谱线 .各特征谱线所对应的跃迁能态也列于表 1 .在图 2 所示谱图中 ,波长为 500.21nm 的谱线来自于 Fe 原子 $z^3F^o—e^3D(J = 4—3)$ 的跃迁 ,分析是由于样品架和靶室中的 Fe 原子被 Ti 表面散射粒子激发而形成的 .从以上谱图可以看出 ,对于高电荷态重离子 ,由于剥离度 q 和核电荷数 Z 都非常高 ,光辐射过程成为入射离子势能转化和释放的一个重要和可能的途径 .

表 1 图 2—图 5 所示谱线与文献 [14] 结果对比及其对应的跃迁

| 测量值/nm | 文献 [9] 结果/nm | 对应跃迁能级 | 跃迁角动量 |
|---------|----------------|------------------------|---------|
| 498.228 | 498.173 | TiI _ $a^5F—y^5G^o$ | 5—6 |
| 498.890 | 498.914 | TiI _ $z^5G^o—e^5F$ | 3—2 |
| 499.072 | 499.107 | TiI _ $a^5F—y^5G^o$ | 4—5 |
| 499.990 | 499.950 | TiI _ $a^5F—y^5G^o$ | 3—4 |
| 500.682 | 500.721 | TiI _ $a^5F—y^5G^o$ | 2—3 |
| 661.411 | 661.496 | XeII _ $6s^{-2}S—7^o$ | 1/2—3/2 |
| 661.943 | 662.002 | XeII _ $5d^2P—6p^4D^o$ | 3/2—1/2 |
| 430.811 | 430.790 | TiII _ $a^4P—z^4D^o$ | 3/2—3/2 |
| 431.207 | 431.286 | TiII _ $a^4P—z^4D^o$ | 5/2—5/2 |
| 431.463 | 431.498 | TiII _ $a^4P—z^4D^o$ | 1/2—1/2 |
| 256.341 | 256.342 | TiIII _ $a^3D—z^3D^o$ | 3—3 |
| 256.523 | 256.542 | TiIII _ $a^3D—z^3D^o$ | 2—2 |
| 256.763 | 256.753 | TiIII _ $a^3D—z^3D^o$ | 1—1 |

图 6 是入射离子初动能相同但电荷态不同的¹²⁶Xe⁶⁺ 离子轰击 Ti 表面 ,在图 5 所示波段的发射光

谱图. 可以看到, 由于剥离度 q 太小, 入射离子没有能够激发起 Ti^{2+} 离子的特征谱线. 这说明入射离子的电荷剥离度 q 较高时, 二次离子的溅射产额有了数量级上的提高; 剥离度 q 在激发、离化和溅射表面原子的过程中起着关键性的作用.

