

文章编号: 1007-4627(2002)03-0342-05

高电荷态离子与表面相互作用*

张小安^{1, 2, 3}, 肖国青², 王武生², 毛瑞士²

(1 西安交通大学应用物理系, 陕西 西安 710049;

2 中国科学院近代物理研究所, 甘肃 兰州 730000;

3 咸阳师范学院物理系, 陕西 咸阳 712000)

摘 要: 论述了高电荷态离子与表面相互作用的过程, 说明了发射电子、发射光子、负离子、中性粒子、正离子的散射和发射的物理机理以及应用前景. 介绍了在兰州重离子国家实验室 ECR 源建立高电荷态离子与表面相互作用的原子物理平台的重要意义和将要开展的工作.

关键词: 高电荷态离子; 相互作用; 散射效应; 电子发射; 光子发射

中图分类号: O571.33 **文献标识码:** A

1 引言

Delaunay 等^[1]开创了高电荷态离子与表面相互作用的研究工作, 当时的主要目的是研究离子轰击固体表面所激发出的电子的机理. 现在, 高电荷态离子与表面相互作用及其相关的研究是目前国际上广受关注的热点研究领域, 已拓展到原子物理、固体物理、等离子体物理等领域. 它在多个维度上将对原子的研究推向了极端条件: 首先, 在电荷态的维度上达到了极端; 其次, 高电荷态重离子的核电荷数 Z 很大, 可以达到很强的库仑场, 如类氢 $U^{91+} 1s$ 态的库仑场强比氢原子 $1s$ 态的库仑场强高 6 个量级, 为 2×10^{16} V/cm, 这是目前任何外场无法达到的; 最后, 在高能重离子碰撞过程中, 两个离子可以靠得很近, 形成一个瞬态高等效核电荷数的原子体系, 当 $Z > 137$ 时, 将会出现又一个极端条件. 随着对高电荷态离子与表面相互作用研究的深入, 必将成为纳米材料与超小尺寸半导体芯片制作、固体表面处理和固体结构分析的重要手段.

量子电动力学(QED)在从亚原子核尺度 10^{-16} cm 到距离大至 10^9 cm 的 25 个数量级的长度范围上对自然界进行了成功的描述. 高电荷态离子与表面相互作用, 它不仅是探索相对论和 QED 效应的有力的工具, 而且对表面处理和表面分析极有潜力, 在我们探索未知的物理世界中必将发挥很大的

作用.

近年来, 高电荷态离子研究取得了许多重大进展, Burgdörfer 等^[2]建立了高电荷态离子与金属表面相互作用时, 高电荷态离子表面上中和的经典过垒模型. Xiao 等^[3]研究发现了固体表面势对高电荷态离子引起二次电子发射的关联作用, 他们还发现, 高电荷态离子与固体表面相互作用时, 通过表面发射的电子能谱可确定离子径迹的温度. Niemann 等^[4]研究了离子与铝表面的相互作用. Schenkel 等^[5]研究了低速高电荷态离子进入固体中的势能淀积. Gillaspy 等^[6]探索了高电荷态离子在印刷技术中的潜力.

2 实验装置

目前, 国际上对高电荷态离子与表面相互作用研究的竞争非常激烈, 美国的 Lawrence 和 Oak Ridge 国家实验室及德国的 HMI 和 GSI 国家实验室作了许多工作. 但是, Lawrence 和 Oak Ridge 的高电荷态离子束流是采用电子束离子阱(EBIT)引出的, 其束流弱, 仅能做实验研究. GSI 的高电荷态离子束流引自储存环, 束流强但造价昂贵. 我们在中国科学院近代物理所建设原子物理平台, 与 HMI 的类似, 利用 ECR 源引出高电荷态离子束流, 其强度高、易调控和造价低. 不仅可以做科学

收稿日期: 2002-01-28; 修改日期: 2002-03-14

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(19804012); 中国科学院留学回国择优支持基金资助

作者简介: 张小安(1962-), 男(汉族), 陕西乾县人, 博士研究生, 讲师, 从事原子核物理和激光物理研究.

