

H_3^+ 团簇离子与固体相互作用*

杨百方 缪竞威 杨朝文 师勉恭 唐阿友 刘晓东

(四川大学辐射物理及技术教育部重点实验室, 四川大学原子核科学技术研究所, 成都 610064)

(2001 年 4 月 27 日收到, 2001 年 7 月 12 日收到修改稿)

报道了 H_3^+ 团簇通过碳膜对产生的各种产物的测量结果, 分析讨论了三原子离子团簇与固体相互作用中的电荷交换过程, 证明在产物的形成中, 电荷交换过程起关键作用, 分析研究了 H_3^+ 团簇与固体作用中的团簇效应和尾流效应.

关键词: H_3^+ 团簇, 电荷交换, 团簇效应, 尾流效应

PACC: 3400, 3500, 3600

1 引 言

在团簇的研究中, 氢团簇占有非常重要的地位. 因为氢元素是宇宙中丰度最高的元素, 大约占整个宇宙中元素的 90%^[1]. 按照宇宙大爆炸理论, 氢是宇宙中形成最早的元素之一. 因此在实验室中研究氢原子分子团簇的形成、结构、性质及其与物质的相互作用, 对于了解星际分子的形成及其性质有重要的参考价值. 另一方面, 氢原子分子团簇的研究对金属氢的研究也是十分必要的. 金属氢具有一些特殊性质并可能作为一种潜在的新能源, 必将受到各国物理学家的高度重视. 清泉教授从氢原子团簇和氢分子团簇相互作用的定量计算和分析着手研究金属氢, 已取得了一些重要的成果^[2,3]. 能量在 1MeV 量级的氢离子团簇通过碳膜产生的产物研究, 始于 20 世纪 70 年代后期. 最早的一批实验结果由法国里昂大学及美国阿贡国家实验室得到. Cue 等人对 0.4—1.2MeV/amu 的 H_2^+ 通过碳膜的透射率进行了测量, 并提出了一种碰撞模型, 很好地解释了实验结果^[4]. Pietsch 等人根据实验结果对 H_2^+ 等双原子离子的透射机理进行了研究^[5]. Gaillard 等人讨论了质子在固体膜中的电荷交换截面的测量方法^[6]. 从 20 世纪 80 年代初期起, 四川大学也开展了离子与固体相互作用的研究, 曾对 H_2^+ , D_2^+ 和 DH^+ ^[7-9] 等不同种类离子通过碳膜的透射率进行了测量, 对双原子

离子在固体中的电荷交换以及透射机理进行了初步探讨^[9].

H_3^+ 是最简单最稳定的团簇离子. 在 H_n^+ 团簇的形成中, H_3^+ 是关键的分离子^[10,11]. 在 H_3^+ 与固体相互作用中, 产物的多样性反映了它与物质相互作用过程的复杂性. 为了探索各种相互作用过程, 对 H_3^+ 团簇离子通过碳膜之后的各种产物进行观察和测量, 得到了各种产物的产额随停留时间 t_d 变化的规律. 由此清楚看到, 离子与固体相互作用时, 电荷交换过程对各种产物的形成具有决定作用, 而团簇效应和尾流效应影响其产额的变化趋势.

2 实验装置和测量方法

实验在四川大学原子核科学技术研究所的高分辨原子碰撞装置上进行^[12]. 图 1 是测量装置示意图. 从高频离子源引出的氢离子束流在 2.5MV 静电加速器中加速到一定能量, 再经 90° 磁分析器(出口缝宽 1mm)偏转, 形成纯的单一能量的 H_3^+ 离子束. 装置中真空度为 267×10^{-7} Pa. H_3^+ 束流经活动光栏 C_1 , C_2 和 $X-Y$ 静电偏转器的准直、净化后, 由 C_3 光栏入射到超薄碳靶上; 在偏离束流方向 15° 左右, 用对称金-硅面垒探测器 D_{11} 和 D_{12} 可以监测束流强度; 可以移动的法拉第筒 FC 用于测量入射束流的电荷量 q . 由此可以测量到入射处的靶厚度 t_c ^[13]、入射离子总数、以及每个散射监测计数对应的

* 国家自然科学基金(批准号: 19735004, 19975033, 19975034)资助的课题.

入射离子数.再根据入射 H_3^+ 的能量 E 和靶厚度 t_c 以及靶密度 ρ (对碳膜取 $\rho = 1.65\text{g/cm}^3$),可以确定

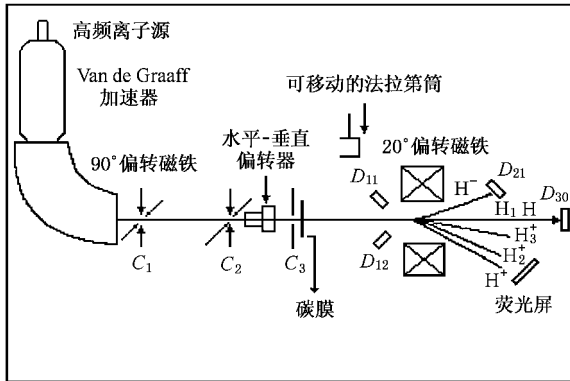


图1 H_3^+ 离子与固体相互作用产物的测量装置示意图

离子在碳膜中的停留时间 $t_d^{[14]}$:

$$t_d = t_c / \rho v = 0.4379 t_c \sqrt{\frac{m}{E}}, \quad (1)$$

式中 t_c , m , E 的单位分别为 $\mu\text{g/cm}^2$, amu 和 MeV, 停留时间的单位为 fs ($1\text{fs} = 10^{-15}\text{s}$). 碳靶厚度 t_c 为

