260~520 keV Kr^{q+} (8≪q≪17)离子轰击 Al 靶产生的可见光辐射

徐秋梅

中国科学院近代物理研究所,甘肃兰州 730000

摘 要 低速高电荷态离子与金属表面相互作用,原子从靶材表面溅射,其中一部分处于激发态的溅射原 子通过辐射退激产生可见光。在这一相互作用过程中,低速高电荷态离子从靶材表面捕获一个或多个电子 进入其激发态,这些处于激发态的入射离子也会通过辐射退激产生可见光。研究表明,离子在靶材中的核阻 止本领与溅射原子产额密切相关。为了更好地理解溅射原子的激发过程,认识低速高电荷态离子与金属相 互作用过程中,溅射原子的激发概率与入射离子动能和势能之间的关联,研究了 260~520 keV Kr⁴⁺ (8≤*q* ≤17)离子与 Al 靶相互作用过程中的可见光发射。给出了 520 keV Kr¹³⁺与 Al 表面相互作用过程中,发射 300~550 nm 波长范围的发射光谱。实验结果包括溅射的 Al 原子在 309.0 和 395.9 nm 处的共振跃迁,Al⁺ 和 Al²⁺分别在 358.3 和 451.6 nm 处的共振跃迁,以及 Kr⁺在 430.0,434.1,465.8 和 486.0 nm 处的共振跃 迁。还给出了谱线强度比值 Y(309.0)/Y(395.9),Y(358.5)/Y(395.9),Y(452.8)/Y(395.9)随入射离子动 能和势能的变化。结果表明:谱线强度比值均随入射离子动能的增加而增大,而比值 Y(309.0)/Y(395.9)随 势能的增加而减小。分析表明,在低速高电荷态离子与 Al 靶相互作用过程中,动能(电子阻止本领)和势能 共同作用导致 Al 原子的激发,与激发态 Al(4s)相比,电子布居较高激发态 Al(3d)的概率随着离子电子阻止 本领的增加而增大,而随着离子势能增加而减小。在低速高电荷态离子与金属表面相互作用过程中,入射离 子在靶材中的核阻止本领影响溅射原子产领,而电子阻止本领与激发概率相关。在这一作用过程中,动能和 势能共同决定溅射原子的激发概率,当动能和势能在同一数量级时,动能作用比势能作用小两个量级。

关键词 低速高电荷态离子; 原子谱线; 可见光辐射; 激发概率 中图分类号: O04 文献标识码: A DOI: 10.3964/j. issn. 1000-0593(2022)02-0544-05

引 言

低速高电荷态离子与固体表面的相互作用过程涉及丰富 的物理现象,是目前广泛关注的研究对象。有大量的相关工 作报道,但是对于离子与固体作用引起可见光辐射现象仍然 很难进行统一的理论描述。在离子与固体表面作用过程中, 为了解释溅射原子的激发提出了级联碰撞中的直接激发、原 子与固体表面之间电子转移(间接激发)和价键断裂等激发机 制^[1]。这一研究引起研究者的广泛关注,主要是由于其可用 于表面成分分析^[2]。离子引起可见光发射的研究已经进行了 很多年,然而,这些研究的绝大部分工作仅限于单电荷态离 子入射。随着离子源和真空等技术的发展,高电荷态离子与 固体表面相互作用逐渐成为研究热点,比如,势能引起的电 子发射、原子溅射、以及二次离子发射等^[3]。势能在离子与 固体作用引起可见光发射过程中的作用逐渐成为研究人员关 注的热点课题。低速高电荷态离子与固体表面相互作用过程 中,光辐射的研究对理解靶原子激发态形成,以及入射离子 中性化过程具有重要意义。

