

快速 C_{60} 离子团在固体中的库仑爆炸过程 I*

球壳层模型

邱华檀 王友年

(大连理工大学物理系, 三束材料改性国家重点实验室, 大连 116023)

(1999 年 12 月 7 日收到)

研究了快速 C_{60} 离子团在固体中穿行时的库仑爆炸过程. 假定离子团中离子之间位置矢量的取向是随机的, 并且采用球壳模型描述 C_{60} 离子团的结构. 借助于线性介电响应理论和等离子-极点近似介电函数, 推导出 C_{60} 离子团自能的解析表达式. 通过数值求解描述离子团半径变化的运动方程, 可以发现自能中的“尾效应”可以降低 C_{60} 离子团的库仑爆炸速度, 甚至可以稳定 C_{60} 离子团的结构.

关键词: 离子团, 库仑爆炸, 球壳模型

PACC: 6180M, 3480B

1 引 言

在过去 20 多年内, 人们对载能离子团簇与固体材料的相互作用过程进行了大量的实验和理论研究. 早在 1974 年, Brandt 等^[1]就从实验中观察到 H_2^+ 和 H_3^+ 在固体中穿行时产生的“库仑爆炸”现象, 并发现了离子团的能量损失不同于相对应的独立运动的离子的能量损失之和. 这是因为当一个原子团以一定的初始速度入射到固体表面上时, 由于它不断地同固体中的原子发生快速地碰撞, 在穿过几个原子层后, 其外层的价电子就被剥离掉, 形成一离子团. 当该离子团在固体中进一步穿行时, 由于内部库仑力的排斥作用, 团中离子之间的距离将逐渐拉开, 产生所谓的“库仑爆炸”现象. 继 Brandt 等的开创性工作之后, 许多人对一些轻离子团或双原子分子离子在固体中的能量损失过程进行了理论研究^[2-8]和实验测量^[9-13].

自从 1985 年在实验室里首次发现了 C_{60} 原子团^[14]以来, 人们对载能 C_{60} 离子团与固体材料相互作用过程的研究也取得了一定的进展. 在实验上, 法国 Orsay 核物理研究所的科学家首次对入射能量从

6 到 30 MeV 的 C_{60} 离子团在碳膜中的能量损失进行了测量^[15, 16]. 此外, 人们还发现金属、半导体及绝缘体等固体材料经载能 C_{60} 离子团辐照后, 其表面的微观结构发生了明显的变化^[17, 18]. 在理论研究方面, Nardi 和 Zinamor^[19]首次采用分子动力学模拟了 C_{60} 离子团在固体中的库仑爆炸过程和能量损失过程. 不过在他们的研究中, 采用了一种排斥性的 Yukawa 形式的相互作用势来描述离子团中离子之间的相互作用. 这种排斥的相互作用势将导致离子团的库仑爆炸速度较快. 最近, 本文的作者之一提出了用球壳层模型^[20, 21]来描述 C_{60} 离子团在固体中穿行时的结构, 并采用线性介电响应理论推导出离子团的经典自能的解析表示式, 定性地指出自能中的尾效应(wake effects)可以降低离子团的库仑爆炸速度, 并稳定其球壳层形结构.

本文将对先前的工作^[20, 21]进行推广, 考虑 C_{60} 离子团中单个离子上的束缚电子分布及采用球壳层模型描述离子团的结构, 利用等离子-极点近似介电函数推导出离子团的自能表示式, 定量地研究自能中的尾效应对离子团的库仑爆炸速度的影响. 为了讨论方便, 本文采用原子单位(au), 即 $m_e = \hbar = e = 1$.

*国家自然科学基金(批准号: 19975008), 教育部优秀年轻教师研究基金(批准号: 98-9)和高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 97014124)资助的课题.