研究，而且可以做应用研究。图 1 是在中国科学院近代物理所利用 ECR 源建设的研究平台，高电荷

态离子束流来自 ECR 源，经过调束系统进入靶室。通过探测器、光栅光谱仪等设备进行相关研究。

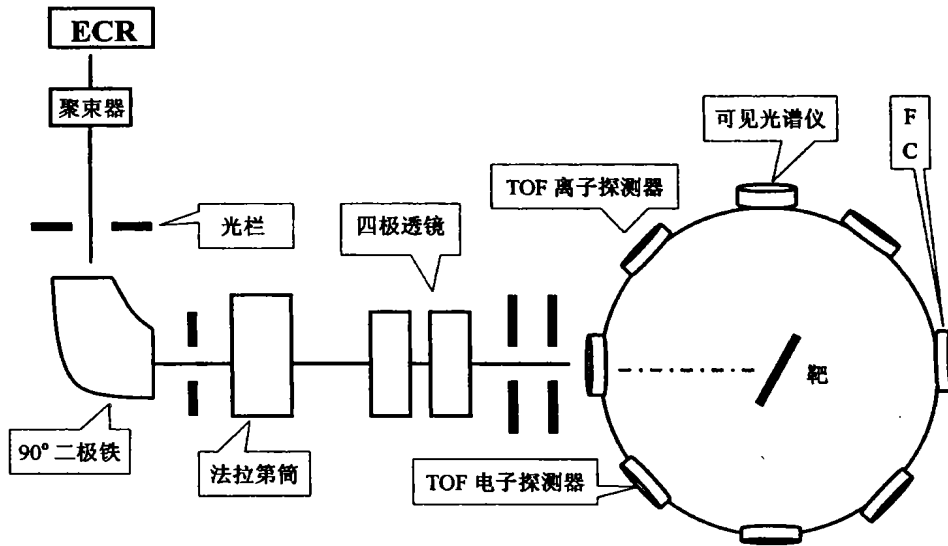


图 1 中国科学院近代物理所 ECR 源表面物理平台

3 表面散射与次级离子发射

高电荷态离子与表面相互作用时，其散射出的粒子就其电荷而言，有中性粒子、负离子和正离子。经过对散射出的粒子的深入研究，尤其对束流与晶体 LiF(100), Au(110)和 Cu(001)等表面的相互作用的大量研究，发现当单电荷离子束和高电荷态离子束入射到 LiF(100)表面时，散射的中性碎片的产额，高电荷态的大于单电荷态的，而其产额与炮弹的速度(垂直分量)具有强的关联性^[7]。

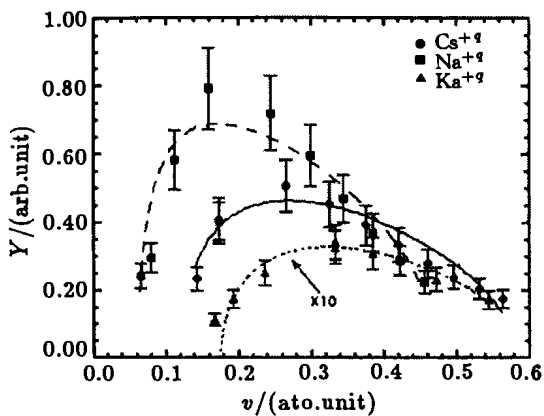


图 2 LiF(100)表面散射的中性碎片的产额

图 2 表明了高电荷态离子 ($q=2-7$) 入射到 LiF(100)表面散射的中性碎片的产额与炮弹速度垂

直分量的关系。对散射的负电荷碎片的产额与入射离子的电荷无关。

研究发现，如图 3 所示，负离子的产额与炮弹的速度有很强的关联，而且入射的高电荷态的 B, F 和 O 离子都有一个动力学共振峰的形状，其散射的负离子 B⁻ 的最大产额达 3%，F⁻ 的最大产额为 80%，O⁻ 的最大产额为 60%。

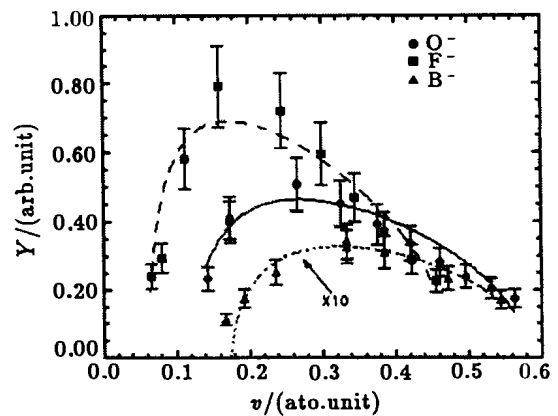


图 3 负离子的产额与炮弹速度的关系

散射的正离子具有更大的应用潜力。在超小集成电路制作中，表面分析的有效性是至关重要的。在分析硅晶片的掺杂成分时，飞行时间-次级离子质谱仪(TOF-SIMS)已成为高分辨率表面分析的工具。对于高密度($\sim 10^9$ atoms/cm²)的金属杂质，它

具有特别高的灵敏性. 初级束聚焦后, 空间分辨率可达到纳米量级, 可在原子、分子水平鉴别材料的成分. 早期的 SIMS 采用单电荷离子初级束, 它的次级离子产额非常低, 这样其灵敏度和分辨率受到限制, 而且成像时间长. 随着高电荷态离子与表面相互作用研究的深入, 现在的 SIMS 采用高电荷态离子如 Xe^{46+} 和 Au^{69+} 等, 具有极高的灵敏度和分辨率, 成像快(fs 量级).

