

快速 H_2^+ 在固体中穿行时产生的动力学 相互作用力及库仑爆炸图形的演化^{*}

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)

(1998 年 8 月 5 日收到; 1998 年 11 月 16 日收到修改稿)

模拟了快速 H_2^+ 在固体中穿行时产生的库仑爆炸过程. 作用在单个氢离子 H^+ 上的力分别由阻止力、屏蔽的库仑力及尾力所组成. 借助于等离子-极点近似介电函数, 屏蔽的库仑力和尾力可由线性介电响应理论来确定. 假定在初始入射时分子轴相对入射速度方向的取向是随机的. 模拟结果表明: 由于动力学相互作用力的影响, 分子离子在穿行过程中其分子轴的取向明显地偏向于入射速度的方向.

PACC: 6180M; 3480B

1 引 言

当一快速分子离子在固体中穿行时, 由于它与固体中原子不断地进行碰撞, 其外壳层价电子将很快地被电离掉, 形成一离子团. 在内部库仑力的排斥作用下, 随着穿行深度的增加, 团中离子之间的距离则逐渐变大, 这就是所谓的“库仑爆炸”现象. 早在 1974 年 Brandt 等人^[1]就从实验中观察到库仑爆炸现象, 并发现了分子离子在固体中的能量损失明显不同于相对应的独立运动的原子离子的能量损失之和. 实际上, 这种能量损失的差别是由于离子团中各个离子在固体中产生的电激发相互干扰的结果.

在过去 20 多年内, 许多作者^[2-12]已采用不同的理论模型对双原子分子离子在固体中的能量损失进行了较详细的研究. 在一般情况下, 分子离子的能量损失与其在固体中的库仑爆炸图形(分子轴的长短及取向)紧密相关. 然而在这些研究中, 都是假定分子轴相对入射速度方向的取向是随机分布的, 或者是分子轴是有平行和垂直于入射速度方向的两个分量. 实际上, 当一双原子分子离子在固体中穿行时, 两离子之间的动力学相互作用力(由电子气的激发而产生的)相对入射速度方向是非对称的. 这种动力学相互作用力的非对称性将影响着分子离子的库仑爆炸过程.

最近, Jakas 和 Capuj^[13-15]研究了快速 H_2^+ 在固体中穿行时的库仑爆炸过程. 在他们的工作中, 将动力学相互作用力分解成屏蔽的库仑力和尾力, 而后者是由一种唯象的局域介电函数给出的. 然而这种局域介电函数并不包含等离子体的色散效应, 且仅适用于高速入

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 19575008)和国家教育部重点科学技术项目基金(批准号: 97-129)资助的课题.

射离子的情况. 本文将采用 Monte-Carlo 方法模拟 H_2^+ 的库仑爆炸过程. 一种包含等离子色散效应的等离子-极点近似的介电函数将用来自洽地确定动力学相互作用力. 我们期望等离子体的色散效应将对库仑爆炸图形的演化过程产生明显地影响. 为了讨论方便, 本文采用原子单位(a. u.), 即 $m_e = \hbar = e = 1$.

2 动力学相互作用力

考虑一快速分子离子 H_2^+ 以初速度 v_0 入射到固体表面上, 入射方向沿 x 轴. 大约穿过几个原子层, H_2^+ 上的外壳层电子很快被剥离掉, 并分解成两个质子. 借助于线性介电响应理论, 单个质子在固体电子气中产生的动力学势(在 x - z 平面上)为^[16]

$$\Phi(\tilde{x}, 0, z, v) = \frac{1}{\pi v} \int_0^\infty \kappa J_0(z\kappa) d\kappa \int_{-\infty}^\infty \frac{d\omega}{k^2 \epsilon(k, \omega)} \exp(i\omega \tilde{x} / v), \quad (1)$$