2 自能

将固体中的电子成分看成一密度为 n_0 的电子气, 考虑一快速 C₆₀ 离子团以速度 v_0 入射于固体表面. 由于该离子团中每个离子的质量 M 、核电荷数 Z_1 、速度 v 及核外束缚电子的分布完全等价, 因此在 t 时刻该离子团的电荷空间分布为

$$\rho_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t) = \sum_{j=1}^N [Z_1 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j - \mathbf{v}t) - \rho_n(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j - \mathbf{v}t)], \quad (1)$$

其中 $N = 60$, $\rho_n(\mathbf{R}_j)$ 是每个离子上的束缚电荷分布, $\mathbf{R}_j = \mathbf{r} - \mathbf{r}_j - \mathbf{v}t$ 是团中第 j 个离子的位置矢量. 根据 Brandt-Kitagawa (简称为 BK)^[22] 的模型, 束缚电荷分布可以表示成为

$$\rho_n(R) = \frac{N_c}{4\pi\Lambda^2 R} \exp(-R/\Lambda), \quad (2)$$

其中 N_c 是束缚电子数, $\Lambda = 0.48(1-q)^{2/3} Z_1^{-1/3} [1 - (1-q)^{-1/7}]^{-1}$ 为屏蔽长度, $q = 1 - N_c/Z_1$ 是电离度^[23].

当 C₆₀ 离子团在固体中穿行时, 固体中电子气的平衡状态将受到扰动, 产生极化现象. 根据线性介电理论, C₆₀ 离子团在固体中产生的极化动力学势为

$$\Phi(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2\pi} \int \frac{d^3\mathbf{k}}{k^2} \frac{\rho_0(\mathbf{k})}{\epsilon(\mathbf{k}, \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{v}t)} \sum_{j=1}^N e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j}, \quad (3)$$

其中 $\rho_0(\mathbf{k}) = Z_1 [q + (k\Lambda)^2] \mathcal{U} [1 + (k\Lambda)^2]$, $\epsilon(\mathbf{k}, \omega)$ 为固体的介电函数, 它依赖于频率 ω 及波数 k . 借助于这种动力学势, C₆₀ 离子团的经典自能可以表示为如下:

$$E_T = \frac{1}{2} \int d^3\mathbf{r} \rho_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t) \Phi(\mathbf{r}, t). \quad (4)$$

利用 (1) 和 (3) 式, 不难证明可以将自能写成两项之和, 即 $E_T = E_0 + E_v$, 其中

$$E_0 = \frac{N}{4\pi^2} \int \frac{d^3\mathbf{k}}{k^2} \frac{\rho_0^2(\mathbf{k})}{\epsilon(\mathbf{k}, \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})} \quad (5)$$

是 N 个独立运动的离子在固体中的自能, 而

$$E_v = \frac{1}{4\pi^2} \int \frac{d^3\mathbf{k}}{k^2} \frac{\rho_0^2(\mathbf{k})}{\epsilon(\mathbf{k}, \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})} \sum_{j=1}^N \sum_{l \neq j}^N e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l)} \quad (6)$$

是所谓的邻域 (vicinage) 自能, 它依赖于离子团中离子之间的相对位置矢量. 在如下讨论中, 我们仅对 vicinage 自能感兴趣, 因为它将决定着离子团的库仑爆炸特性.

假定 C₆₀ 离子团中离子之间的位置矢量的取向是随机分布的. 这样, 我们将 (6) 式等号两边对团中离子之间的位置矢量的取向进行球平均, 并利用离子团结构的球壳层模型^[20, 21], 则可以得到

$$E_v = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \rho_0^2(k) F(k, d_c) \int_0^{kv} d\omega \text{Re} \left[\frac{1}{\epsilon(k, \omega)} \right], \quad (7)$$

其中 d_c 是 C₆₀ 离子团的直径, $F(k, d_c)$ 是离子团的结构因子

$$F(k, d_c) = \frac{2N(N-1)}{(1-\alpha^2)^2} [\cos(\alpha d_c k) - \cos(d_c k)], \quad (8)$$

$\alpha = r_{\text{ex}}/d_c$, r_{ex} 是离子团中离子之间的平均间距. 这样在球壳层模型中, C₆₀ 离子团的结构完全由 d_c 和 r_{ex} 这两个参量决定. 但对于大的离子团 ($N \rightarrow \infty$), 可以近似地认为比率 α 是一个常量 $\alpha \approx 2/N^{1/2}$.