$$t_c = 7.11 \times 10^{-11} N E^2 / q, \quad (2)$$

上式中 $N = (N_1 + N_2) / 2$ 为对称探测器 D_{11} 和 D_{12} 的平均计数, q 为 FC 同时测量的电荷量, 单位为库仑. 在碳膜之后的束流方向上又经过一个 20° 磁偏转器. 改变它的磁场电流大小和正负极性, 可以改变磁场的大小和极性. 经过此 20° 磁分析器的偏转分离之后, 由碳膜中出射的各种产物沿不同的方向前进: 正、负离子分布在不同的方向上; 中性原子和分子则不受偏转而继续按原方向 (0°) 前进. 故在 0° 方向上可以利用金-硅面垒探测器 D_{30} 测量中性产物 H 和 H_2 . 若在 20° 方向上用荧光屏观察到正离子 H^+ , 则在 -20° 的对称方向上可以用金-硅面垒探测器 D_{21} 测量负离子 H^- ; 再改变磁场的大小和极性, 用 D_{21} 还可以分别测量 H_2^+ 和 H_3^+ 等正离子. 因此待分析的正负离子被 D_{21} 记录; 中性 H 和 H_2 被 D_{30} 记录. D_{11} , D_{12} , D_{21} 或 D_{30} 的信号分别经前置放大器、主放大器和多道脉冲幅度分析器处理后送入数据获取系统. 法拉第筒收集的电荷 q 由束流积分仪获取. 所以根据 H_3^+ 的能量 E 、电荷 q 、监测计数, 以及各种产物的计数, 可以测定 H_3^+ 在膜中的停留时间 t_d ; 同时分别测量相应产物如 H_3^+ , H_2^+ , H, H_2 和 H^- 等的产额. H_3^+ 的某种产物 i 的产额 $\phi_3(i)$ 为该产物所含质子总数与入射 H_3^+ 所含质子总数之比, 因此 ϕ_3

(i) 定义为平均每个质子的产额:

$$\phi_3(i) = (N_1 + N_2) N_i / [(N_1 + N_2) q / e], \quad (3)$$

式中 e 是电子电荷, $(N_1 + N_2)$ 是 FC 在收集入射 H_3^+ 电荷量 q 的同时, 对称探测器 D_{11} , D_{12} 测量的计数之和; 而 $(N_1 + N_2)$ 是探测器 D_{21} 或 D_{30} 测量 i 种产物计数 N_i 的同时, D_{11} , D_{12} 测量的计数之和. 需要说明的是, 在 (3) 式中 q/e 为入射 H_3^+ 所含的质子数, 故 N_i 应为 i 种产物所含的质子数. 在 H_3^+ 的各种产物中 99% 以上是 H^+ , 即 $\phi_3(H^+) \approx 1$, 故无需测量.

由于高频离子源气体使用的是纯氢气, 在实验中, 由对称探测器 D_{11} 和 D_{12} 测量的散射能谱也只有一个峰 (H^+), 未见到第二个峰 (D^+). 这证明入射 H_3^+ 束中确实没有夹杂 HD^+ , 故数据分析中不用考虑重氢的影响.

由光阑 C_1 , C_2 , C_3 和准直管组成准直净化系统, $X-Y$ 静电偏转器和固定光阑 C_3 (孔径 1.5mm) 组成束流净化系统. C_1 与 C_2 之间相距 1.76m, 它们的孔大小可在 $0-8 \times 8\text{mm}^2$ 内连续变化; 准直管长 1.7m; C_2 与 C_3 之间相距 0.93m. 最后在靶上可获得角分散小于 $\pm 0.045\text{mrad}$ 、强度为 $10^{-8}-10^{-11}\text{A}$ 、截面为 $0.03 \times 0.03-0.2 \times 0.2\text{mm}^2$ 的平行细束. 从 90° 磁分析器到靶室间约 7m 的路径上, H_3^+ 离子束可能和残余气体碰撞崩裂成其他种类的粒子 (如 H^+ , H_2^+ , H 和 H_2 等). 束流净化系统可除去这些污染粒子, 确保入射到靶上的是纯净的原始 H_3^+ 分子离子束.

在实验中使用的探测器都是低噪声金-硅面垒探测器并且都单独接地, 有效地降低了来自测量管道的干扰信号的影响. 采用对称探测器 D_{11} 和 D_{12} , 使束流方向受到监测, 使碳靶厚度 t_c 和离子在碳膜中的停留时间 t_d 的测量误差分别小于 8% 和 10%^[13,14]. 由 (3) 式可以看到, 在 H_3^+ 的各种产物的产额 $\phi_3(i)$ 测量中, 其测量误差由 $(N_1 + N_2)$, $(N_1 + N_2)$ 和 N_i 的统计误差以及 q 的测量误差决定. 所以只要这些量的相对误差控制在 5% 以下, 就能保证 $\phi_3(i)$ 的测量误差小于 10%. 本文测量点的误差棒长为 8%.

3 测量结果及其分析

在 H_3^+ 团簇与固体相互作用过程中, H_3^+ 首先

迅速失去两个束缚电子形成 (3H^+) 裸核团, 然后 (3H^+) 裸核团发生强烈的库仑爆炸. 除了发生强烈的库仑爆炸之外, 还可能发生电荷交换过程. 由于电荷交换过程引起 (3H^+) 裸核团的电荷态发生改变, 形成各种出射产物. 下面的实验结果表明, H_3^+ 的各种微量产物的产额都毫无例外地与能量有关, 证明这些产物主要由电荷交换截面决定. 随着 (3H^+) 裸核团内核间距的增加, 质子间相互关联减弱, 团簇关联效应和尾流效应也显示出各自的作用. 在下面各节中, 将分别根据实测的 H_3^+ , H_2^+ , H , H_2 和 H^- 等种微量产物产额的数据作图, 并对其变化趋势作适当分析.