其中 $\tilde{x} = x - vt$, $\epsilon(k, \omega)$ 为介电函数, 它依赖于频率 ω 及波数 k , $J_0(z\kappa)$ 是零阶 Bessel 函数. 由于在穿行过程中, 质子的速度 v 相对于初始速度 v_0 变化很小, 故我们在给出方程(1)时已假定 v 的方向仍沿 x 轴方向. 借助于这种动力学势, 分子离子 H_2^+ 中两质子之间的动力学相互作用力可以表示为

$$\mathbf{F}(\mathbf{R}, v) = - \left[\frac{\partial \Phi(\tilde{x}, 0, z, v)}{\partial x} \mathbf{e}_x + \frac{\partial \Phi(\tilde{x}, 0, z, v)}{\partial z} \mathbf{e}_z \right] (\tilde{x} = X, z = Z), \quad (2)$$

其中 $\mathbf{R} = (X, Z)$ 是两质子之间的相对位置矢量, $\mathbf{e}_x$ 及 $\mathbf{e}_z$ 分别是沿着正 x 轴和正 z 轴的单位矢量.

由方程(1)可以看出, 动力学势与固体的介电函数 $\epsilon(k, \omega)$ 有关. 一些作者^[16-18]曾经使用不同近似形式的介电函数来计算快速带电粒子在固体中产生的动力学势, 其中最简单的是所谓的局域近似介电函数. 这种介电函数不包含固体中电子气的单粒子激发效应, 仅适用于入射离子的速度非常高的情况. 在如下讨论中, 我们将使用等离子-极点近似 (Plasmon-Pole Approximation, 简称 PLA) 介电函数

$$\epsilon(k, \omega) = 1 + \frac{\omega_p^2}{\beta^2 k^2 + k^4/4 - \omega(\omega + i\gamma)}. \quad (3)$$

其中 $\omega_p = (4\pi n_0)^{1/2}$ 是固体中电子气的振荡频率, n_0 是电子气的密度, 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.

使用 PLA 介电函数, Echenique 等人^[16]曾推导出动力学势的半解析表示式. 本文中, 所感兴趣的是粒子之间的动力学相互作用力. 在种情况下, 很容易证明动力学相互作用力可以分成两部分

$$\mathbf{F}(\mathbf{R}, v) = \mathbf{F}_C(\mathbf{R}, v) + \mathbf{F}_w(\mathbf{R}, v), \quad (4)$$

其中 $\mathbf{F}_C(\mathbf{R}, v)$ 是屏蔽的库仑力, 它的两个分量 F_{Cx} 和 F_{Cz} 分别为

$$F_{Cx}(X, Z, v) = \frac{X}{R^3} - \frac{1}{\lambda_p^2} \frac{X}{|X|} \int_0^\infty q \frac{J_0(qZ)}{q^2 + \lambda_p^{-2}} e^{-q|X|} dq, \quad (5)$$

及

$$F_{Cz}(X, Z, v) = \frac{Z}{R^3} - \frac{1}{\lambda_p^2} \int_0^\infty q \frac{J_1(qZ)}{q^2 + \lambda_p^{-2}} e^{-q|X|} dq, \quad (6)$$

这里 $\lambda_p = v/\omega_p$ 是屏蔽长度, J_1 是一阶 Bessel 函数. 可以看出: 交换两粒子的相对位置, 即 $\mathbf{R} \rightarrow -\mathbf{R}$, 屏蔽的库仑力是反对称的. 此外, 很容易证明: 当 $\lambda_p \rightarrow 0$ 时, 裸库仑力 $\mathbf{R}/R^3$ 完全被电子气所屏蔽, 即 F_{Cx} 和 F_{Cz} 趋于零. 在方程(4)中, $\mathbf{F}_w$ 是尾力, 它来自于电子气的单粒子激发和集体激发. $\mathbf{F}_w$ 的两个分量为

$$\begin{aligned} F_{wx}(X, Z, v) = & -2\omega_p^2 \int_0^\infty q J_0(\sqrt{2}qZ) \frac{\cos(\sqrt{2}\zeta_\pm X)}{\delta^2(q^2 + \zeta_\pm^2)} dq \\ & - \omega_p^2 \left| \frac{X}{X|} \right| \int_{q_c}^\infty q J_0(\sqrt{2}qZ) \frac{(N_1 + N_2)e^{-\sqrt{2}q\eta_\pm |X|}}{\eta_+ (\eta_+^2 + \eta_-^2) D} dq, \end{aligned} \quad (7)$$