图 4 是用飞行时间-次级离子质谱仪记录的反射谱^[8], 高电荷态离子 Xe^{44+} 能量为 $E=225\text{ keV}$ 入射到衬底为 SiO_2 、掺杂离子为 UO_2 的靶上, 散射出的正离子, 其中铀氧化物与其他次级离子的比率为 $(2.3 \pm 0.4) \times 10^{-4}$. 在单层原子密度范围内, 它对应于铀原子的面密度 $2.3 \times 10^{11}\text{ atoms/cm}^2$, 从而可对掺杂浓度做出精确的测量.

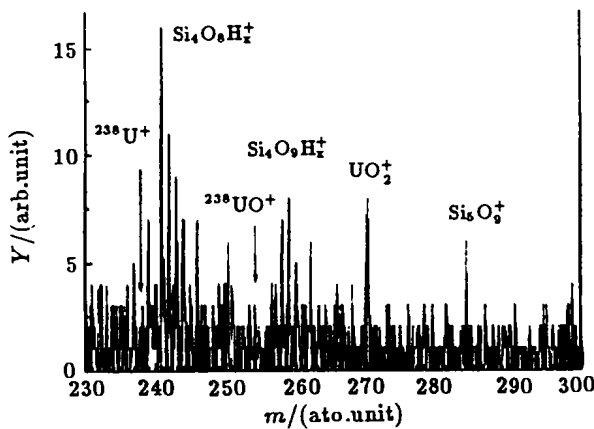
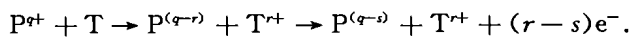


图 4 次级离子反射谱

4 电子发射

图 5 说明了高电荷态离子与表面相互作用的全过程, 包括电子发射、空心原子形成和 Auger 过程等. 高电荷态离子与表面相互作用, 其实质是炮弹离子与靶原子的碰撞, 其间的电子从靶原子转移到炮弹离子的过程可以表述为^[9].



此过程分为两步, 第一步为靶上的 r 个电子转移到炮弹离子上(时间为 fs 量级); 第二步为 $(r-s)$ 个电子的发射.

特别是, 当高电荷态离子向金属靶运动时, 在靶的另一面形成像电荷, 像电荷反过来又加速这种

运动. 当运动到临界距离 $R_c = 2q/v^2$ (其中 q 为离子的荷电量、 v 为离子的速度)时, 通过共振俘获第一个电子开始中和^[2]. 俘获电子后该离子处于里德伯态, 也就是“空心原子”的形成. 这个“空心原子”经过了 Auger 退激、共振自离化和能级位移等过程. 在这些过程中, 电子与电子相互作用发射出低能电子, 导致“空心原子”的半径变小.

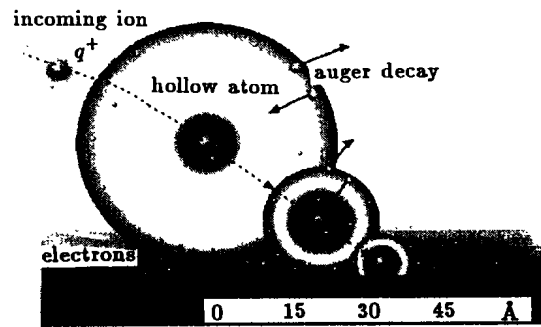


图 5 高电荷态离子与表面相互作用过程图^[17]

当空心原子在进入靶时, 在界面, 由于相互作用而剥掉外壳层的电子; 空心原子进入靶中后, 它吸引导带电子, 形成动态的屏蔽的电子云, 重新中和而形成新的“空心原子”, 进而又发生 Auger 跃迁、碰撞电荷转移、等离子相助的电子俘获和 X 射线跃迁, 对于大 A 的炮弹离子, 其 X 射线跃迁非常显著. Oak Ridge 的 Meyer 等^[10, 11] 和 Lawrence 的 Schenkel 等^[12, 13]、Hattass 等^[14] 对电子发射和 X 射线发射作了大量的研究. 研究发现, 对于不同入射角的炮弹, 其 KLL-Auger 电子发射是不同的.

