

HD₂⁺, H₃⁺ 和 D₃⁺ 与固体相互作用 和三体尾流效应*

朱洲森^{1)†} 缪竞威²⁾ 袁学东²⁾ 师免恭²⁾ 廖雪花¹⁾

1) 四川师范大学物理与电子工程学院, 成都 610066)

2) 四川大学原子核科学技术研究所, 教育部辐射物理与技术重点实验室, 成都 610064)

(2007 年 12 月 4 日收到, 2008 年 2 月 17 日收到修改稿)

从分子离子 H₃⁺ 及其氘化同位素分子离子 D₃⁺ 和 HD₂⁺ 与超薄固体膜相互作用发生库仑爆炸为基础, 分析讨论了 H₃⁺, D₃⁺ 和 HD₂⁺ 三种分子离子的形成机理. 根据产物能谱分布, 利用库仑爆炸技术确定了同位素分子离子 HD₂⁺ 的结构形式, 给出具体核间距数值, 并确定在实验中不存在线状结构的 HD₂⁺. 提出一种三原子分子离子和固体相互作用中尾流效应的处理方式, 通过和实验结果做比较发现这是一种非常理想的处理三体尾流效应的模式, 并用之进一步确认了 HD₂⁺ 的结构形状. 文章对 H₃⁺, D₃⁺ 和 HD₂⁺ 三种分子离子的实验结果做了对比和讨论.

关键词: 微团簇 HD₂⁺, H₃⁺ 和 D₃⁺, 库仑爆炸, 三体尾流势, 团簇结构

PACC: 3400, 3500, 3600

1. 引 言

能量为 MeV 量级的微团簇离子在进入固体时, 离子速度 v 远大于靶电子的费米速度 e^2/\hbar , 但又不足以引起显著的相对论效应, 即 $e^2/\hbar \ll v \ll c$. 在这个能量范围, 其束缚电子的损失截面比俘获截面大 3—4 个量级, 致使瞬间失去全部电子形成的裸核团在短距库仑力作用下爆炸式分开. 由于时间极短, 分子离子转动和震动的影响被忽略^[1, 2]. 这一过程称为“库仑爆炸”, 是团簇与固体相互作用一个重要的领域. 近年来, 对氢离子团簇库仑爆炸的研究已经进行得较为深入^[1-5]. 我们多年从事于离子微团簇及其同位素离子团簇与物质的相互作用的研究, 做了多方面的探索, 给出了一系列成果与结论, 涉及微团簇结构、产物分布、注入固体后的发光特性等诸多方面^[3-9]. H₃⁺ 和其同位素分子离子是最简单最稳定的团簇离子, 在 H_n⁺ 团簇的形成中是关键分子离子^[10]. H₃⁺ 的正三角形结构也是被库仑爆炸研究首先确定的^[2-4]. 此后, 许多针对 H₃⁺ 及其同位素分子离子的研究发现这些分子离子的行为在不同的条件下有很大的不同, 比较典型的有: Mitchell 等人^[11]对

H₃⁺, D₃⁺ 和 HD₂⁺ 的复合离解 (dissociate recombination, DR) 研究表明, HD₂⁺ 和另外两种离子的行为有很大的不同; Hinojosa 等人^[12]测量了 H₃⁺, D₃⁺ 和 HD₂⁺ 在 2—9.8 keV 能量范围内与 He 碰撞获得带电产物的反应截面, 得到氘化同位素分子离子的反应截面大于 H₃⁺ 的反应截面; 最近, Strasser 等人^[13]对 HD₂⁺ 和 H₂D⁺ 的 DR 实验作了详细的研究, 发现 HD₂⁺ 分解时其结构趋于线状几何结构, 并且氘处于中心的情形有很大的概率; 在碰撞物理学, Astner 等人^[14]采用束-箔方式对 H₃⁺, D₃⁺ 和 HD₂⁺ 中产生的 Balmer 线 H _{β} 和 D _{β} 进行测量后发现, 对于 50 nm 厚的膜, 每个平均入射氦的光强度是每个质子光强度的 2.6 ± 0.5 倍. 这些结论都预示着 H₃⁺ 及其同位素分子离子在诸多方面存在明显的差异.

本文以先后对 HD₂⁺, H₃⁺ 和 D₃⁺ 与固体相互作用时的库仑爆炸的实验研究为基础, 分析了离子源中这些离子形成机理与规律; 利用库仑爆炸形式确定了 HD₂⁺ 结构形状, 给出了相互的核间距数值, 并直接证实了 HD₂⁺ 不存在线性结构. 通过对产物分布、能谱形式等的分析, 将这三种离子束缚能及其结构做了比较, 提出一种新的求解三体结构的微团簇

* 国家自然科学基金(批准号: 10574095 和 10675087)资助的课题.

