

文章编号: 1007-4627(2010)03-0357-06

低速 $^{40}\text{Ar}^{17+}$ 离子入射金属 Be 表面发射的 近红外光谱线和 X 射线谱*

张颖¹, 张小安^{1, 2, #}, 徐忠锋³, 杨治虎², 赵永涛^{1, 2}, 肖国青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, 陕西 咸阳 712000;

2 中国科学院近代物理研究所, 甘肃 兰州 730000;

3 西安交通大学应用物理系, 陕西 西安 710049)

摘要: 用速度不同的(动能 $E_K = 272$ 和 357 keV, 速度 $v = 1.14 \times 10^6$ 和 1.72×10^6 m/s)的高电荷态离子 $^{40}\text{Ar}^{17+}$ 分别入射金属 Be 表面, 同时测量这种相互作用过程中产生的近红外光谱线和 X 射线谱。实验结果表明, 在低速范围内(速度小于玻尔速度 $v_{\text{Bohr}} = 2.19 \times 10^6$ m/s), 速度较小的 $^{40}\text{Ar}^{17+}$ 离子在到达金属的表面临界距离 R_c 到进入表面(2—3 原子层)的进程中, 形成了较多的高激发态 Ar 原子, 其退激辐射较强的光谱线, 进而验证了经典过垒模型。

关键词: 高电荷态离子; 红外光谱线; X 射线

中图分类号: O562.3 **文献标识码:** A

1 引言

离子束与激光束和物质的相互作用是近年来人们深入研究的热点课题之一^[1, 2]。电子共振回旋离子源可提供较高电荷剥离态的离子束。这些离子的动能可远小于其剥离电荷后所携带的势能, 当其入射金属、半导体和绝缘材料表面过程中可产生许多新奇的物理现象, 引起了国际上许多著名实验室的高度重视^[3-5]。

根据经典过垒模型(简称 classic over-barrier model, COB model), 速度小于玻尔速度($v_{\text{Bohr}} = 2.19 \times 10^6$ m/s)的高电荷态离子在入射金属表面过程中, 当离子运动至临界距离时, 离子与金属导带之间形成的势垒低于金属的费米面, 金属导带电子共振转移到入射离子与导带费米能匹配的能级, 使入射离子中性化, 俘获的电子进入离子的高里德伯(Rydberg)态, 内壳层处于空置状态即形成所谓的空心原子(hollow atom)^[6]。空心原子是短寿命的多激发态原子, 它通过俄歇退激和光辐射退激, 俄歇退激过程发射电子, 而光辐射退激发射涵盖红外到 X 射线波段的光谱。

COB 模型是基于 Briand 等^[7]用高电荷态离子 Ar^{17+} 与入射 Ag 靶表面, 测量到相互作用过程中的 K_α -X 射线谱, 以及 Meyer 等^[8]用 N^{6+} 离子入射 Au 靶表面, 测量 N 原子的 K-Auger 电子发射谱而建立的。最近关于俄歇中性化(neutralization)的实验值和理论值相差几个量级^[9, 10], 似乎要动摇 COB 模型建立的基础。另一方面, 高电荷态离子 Ar^{17+} 在 Ag 表面中性化, 形成空心原子的最高激发态的主量子数 $n = 29$, 在如此高的激发态下, 仅有内壳层跃迁辐射的 X 射线谱(如 K_α -X 射线谱)和俄歇电子谱, 不足以说明高电荷态离子在固体金属表面的中性化进程。而利用灵敏的光谱技术测量中性化后产生的高激发态空心原子退激辐射的光谱, 可以作为高电荷态离子中性化的直接证据。

我们在兰州重离子加速器国家实验室, 用动能分别为 $E_K = 272$ 和 357 keV 的高电荷态离子 $^{40}\text{Ar}^{17+}$ 入射固体金属 Be 表面, 同时测量产生的 Ar 原子近红外光谱线和 X 射线谱。实验结果表明, 低速高电荷态离子在金属表面俘获电子中性化, 形成多激发态的 Ar 空心原子, 空心原子退激辐射近红外光谱线和