低速高电荷态离子靠近和进入金属表面时,通过共振 (俘获、电离)或俄歇(俘获、电离)等过程与固体交换电子。 这些过程中伴随着激发态离子(原子)的形成,激发态离子通 过辐射和非辐射两种方式退激。根据经典过全模型^[4-5],在 高电荷态 $Z^{q+}(q\gg1)$ 离子靠近金属表面过程中,与金属表面 的距离达到临界值 $d_c = \sqrt{2q}/W$ 时,靶表面的电子会被共振 俘获进入到入射离子的 $n_c \approx q/\sqrt{2W\left[1 + \left(q - \frac{1}{2}\right)/\sqrt{8q}\right]}$ 轨道,形成高激发态。这里的 q 是入射离子的电荷数,W 是 靶表面的功函数。对于 Kr¹³⁺入射 Al 表面($W_{Al}\approx4.28 \text{ eV}$), d_c 和 n_c 分别为 32 a. u.和 15。俘获电子后形成的高激发态 离子会辐射退激发射可见光。在入射离子与固体表面电子交 换过程中,伴随着各种能量传递,这会导致激发态靶原子、

收稿日期: 2020-12-29,修订日期: 2021-02-04

基金项目: 国家重点研发计划材料基因工程关键技术及支撑平台重点专项(2017YFB0702202)资助

作者简介: 徐秋梅, 女, 1986年生, 中国科学院近代物理研究所博士后 e-mail: qmxu@impcas. ac. cn

离子、分子和分子离子的溅射。在靶表面附近溅射的激发态 靶原子和离子辐射退激导致可见光发射。Postawa 等^[6]研究 表明来源于离子轰击固体发射的可见光是溅射原子发射的, 没有来自靶表面发射的可见光。Tribble 等^[7]研究表明溅射 原子的光强与溅射原子产额及其激发概率有关。Qayyum 等^[8]和 Reinke 等^[9]提出弹性碰撞在光辐射过程中起主导作 用。在离子与固体作用引起可见光发射过程中,激发概率与 入射离子能量的关系尚不清楚。为了研究入射离子动能和势 能在光辐射过程中的作用,本文报道了低速高电荷态 Kr^{q+} (8 《 $q \leq 17$)离子轰击金属 Al 表面可见光辐射的实验结果。

1 实验部分

实验是在中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态 离子综合研究平台上进行的。平台上的电子回旋共振离子源 提供实验所需的 Kr^{q+},利用高压引出和加速。引出的离子束 先经过二极偏转磁铁偏转,然后经过十二个四极磁铁输运, 再经靶室前直径为 5 mm 的光栏准直和限束,进入高真空靶 室。终端的测量装置布局如图 1 所示。



图 1 高电荷态离子轰击固体表面发射光谱的测量装置示意图 Fig. 1 Schematic diagram of measurement apparatus for light emission from the solid surface bombarded by highly charged ion

靶室真空度保持 3×10^{-*} mbar, 以使得离子与表面干净 的固体相互作用。靶室正对束流方向安装了法拉第筒。靶架 与活动杆相连,其可以上下移动、水平旋转(在图中,沿着纸 面方向为水平方向,垂直纸面方向为上下方向),以便更换 不同的靶子。活动杆上下方向移动距离 120 mm,标尺最小 刻度为 0.5 mm;在水平方向可以 360°旋转,标尺最小刻度 为 15°。靶架最上端有一个光栏,通过光栏后的入射离子进 入法拉第筒。法拉第筒与灵敏电流计相连。入射离子束流强 度约为 200 nA,束流的不稳定性在 5%。离子束进入高真空 靶室,以 45°角(相对靶表面法线方向)入射到 Al 靶表面。在 与束流垂直的方向,利用 LRS Ⅱ光栅光谱仪进行测量。光谱 仪采用 1 200 L•mm⁻¹光栅,其闪耀波长在 500 nm。实验 前,利用标准钠灯对光谱仪进行了校准。由于离子与金属表 面相互作用发射的光通常较弱,且光强随距离按指数衰减, 因此,光谱仪入射狭缝紧贴靶室石英窗。为了使光子尽可能 多的进入狭缝,实验过程中入(出)射狭缝均为1.00 mm。入 (出)射狭缝较大一方面增加了光谱强度,另一方面降低谱线 的分辨。为了尽量降低本底,测量工作在暗室条件下进行。