由方程 (7) 可以看出, vicinage 自能与固体的介电函数 $\epsilon(k, \omega)$ 有关. 在如下讨论中, 我们将限制离子团的入射速度大于 Bohr 速度 v_B , 因此可以使用等离子-极点近似 (plasmon-pole approximation, 简称 PLA) 介电函数^[24]

$$\epsilon(k, \omega) = 1 + \frac{\omega_p^2}{k^4/4 + \beta^2 k^2 - \omega(\omega + i\gamma)} \quad (9)$$

来计算 vicinage 自能. 在方程 (9) 中, $\omega_p = (4\pi n_0)^{1/2}$ 是固体中电子气的振荡频率, γ 是表示电子气振荡衰减的无穷小正数, $\beta = (3/5)^{1/2} v_F$ 是电子气密度扰动的传播速度, $v_F = (3\pi^2 n_0)^{1/3}$ 是 Fermi 速度. 在这种介电函数中, $k^4/4$ 项是单粒子动能的平方, 它包含了单粒子的激发效应.

将 PLA 介电函数代入 (7) 式, 引入无量纲的变量 $u = \omega/kv_F$, 并利用复变积分中的残数公式, 则可以把 vicinage 自能写成三项之和

$$E_v(d_c) = E_d^{(1)}(d_c) + E_d^{(2)}(d_c) + E_d^{(3)}(d_c), \quad (10)$$

其中 $E_d^{(1)}(d_c)$ 来自于函数 $\rho_0(k)$ 中极点 $k = i/\Lambda$ 的贡献, 它的形式为

$$E_d^{(1)}(d_c) = -\frac{Z_1^2 N(N-1)}{2(1-\alpha^2)d_c^2} \Delta [G(\alpha d_c/\Lambda) e^{-\alpha d_c/\Lambda} - G(d_c/\Lambda) e^{-d_c/\Lambda}], \quad (11)$$

其中 $G(x) = (q-1)(3q+1) + (q-1)^2 x$. 可以看出, 对于完全电离的离子团, 即 $q=1$, 则 $E_d^{(1)}(d_c) = 0$. 一般的情况下, 屏蔽长度 Λ 的值远小于离子团的直径 d_c , 因此 $E_d^{(1)}(d_c)$ 对自能的贡献很小.

可以证明当变量 $u_1 < u < u_2$ 时, PLA 介电函数的零点(即 $\epsilon(k, \omega) = 0$)可以在 k 的复平面上产生四个极点, 它们分别为 $\delta_+ \pm i\delta_-$ 和 $-(\delta_+ \pm i\delta_-)$, 其中 $\delta_{\pm} = v_F \sqrt{(u_c^2 \pm (u^2 - 3/5))}$, $u_1 = \sqrt{3/5 - u_c^2}$, $u_2 = \sqrt{3/5 + u_c^2}$, $u_c = \omega_p / v_F$. 这样考虑了这四个极点对自能的贡献后(10)式等号右边的第二项 $E_d^{(2)}(d_c)$ 可以表示成为

$$E_d^{(2)}(d_c) = \frac{(Z_1 q)^2 N(N-1)}{2(1-\alpha^2)d_c^2} \left(\frac{v_F}{v} \right) \int_{u_1}^{u_2} du H(u, d_c), \quad (12)$$

其中

$$H(u, d_c) = [W_1 \cos(\alpha \delta_+ d_c) - W_2 \sin(\alpha \delta_+ d_c)] e^{-\alpha \delta_- d_c} - [W_1 \cos(\delta_+ d_c) - W_2 \sin(\delta_+ d_c)] e^{-\delta_- d_c}, \quad (13)$$

$$W_1 = \frac{\delta_+^2 + \delta_-^2 - (2uv_F)^2}{\delta_- (\delta_+^2 + \delta_-^2)}, \quad (14)$$

$$W_2 = \frac{\delta_+^2 + \delta_-^2 + (2uv_F)^2}{\delta_+ (\delta_+^2 + \delta_-^2)}. \quad (15)$$