* 收稿日期: 2009-12-07; 修改日期: 2010-01-22

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10574132); 陕西省自然科学基金资助项目(2007A05)

作者简介: 张颖(1987-), 女(汉族), 陕西乾县人, 从事离子束与光物理研究。

通讯联系人: 张小安, E-mail: zhangxiaohan2000@yahoo.com.cn

X 射线谱, 高激发态的 Ar 原子退激辐射的近红外光谱说明 Ar^{17+} 在金属表面完成了中性化, 进而证实了 COB 模型所描述的高电荷态离子与固体表面相互作用的动力学进程。

2 实验装置和测量方法

图 1 给出了实验平台的示意图。由兰州重离子加速器国家实验室电子回旋共振离子源提供的高电荷态离子 $^{40}\text{Ar}^{17+}$, 经 90° 偏转磁铁分析后引入原子物理实验平台, 再由四极透镜和光栏的聚焦准直, 以进入内部具有电磁屏蔽功能的超高真空 (约 10^{-5} mPa) 靶室, 与样品表面相互作用。 Ar^{17+} 离子束流的束斑直径可控制在 5 mm 范围内, 束流强度为 nA 量级, 用分析磁铁后的法拉第筒测量束流的强度。光谱测量在暗室条件下进行, 其它背景噪声利用单色仪所带的程序予以扣除。离子以 45° 方向入射于经过表面净化处理的化学纯度为 99.9% 的靶表面, 其表面积为 $19\text{ mm} \times 24\text{ mm}$, 厚度为 0.1 mm。

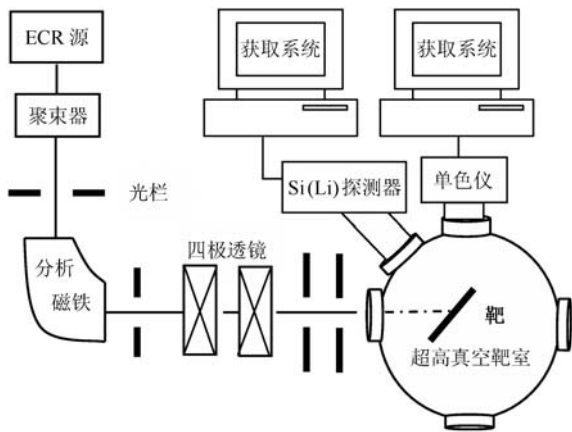


图 1 兰州重离子加速器国家实验室 ECR 源原子物理实验平台示意图

在本实验中, 近红外光探测器使用美国 ARC 公司 (Acton Research Corporation) 生产的单色仪 Spectrapro-500i, 有效扫描范围为 185—1200 nm, 分辨为 0.05 nm, 色散 1.7/mm。近红外光探测器光学窗口与靶表面成 45° 角。利用 Si(Li) 探测器探测 X 射线谱。实验前利用 ^{241}Am 和 ^{55}Fe 放射源对探测器进行了刻度 (刻度结果如图 2 所示), 其能量探测范围为 1—60 keV。当 X 射线能量为 5.89 keV 时, 能量分辨为 0.16 keV, 相对探测效率为 93%。X 射线探测器与靶表面垂直; 探测口是厚度为 0.05 mm 的 Be

窗。实验中, 当 X 射线能量为 3 keV 时, Be 窗的透射率约为 83%。探测器的直径为 10 mm, 距离靶点 80 mm, 实验测量时间选为 5400 s。