3.1 H_3^+ 的 H_3^+ 产物测量

在 1.2 和 1.8 MeV 的能量下, 测量了 H_3^+ 团簇通过各种厚度的碳膜时, 在其中产生的 H_3^+ 产物的产额 $\phi_3(\text{H}_3^+)$. 图 2 中分别用符号 \blacksquare 和 \bullet 表示 1.2 和 1.8 MeV 下的测量结果. $\phi_3(\text{H}_3^+)$ 随停留时间变化的拟合公式为

$$\phi_3(\text{H}_3^+) = (1 - A) \exp(-t_d/\tau) + A \exp(-t_d/\tau_2), \quad (4)$$

式中 A , τ 和 τ_2 是拟合参数, τ 是入射 H_3^+ 的束缚电子寿命, A 与电荷交换截面有关, τ_2 与团簇关联和尾流效应以及实验中的误差等因素有关. 在短停留时间下 (4) 式中第一项起决定作用, 在长停留时间下, 第二项起决定作用. 在表 1 中列入了 H_3^+ 产物的这些拟合参数. 从图 2 看出, 在长停留时间区域, 拟合曲线比较好地符合了 $\phi_3(\text{H}_3^+)$ 的测量结果. 在

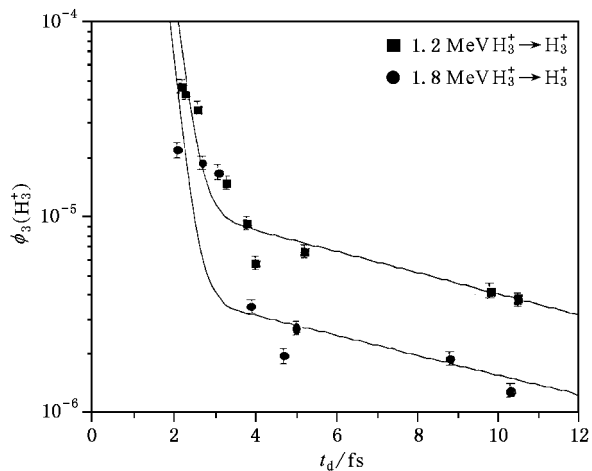


图 2 H_3^+ 的 H_3^+ 产额测量结果

$t_d = 3\text{fs}$ 附近, 实测结果正处于拟合曲线的拐点附近, 测量结果与拟合曲线稍有偏离.

从图 2 看出, 在不同的能量下, $\phi_3(\text{H}_3^+)$ 有显著的区别. 因为离子在膜内的电子俘获截面与其入射速度有密切关系, 入射团簇能量(速度)越大俘获截面越小. 因而俘获两个电子后再形成 H_3^+ 的概率越小. 在 1.2 和 1.8 MeV 下, A 的拟合结果(分别为 1.41×10^{-5} 和 4.97×10^{-6})有很大差别. 从图 2 还看出, 在相同的能量下, $\phi_3(\text{H}_3^+)$ 在长、短停留时间下有不同变化的趋势. 在 $t_d \leq 3\text{fs}$ 时, 它随 t_d 的增加而迅速减小, 而当 $t_d > 3\text{fs}$ 时, 它随 t_d 的增加而缓慢减小. 由于在固体膜内电子损失截面 σ_l 比电子俘获截面 σ_c 大几个数量级, 只有在 t_d 很小的情况下入射 H_3^+ 的束缚电子没有全部损失, 少数 H_3^+ 仍可能直接透射. 在短停留时间下 $\phi_3(\text{H}_3^+)$ 随 t_d 的增加而迅速减小, 由此可以决定束缚电子损失寿命 τ 并推测 σ_l . 在 1.2 MeV 和 1.8 MeV 下, τ 的拟合结果分别为 0.23 fs 和 0.21 fs. 文献 [4] 由 H_2^+ 的透射测量结果得到 $\tau = 0.212\text{fs}$. 可见束缚电子损失寿命 τ 是很小的. 在长停留时间下, H_3^+ 的束缚电子已全部损失, (3H^+) 裸核团经历库仑爆炸后, 这三个质子之间仍可能存在一定的关联. 当它们在膜中又俘获到两个电子时就可能重新形成 H_3^+ 分子离子. 随着停留时间的增加, 质子之间的核间距越来越大, 它们俘获两个电子后重新形成 H_3^+ 的概率逐渐减小. 在 1.2 MeV 和 1.8 MeV 下, τ_2 的拟合结果分别为 8 fs 和 8.62 fs, 比 τ 大一个数量级. 因此, 拟合参数 τ_2 反应了重新形成的 H_3^+ 产额随着停留时间的增加而缓慢减小的情况. 由上述分析可见, 出射 H_3^+ 产物是由两部分组成的: 一部分是带有原始束缚电子直接透射的 H_3^+ ; 另一部分是重新组成的 H_3^+ .

3.2 H_3^+ 的 H_2^+ 产物测量

在 1.2 和 1.8 MeV 的能量下, 测量了 H_3^+ 在碳膜中产生的 H_2^+ 产物随停留时间 t_d 变化的趋势. 图 3 中分别用符号 \blacksquare 和 \bullet 表示 1.2 和 1.8 MeV 下 H_2^+ 产额 $\phi_3(\text{H}_2^+)$ 的测量结果. 图中用指数衰减函数拟合了测量结果, 拟合公式为

$$\phi_3(\text{H}_2^+) = A \exp(-t_d/\tau_2), \quad (5)$$

拟合参数 A 和 τ_2 列在表 1 中. 从图 3 看出, 在测量区域拟合曲线比较好地符合 $\phi_3(\text{H}_2^+)$ 的测量结果,

它随 t_d 增加而减小.