2 结果与讨论

图 2 给出 0.49 v_{Bohr} (520 keV) Kr¹³⁺ 与 Al 表面相互作用 发射的 300~550 nm 光谱。图中, 最强的谱线是溅射 Al 原子 在 395.9 nm 处的共振跃迁。较弱的谱线有溅射 Al 原子在 309.0 nm 处的共振跃迁, 以及 Al⁺ 和 Al²⁺ 分别在 358.3 和 451.6 nm 处的共振跃迁^[10]。表1给出了这些谱线对应的原 子激发能和电子跃迁^[10]。与单电荷态离子^[8-9]入射的不同之 处在于,图2中还观测到 Kr⁺在430.0,434.1,465.8, 486.0 nm 处的共振跃迁^[10]。其中 434.1 和 486.0 nm 处的谱 线可能含有 H 原子光谱的成分, 这些氢原子来自于靶材表 面吸附的氢气和水分子。根据经典过垒模型^[4-5],Kr¹³⁺入射 Al 表面,当到达临界距离 32 a. u. 时,俘获电子进入 $n_c = 15$ 的壳层。Kr¹³⁺在金属 Al 表面,形成激发态离子,这些激发 态离子辐射退激发射可见光,例如, $Kr^+ 5s^2 P_{3/2} - 5p^4 S_{3/2}$ 共 振跃迁形成谱线 Kr Ⅱ 430.0 nm, Kr²⁺ 4d³D₂-5p³D₃ 共振 跃迁形成谱线 Kr Ⅱ 434.1 nm, Kr⁺ 5s⁴P_{5/2}-5p⁴P_{3/2} 共振跃 迁形成谱线 Kr Ⅱ 465.8 nm, Kr⁺ 4d⁴D_{1/2}-5p²S_{1/2}共振跃迁 形成谱线 Kr II 486.0 nm。



 v_{Bohr} Kr¹³⁺ ions with Al surface

离子入射固体引起溅射原子(离子)的光辐射过程中,实验上测量到的从原子*i*能级到*f*能级跃迁发射的波长λ处的 光强可以表示为 Y_{fi}(λ)^[11]

$$Y_{fi}(\lambda) = N\beta \alpha P \eta \tag{1}$$

式(1)中,N为每秒溅射的原子总数; β 为原子激发概率,即 处于上能级*i*的原子数与原子总数比值; α 是原子从上能级*i* 衰变到下能级*f*的跃迁概率(α 通常定义为分支比 $\alpha_{ji} = A_{ji} / \sum A_{ji}$);*P*是激发态原子发生辐射衰变的概率; η 是光 谱仪的探测效率,即在特定波长处每发射一个光子光谱仪探 测到的光子数。从式(1)可以看出,溅射原子光强与溅射产 额和激发概率有关。通过分析溅射原子光强 $Y_{fi}(\lambda)、溅射产$ 额*N*和激发概率 β 与入射离子能量(动能和势能)的关系,可 以认识离子引起光辐射的过程。

表 1 原子的激发能和电子跃迁^[10]

Table 1	Atomic excitation	energy and	electron	transition

粒子	谱线/nm	激发能/eV	电子跃迁
Al I	309.0	4.02	$3s^2 3p - 3s^2 3d$
Al I	395.9	3.13	3 s ² 3 p- 3 s ² 4 s
Al II	358.3	15.30	3s3d-3s4f
Al III	451.6	20.55	$2p^{6}4p$ - $2p^{6}4d$

1969年, Sigmund^[12]通过解线性玻尔兹曼方程得出了计 算溅射产额经验公式。Bohdansky^[13]等在 Sigmund 理论基础 上,提出了修正后的溅射产额经验公式,如式(2)

$$N(E) = QS_n(\varepsilon) \left[1 - \left(\frac{E_{th}}{E}\right)^{2/3} \right] \left[1 - \frac{E_{th}}{E} \right]^2 \qquad (2)$$