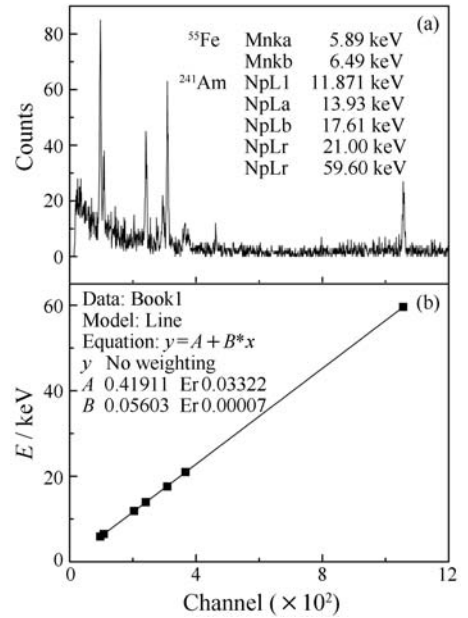


图 2 探测器的刻度图

(a) 标准放射源 ^{241}Am 和 ^{55}Fe 用探测器测得的对的能谱, (b) 探测器的能量刻度曲线。

3 实验结果与讨论

图 3 给出了动能为 272 和 357 keV 的 $^{40}\text{Ar}^{17+}$ 离子入射 Be 表面时辐射的近红外光谱线。(a) 是动能为 272 keV 时的辐射谱, 其中 810.46 nm 的谱线是 Ar 原子从能级 106087.26 cm^{-1} 到 93750.60 cm^{-1} 的跃迁, 跃迁速率为 $2.5 \times 10^7/\text{s}$, 其电子组态为 $3s^2 3p^5 4p$ 和 $3s^2 3p^5 4s$, 跃迁角动量 1—1, 谱线相对强度 252.35; 波长 842.46 nm 的谱线是 Ar 原子从能级 105617.27 cm^{-1} 到 93750.60 cm^{-1} 的跃迁, 跃迁速率 $2.15 \times 10^7/\text{s}$, 其电子组态为 $3s^2 3p^5 4p$ 和 $3s^2 3p^5 4s$, 跃迁角动量 1—2, 谱线相对强度 196.74; 波长 878.46 nm 的谱线是 Ar 原子从能级 $118512.197\text{ cm}^{-1}$ 到 $107131.7086\text{ cm}^{-1}$ 跃迁, 跃迁率为 $2.4 \times 10^5/\text{s}$, 其电子组态为 $3s^2 3p^5 4d$ 和 $3s^2 3p^5 4p$, 跃迁角动量 1—0, 谱线相对强度 798.76; 而波长为 854.18 nm 的谱线是被激发的 Be 原子从能级 70603.76 cm^{-1} 到 58907.45 cm^{-1} 的跃迁, 其电子组态为 $1s^2 2s 5d$ 和 $1s^2 2s 3p$, 跃迁角动量 0—1, 谱线相对强度 561.86。(b) 是动能为 357 keV 时的辐射谱线, 其中 Ar 原子的 810.46 nm

谱线, 谱线相对强度 326.21; 842.46 nm 谱线, 谱线相对强度 158.47; 878.46 nm 的谱线, 谱线相对强度 471.74。被激发的 Be 原子的波长为 854.18 nm 的谱线, 其谱线相对强度为 545.79。