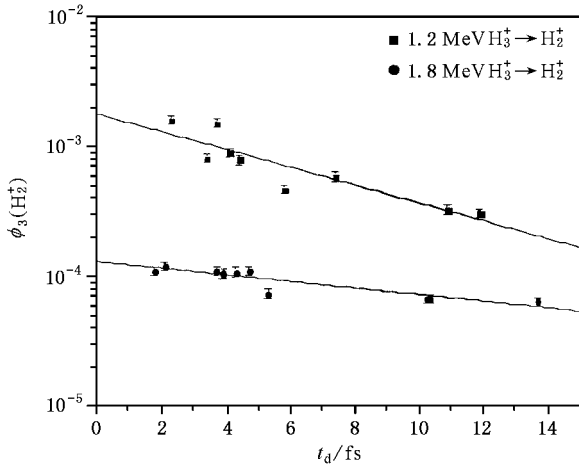


图3 H_3^+ 的 H_2^+ 产额测量结果

在较高能量下它随 t_d 的增加而缓慢减小,而在低能量下减小较快.这是由于在低能下,随着 t_d 的增加 ($3H^+$) 发生散射的概率加大, H^+ 之间的关联减弱较快,它们俘获一个电子后再形成 H_2^+ 分子离子的概率变小.此外在 ($3H^+$) 中,在前面运行的 H^+ 离子的尾流势会使运行路径上的电子密度加大,紧随其后的 H^+ 更容易俘获到电子,重新形成 H_2^+ 的可能性加大,在分子团中,尾流效应总会起作用.在低能、短停留时间下,电子俘获截面和电子密度都增大使 $\phi_3(H_2^+)$ 增大,而在低能、长停留时间下 H^+ 之间的关联减弱使 $\phi_3(H_2^+)$ 减小,所以在 1.2 MeV 下 $\phi_3(H_2^+)$ 的拟合曲线比较斜, τ_2 也较小.

3.3 H_3^+ 的中性产物 H 和 H_2 测量

在 1.2 和 1.8 MeV 的能量下,测量了 H_3^+ 在碳膜中产生的中性产物 H 和 H_2 的产额, $\phi_3(H)$ 和 $\phi_3(H_2)$. 它们随停留时间 t_d 变化的趋势分别如图 4 和图 5 所示,图中分别用符号 \blacksquare 和 \bullet 表示 1.2 和 1.8 MeV 下的测量结果.图 4 的拟合公式与 (5) 式相同,图 5 的拟合公式与 (4) 式相同. $\phi_3(H)$ 和 $\phi_3(H_2)$ 的拟合参数 A , τ 和 τ_2 分别列在表 1 中.从图 4 看出,出射 H 产物随停留时间变化类似于 H_2^+ 产物的变化趋势.因为它们都是 ($3H^+$) 俘获一个电子后重新组成的产物.而且可以看到尾流效应的作用.在 ($3H^+$) 中,总有一个或两个 H^+ 离子在前面运行,它们 (们) 的尾流势会使运行路径上的电子密度加大,紧随其后的两个或一个 H^+ 离子更容易俘获到一个电

子而形成 H.但是由于团簇关联效应的作用 ($3H^+$) 俘获一个电子后更容易重新组成 H_2^+ 分子离子而不是 H 原子.所以, $\phi_3(H)$ 和 $\phi_3(H_2^+)$ 随停留时间变化的趋势稍有区别,它们具有相反的强弱互补趋势.从图 7 和图 8 看到,在相同速度下 $\phi_3(H) < \phi_3(H_2^+)$.