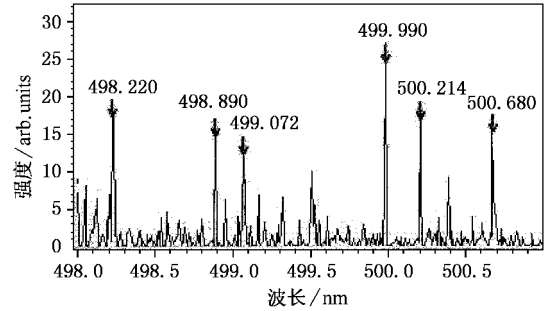


图 2 Ti 原子特征谱图

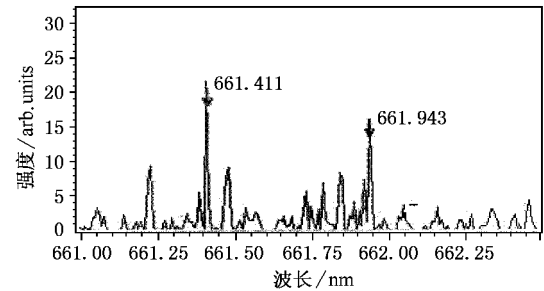


图 3 Xe^{I+} 离子特征谱图

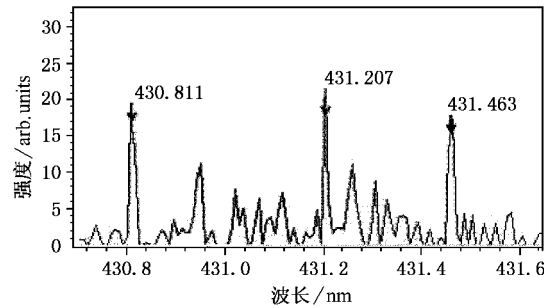


图 4 Ti^{I+} 离子特征谱图

为了进一步研究特征谱线激发强度与入射离子电荷剥离度 q 之间的关系, 本文测量了一组入射速度相同、电荷态 q 不同的 $^{126}Xe^{q+}$ 离子轰击 Ti 和 Al 表面所产生的特征谱线. 图 7—图 9 是各特征谱线的激发强度(测量谱线强度除以入射离子的束流强度)随 q 变化的实验结果. 可以发现, 对于 Ti 的各类离子和不同特征谱线, 有一个相同的 q_c 值, 当入射

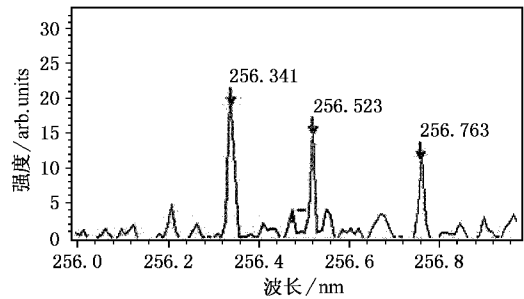


图 5 Ti^{2+} 离子特征谱图

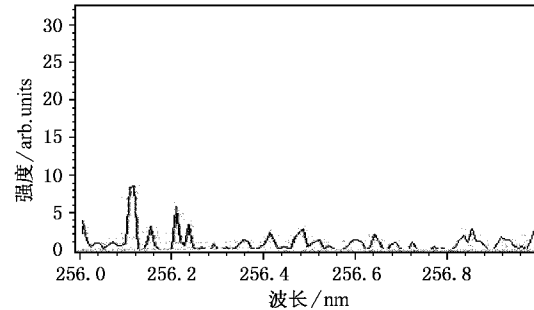


图 6 $^{126}Xe^{6+}$ 作用于 Ti 表面与图 5 同波段谱图

离子剥离度 $q > q_c \approx 20$ 后, 特征谱线的激发强度突然迅速增加. 实验中还注意到靶材料不同, q_c 值不同. 图 9 是 Al 靶表面在 $^{126}Xe^{q+}$ 轰击下特征谱线激发强度随入射离子剥离度 q 的变化情况. 可以看到, 对于 Al, $q_c \approx 26$, 比起 Ti 的 q_c 值要大.

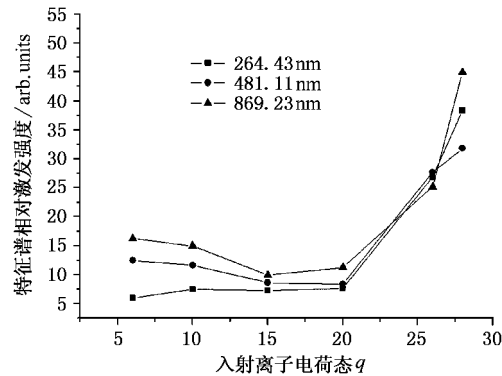


图 7 Ti 原子特征谱激发强度作为 q 的函数

文献 [12] 研究了用不同电荷态 $^{126}Xe^{q+}$ 离子轰击 Al 固体表面时, 因镜向电荷的加速作用入射离子的动能增加量与其电荷剥离度 q 间的关系. 结果表明, 当 q 较小时, 逐次俘获电子的经典过垒模型的理论值与实验测量值相当符合. 然而, 当 q 大于 26