我们在给出(12)式时, 考虑到量 $(u_c v_F \Lambda)^2$ 远小于 1 或 q , 已经做了如下近似 $\rho_0(k) \approx Z_1 q$. 类似地, 对于 $u > \sqrt{3/5 + u_c^2}$, $\epsilon(k, \omega) = 0$ 也可以在 k 的复平面上产生四个极点, 它们分别为 $\eta_+ + i\gamma$, $-\eta_+ - i\gamma$, $\eta_- - i\gamma$ 及 $-\eta_- + i\gamma$, 其中 $\eta_{\pm} = v_F (\sqrt{u^2 - 3/5 + u_c^2} \pm \sqrt{u^2 - 3/5 - u_c^2})$. 这四个极点对自能的贡献即(10)式等号右边的第三项为

$$E_d^{(3)}(d_c) = \frac{N(N-1)}{(1-\alpha^2)d_c^2} \left(\frac{v_F}{v} \right) \int_{u_2}^{v/v_F} du P(u, d_c), \quad (16)$$

其中

$$P(u, d_c) = \rho_0^2(\eta_-) \frac{\eta_-^2 - (2uv_F)^2}{\eta_- (\eta_+^2 - \eta_-^2)} \cdot [\sin(\alpha \eta_- d_c) - \sin(\eta_- d_c)] - \rho_0^2(\eta_+) \frac{\eta_+^2 - (2uv_F)^2}{\eta_+ (\eta_+^2 - \eta_-^2)} \cdot [\sin(\alpha \eta_+ d_c) - \sin(\eta_+ d_c)]. \quad (17)$$

当 C_{60} 离子团的入射速度非常高时, 即 $v \gg v_F$, 则根据(7)式及 PLA 介电函数, 可以得到 Yukawa 形式的自能表示式为

$$E_v = \frac{Z_1^2 N(N-1)}{(1-\alpha^2)d_c^2} \lambda_p^{-1} \Psi(d_c), \quad (18)$$

其中

$$\Psi(d_c) = \left(\frac{q - \tau_p^2}{1 - \tau_p^2} \right)^2 (e^{-\alpha \lambda_p d_c} - e^{-\lambda_p d_c}) - \frac{(q-1)\tau_p [3q+1 - (3+q)\tau_p^2]}{2(1-\tau_p^2)^2} \cdot (e^{-\alpha d_c/\Lambda} - e^{-d_c/\Lambda}) - \frac{(q-1)^2}{2(1-\tau_p^2)} (\lambda_p d_c) \alpha e^{-\alpha d_c/\Lambda} - e^{-d_c/\Lambda}, \quad (19)$$

$\lambda_p = \omega_p / v$ 及 $\tau_p = \lambda_p \Lambda$. 对于完全电离的离子团($q = 1$)则(18)式即为由 N 点电荷组成的离子团的 Yukawa 形式的自能^[19].

应当指出, 由(10)式给出的离子团的 vicinage 自能包含了介质的极化效应, 即自能将随 d_c 的变化呈现出空间振荡的特性, 这就是所谓的“尾效应”. 而由(18)式给出的 Yukawa 形式的自能是一种纯粹的排斥能, 它忽略了自能中的尾效应, 仅适用于当离子团的速度较高及当半径较大的情况. 为了说明这一点, 对于不同入射速度的 C_{60} 离子团在 Al 靶中穿行, 我们在图 1(a)—图 1(c), 显示了约化自能 $\bar{E}_v = 2E_v / Z_1^2 N(N-1)$ 随离子团半径 $r_c = d_c/2$ 的变化, 其中实线为由包含尾效应的自能(10)式给出的结果, 而虚线则是由 Yukawa 形式的自能(18)式给出的结果. 可以看出, 在入射速度不是太高时(见图 1(a)), 尾效应将在自能中产生一个势阱. 而当入射速度逐渐增大时, 该势阱则逐渐变浅. 后面我们将看到, 这种势阱将对离子团的结构起稳定化作用.