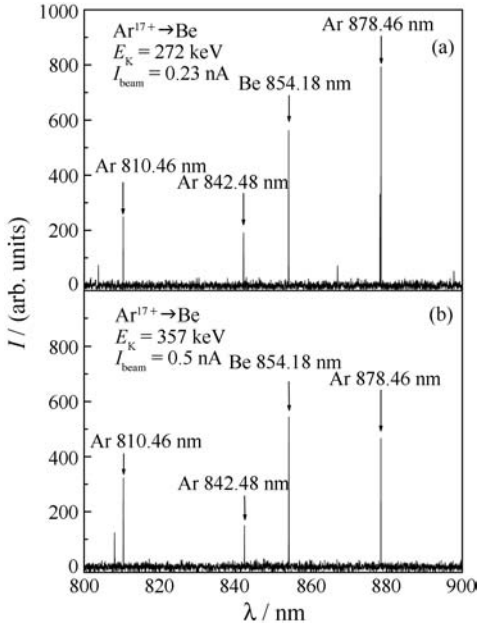


图 3 $^{40}\text{Ar}^{17+}$ 离子入射金属 Be 表面辐射的近红外光谱线

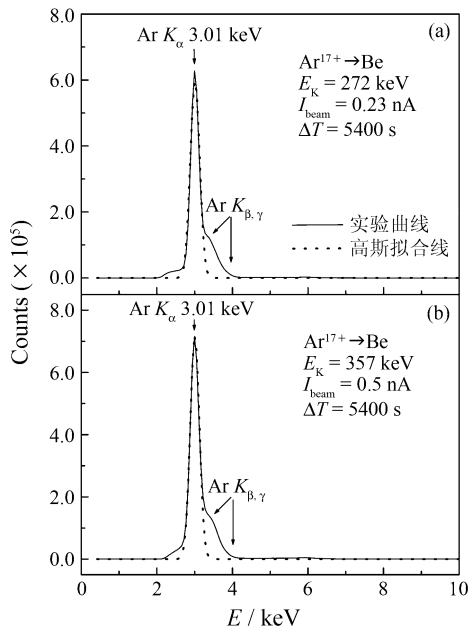


图 4 $^{40}\text{Ar}^{17+}$ 离子入射 Be 表面发射的 X 射线谱

图 4 给出了与红外光谱同时测得的 X 射线谱, 其中, (a) 是动能为 272 keV 时产生的 X 射线谱, Ar 的 K_α -X 射线能量为 $E_{K_\alpha} = 3.009$ keV, 是 $2p \rightarrow 1s$ 的电偶极跃迁, GaussAmp 拟合后半高宽 $\omega = 0.12$

keV, 中心峰值计数 $A = 599771.62$; (b) 是 357 keV $^{40}\text{Ar}^{17+}$ 离子入射金属 Be 表面产生的 X 射线谱, Ar 的 K_α -X 射线的能量为 $E_{K_\alpha} = 3.005$ keV, GaussAmp 拟合后半高宽 $\omega = 0.12$ keV, 中心峰值计数 $A = 72230.63$ 。在图 4 中, Ar 的 K_α -X 射线旁有一包, 由于我们的探测器分辨本领所限, 没有分辨开, 根据能量和文献[11]分析, 它是 Ar 的 K_β, K_γ -X 射线, 是 $3p \rightarrow 1s$ 和 $4p \rightarrow 1s$ 的跃迁, 要将其分辨开, 需要更高级的探测器。

X 射线谱的半高宽(FWHM)用 Γ 表示, 单位 keV, $\Gamma = 2\sqrt{\ln 4} \omega$, ω 是 GaussAmp 拟合的半高宽, $2\sqrt{\ln 4}$ 是 GaussAmp 拟合的转换系数。根据本次实验条件和测量条件, 并假定 X 射线发射是各向同性的, 可以给出 Ar^{17+} 作用于 Be 表面的单离子 X 射线产额:

$$Y = \frac{C}{N} = 2.7 \times 10^{-6} \times \frac{q \times \Gamma \times A}{I_{\text{beam}} \times \Delta T}, \quad (1)$$

其中, C 为总计数, N 为总粒子数, q 是入射离子的电荷态, A 是峰计数, I_{beam} 是用靶电流强度表示的束流强度(单位: nA)。利用公式(1)可得, 动能 272 keV 的 Ar^{17+} 离子入射时的单离子 X 射线产额为 6.28×10^{-3} ; 动能 357 keV 时的单离子 X 射线产额为 1.29×10^{-4} 。