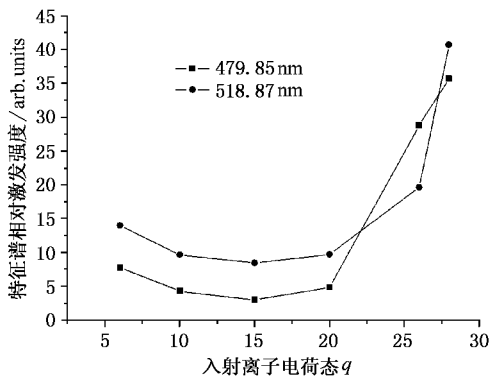


图8 Ti¹⁺离子特征谱激发强度作为q的函数

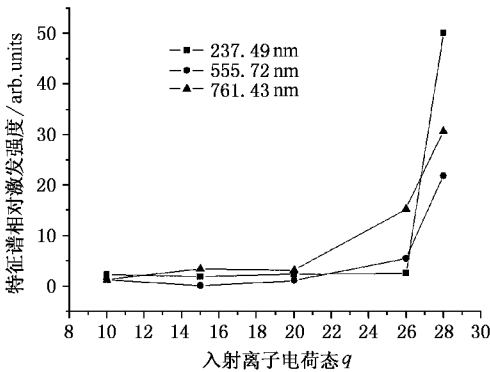


图9 Al原子特征谱激发强度作为q的函数

后,实验测量值明显低于理论估计值,在 $q=26$ 附近,这种变化突然出现.对比图9,可以看到,在入射离子动能的增加突然变缓的同时,辐射的光强却显著增强.入射离子动能的增加突然变缓的原因可能是当 q 超过此临界值后开始了多电子俘获过程,而不再是逐次的单电子俘获.而辐射光强显著增强,可能与电子被俘获后所释放出的势能激发靶表面等离子体相联系.结合经典过垒模型,并利用金属中传导电子气体等离子体理论,可估计这一临界电荷 q_c .

固体金属传导电子气体理论指出,固体表面处于导带的电子在入射电子或光子的作用下会相对其正离子背景以频率

$$\omega_p = \sqrt{\frac{ne^2}{2\epsilon_0 m}} \tag{1}$$

集体纵向振荡^[15],相应的元激发称为等离子激元.式中 n 为传导电子密度, m 为电子的静止质量, e 和 ϵ_0 分别为基本电荷电量和真空介电常数.表面等离子激元的能量为

$$E_p = \hbar\omega_p = \hbar\sqrt{\frac{ne^2}{2\epsilon_0 m}}. \tag{2}$$

按照经典过垒模型^[11,12],在高电荷态离子接近金属固体表面的过程中,入射离子距靶表面的距离 r 达到临界距离

$$r_c = \frac{e}{4\pi\epsilon_0} \frac{\sqrt{8q+2}}{2W} \tag{3}$$

时,开始俘获固体表面处于导带的电子,并释放出一定的势能.此时,发生单电子俘获释放的势能为

$$E_s = \frac{4}{4\pi\epsilon_0} \frac{q}{r_c} - W = \frac{2qW}{\sqrt{8q+2}} - W, \tag{4}$$

式中第二个等号后的能量单位取eV, W 为靶材料的电子逸出功.

当电荷态足够高时,可使 $E_s \geq E_p$,即单电子俘获所释放的势能大于或等于靶材料的表面等离子激元能量,靶的表面等离子激元就会被激发.根据(4)式,可以得出发生这一激发过程的临界电荷态 q_c 为

$$q_c = \frac{(E_s + W)^2}{W^2} \left[1 + \sqrt{1 + \frac{W^2}{\chi(E_s + W)^2}} \right]. \tag{5}$$

可以看出, q_c 只与金属表面材料的性质(等离子激元能量 E_p 和逸出功 W)有关,它表征在与表面相互作用过程中,入射离子发生单电子俘获所释放的能量能够激发样品材料的等离子激元所需要的最低电荷态.表2列出本实验和由(5)式以及文献给出的 q_c 值,可以看出各种 q_c 值非常接近.这表明,金属靶表面等离子激元的激发标示着入射离子发生多电子俘获的开始,表现为入射离子的镜像加速作用的突然转弱(动能增益的突然转低),而等离子激元的衰变使金属表面靶原子的低能束缚电子被发射或激发^[18],表现为靶原子和靶离子的可见波段特征谱线的突然增强.

表2 不同来源的电荷态阈值 q_c 比较

| q_c 来源 | q_c [Al] | q_c [Ti] |
|--|--------------------------|--------------|
| 发生单电子俘获激发表面等离子激元的(5)式计算结果(W 分别取自文献[16,17],括号内 E_p [Al]取实验值10.3eV) | 26.4(23.5) 28.1(25.8) | 18.7 20.8 |
| 发生能量增益突然转低的 q_c 实验结果(数据取自文献[12]) | 27 | — |
| 发生特征谱线强烈激发的 q_c 实验结果(数据取自本实验) | 26 | 20 |

4. 结 论

现有的文献一般都认为,在高电荷态离子轰击固体表面中光辐射过程可不必考虑.但我们的测量结果和分析表明,在高电荷态重离子与金属固体表面相互作用过程中,是否能有效地激发原子和离子特征谱线与入射离子的电荷态密切相关,当入射离子电荷态大于某一阈值 q_c 时,表面原子(离子)特征谱的激发强度会突然明显增强,该电荷态阈值 q_c 与金属表面材料的性质(等离激元能量 E_p 和逸出功

W)有关.结合固体金属传导电子气体理论和经典过垒模型,我们给出了 q_c 的理论计算公式,其计算结果与本实验以及相关实验的测量结果符合相当好.这说明在高电荷态离子与金属固体表面作用中,存在着通过表面等离激元激发所诱导的多电子俘获和相应激发原子或离子的光退激过程.