3 库仑爆炸

在先前的工作中^[20, 21], Yukawa 形式的自能被用于研究 C_{60} 离子团在固体中的库仑爆炸过程, 并发现这种排斥性的自能导致离子团的库仑爆炸速度非常快. 而在上节我们已经看到, vicinage 自能中包含了尾效应, 自能呈现出空间振荡的形式. 我们期望自能中的这种尾效应将对离子团的库仑爆炸过程产生一定的影响.

在如下讨论中, 我们假定 C_{60} 离子团的库仑爆炸过程是绝热的, 且离子团中所有的离子在质心坐标系中都是以相同的径向速度 v_c 运动. 这样根据离子团的内能平衡条件, 可以得到离子团半径 $r_c(t)$ 随时间 t 的变化方程为

$$\frac{dr_c}{dt} = v_c, \quad (20)$$

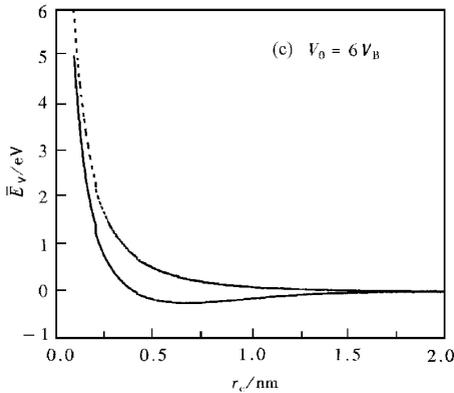
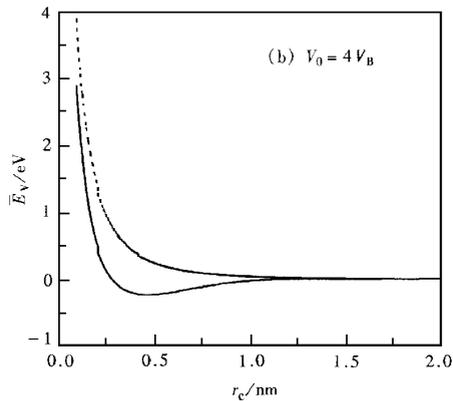
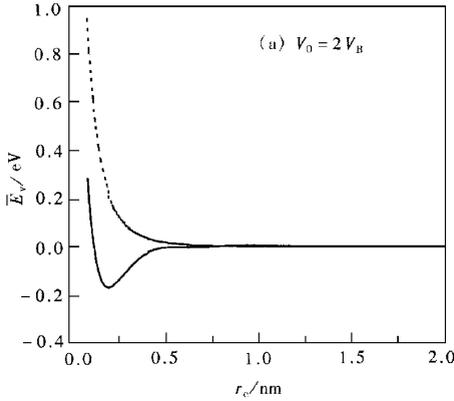


图1 不同入射速度的 C_{60} 离子团在 Al 膜中穿行时约化自能 $\bar{E}_v = 2E_v/Z_1^2 N(N-1)$ 随其半径 r_c 的变化。实线是由包含尾效应的自能(10)式给出的结果; 虚线是 Yukawa 形式的自能(18)式给出的结果。