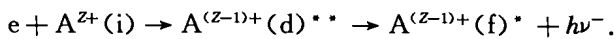
研究 Auger 过程的 K 伴线, 由其能量可以给出电子在填充 K 空穴时的原子的结构, 其相对强度提供 L 壳层填充的时机选择的信息.

总之, 高电荷态离子与金属表面相互作用, 其电子的发射有这样一些过程: 高能壳层已俘获的电子的自离化; 在上表面, 由于能级漂移使原来俘获的电子被发射; 表面对电子的剥离; 空心原子的 Auger 过程; 二元炮弹-电子的碰撞; 固体中的等离子体的激发和衰变; 整体电子受非弹性散射而产生的次级电子级联. 一般地, 每个离子发射的电子, 决定于其自身的电荷和速度, 以及靶的性质. 电子产额是离子荷电的 3 倍量级.

5 光子发射

高电荷态离子与表面相互作用时, 除 Auger 过

程发射的软 X 射线($\lambda > 0.1 \text{ nm}$)光子外, 直接激发(DE)过程、双电子重组(DR)过程、辐射重组(RR)过程也发射光子, 如 DR 过程^[15]:



这是一个共振现象, 是电子与离子碰撞物理的基本过程之一. 这个过程可分 3 步:

第一, 初态的 A^{Z+} 离子记为 $A^{Z+}(i)$ 与电子碰撞. 这个过程同时涉及许多不同电子跃迁: 能级系列间的电子跃迁, 连续态到束缚态的电子跃迁, 束缚态到束缚态的电子跃迁.

第二, 上述过程后, 形成双激发自离化态 $A^{(Z-1)+}(d)^{**}$.

第三, 双激发自离化态 $A^{(Z-1)+}(d)^{**}$ 退激, 发射出光子 $h\nu$, 最后这个离子处于终态 $A^{(Z-1)+}(f)^*$, 而发射的光子 $h\nu$ (能量 keV 量级) 作为这个过程的特征标志.

对 DE, DR 和 RR 过程所辐射的光子特性及其辐射机制的研究, 在高电荷态离子与表面相互作用和原子与离子碰撞中都有很重要的意义, 而且可以为我们提供探索天体物理、等离子体物理的方法和手段. 例如利用 Doppler 展宽、Zeeman 展宽以及线型漂移可以对高温等离子体进行诊断分析, 进而可以研究日冕等^[16].

在高电荷态离子与表面相互作用中, 还有近紫外区的光发射, 特别是小能量的可见光(470—760 nm)发射, 它虽然能量小(跃迁能量正比于 $1/Z^2$, 而高电荷态离子的 Z 较大), 但可见光谱技术是目

前研究原子跃迁辐射的最好工具之一, 用此技术可以研究 DR 和 RR 过程的辐射以及磁偶极辐射, 从而可以给出高电荷态离子与表面相互作用机理的信息, 还可通过光谱直接观察原子的超精细结构.

6 展望

高电荷态离子物理的应用前景广阔, 但是其许多物理过程的机理尚不清楚, 例如高电荷态离子与表面相互作用, 当靶材料为金属时, 涉及到“空心原子”Auger 过程, 多电子与离子碰撞, 后者则是非常复杂的时间相关的多体问题. 目前, 在理论上只有经典过垒模型, 当靶材料为非金属(半导体材料)时, 经典过垒模型非常复杂, 只能用经典的 Monte Carlo 方法. 因此, 不仅是在应用上, 还是在高电荷态离子物理的基本理论上都有很多要做的工作.

我们在中国科学院近代物理所高电荷态 ECR 源和金属离子源实验平台的高电荷态离子原子碰撞终端将进行碰撞过程发射光谱、散射离子位置谱的测量, 以研究离子-原子碰撞过程中多电子俘获过程、“空心原子”的产生机制和团簇碎片的碎裂机制. 由 ECR 引出的高电荷态离子与表面相互作用, 还可重点研究库仑爆炸引起的表面光子和离子产额剧增效应. 在超高电荷态区域, 将重点研究超高电荷态离子对表面的侵蚀和溅射, 测定不同材料的溅射率, 建立高效高精度的表面分析及处理方法. 应用可见光谱技术和 X 射线光谱研究高电荷态离子与表面相互作用中的“空心原子”产生的机理.