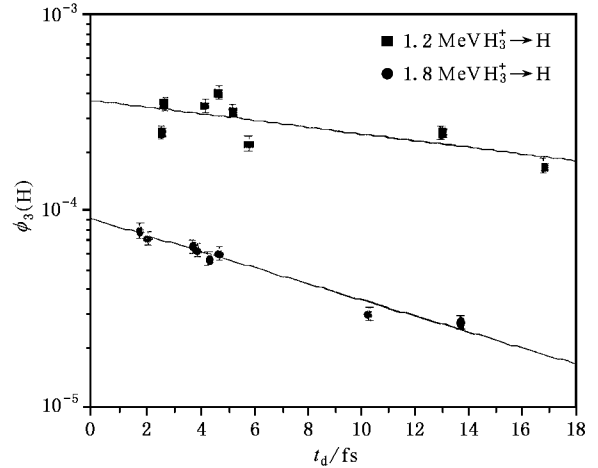


图4 H_3^+ 的 H 产额测量结果

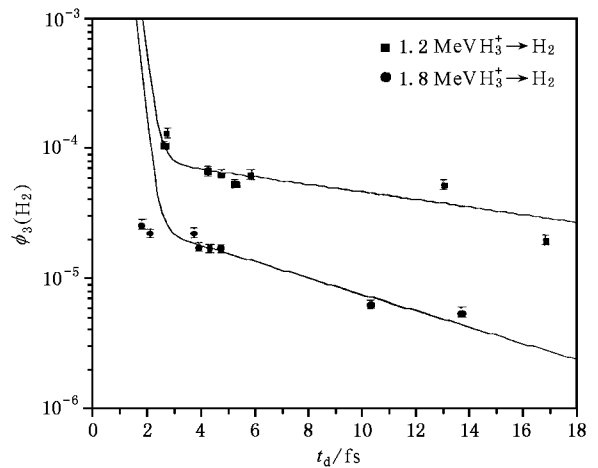


图5 H_3^+ 的 H_2 产额测量结果

从图 5 看出 $\phi_3(H_2)$ 随停留时间的变化类似于 $\phi_3(H_3^+)$ 随停留时间的变化趋势.产物 H_2 和 H_3^+ 都是 ($3H^+$) 俘获两个电子后重新组成的,故在长停留时间下,它们的 τ_2 很接近.从图 7、8 也看出,在相同的速度下 $\phi_3(H_2) > \phi_3(H_3^+)$.可见在长停留时间下由于团簇关联减弱 ($3H^+$) 俘获两个电子后更易重新组成 H_2 分子而不是 H_3^+ 分子离子.故 $\phi_3(H_2)$ 和 $\phi_3(H_3^+)$ 的 A 值有较大的差别, τ 值差别不大,而 τ_2 也比 τ 大 10 倍左右.由此看出,团簇关联效应不仅

影响产物产额的变化趋势,而且影响各种产额的比例.在短停留时间之下,入射 H_3^+ 的束缚电子没有丧失殆尽,可能发生 H_3^+ 的分解反应或者 H_3^+ 直接与电子的复合分解反应形成氢分子.

3.4 H_3^+ 的 H^- 负离子产物测量

在 1.2, 1.5 和 1.8 MeV 的能量下,测量了 H_3^+ 在各种厚度的碳膜中产生负离子 H^- 产物的产额 $\phi_3(H^-)$.图 6 中分别用符号 \blacksquare , \blacktriangle 和 \bullet 表示 1.2, 1.5 和 1.8 MeV 下的测量结果.图中对测量结果的拟合公式与(5)式相同.拟合参数 A 和 τ_2 列在表 1 中.从

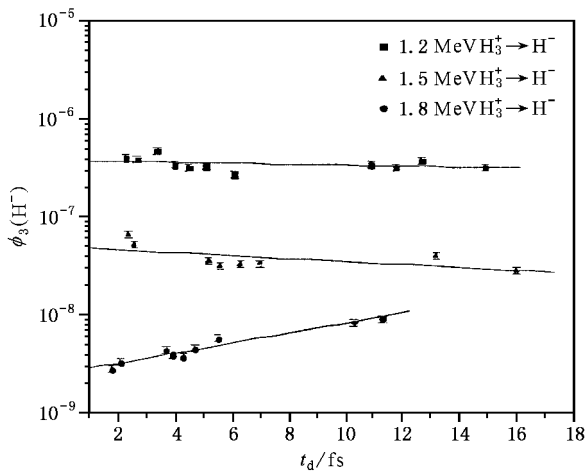


图 6 H_3^+ 的负离子 H^- 测量结果

图 6 看出,在不同的能量下 $\phi_3(H^-)$ 差别很大,因此 A 值差别很大.对于 H^- 产额 $A \propto (\sigma_c/\sigma_1)^2$,而 σ_c 和 σ_1 都随入射速度变化,由此可见速度的微小变化都会引起 A 值有较大的变化,因此起决定作用的因素是电荷交换截面.测量结果表明:在相同速度下,通常 H_3^+ 的 H^- 产额 $\phi_3(H^-)$ 总比 H^+ 的 H^- 产额 $\phi(H^-)$ 低. H^- 负离子是一个质子俘获两个电子形成的产物. H_3^+ 经历库仑爆炸后,它的三个质子之间仍

可能存在一定的关联.形成 H^- 之后,邻近的质子可能与它反应而形成 H_2 或 H_3^+ 产物,这会造成 H^- 产物损失.所以团簇关联效应使 $\phi_3(H^-)$ 减小.同时尾流效应也在起作用:在 $(3H^+)$ 裸核团中,在前面运行的质子的尾流势会使运行路径上的电子密度加大,紧随其后的质子更容易俘获到两个电子而形成 H^- ,所以尾流效应使 $\phi_3(H^-)$ 增加.在一般情况下分子的关联效应造成 $\phi_3(H^-)$ 比 $\phi(H^-)$ 小.随着 t_d 的增加分子关联效应减弱, H^- 产物损失减少;而尾流效应的作用使 H^- 产物增加,所以 $\phi_3(H^-)$ 随之增加.从图 6 看出,在 1.2 和 1.5 MeV 下 $\phi_3(H^-)$ 随 t_d 缓慢变化, τ_2 为正并且值特别大,这表示 $\phi_3(H^-)$ 随 t_d 缓慢减小;在 1.8 MeV 时 τ_2 为负,这表示 $\phi_3(H^-)$ 随 t_d 缓慢增加.除了尾流效应的作用之外,还由于在低能长停留时间下散射较大, H^- 接收不完全使 $\phi_3(H^-)$ 减小.