本实验是在中国科学院近代物理研究所兰州重离子加速器国家实验室电子回旋共振离子源全体工作人员的大力协助下完成的,特此表示衷心感谢.

-
- [1] Meyer F W ,Burgdörfer J and Zehner D M 1991 *Phys. Rev. A* **44** 7214
- [2] Xiao G Q 2000 *Nucl. Phys. Rev.* **3** 123(in Chinese) 肖国青 2000 原子核物理评论 **3** 123]
- [3] Thomaschewski J *et al* 1998 *Phys. Rev. A* **57** 3665
- [4] Stolterfoht N *et al* 2000 *Phys. Rev. A* **61** 5290
- [5] Träbert B *et al* 2001 *Phys. Rev. A* **64** 34501
- [6] Hattass M *et al* 1999 *Phys. Rev. Lett.* **82** 4795
- [7] Schenkel T *et al* 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4325
- [8] Winter H and Aumayr F 1999 *J. Phys. B* **32** R39
- [9] Ma S H *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1052(in Chinese) 马淑红 等 2000 物理学报 **49** 1052]
- [10] Morishita Y *et al* 1999 *Phys. Scr.* T **80** 212
- [11] Lemell C *et al* 1996 *Phys. Rev. A* **53** 880
- [12] Jens J *et al* 1998 *Phys. Rev. A* **57** 338
- [13] Bethe H A and Salpeter E E 1957 *Quantum Mechanics of One and Two Electron Systems*(New York : Academic)
- [14] Сгриганов А Р and Свентипкии Н С , 1966 , *Таблицы Спектральных Линий* (Москва : Атомиздат)
- [15] Kittel C 1976 *Introduction to Solid State Physics* 5th ed(New York : Wiley)
- [16] Stecker H 1994 *Taschenbuch der Physik* (Frankfurt : Verlag Harri Deutsch)
- [17] Miller M K and Smith G D W 1989 *Atom Probe Microanalysis : Principles and Applications to Materials Problems* (Pittsburgh : Materials Research Society of USA)
- [18] Stolterfoht N 2000 *RIKEN Rev.* **31** 25

Excitation spectra of light from the interaction of highly charged $^{126}\text{Xe}^{q+}$ -ions with solid surface of Ti^{*}

Zhao Yong-Tao^{1 2)} Zhang Xiao-An^{1 2)} Li Fu-Li¹⁾ Xiao Guo-Qing²⁾ Zhan Wen-Long²⁾ Yang Zhi-Hu²⁾

¹⁾(*Department of Applied Physics , Xi 'an Jiaotong University , Xi 'an 710049 ,China*)

²⁾(*Institute of Modern Physics , Chinese Academy of Sciences , Lanzhou 730000 ,China*)

(Received 10 February 2003 ; revised manuscript received 18 March 2003)

Abstract

The measurement results on 200—1000nm excitation spectra of light from a solid surface of Ti which is excited by slow highly-charged ions(SHCI) $^{126}\text{Xe}^{q+}$ ($6 \leq q \leq 30$) with a kinetic energy of 150keV are reported. The results show that the characteristic spectral lines of the target atoms can be effectively excited by the SHCI even though the beam intensity of the incident ions is very weak(only about one per one nanosecond). We have also found that when the number of the peeled electrons of the projectile is beyond a critical value which depends on the properties of the target , about 20 for Ti , the spectral intensity of the characteristic spectral lines can be greatly enhanced. Theoretical analyses show that this phenomenon is closely related to the surface plasmon excitation of the free electron gas of the metal surface during the potential energy release of the single-electron transfer when the number of the peeled electrons is beyond the critical value.

Keywords : slow and highly charged ion , characteristic spectral line , classical over-barrier model , plasmon

PACC : 3400 , 3450D

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 19804012 and 10274058) , and the Major Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10134010).