式(2)中, E 为入射离子能量,单位为 $eV_{\circ}Q$ 为比例因子, E_{th} 为溅射阈能,二者均来自拟合值。对于 Al, E_{th} 为 39.1, Q 为 21。 S_{th} 和 ϵ 分别为核阻止截面和约化能。

$$S_n(\epsilon) = \frac{0.5 \ln(1.228 \ 8\epsilon + 1)}{\epsilon + 0.172 \ 8\epsilon^{1/2} + 0.008\epsilon^{0.1504}}$$
(3)

$$\epsilon = E \frac{0.032}{Z_1 Z_2 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \frac{M_2}{M_1 + M_2}$$
(4)

式中, M_1 和 M_2 分别为入射离子和靶原子的质量, Z_1 和 Z_2 分别为入射离子和靶原子的核电荷数。由式(2)可以看出,

溅射产额 N(E)与核阻止本领 S, 有正比关系。通过分析溅射 原子光强、核阻止本领与入射离子动能的关系,可以认识核 阻止本领在光辐射过程中的作用。Qayyum 等^[8-9]结果表明, 核阻止本领在光辐射过程中起主导作用。

为了研究电子阻止在光辐射过程中的作用,利用 260~ 520 keV Kr¹³⁺ 入射 Al 表面,测量 Al 原子和离子谱线随着入 射离子动能的变化。260 keV Kr¹³⁺ 入射 Al 表面的数据来源 于文献 [14]。图 3 (a) 表明 谱线强度比值 Y (309.0)/Y (395.9),Y(358.3)/Y(395.9)和Y(451.6)/Y(395.9)随着离 子动能的增加而增加。根据林哈德-沙尔夫(LSS)理论,低速 离子的电子阻止截面 S_e可以表示成式(5)

$$S_{e}(v) = \delta \pi e^{2} a_{0} \frac{Z_{1}^{7/6} Z_{2}}{(Z_{1}^{2/3} + Z_{2}^{2/3})^{3/2}} \frac{v}{v_{0}}$$
(5)

式(5)中, e是电子电量, a_0 是玻尔半径, Z_1 和 Z_2 分别为人 射离子和靶原子的核电荷数, v是入射离子速度, v_0 是玻尔 速度。从式(5)可以看出电子阻止截面 S_e 正比于入射离子 速度。

利用 SRIM 2008 程序,表 2 给出了 Kr 离子在 Al 中的电 子阻止本领和核阻止本领。从表中可以看出,随着入射离子 动能的增加,电子阻止本领增加,而核阻止本领降低。因此, 图 3(a)中谱线强度比值 Y(309.0)/Y(395.9),Y(358.3)/Y (395.9)和 Y(451.6)/Y(395.9)随动能增加而增加是电子阻 止本领增加导致的。

表 2 离子 Kr¹³⁺在 Al 中电子阻止本领与核阻止本领,以及谱线强度比值 Table 2 Electron stopping power and nuclear stopping power of Kr¹³⁺ ion in Al,

and the intensity ratios of spectral lin	ensity ratios of spectral line	
--	--------------------------------	--

动能/ keV	速度 _{vBohr}	电子阻止本领/ [MeV・(mg・cm ⁻²) ⁻¹]	核阻止本领/ [MeV・(mg・cm ⁻²) ⁻¹]	Y(309.0)/Y(395.9)	Y(358.5)/Y(395.9)	Y(452.8)/Y(395.9)
260	0.35	1.588	5.075	0.233±0.005	0.089 ± 0.003	0.041±0.003
390	0.42	2.114	4.556	0.317 \pm 0.017	0.150 ± 0.013	0.067 ± 0.008
520	0.49	2.484	4.137	0.352 ± 0.012	0.195 ± 0.008	0.089 ± 0.020



图 3 离子 Kr^{a+}入射 Al 靶过程中, 谱线强度比值 Y(309.0)/Y(395.9), Y(358.3)/Y(395.9)和 Y(451.6)/Y(395.9)随动能变化 (a), 比值 Y(309.0)/Y(395.9)随势能的变化(b)