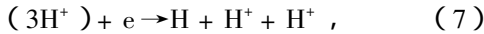
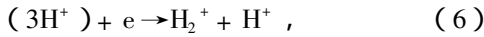
4 测量结果分析

在文献 [15, 16] 中,报道了我们对 H_3^+ 的库仑爆炸进行的实验研究.现在又比较系统地观察测量了 H_3^+ 在束箔相互作用中的各种微量产物.有可能深入分析认识 H_3^+ 团簇与固体相互作用的基本过程.在 MeV 能区,电子损失截面比俘获截面大 3—4 个数量级,因此在束箔相互作用中, H_3^+ 首先迅速失去两个束缚电子形成 $(3H^+)$ 裸核团,然后 $(3H^+)$ 裸核团发生强烈的库仑爆炸, H_3^+ 的出射产物中绝大多数是 H^+ 产物,证明这是 H_3^+ 在束箔相互作用中的主要过程;应该看到,在库仑爆炸过程中 $(3H^+)$ 可能继续与靶原子发生碰撞,引起入射粒子的能量和方向发生变化,发生弹性或非弹性散射过程,在飞行过程中还可能发生电荷交换,即电子俘获和俘获后再损失,以及再俘获等过程,引起 $(3H^+)$ 裸核团的电荷

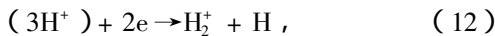
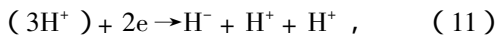
表 1 H_3^+ 各种产物的产额测量结果的拟合参数 A , τ 和 τ_2

E/MeV	$H_3^+ \rightarrow H_3^+$		$H_3^+ \rightarrow H_2$		$H_3^+ \rightarrow H$		$H_3^+ \rightarrow H_2^+$		$H_3^+ \rightarrow H^-$		
	1.2	1.8	1.2	1.8	1.2	1.8	1.2	1.8	1.2	1.5	1.8
A	1.41×10^{-5}	4.97×10^{-6}	9.0×10^{-5}	3.17×10^{-5}	3.64×10^{-4}	9.04×10^{-5}	1.79×10^{-3}	1.30×10^{-4}	3.79×10^{-7}	4.91×10^{-8}	2.54×10^{-9}
τ /fs	0.23	0.21	0.25	0.22							
τ_2 /fs	8	8.62	15	7	25.5	10.58	6.25	16.72	531.9	175.7	-53.8

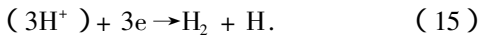
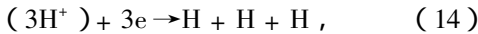
态发生改变,形成各种出射产物. H_3^+ 的各种微量产物的产额主要由电荷交换截面决定.但是在飞行过程中随着 $(3H^+)$ 裸核团的质子之间的距离的增加,团簇关联逐渐减弱.因此团簇效应和尾流效应或多或少影响它们的变化趋势.从各种微量产物的测量结果,证实了对碰撞过程的这些推测.由电荷交换过程得到 $(3H^+)$ 裸核团在膜中俘获一个电子之后可能形成 H_2^+ 和H等产物:



那么会不会发生(8)式这个反应呢?我们试图观察是否有 H_3^{2+} 离子存在.但是在我们的测量条件下,没有测到 H_3^{2+} 产物.而 $(3H^+)$ 裸核团在膜中俘获两个电子之后可能形成 H_3^+ , H_2 和 H^- 等产物:



在(13)式中,由于团簇关联效应,两个氢原子和质子可能重新组成 H_3^+ 或其他产物.此外 $(3H^+)$ 裸核团在膜中俘获三个电子之后,可能形成 H_2 和H等中性产物:



已经观察到H和 H_2 产物.那么会不会形成 H_3 分子呢?我们也试图观察是否有 H_3 分子存在.但是在

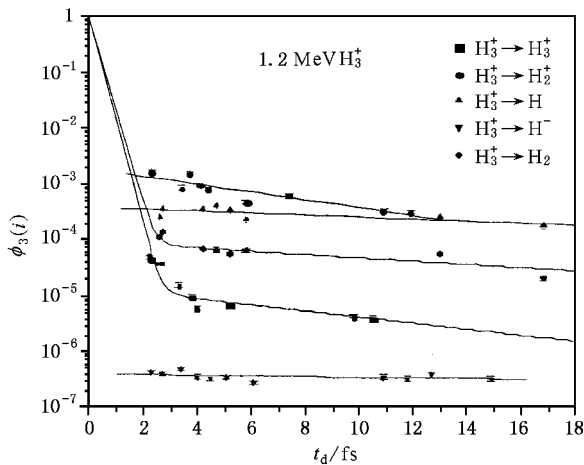


图7 1.2MeV的 H_3^+ 各种产物的产额拟合曲线

我们的测量条件下,没有测到 H_3 产物.由此可见 H_3^+ 的各种产物是电荷交换的结果,它们的产额直接受到电荷交换截面的影响.而电荷交换截面与

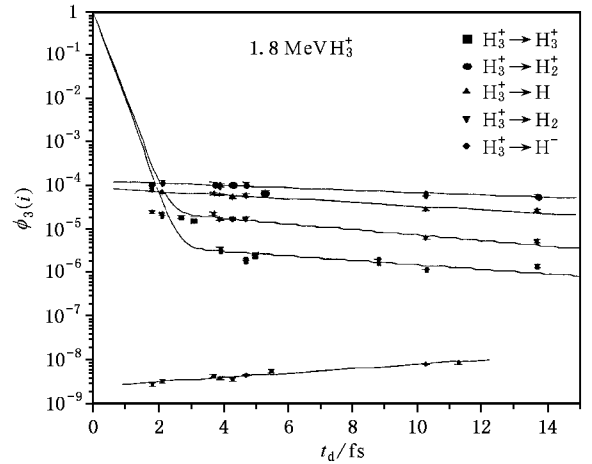


图8 1.8MeV的 H_3^+ 各种产物的产额拟合曲线

H_3^+ 的速度或者能量有关.各种产物的产额都随着能量变化而有显著变化.由表1的A值可见,在所测的两组能量下每一种产物的产额相差至少一个数量级.图7,图8分别根据测量结果和表1的拟合参数做出了 H_3^+ 的各种产物的拟合曲线.从拟合曲线看出,各种产额随着 t_d 的增加几乎都有相同的变化趋势.当 t_d 增加时团簇关联效应渐渐减弱, $(3H^+)$ 俘获电子之后重新形成 H_3^+ , H_2^+ 和 H_2 的概率减小,而重新形成 H^- 和H的概率增大.尾流效应使电子密度增大,因而通过尾流势作用区的质子更容易俘获到电子,故尾流效应使产物的产额增加.团簇关联效应和尾流效应作用的结果,造成产物的增加或减小,进而影响各种产额随 t_d 变化的趋势.从图7、图8还看到 H_2^+ 和H的产额很接近,它们都是 $(3H^+)$ 俘获一个电子形成的产物,而 H_2 比重新组成的 H_3^+ 的产额高, $(3H^+)$ 俘获两个电子后容易形成 H_2 产物;虽然 H^- 也是 $(3H^+)$ 俘获两个电子后形成的产物,但是 $\phi_3(H^-)$ 比 $\phi_3(H_3^+)$ 和 $\phi_3(H_2)$ 小2—3个数量级,因为 H^- 是一个质子俘获两个电子,而 H_2 和 H_3^+ 是三个质子中有两个质子分别俘获到一个电子后形成的产物. $\phi_3(H^-)$ 与 $(\sigma_c/\sigma_1)^2$ 成正比,而 $\phi_3(H_3^+)$ 和 $\phi_3(H_2)$ 与 σ_c/σ_1 成正比,可见它们应该有几个数量级的差别.为了进一步讨论团簇效应和尾流效应,在表2中列入 $t_d = 1 - 20$ fs下 H_3^+ 的各种产物的拟合值.在关于 H^+ 的产物测量中,得到的H和

H^- 的产额拟合公式分别为

$$\phi(\text{H}) = 3.506 \times 10^{-2} \exp(-1.025 V_1) \quad (16)$$

和

$$\phi(\text{H}^-) = 5.052 \times 10^{-5} \exp(-1.403 V_1). \quad (17)$$

为了进行比较,在表 2 中还列入了由(16)和(17)式计算的 $\phi(\text{H})$ 和 $\phi(\text{H}^-)$ 值.从表 2 看到:在 1.8MeV ($V_1 = 4.8V_0$) 和 1.5MeV ($4.48V_0$) 下, $\phi_3(\text{H}^-) < \phi(\text{H}^-)$.即在较高能量下,相同速度的 H_3^+ 产生的负离子比 H^+ 产生的负离子少;相反在 1.2MeV ($V_1 = 4.0$) 的较低能量下, $\phi_3(\text{H}^-) > \phi(\text{H}^-)$,即 H_3^+ 产生的负离子比 H^+ 产生的负离子多.这是很有意思的结果.因为 H^- 负离子是一个质子俘获两个电子形成的产物, H_3^+ 经历库仑爆炸后,它的两个质子之间仍可能存在一定的关联.形成 H^- 之后,邻近的质

子可能与它反应而形成 H_2 或 H_3^+ 产物,造成 H 产物损失,所以团簇效应造成 $\phi_3(\text{H}^-)$ 减小.但尾流效应的作用造成 $\phi_3(\text{H}^-)$ 增加.在 (3H^+) 裸核团中,在前面运行的质子的尾流势会使运行路径上的电子密度加大,因此紧随其后的质子更容易俘获到电子形成 H^- .而且在 (3H^+) 裸核团中,总有一个或两个质子会受到尾流势的作用.特别是在长停留时间下,分子关联效应减弱使 H^- 的损失减少,而尾流效应仍起作用使电子密度增大,结果使 $\phi_3(\text{H}^-)$ 明显增大.在低能长停留时间下,尾流效应的作用部分抵消甚至超过团簇关联效应的影响.因而在 $V_1 = 4.0V_0$ 下出现了 $\phi_3(\text{H}^-) > \phi(\text{H}^-)$ 的情况.这说明,在有些情况下尾流效应的影响更明显.

表 2 在各种停留时间下 $\phi_3(i)$ 拟合结果与 $\phi(\text{H})$ 和 $\phi(\text{H}^-)$ 相比较

$V_1(V_0)$	$\phi_3(\text{H}_3^+)$		$\phi_3(\text{H}_2)$		$\phi_3(\text{H})$		$\phi_3(\text{H}_2^+)$		$\phi_3(\text{H}^-)$		
	4.00	4.80	4.00	4.80	4.00	4.80	4.00	4.80	4.00	4.80	4.80
$t_d = 1\text{fs}$	1.29×10^{-2}	8.55×10^{-3}	1.08×10^{-4}	2.77×10^{-5}	3.50×10^{-4}	8.22×10^{-5}	1.53×10^{-3}	1.22×10^{-4}	3.78×10^{-7}	4.88×10^{-8}	2.59×10^{-9}
5fs	7.55×10^{-6}	2.78×10^{-6}	7.43×10^{-5}	1.61×10^{-5}	2.99×10^{-4}	5.64×10^{-5}	8.04×10^{-4}	9.64×10^{-5}	3.75×10^{-7}	4.77×10^{-8}	2.79×10^{-9}
10fs	4.04×10^{-6}	1.56×10^{-6}	4.63×10^{-5}	8.15×10^{-6}	2.46×10^{-4}	3.51×10^{-5}	3.61×10^{-4}	7.15×10^{-5}	3.90×10^{-7}	4.64×10^{-8}	3.06×10^{-9}
15fs	2.16×10^{-6}	8.72×10^{-7}	2.89×10^{-5}	4.13×10^{-6}	2.02×10^{-4}	2.19×10^{-5}	1.62×10^{-4}	5.30×10^{-5}	3.86×10^{-7}	4.51×10^{-8}	3.57×10^{-9}
20fs	1.16×10^{-6}	4.88×10^{-7}	1.80×10^{-5}	2.09×10^{-6}	1.66×10^{-4}	1.37×10^{-5}	7.29×10^{-5}	3.93×10^{-5}	3.63×10^{-7}	4.38×10^{-8}	3.68×10^{-9}
$\phi(\text{H})$					5.81×10^{-4}	2.56×10^{-4}	5.81×10^{-4}	2.56×10^{-4}			
$\phi(\text{H}^-)$									1.85×10^{-7}	9.55×10^{-8}	6.01×10^{-8}