及

$$\begin{aligned} F_{wz}(X, Z, v) = & 2\omega_p^2 \int_0^\infty q^2 J_1(\sqrt{2}qZ) \frac{\sin(\sqrt{2}\zeta_\pm X)}{\delta^2 \zeta_\pm (q^2 + \zeta_\pm^2)} dq \\ & - \omega_p^2 \int_{q_c}^\infty q^2 J_1(\sqrt{2}qZ) \frac{N_1 e^{-\sqrt{2}q\eta_\pm |X|}}{\eta_+ \eta_- (\eta_+^2 + \eta_-^2) D} dq, \end{aligned} \quad (8)$$

其中

$$\zeta_\pm = (\alpha^2 \pm \delta^2)^{1/2}, \quad \alpha^2 = v^2 - \beta^2 - q^2, \quad \delta^2 = \sqrt{2}v(q^2 - q_c^2)^{1/2},$$

$$\eta_\pm = [(q^4 + 2\beta^2 q^2 + \omega_p^2)^{1/2} \pm \alpha^2]^{1/2} / \sqrt{2},$$

$$N_1 = \eta_+ (q^2 + \eta_+^2 - 3\eta_-^2) C + \eta_- (q^2 + 3\eta_+^2 - \eta_-^2) S,$$

$$N_2 = \eta_+ (q^2 + \eta_+^2 - 3\eta_-^2) S + \eta_- (q^2 + 3\eta_+^2 - \eta_-^2) C,$$

$$C = \cos(\sqrt{2}\eta_- X),$$

$$S = \sin(\sqrt{2}\eta_- |X|),$$

$$D = (q^4 + \eta_+^2 - \eta_-^2)^2 + 4\eta_+^2 \eta_-^2.$$

在(7)和(8)式中, 变量 ζ_+ 和 ζ_- 分别对应于 $X > 0$ 和 $X < 0$ 的情况, 积分上限 q_c 为 $q_c = [(v^2 - \beta^2)^2 - \omega_p^2]^{1/2} / (\sqrt{2}v)$. 从(7)和(8)式, 可以看出: 尾力 $\mathbf{F}_w$ 随两粒子之间距离的变化呈现出明显地振荡性, 且当交换两粒子之间的位置时, 它具有很强的非对称性.

Jakas 和 Capuj^[13-15]曾利用 Vager 和 Gemment 给出的尾势^[19], 得到了如下形式的尾力

$$F_{wx}(X, Z, v) = -\frac{2}{\lambda_p^2} \cos(X/\lambda_p) K_0(\sqrt{Z^2 + v^{-2}}/\lambda_p) \exp(-\gamma|X|/2v) \Theta(-X), \quad (9)$$

$$F_{wz}(X, Z, v) = -\frac{2Z \cos(X/\lambda_p)}{\lambda_p^2 \sqrt{Z^2 + v^{-2}}} K_1(\sqrt{Z^2 + v^{-2}}/\lambda_p) \exp(-\gamma|X|/2v) \Theta(-X), \quad (10)$$

其中 K_0, K_1 为零阶和一阶第二类 Bessel 函数, $\Theta(-X)$ 是阶跃函数. 事实上, 这种尾力是建立在所谓的局域近似介电函数基础之上的. 为了考虑单粒子激发效应, Vager 和 Gemment 在 Bessel 函数中引入了一个唯象的因子 v^{-2} .