† E-mail: zhuzhousen@yahoo.com

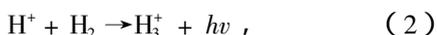
库仑爆炸后的尾流场的方法,借此计算 HD₂⁺, H₃⁺ 和 D₃⁺ 的尾流场,并和实验做了比较.通过分析计算,给出了像 HD₂⁺ 这种同位素微团簇的库仑爆炸能谱中的较重离子产物能谱观察不到尾流效应的原因.

实验装置以及库仑爆炸过程所需要的苛刻的实验条件的实现与实验原理等在文献 3—8 中有详细介绍,对 H₃⁺ 和 D₃⁺ 库仑爆炸的产物分布等实验研究,也已经作了较详细的报道,此处也不做过多陈述.只在涉及与本文相关处做适当说明.

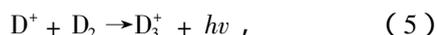
2. H₃⁺ 及其同位素微团簇的形成机理

H₃⁺ 及 D₃⁺ 的形成前,离子源必须进行较长时间的净化,以免另一种同位素分子参与形成过程.例如确保 H₃⁺ 束流中不掺杂 HD⁺,因为磁分析器不能将这两种荷质比相同的分子离子分开.

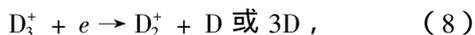
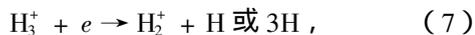
H₃⁺ 及 D₃⁺ 是在高频 (radio-frequency, RF) 离子源中形成的.在分别加入氢气和氘气时,在高频离子源中存在大量的 H₂, H⁺ 和 H₂⁺, D₂, D⁺ 和 D₂⁺,使得以下反应较容易发生:



以及



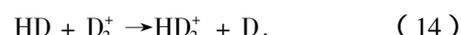
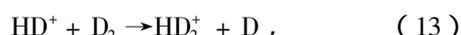
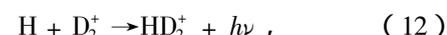
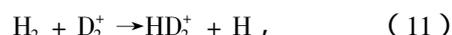
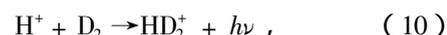
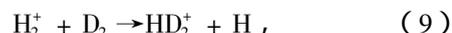
虽然存在其它生成 H₃⁺ 的反应道,但以上三个途径占主导地位.当然,对生成的分子离子,它们与电子的复合反应生成中性的分子和中性原子的过程也同时进行:



一般分子离子的复合反应速率^[15]为 $10^{-6} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.但需注意的是, H₃⁺ 的复合反应(7)在 Admas 和 Smith 的 VT-FALP 实验进行观察中,在 95—600 K 温度范围其复合反应进行得非常慢^[16].其上限值仅为 $10^{-11} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$,大大低于其他分子离子的复合反应速度.对于 D₃⁺ 也得到类似的结果.而且这一结果与对 H₃⁺ 离子的激发振动态的理论值计算相符^[17].所以,对于离子源中处于振动激发态的 H₃⁺,几乎很少发生与电子的复合分解反应,使得 H₃⁺ 在离子源中

的丰度很高,方便引出稳定的强束流. H₃⁺ 的这一特性,使它成为最稳定的微团簇离子,并以它为中心可以形成原子数更大的团簇.这点在实验中已经观察到^[18].也由于这个原因,使 H₃⁺ 成为对星际化学和星际物理学都很重要的分子离子.同时也是我们对 H₃⁺ 及同位素分子离子进行探索研究的原因之一.

HD₂⁺ 的形成要复杂一些.当离子源中同时注入氢气和氘气时,存在大量的 H₂, H⁺, H₂⁺, HD⁺, HD, D₂, D⁺ 和 D₂⁺,以下反应皆存在:



虽然同样存在其他反应道,甚至含有置换反应如 D₃⁺ + H → HD₂⁺ + D,但以前 6 个反应道为主.原因之一是和 H₃⁺ 与 D₃⁺ 一样, HD₂⁺ 也是非常稳定的分子离子. Collings 等人^[19]在 1987 年进行 H + D₂⁺ 的碰撞实验中,甚至观察到了 HD₂⁺⁺ 的存在.

Kevin 等人^[20]在 1992 年专门研究了通过 H₂ 和 D₂ 混合形成 H₃⁺, HD₂⁺, H₂D⁺, D₃⁺ 的反应.得到在 300 K 温度下,其产物比例和理论上的统计产物比例大致相当.也证实了 HD₂⁺ 和 H₃⁺ 相似,几乎很少发生与电子的复合分解反应.从而使生成的 HD₂⁺ 有较高的稳定性.