从表 2 还看到,在 1.8 和 1.2MeV 下 $\phi(\text{H}) > \phi_3(\text{H})$,没有出现反常情况;分子关联效应使 (3H^+) 俘获电子后更容易形成 H_2^+ , H_3^+ 和 H_2 等分子而不是 H 原子,故 $\phi_3(\text{H}_2^+) > \phi_3(\text{H})$;只有在 1.2MeV, $t_d > 15\text{fs}$ 时 $\phi_3(\text{H}_2^+) < \phi_3(\text{H})$,即在低能长停留时间下,分子关联效应减弱,形成的 H 原子明显增加,致使 H 原子产额大于 H_2^+ 产额.

通常由于分子关联效应 $\phi_3(\text{H}_2^+) < \phi(\text{H})$;但在 1.2MeV, $t_d < 10\text{fs}$ 时,从表 2 看到出现 $\phi_3(\text{H}_2^+) > \phi(\text{H})$ 的反常情况.由于尾流效应,使分子团簇中平均每个质子俘获一个电子的概率比 H^+ 俘获一个电子的概率大,分子关联效应使 (3H^+) 俘获一个电子后更容易形成 H_2^+ 分子离子而不是 H 原子.故出现 $\phi_3(\text{H}_2^+) > \phi(\text{H})$ 的反常情况.

[1] Yang B F et al. 1995 *The Molecular Astrochemistry* (Sichuan Science and Technology Press, Chengdu) (in Chinese) [杨百方等 1995 分子天体化学(四川科学技术出版社,成都)]
 [2] Gou Q Q 1993 *Chinese Journal of Atomic and Molecular Physics* **10** 2676 [清泉 1993 原子与分子物理学报 **10** 2676]
 [3] Gou Q Q 1998 *Chinese Journal of Atomic and Molecular Physics* **15** (Suppl.) 257 [清泉 1998 原子与分子物理学报 **15** (增刊) 257]

[4] Gue N et al 1980 *Phys. Rev. Lett.*, **45** 613
 [5] Pietsch W J et al 1980 *Nucl. Instr. Meth.* **B170** 61
 [6] Gaillard M J et al 1977 *Phys. Rev.* **A16** 2323
 [7] Cue N et al 1983 *Journal of Sichuan University (Natural Science)* **20** 60 (in Chinese) [陈显邦等 1983 四川大学学报(自然版) **20** 60]
 [8] Hao S D et al 1984 *Journal of Sichuan University (Natural Science)* **21** 112 [郝士琢等 1984 四川大学学报(自然版) **21** 112]

- [9] Jian Z X *et al* 1988 *Journal of Sichuan University (Natural Science)* **25** 195 [蒋增学等 1988 四川大学学报(自然版) **25** 195]
- [10] Hirao K , Yamabe S 1983 *Chem. Phys.* , **80** 237
- [11] Yang B F *et al* 1999 *Journal of Sichuan University (Natural Science)* **36** 236 (in Chinese) [杨百方等 , 四川大学学报(自然版) **36** (1999) , 236]
- [12] Jian Z X *et al* 1986 *Chinese Journal of Atomic and Molecular Physics* **3** 299 [蒋增学等 1986 原子与分子物理学报 **3** 299]
- [13] Yang B F *et al* 1984 *Nucl. Instr. Meth.* **4** 54 (in Chinese) [杨百方等 1984 核仪器与方法 **4** 54]
- [14] Shi M G *et al* 1988 *Nuclear Technics* **11** 6 (in Chinese) [师勉恭等 1988 核技术 **11** 6]
- [15] Miao J W *et al* 1986 *Nucl. Instr. Meth.* **B13** 181
- [16] Miao J W *et al* 1985 *Acta Phys. Sin.* **34** 1315 (in Chinese) [缪竞威等 1985 物理学报 **34** 1315]

Interaction of H_3^+ cluster ions with solid foils *

Yang Bai-Fang Miao Jing-Wei Yang Chao-Wen Shi Mian-Gong Tang A-You Liu Xiao-Dong

(Key Laboratory of Radiation Physics and Technology of Ministry of Education , China ,
Institute of Nuclear Science and Technology , Sichuan University , Chengdu 610064 , China)

(Received 27 April 2001 ; revised manuscript received 12 July 2001)

ABSTRACT

The yields of H^- , H , H_2 , H_2^+ and H_3^+ for H_3^+ clusters passing through carbon foils have been measured. The results showed that the charge exchange process in the interaction of H_3^+ ions with solids plays a key role in the formation of these products. The cluster effects and wake effects of H_3^+ ions in solids are also discussed in detail.

Keywords : H_3^+ cluster ; charge exchange ; cluster effects ; wake effect

PACC : 3400 , 3500 , 3600

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 19975033 , 19735004 and 19975034).