根据上述方程, 图 1(a)–(d) 显示了初速度为 $v_0 = 2\text{a.u.}$ 的 H_2^+ 在碳膜中穿行时尾力随相对距离 X 和 Z 的变化. 图中的虚线为由方程 (9) 和 (10) 计算出的尾力. 我们注意到: 对于较小的 Z 值和较高的速度, 方程 (9) 和 (10) 中的 Bessel 函数是发散的. 因此, 由方程 (9) 和 (10) 给出的尾力远大于由 PLA 介电函数给出的尾力. 可以预料这种尾力上的差别将导致库仑爆炸图形的不同. 此外, 我们还观察到, F_{wx} 和 F_{wz} 随 X 的变化显示出明显的非对称性, 随 Z 的变化则显示出反对称性.

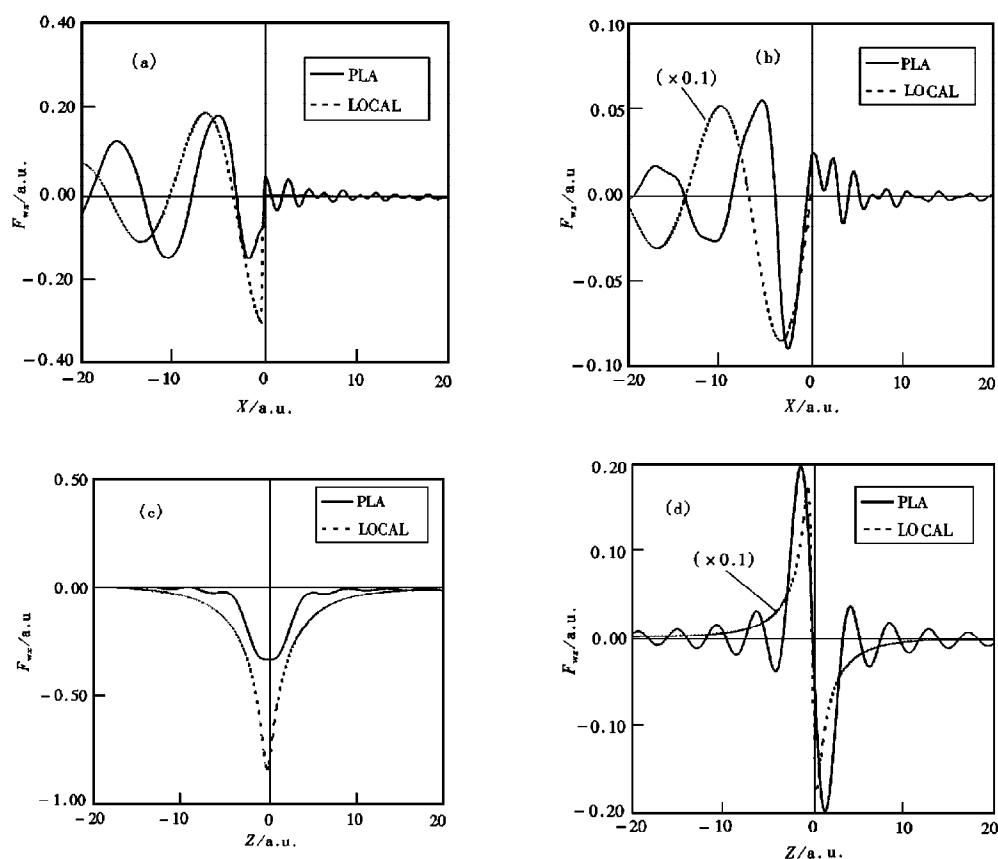


图 1 初始速度 $v_0 = 2\text{a.u.}$ 的 H_2^+ 在碳膜中穿行时尾力随相对位置的变化. 实线是由 PLA 介电函数给出的, 虚线是方程 (9) 和 (10) 给出的.