Fig. 3 The intensity ratios of Y(309.0)/Y(395.9), Y(358.3)/Y(395.9) and Y(451.6)/Y(395.9) vs. kinetic energy (a) and the ratios of Y(309.0)/Y(395.9) vs. potential energy (b) measured in the interaction of Kr^{g^+} ions with Al surface

从图 3(a)和 3(b)可以看出,在 260~520 keV Kr^{a+}(8≪ q≪17)离子入射金属 Al 表面引起光辐射过程中,动能和势

能共同决定靶原子的激发概率。根据图 3, 溅射原子的激发 概率与人射离子动能和势能关系可以表示为式(6) $\beta(E_k, E_p) = C + k_k E_k + k_p E_p$ = 0.04 + k_k E_k + 6.90 × 10¹ k_k E_p (6)

式(6)中, C, k_k和k_p为比例系数。动能和势能对激发概率的 影响分别由 k_k和k_p决定。相同的动能和势能情况下,势能 对激发概率的影响更大。这是由于在离子与固体作用过程 中,动能和势能沉积方式不同造成的,在研究的能量范围 内,动能部分主要用于溅射,只有一部分用于电子激发,势 能部分还没有显示库伦爆炸效应,其主要用于电子激发。

总的来说,在低速高电荷态离子与金属作用过程中,随 着离子动能和势能的增加,光子产额增加。随着离子势能的 增加,与较高激发态 Al(3*d*)相比,电子布居激发态 Al(4*s*)的 靶原子数增加;而随着动能的增加,与较低的激发态 Al(4*s*)的 相比,电子更多的布居较高的激发能级 Al(3*d*)。在本实验研 究的能量范围,弹性碰撞是主要的。根据溅射理论,当入射 离子能量为几百个 keV 时,溅射通过线性碰撞级联的方式产 生。在 260~520 keV Kr^{q+}(8≪q≪17)离子与金属 Al 表面作 用过程中,溅射产额主要由核阻止本领决定。

溅射原子电子激发的能量来源于电子阻止本领(直接激 发)和入射离子沉积的势能(间接激发)。溅射原子直接激发 的激发概率以及电子布居取决于电子阻止本领。电子阻止本 领增加使得激发概率增加,使得激发态电子更多的布居较高 的激发能级,使得谱线强度比值Y(309.0)/Y(395.9)随着动 能增加而增加。原子间接激发的激发概率和电子布居取决于 离子势能。随着势能的增加,沉积的靶表面的能量增加,由 于势能沉积的主要通道是引起靶表面电子激发,电子的弛豫 时间(10⁻¹⁹ s)相比溅射过程是足够短的,因此沉积的势能很 快被周围的电子转移和吸收,增加的能量并没有使得表面单 个电子获得较多的能量,而是使得较多的电子获得能量。因 此离子俘获靶表面电子,形成了更多的激发态原子,激发态 电子更多的布居较低的激发能级。这就使得随着势能的增 加,激发态原子数目增加,且更多的电子布居较低的激发能 级,使得谱线强度比值Y(309.0)/Y(395.9)随着离子势能增 加而降低。

3 结 论

260~520 keV 高电荷态 Kr^{q+}(8≤q≤17)离子与金属 Al 表面相互作用过程中,测量了溅射靶原子、离子谱线,以及 入射离子中性化过程中发射的谱线。在低速高电荷态离子与 固体作用引起光辐射过程中,动能和势能共同作用导致靶原 子溅射和激发,溅射过程主要由核阻止本领决定,电子阻止 本领和势能决定靶原子的激发。当动能和势能在同一数量级 时,直接激发概率比间接激发概率小两个量级。因此,提高 入射离子的势能能够有效的提高溅射原子的激发概率。