$$M \frac{dv_c}{dt} = F_v(r_c), \quad (21)$$

其中

$$F_v(r_c) = -\frac{1}{N} \frac{dE_v(r_c)}{dr_c} \quad (22)$$

是作用在每个离子上的平均力,它是来自于离子团中其他 $N-1$ 个离子产生的平均场。这样,利用初始

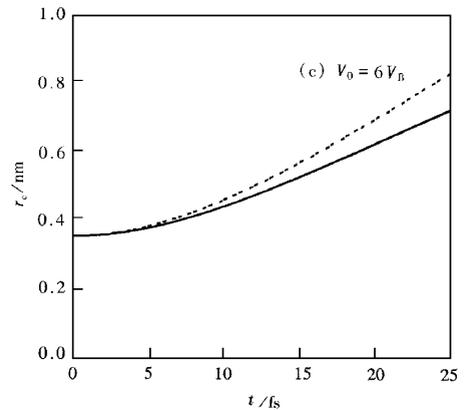
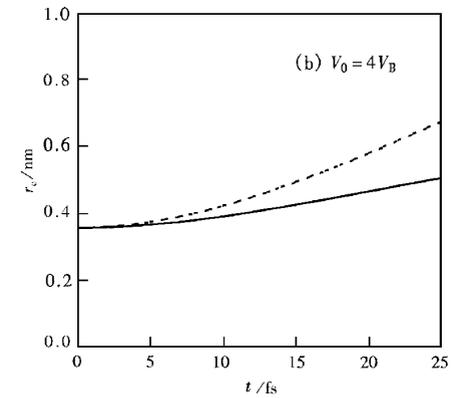
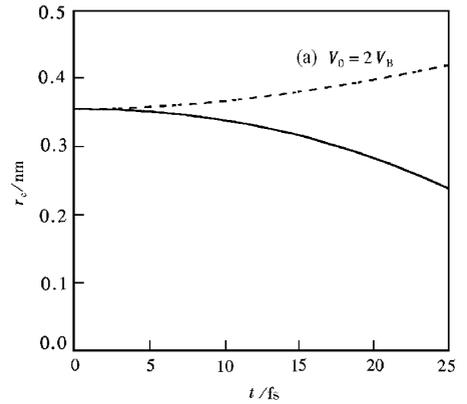


图2 不同入射速度的 C_{60} 离子团在 Al 膜中穿行时其半径 r_c 随穿行时间 t 的变化。实线是由包含尾效应的自能给出的结果; 虚线是 Yukawa 形式的自能给出的结果。

条件 $r_c(0) = 6.7$ 及 $v_c(0) = 0$, 则通过数值求解方程(20)和(21), 就可以得到离子团的半径 $r_c(t)$ 随穿行时间 t 的变化情况, 即离子团的库仑爆炸过程。

在图 2(a)—图 2(c) 我们显示了不同入射速度的 C_{60} 离子团在 Al 靶中穿行时其半径 $r_c(t)$ 随穿行时间 t 的变化情况, 其中实线是由包含尾效应的自

能(10)式]给出的结果,而虚线则是由 Yukawa 形式的自能(18)式]给出的结果.可以看出,当离子团的入射速度相对较低时,见图 2(a)及图 2(b),自能中的尾效应可以稳定离子团的结构,甚至可以稍微压缩离子团的结构,这是因为自能中的尾效应产生的势阱[见图 1(a)]对离子团中离子的运动有一定的约束作用,而 Yukawa 形式的自能则导致离子团快速的库仑爆炸.

4 结 论

本文采用一种球壳层模型描述了 C_{60} 离子团的结构并根据 BK 模型确定了离子团中单个离子上的束缚电子分布.在此基础上,利用线性介电响应理论和 PLA 介电函数,我们推导出了离子团的 vicinage 自能的半解析表示式.数值结果表明,固体中电子气激发的尾效应使得自能随离子团半径的变化而振

荡,尤其当离子团的入射速度不是太高时,自能的这种振荡行为特别明显.根据离子团在库仑爆炸过程中内能守恒条件,我们建立了描述离子团半径变化的运动方程.通过求解该运动方程,可以发现自能中的尾效应可以降低离子团的库仑爆炸速度,尤其是对于入射速度不是太高的离子团,尾效应使得离子团的结构变得较为稳定.

需要说明一点的是,本文采用球壳层模型来描述 C_{60} 离子团在固体中穿行时的结构变化是一个相当强的简化假定,它仅适用于离子团在固体中穿行时间不是太长的情况.在一般情况下,作用在离子团中不同离子上的动力学相互作用力并不相同,且这种力也不是各向同性分布的.特别当离子团在固体中穿行时间较长时,这种动力学力将使得 C_{60} 离子团的结构变成非球对称性.关于这一点,我们另文中详细讨论.