3 库仑爆炸及 Vicinage 效应

当 H_2^+ 在固体中穿行时, 阻止力、屏蔽的库仑力及尾力将同时作用在单个质子 H^+ 上. 在 x - z 平面上, H_2^+ 中单个质子的运动方程为

$$\frac{d\mathbf{r}_i}{dt} = \mathbf{v}_i, \quad (11)$$

$$m_i \frac{d\mathbf{v}_i}{dt} = \mathbf{F}_s(\mathbf{v}_i) + \mathbf{F}_C(\mathbf{r}_{ij}, \mathbf{v}_j) + \mathbf{F}_w(\mathbf{r}_{ij}, \mathbf{v}_i) \quad (i, j = 1, 2; \quad i \neq j), \quad (12)$$

其中 $\mathbf{r}_{12} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2 = \mathbf{R}$, $m_1 = m_2 = m_p$ 为质子的质量, 屏蔽的库仑力 $\mathbf{F}_C$ 及 $\mathbf{F}_w$ 由上节(5)–(8)式给出. 在(12)式中, $\mathbf{F}_s$ 是阻止力, 它可由单个质子产生的动力学势给出

$$\mathbf{F}_s(\mathbf{v}) = - \left[\frac{\partial \Phi(\tilde{\mathbf{x}}, 0, \mathbf{z}, \mathbf{v})}{\partial \mathbf{x}} \mathbf{e}_x + \frac{\partial \Phi(\tilde{\mathbf{x}}, 0, \mathbf{z}, \mathbf{v})}{\partial \mathbf{z}} \mathbf{e}_z \right] \quad (\tilde{\mathbf{x}} = 0, \mathbf{z} = 0). \quad (13)$$

根据方程(1)及 PLA 介电函数, 很容易得到

$$F_{sx}(\mathbf{v}) = - \frac{\omega_p^2}{2v^2} \ln \left(\frac{\tilde{v}^2 + v^2}{\tilde{v}^2 - v^2} \right), \quad (14)$$

及

$$F_{sz}(\mathbf{v}) = 0, \quad (15)$$

其中 $\tilde{v}^2 = v^2 - \beta^2$, $v^2 = (\tilde{v}^2 - \omega_p^2)^{1/2}$. 可以看出阻止力仅依赖于质子的速度.

在大多数实验中, 分子离子在没有入射到固体表面之前, 其分子轴的取向是随机的. 因此, 在 H_2^+ 中两个质子的初始位置可以分别表示为 $(R_0 \cos \phi_0, R_0 \sin \phi_0)$ 和 $(0, 0)$, 其中 $R_0 = 1.06 \text{ a.u.}$ 是初始键长, ϕ_0 是初始方位角, 在 0 到 2π 之间随机地取值. 这样, 采用 Monte-Carlo 方法对不同入射分子离子的分子轴的初始取向进行随机抽样, 并通过数值方法求解方程(11)和(12), 可以得到两个质子的相对位置 (X, Z) 随入射深度 $D = v_0 t$ 变化的图形. 图 2(a)–(d) 显示了 200 个速度为 $v_0 = 2 \text{ a.u.}$ 的分子离子 H_2^+ 在碳膜中穿行时的库仑爆炸图形的演化过程. 为了比较, 我们在图 2(a) 中给出了初始相对轨迹. 从图 2(b)–(d) 可以看出, 随着穿行深度的增加, 离子之间的相对距离逐渐变大, 且几乎所有的分子轴的方向都趋向于偏向初始速度的方向, 这是因为平行于束方向的尾力 F_{wx} 大于垂直于束方向的尾力 F_{wz} 的结果. 图 3 是利用方程(9)和(10)给出的尾力算出的相对轨迹. 与图 2(c) 相比较, 可以看出: 由于没有考虑电子气中的单粒子激发效应, 粒子之间的相对距离散射得较开.