致谢: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束流。

References

- [1] Kijhrbriick R, Lecler D, Fremont F, et al Nucl. Instrum. Methods B, 1991, 56/57: 219.
- [2] Thomas G E. Surface Science, 1979, 90: 381.
- [3] Friedrich Aumayr, Hannspeter Winter. Phil. Trans. R. Soc. Lond. A, 2004, 362: 77.
- [4] Morishita Y, Kanai Y, Ando K, et al. Nucl. Instrum. Methods B, 2003, 205: 758.
- [5] Lake R E, Pomeroy J M, Sosolik C E. Nucl. Instrum. Methods B, 2011, 269: 1199.
- [6] Postawa Z, Rutkowski J, Poradzisz A, et al. Nucl. Instrum. Methods B, 1986, 18: 574.
- [7] Tribble R E, Prior M H, Stokstad R G. Nucl. Instrum. Methods B, 1990, 44: 412.
- [8] Qayyum A, Akhtar M N, Riffat T. Radiation Physics and Chemistry, 2005, 72: 663.
- [9] Reinke S, Hippler R. Nucl. Instrum. Methods B, 1992, 67: 620.
- [10] http://physics.nist.gov/cgi-bin/ASD/lines1.pl. [2020-5-10].
- [11] Tsong IST, Yusuf NA. Appl. Phys. Lett., 1978, 33: 999.
- [12] Sigmund P. Phys. Rev., 1969, 184: 383.
- [13] Bohdansky J. Nucl. Instrum. Methods B, 1984, 2: 587.
- [14] YANG Zhao-rui, ZHANG Xiao-an, XU Qiu-mei, et al(杨兆锐,张小安,徐秋梅,等). Acta Physica Sinica(物理学报), 2013, 62: 043401.

Optical Emission From the Al Surface Bombarded by $260 \sim 520$ keV Kr^{*q*+} $(8 \leq q \leq 17)$ Ion

XU Qiu-mei

Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China

Abstract When a metal surface is bombarded by slow, highly charged ions (SHCIs), atomic particles ejected from the sample, and then some of them in excited states undergo radiative de-excitation resulting in optical emission. SHCIs will capture one or more electrons from the surface into its excited state during the interaction. Then some exciting projectiles undergo radiative deexcitation and result in the optical emission. Previous reports showed that the nuclear stopping power is closely related to the sputtering yields. In order to arrive at a better understanding of the electronic excitation of the sputtered particles, a correlation between the ion-induced photon emission and kinetic energy and potential energy is required. We have investigated the interaction between $260 \sim 520$ keV Kr⁴⁺ ($8 \leq q \leq 17$) ions and an aluminum target in the present work. A spectrum in the wavelength range of $300 \sim 550$ nm was obtained by 520 keV Kr¹³⁺ bombardment. The spectral lines included the resonance transitions of sputtered Al atoms at 309.0, 395.9 nm, Al⁺ and Al²⁺ ions at 358.3 and 451.6 nm, and Kr⁺ ions at 430.0, 434.1, 465.8, 486.0 nm. The ratio of Y(309.0)/Y(395.9), Y(358.5)/Y(395.9), Y(452.8)/Y(395.9) are presented as a function of projectile kinetic energy and potential energy. The results showed that the ratios of Y(309.0)/Y(395.9), Y(358.5)/Y(395.9), Y(452.8)/Y(395.9) increased with the increase of the kinetic energy, while the ratio Y(309.0)/Y(395.9) decreased with the increase of the potential energy. It is concluded that, in the interaction between SHCIs and Al target, the kinetic energy (electronic stopping power) and the potential energy make Al atom excitation. Compared with the excited states Al(4s), the probability of higher excited state 3d increases with the increase of the electronic stopping power, decreases with the increase of the potential energy. In optical radiation, nuclear stopping power affects the sputtering yield, and the electronic stopping power and potential energy are closely related to the excitation probability. In the interaction of SHCIs with a metal surface, both kinetic energy and potential energy contribute to optical radiation. When the kinetic energy is the same order as the potential energy, the excitation probability originated from kinetic energy is two orders smaller than the potential energy.

Keywords Slow highly charged ion; Atomic lines; Optical emission; Excitation probability

(Received Dec. 29, 2020; accepted Feb. 4, 2021)