参 考 文 献

- [1] Delaunay M, Fehring M, Geller R, *et al.* Electron Emission from a Metal Surface Bombarded by Slow Highly Charged Ions [J]. *Phys Rev*, 1987, **B35**: 4 232.
- [2] Burgdörfer J, Lerner P, Meyer F. Above-surface Neutralization of Highly Charged Ions: The classical over Barrier model [J]. *Phys Rev*, 1991, **A44**: 5 674.
- [3] Xiao G, Schiwietz G, Grand P L, *et al.* Indications for Nuclear-track Guided Electrons Induced by Fast Heavy Ions in Insulators [J]. *Phys Rev Lett*, 1997, **79**: 1 821.
- [4] Niemann D, Grether M, Rösler M, *et al.* Plasma Excitation by Multiply Charged Ne^{q+} Ions Interaction with an Al Surface [J]. *Phys Rev Lett*, 1998, **80**: 3 328.
- [5] Schenkel T, Barnes A V, Niedermayr T R, *et al.* Deposition of Potential Energy in Solids by Slow, Highly Charged Ions [J]. *Phys Rev Lett*, 1999, **83**: 4 273.
- [6] Gillaspay J D, Parks D C, Ratliff L P. Masked Ion Beam Lithography with Highly Charged Ions [J]. *J Vac Sci Technol*, 1998, **B16**(6): 3 294.
- [7] Meyer F W, Yan Q, Emmichoven van, *et al.* On the Neutralization of Singly and Multicharged Projectiles during Grazing Interactions with LiF(100) [J]. *Nucl Instr and Meth, Phys Res*, 1997, **B125**: 138.
- [8] Schenkel T, Hamza A V, Barnes A V, *et al.* Surface Analysis by Highly Charged Ions Based Secondary Ion Mass Spectrometry [J]. *Physica Scripta*, 1999, **T80**: 73.
- [9] Cederquist H, Fardi A, Haghighat K, *et al.* Highly Charged

- Ions Colliding with Atoms, Surfaces and Clusters [J]. *Physican Scripta*, 1999, **T80**, 46.
- [10] Meyer F W, Burgdörfer J, Zehner D M. Electron Emission Buring Interactions of Multicharged N and Ar Ions with Au (110) and Cu(001) Surfaces [J]. *Phys Rev*, 1991, **A44**, 7 214.
- [11] Morozov V A, Meyer F W, Roncin P. Multi-coincidence Studies as a Technique for the Investigation of Ion-surface Interaction [J]. *Physican Scripta*, 1999, **T80**, 69.
- [12] Schenkel T, Briere M A, Schmit-Böcking H, *et al.* Electronic Sputtering of Thin Conductors by Neutralization of Slow Highly Charged Ions [J]. *Phys Rev Lett*, 1997, **78**, 2 481.
- [13] Schenkel T, Barnes M A, Hamza A V, *et al.* Synergy of Electronic Excitation Collision Spikes in Sputtering of Heavy Metal Oxides [J]. *Phys Rev Lett*, 1998, **80**, 4 325.
- [14] Hattass M, Schenkel T, Barnes A V, *et al.* Charge Equilibration Time of Slow, Highly Charged Ions in Solids [J]. *Phys Rev Lett*, 1999, **82**, 4 795.
- [15] Takács E, Ratliff L P, Gillaspay J D. X-ray, Visible and Electron Spectroscopy with the NIST EBI [J]. *Hyperfine Interaction*, 1997, **108**, 59.
- [16] Briand J P, Giardion G, Borsoni G. The Interaction of Slow Highly Charged Ions on Surface [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2000, **71**, 627.
- [17] Hoekstra, Margenstern. Atomic Physics. RIKEN Accelerator Progress Report [M]. Wako-shi, Saitama; The Institute of Physical and Chemical Research. 351-01. Japan, KVI, Report 2000, 301.

Highly Charged Ions Interaction with Surface*

ZHANG Xiao-an^{1,2,3}, XIAO Guo-qing², WANG Wu-sheng², MAO Rui-shi²

(1 *Department of Applied Physics, Xian Jiaotong University, Xian 710049, China* ;

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

3 *Department of Physics, Xianyang Normal College, Xianyang 712000, Shanxi, China*)

Abstract: The interaction between highly charged ions and surface is investigated, the mechanisms for emissions of electrons, photons and scattered neutral particles, negative and positive ions are reviewed. We report a new atomic physics station in ECR and our work plan.

Key words: highly charged ions; interaction; scattering effect; electron emission; photon emission

* **Foundation Item :** National Natural Science Foundation of China (19804012); Chinese Academy of Sciences Foundation for Returned Oversea Chinese Scholar