图 4 显示了 H_2^+ 在碳膜穿行中单个质子的能量损失 $\Delta E = m_p(v_0^2 - v^2/2)$, 其中分子轴的初始取向的方位角为 30° , 入射速度 $v_0 = 4 \text{ a.u.}$. 可以看出, 由于“尾随离子”运动时必须克服“导航离子”运动产生的尾力, 因此其能量损失明显地大于导航离子的能量损失. Susuki 在研究 H_2^+ 在固体表面上的散射过程时也观察到类似的现象^[20].

根据方程(12), 很容易得到 H_2^+ 的阻止本领(在单位路径上的能量损失)为

$$S_{\text{mol}}(X, Z, v_1, v_2) = S_p(v_1) + S_p(v_2) + S_v(X, Z, v_1, v_2), \quad (16)$$

其中 $S_v(X, Z, v_1, v_2) = -\langle F_{wx}(X, Z, v_1) \rangle - \langle F_{wz}(X, Z, v_2) \rangle$ 是所谓的“Vicinage”阻止本领, 它与两质子运动产生的电激发过程的相互干扰效应有关, 符号 $\langle \rangle$ 表示对粒子的轨迹进行平均; $S_p(v) = -\langle F_s(v) \rangle$ 是速度为 v 的单个质子在固体中穿行时的阻止本领. 图 5 显示了阻止本领比率 $Q = 1 + S_v(X, Z, v_1, v_2) / [S_p(v_1) + S_p(v_2)]$ 在不同的入射速度情况下, 随入射深度 D 的变化.

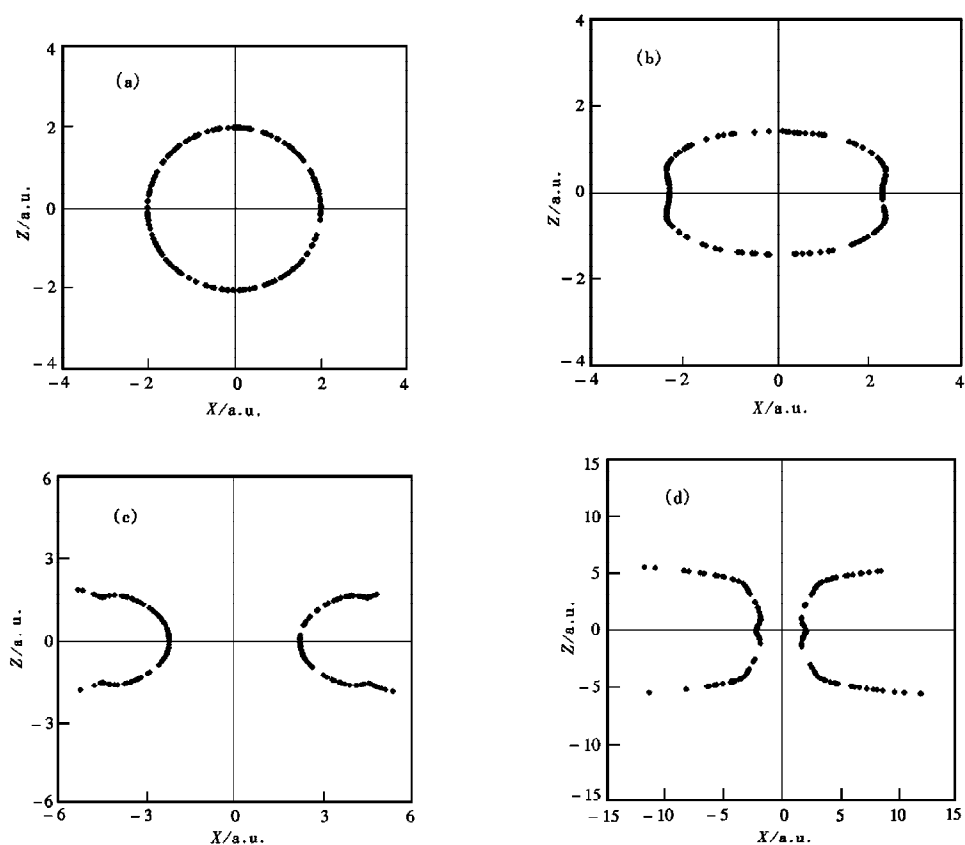


图2 200个初始速度 $v_0 = 2 \text{ a.u.}$ 的 H_2^+ 的碳膜中穿行时库仑爆炸图形的演化, 其中尾力是由 PLA 介电函数给出的 (a) 初始图形 $D=0$; (b) $D=200 \text{ a.u.}$; (c) $D=500 \text{ a.u.}$; (d) $D=800 \text{ a.u.}$