根据 COB 模型, 低速高电荷态离子所携带的势能远大于其质心运动的动能, 在其逼近金属表面过程中, 当运动至临界距离^[11]

$$R_c = \frac{\sqrt{8q+2}}{2W} \quad (2)$$

(其中, q 为入射粒子的电荷态, W 为金属的脱出功) 时, 入射离子与金属表面间的势垒高度低于费米面, 金属导带的电子共振转移到入射离子的高激发空态上, 首先进入主量子数如下的空置能级

$$n \approx \frac{q}{\sqrt{2W}} \frac{1}{\sqrt{1 + (0.5/\sqrt{8q})}} \quad (3)$$

形成空心原子。

当 Ar^{17+} 离子入射 Be 表面时, 开始中性化的临界距离由(2)式可得 $R_c = 43$, 电子进入 Ar^{17+} 离子最高的空置轨道的主量子数可由(3)式得出 $n = 32$ 。中性化后, 多激发态的 Ar 原子退激, 在较高激发态的电子大多通过俄歇过程退激, 到达较低激发态的电

子通过光辐射退激。由于我们的光谱仪探测范围的限制,本次实验中测得了 Ar¹⁷⁺入射到 Be 金属表面中性化后的多激发态 Ar 原子级联(cascade)退激过程中,电子从较高的能级 105617.27 和 106087.26 cm⁻¹退激向较低的 93750.60 cm⁻¹能级(原子的电子组态为 3s²3p⁵4s)退激辐射的近红外光谱。另一条谱线是电子从 118512.197 cm⁻¹能级(原子的电子组态为 3s²3p⁵4p)向 107131.7086 cm⁻¹能级退激辐射的近红外光谱。Ar¹⁷⁺(势能为 9.952 keV)在中性化过程中释放势能和动能使靶表面原子激发,被激发的 Be 原子从能级 70603.76 cm⁻¹到能级 58907.45 cm⁻¹能级退激辐射波长为 854.18 nm 的近红外光谱线。Ar 原子波长测量误差小于 0.02 nm, Be 波长测量误差小于 0.5 nm,其误差较大可能是表面原子振动造成的。

动能 272 keV、速度为 1.14 × 10⁶ m/s 和动能 357 keV、速度为 1.72 × 10⁶ m/s 的 Ar¹⁷⁺离子,分别从离子开始中性化到运动至靶表面所经历的时间为

$$t = \frac{R_c}{v}, \quad (4)$$

由公式(4)可计算出 $t = 2 \times 10^{-15}$ 和 1.33×10^{-15} s,而 Ar 原子的 M 和 N 壳层的寿命小于 1.2×10^{-16} s^[6],这说明我们测量的近红外光谱线是上表面多激发态的空心 Ar 原子退激辐射的。两种能量的 Ar¹⁷⁺离子在金属 Be 表面经历的时间 $t = 2 \times 10^{-15}$ 和 1.33×10^{-15} s,而 KLⁿ退激时间在 4×10^{-15} s < $t < 2 \times 10^{-14}$ s 范围内,因此, K_α-X 射线是在离子进入到表面以下发射的。考虑到 Ar 原子的 L 壳层填充时间在 10⁻¹⁵

s 量级,即空心 Ar 原子到达表面时仅退激到 L 壳层,空心原子进入表面过程中,表面将其俘获的部分电子剥离又形成离子,离子到达表面下(2—3 个原子层),金属中导带电子使离子快速地中性化,形成表面下的较低激发态的空心原子,空心原子退激辐射 X 射线。

根据 Moseley 公式

$$E_{K_{\alpha}} = hRc(Z-1)^2 \left(\frac{1}{1^2} - \frac{1}{2^2} \right) \approx \frac{3}{4} \times 13.6 \times (Z-1)^2 \quad (5)$$