-
- [1] W. Brandt, A. Ratkowski, R. H. Ritchie, *Phys. Lett.*, **33** (1974), 1325.
- [2] W. Brandt, R. H. Ritchie, *Nucl. Instr. Meth.*, **132**(1976) 43.
- [3] N. R. Arista, *Phys. Rev.*, **B18**(1978) 1.
- [4] G. Basbas, R. H. Ritchie, *Phys. Rev.*, **A25**(1982) 1943.
- [5] I. Nagy, A. Arnau, P. E. Echenique, *Nucl. Instr. Meth.*, **B48** (1990) 54.
- [6] P. Echenique, F. Flores, R. H. Ritchie, *Solid State Phys.*, **43** (1990) 229.
- [7] Y. N. Wang, T. C. Ma, *Phys. Lett.*, **A178**(1973) 209.
- [8] Y. N. Wang, T. C. Ma, *Phys. Rev.*, **A50**(1994) 3192.
- [9] J. W. Tape, W. M. Gibson, J. Remillieux, R. Laubert, H. E. Wegner, *Nucl. Instr. Meth.*, **132**(1976) 75.
- [10] J. C. Eckardt, G. H. Lantschner, N. R. Arista, R. A. Baragiola, *J. Phys. C: Solid State Phys.*, **11**(1978) L851.
- [11] M. F. Steuer, D. S. Gemmel, E. P. Kanter, G. J. Zabransky, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **NS-30**(1983) 1069.
- [12] E. Ray, R. Kirsch, H. H. Mikkelsen, J. C. Poizat, J. Remillieux, *Nucl. Instr. Meth.*, **B69**(1992) 133.
- [13] T. Kaneko, *Nucl. Instr. Meth.*, **B153**(1999) 15.
- [14] H. W. Kroto, J. R. Heath, S. C. O'Brien, R. F. Curl, *Nature*, **318**(1985) 162.
- [15] K. Baudin et al., *Nucl. Instr. Meth.*, **B96**(1994) 341.
- [16] A. Brunelle et al., *Nucl. Instr. Meth.*, **B125**(1997) 207.
- [17] B. Canut, S. M. M. Ramas, *Radiat. Eff. and Defects in Solids*, **145**(1998) 1.
- [18] J. Jensen, A. Dunlop, S. Della-Negra, H. Pascard, *Nucl. Instr. Meth.*, **B135**(1998) 295.
- [19] E. Nardi, Z. Zinamon, *Phys. Rev.*, **A51**(1995) R3407.
- [20] Z. L. Miškovic, W. K. Liu, Y. N. Wang, *Phys. Rev.*, **A57** (1998) 362.
- [21] Z. L. Miškovic, W. K. Liu, Y. N. Wang, *Phys. Rev.*, **A58** (1998) 2191.
- [22] W. Brandt, M. Kitagawa, *Phys. Rev.*, **A25**(1982) 5631.
- [23] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark, *The Stopping and Ranges of Ions in Matter*, Vol. 1 (Pergamon, Oxford, 1985).
- [24] P. M. Echenique, R. H. Ritchie, W. Brandt, *Phys. Rev.*, **B20** (1979) 2567.

COULOMB EXPLOSIONS FOR SWIFT C_{60} ION-CLUSTERS PENETRATING IN SOLIDS I ^{*} THE MODEL OF SPHERICAL SHELL

QIU HUA-TAN WANG YOU-NIAN

(*State Key Laboratory for Material Modification by Laser, Ion and Electron Beams, Dalian University of Technology, Dalian 116023, China*)

(Received 7 December 1999)

ABSTRACT

We study the Coulomb explosions for swift C_{60} ion-clusters penetrating through solids. Assuming that the directions of relative position vectors between ions in the cluster are random distributions and using the spherical-shell model to describe the structures of the C_{60} ion-cluster, some analytical expressions of the self-energy of the cluster are obtained based on the linear-response dielectric theory with the PLA dielectric function. It has been found that by solving the equations of motion for the cluster radius, the wake effects in the self-energy can reduce the Coulomb explosions, and even stabilize the cluster structure.

Keywords : ion-clusters, Coulomb explosions, spherical-shell model

PACC : 6180M, 3480B

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19975008), by the Foundation for Outstanding Young Teachers of the State Education Ministry of China (Grant No. 98-9) and by the Doctoral Program Foundation of the Institution of Higher Education of China (Grant No. 97014124).