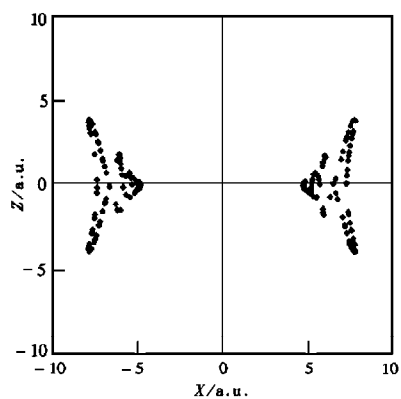


图3 200个初始速度 $v_0 = 2 \text{ a.u.}$ 的 H_2^+ 在碳膜中穿行时库仑爆炸图形的演化, 其中尾力是由方程(9)和(10)给出的, 穿行深度 $D=500 \text{ a.u.}$

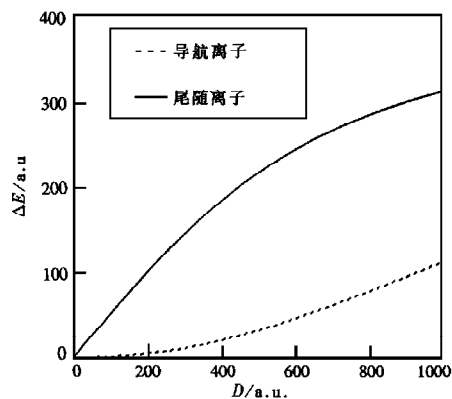


图4 初始速度 $v_0 = 4 \text{ a.u.}$ 的 H_2^+ 在碳膜中穿行时“导航离子”和“尾随离子”的能量损失, 其中分子轴的初始取向为 $\pi/6$

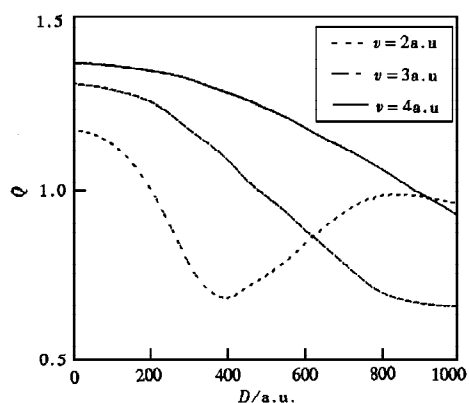


图 5 H_2^+ 在碳膜中穿行时阻止本领比率随穿行深度的变化,
其中数值结果是对 200 个粒子的轨迹平均后得到的

4 结 论

本文通过求解运动学方程,模拟了 H_2^+ 在固体中穿行时库仑爆炸图形的演化过程.为了考虑电子气中单粒子激发效应对库仑爆炸图形的影响,我们采用了 PLA 介电函数来确定作用在单个 H^+ 上的动力学相互作用力(即屏蔽的库仑力与尾力之和)和阻止力.结果表明:交换两粒子之间的相互作用距离,动力学作用力呈现出明显地非对称性.动力学相互作用效应对库仑爆炸图形的演化过程有着明显地影响,随着穿行距离的增加,几乎所有分子的分子轴都趋向于偏向初始入射速度的方向.

最近,我们研究了动力学相互作用效应对 C_{60} 离子团在固体中穿行时库仑爆炸过程的影响^[21].不过,我们是采用一种统计的方法来描述离子团的结构.我们准备进一步推广本文的工作,来研究动力学相互作用效应对在固体中穿行的大分子离子或离子团结构的影响.