(其中, h 为普朗克常数, R 为里德伯常数, c 为光速, Z 为原子的核电荷数)可计算出 Ar 原子的 K_α-X 射线的能量为 $E_{K_{\alpha}} = 2.9478$ keV,美国 Lawrence Berkeley 国家实验室 2001 年公布的(X-RAY DATA BOOK-LET) Ar 原子的 K_α-X 射线能量是 2.9577 keV,二者基本一致。我们的测量值为 3.0098 和 3.0051 keV,经测量,金属表面产生 K_α-X 射线能量的实验误差小于 ±0.2 eV。

这里将谱线的相对强度用 $I_{\text{相对强度}}$ 表示,入射离子流强用 I_{beam} 表示。为了定性地说明问题,排除入射束流强波动对谱线强度的影响,利用束流强度除谱线相对强度,得出的结果列于表 1。从表中可以看出,在低速范围内,速度较小的 Ar¹⁷⁺离子与 Be 表面相互作用过程中,在表面上 R_c到离子进入表面(2—3 原子层)的进程中,形成了较多的高激发态 Ar 原子,其退激辐射较强的光谱线。而且,272 keV

表 1 动能和流强不同的 Ar¹⁷⁺ 离子束流作用于 Be 表面的结果

激发离子	发光原子	λ/nm	I _{相对强度}	I _{相对强度} /I _{beam}	
Ar ¹⁷⁺ (动能: 272 keV 流强: 0.23 nA)	Ar	810.46	252.36	1097.22	
		842.48	196.74	855.39	
		878.46	798.76	3772.87	
Ar ¹⁷⁺ (动能: 357 keV 流强: 0.5 nA)	Be	854.18	561.86	2080.96	
		Ar	810.46	326.21	652.42
			842.48	158.47	316.94
878.46	471.74		943.48		
	Be	854.18	545.79	1091.58	

的 Ar¹⁷⁺离子的单离子 X 射线产额为 6.28×10^{-3} , 357 keV 的 Ar¹⁷⁺离子的单离子 X 射线产额为 $1.29 \times$

10^{-4} ,也说明了上述结论是正确的。

我们测量的 Ar 原子红外光谱线,特别是 K_α-X

射线的结果比美国国家标准技术局光谱数据库的数据略大, 根据董晨钟等^[12]的研究成果可以解释其 K_{α} -X 射线能量增大的机理。当高电荷态 Ar^{17+} 在金属 Be 表面中性化过程中, Ar 原子的 L 和 M 壳层存在空位, 外壳层旁观电子对 K 壳层电子屏蔽效应减弱, 造成 K_{α} -X 射线的能量增大。另一方面, 高电荷态离子在金属表面的这种电子俘获方式中存在势垒隧穿效应(tunnel effect), 以及相互作用过程中引起的能级位移也可能是 Ar 原子 K_{α} -X 射线的能量偏大的一个次要因素^[13]。

4 结论

低速高电荷态离子 Ar^{17+} 入射金属 Be 表面过程中, 俘获金属电子中性化成为高激发态的 Ar 空心原子, 理论计算其最高激发态 $n=32$, 较高激发态通过自电离和俄歇退激(Auger de-excitation)而发射电子, 我们同时测量较低激发态的 Ar 空心原子退激辐射的近红外光谱线和 X 射线, 电子组态分别 $3s^2 3p^5 4s$ 和 $3s^2 3p^5 4p$ 的较高激发态的 Ar 原子退激辐射的近红外光谱说明, Ar^{17+} 在金属 Be 的上表面完成了中性化。红外光谱线的辐射强度说明, 在低速范围内(速度小于玻尔速度 $v_{\text{Bohr}} = 2.9 \times 10^6 \text{ m/s}$), 离子在金属表面中性化过程中, 速度较小的 $^{40}\text{Ar}^{17+}$ 离子在表面上 R_c 到进入表面(2—3 原子层)的进程中, 形成了较多的高激发态 Ar 原子, 其退激辐射较强的光谱线, 进而直接证明了经典过垒模型的正确性。