- [1] W.Brandt, A.Ratkowski, R.H.Ritchie, *Phys. Lett.*, **33**(1974),1325.
- [2] J.W.Tape, W.M.Gibson, J.Remillieux, R.Laubert, H.E.Wegner, *Nucl. Instr. and Meth.*, **132**(1976),75.
- [3] J.C.Eckardt, G.H.Lantschner, N.R.Arista, R.A.Baragiola, *J. Phys. C: Solid State Phys.*, **11**(1978),L851.
- [4] M.F.Steuer, D.S.Gemmel, E.P.Kanter, G.J.Zabransky, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **30**(1983),1069.
- [5] E.Ray, R.Kirsch, H.H.Mikkelsen, J.C.Poizat, J.Remillieux, *Nucl. Instr. and meth.*, **B69**(1992),133.
- [6] W.Brandt, R.H.Ritchie, *Nucl. Instr. and Meth.*, **132**(1976),43.
- [7] N.R.Arista, *Phys. Rev.*, **B18**(1978),1.
- [8] G.Basbas, R.H.Ritchie, *Phys. Rev.*, **A25**(1982),1943.
- [9] I.Nagy, A.Arnau, P.E.Echenique, *Nucl. Instr. and Meth.*, **B48**(1990),54.
- [10] P.Echenique, F.Flores, R.H.Ritchie, *Solid State Phys.*, **43**(1990),229.
- [11] Y.N.Wang, T.C.Ma, *Phys. Lett.*, **A178**(1973),209.
- [12] Y.N.Wang, T.C.Ma, *Phys. Rev.*, **A50**(1994),3192.
- [13] M.M.Jakas, N.E.Capuj, *Phys. Rev.*, **A52**(1995),439; *Phys. Rev.*, **A54**(1996),5031.

- [14] M. M. Jakas, N. E. Capuj, *J. Phys. C: Condens. Matter*, **7**(1995), 4593.
- [15] N. E. Capuj, M. M. Jakas, *Nucl. Instr. and Meth.*, **B115**(1996), 146.
- [16] P. M. Echenique, R. H. Ritchie, W. Brandt, *Phys. Rev.*, **B20**(1979), 2567.
- [17] J. Neufeld, R. H. Ritchie, *Phys. Rev.*, **98**(1955), 1632.
- [18] A. Mazarro, P. M. Echenique, R. H. Ritchie, *Phys. Rev.*, **B27**(1983), 4117.
- [19] Z. Vager, D. S. Gemment, *Phys. Rev. Lett.*, **37**(1976), 1352.
- [20] Y. Susuki, *Phys. Rev.*, **A56**(1997), 2918.
- [21] Z. L. Miskovic, W. K. Liu, Y. N. Wang, *Phs. Rev.*, **A57**(1998), 362.

DYNAMIC INTERACTING FORCE AND EVOLUTION OF COULOMB EXPLOSION PATTERNS FOR SWIFT H_2^+ PENETRATING THROUGH SOLIDS*

WANG YOU-NIAN

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

(Received 5 August 1998; revised manuscript received 16 November 1998)

ABSTRACT

We simulate the Coulomb explosion patterns for swift H_2^+ ions penetrating through solids by solving the equations of motion. The forces acting on individual fragments are given by the stopping force and the dynamic interacting force. With the plasmon-pole approximation dielectric function, the linear-response dielectric theory is used to determine the dynamic interacting force. The initial directions of the molecular axis with respect to the beam direction are assumed to be random. It is found that due to the dynamic-interaction effects, the molecular axes tend to align to the beam direction and the energy losses of the trailing ions are larger than that of the leading ions.

PACC: 6180M; 3480B

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19575008) and by the Foundation of Science and Technology of the State Education Ministry of China (Grant No. 97-129).