致谢 衷心感谢兰州重离子加速器国家实验室人员为该项目实验提供高品质束流。

参考文献 (References):

- [1] Quinn K, Wilson P A, Cecchetti C A, *et al.* Phys Rev Lett, 2009, **102**(19): 194801.
- [2] Fu Yanbiao, Dong Chenzhong. Acta Phys Sin, 2006, **55**(1): 107 (in Chinese).
(符彦飙, 董晨钟. 物理学报, 2006, **55**(1): 107.)
- [3] Faraggi M N, Gravielle M S, Alducin M, *et al.* Phys Rev, 2005, **A72**(1): 012901.
- [4] Liang Changhui, Zhang Xiao'an, Xiao Guoqing. Nuclear Physics Review, 2007, **24**(3): 214(in Chinese).
(梁昌慧, 张小安, 肖国青. 原子核物理评论, 2007, **24**(3): 214.)
- [5] Ren Huijuan, Zhang Xiao'an, Xiao Guoqing. Nuclear Physics Review, 2009, **26**(2): 1467(in Chinese).
(任惠娟, 张小安, 肖国青. 原子核物理评论, 2009, **26**(2): 01467.)
- [6] Winter H P, Aumayr F. J. Phys (B: At. Mol. Opt. Phys), 1999, **32**(1): 39.
- [7] Briand J P, d'Etat-Ban B. Phys Rev Letter, 1990, **65**(2): 159.
- [8] Meyer F W, Overbury S H, Havener C C. Phys Rev Lett, 1991, **67**(6): 723.
- [9] Cazalilla M A, Lorente N, Muiño R Díez. Phys Rev, 1998, **B58**(20): 13991.
- [10] Monreal R C, Flores F. Adv Quantum Chem, 2004, **45**(1): 175.
- [11] Burgdörfer J, Lerner P, Meyer F W. Phys Rev, 1991, **A44**(9): 5674.
- [12] Gu Juan, Dong Chenzhong, Ding Xiaobin, *et al.* J At Mol Phys, 2006, **23**(1): 0016(in Chinese).
(顾娟, 董晨钟, 丁晓彬, 等. 原子与分子物理学报, 2006, **23**(1): 0016.)
- [13] Nordlander P, Tully J C. Phys Rev, 1990, **B42**(9): 5564.

Infrared Light and X-ray Emissions of $^{40}\text{Ar}^{17+}$ Impacting on Be Surface^{*}

ZHANG Ying¹, ZHANG Xiao-an^{1, 2, †}, XU Zhong-feng³, YANG Zhi-hu²,

ZHAO Yong-tao^{1, 2}, XIAO Guo-qing²

(1 *Ions Beam & Optical Physical Joint Laboratory of Xianyang Normal University and Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Xianyang 712000, Shaanxi, China;*
2 *Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;*
3 *Department of Applied Physics, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China*)

Abstract: The highly charged ion $^{40}\text{Ar}^{17+}$ (kinetic energy $E_K = 272$ keV, velocity $v = 1.14 \times 10^6$ m/s and $E_K = 357$ keV, $v = 1.72 \times 10^6$ m/s) impacts on the surface of metal Be, and the atomic infrared light line and X-ray spectrum are simultaneously measured. The experimental results show that in the low velocity region (less than v_{Bohr}), the highly charged ion with smaller velocity from a critical distance R_c to penetrate into the bulk formed more multiple-excited Ar atoms and the spectrum intensities of decay radiation are greater, which verifies the classical over-the-barrier model.

Key words: highly charged ion; infrared spectrum; X-ray

* **Received date:** 7 Dec. 2009; **Revised date:** 22 Jan. 2010

* **Foundation item:** National Natural Science Foundation of China(10574132); Natural Science Foundation of Shaanxi Province(2007A05)

† **Corresponding author:** Zhang Xiao-an, E-mail: zhangxiaonan2000@yahoo.com.cn