从(9)式到(12)式可以看出,丰富的 D₂ 和 D₂⁺ 是形成足够 HD₂⁺ 的必要条件,也有利于形成其中间产物 HD⁺ 和 HD.所以针对 HD₂⁺ 的实验中,氢气和氘气的摩尔比并不相同.此外,由于理论上存在 H₅⁺ 是由 H₃⁺ 结合一个氢分子形成的.减少氢气的比例有利于阻止 H₅⁺ 甚至 H₃⁺ 的形成,加上 H₅⁺ 形成的概率非常低而且容易裂解^[18],即使在用纯氢气加入离子源的情况下,引出一定数量的 H₅⁺ 也是非常困难的,束流中的 H₅⁺ 完全可以忽略.实验中,多次调整后,实测时加入的氢气与氘气的实际摩尔比例为 1:9.这时,产生了高品质和高稳定的 HD₂⁺ 束流.如后文所述,实验结果中也没有发现 H₅⁺ 的影响.

需要说明的是,由于无法将 H₂D⁺ 和 D₂⁺ 区分开来, H₂D⁺ 的库仑爆炸产物无法准确测量,其结构也无法确定.尽管如此,我们仍然进行了测试性实验,

获得了理想的 H^+ 产物的爆炸能谱, 并用之验证了我们提出的三体尾流效应的模型.

3. HD_2^+ 与固体的相互作用

3.1. HD_2^+ 的库仑爆炸产物能谱

图 1 是 1.4977 MeV 的 HD_2^+ 经超薄碳膜后在 0° 方向出射的质子能谱. 能量由高分辨静电分析器测量, 所得到的能谱是典型的库仑爆炸产物能谱, 快 HD_2^+ 经过碳膜时, 两个束缚电子在靶的前几层被立即剥离, 三个裸核在库仑斥力作用下迅速分开, 对 HD_2^+ 中的质子, 图 1 中能谱的两个谱峰分别对应于在质心系裂开时沿束流方向的朝前与朝后的质子.

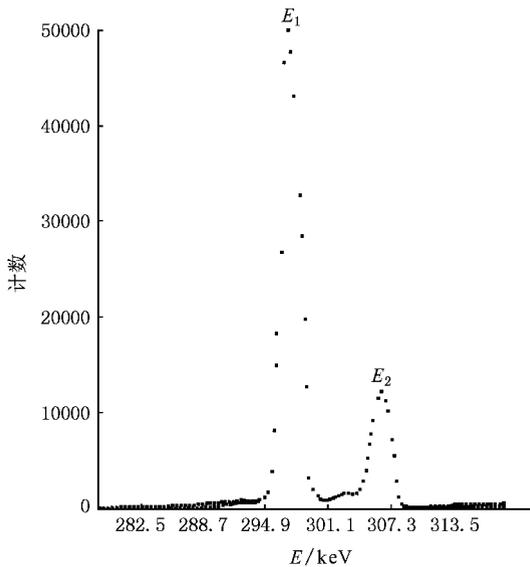


图 1 1.4977 MeV HD_2^+ 贯穿薄碳膜的质子库仑爆炸能谱

结果中, 两个峰值间的能量差 $\Delta E_{\max} = 8.65$ keV, 能量峰的半高宽 (FWHM) 为 2.1 keV. 质子和氘子的能量峰间距以及谱峰形状将决定 HD_2^+ 的结构, 将在下节讨论分析. 两个能量峰之间出现了一个明显的小峰, 这是在靶的前几层质子俘获电子成为中性粒子而后在靶的后几层又失去电子的那部分未参与爆炸的质子的能谱, 对于超薄靶膜才会有谱峰^[2]. 实验中采用的靶膜是 $3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 的碳靶, 其厚度仅为 10 nm 左右. 明显地, 高低能峰的产物比例存在很大的不同, 这就是带电离子穿过固体时产生的尾流效应造成的结果. HD_2^+ 通过碳膜产生的针对 H^+ 强尾流场的分析将在下节进行分析和阐述. 同时

由于三体库仑爆炸造成尾流势场的理论还不存在, 我们将在下节提出一种新的三体库仑爆炸的尾流场模型, 利用该模型对 H^+ 进行了爆炸能谱的理论模拟, 和实验结果进行了对比, 最终用之确定了 HD_2^+ 的结构形状.

图 2 是在相同条件下, HD_2^+ 的 D^+ 的爆炸能谱分布. 在相同库仑斥力作用下, D^+ 的裂开速度较 H^+ 为小, 造成 0° 方向以及附近更多的 D^+ 进入静电分析器, 对 D^+ 的分辨率比 H^+ 的为小, 造成 D^+ 的能谱分辨率比 H^+ 的能谱分辨率差. 但所得到的能谱分辨仍足够好, 足以对两个峰位做清楚地辨别. 需要指出的是, 在质心系和实验室系, 氘离子爆炸过程中的运动轨迹并不是严格直线的.

结果中, D^+ 的能谱的两个峰位的能量差 $\Delta E_{\max} = 10.54$ keV. D^+ 能量峰的半高宽 (FWHM) 为 3.0 keV. 由于分辨的原因, 两峰中间的小峰没有明显表现出来. 值得注意的是, 因尾流效应造成的高低峰产物分布的差异没有明显体现出来. 将在下节做较详细的讨论.

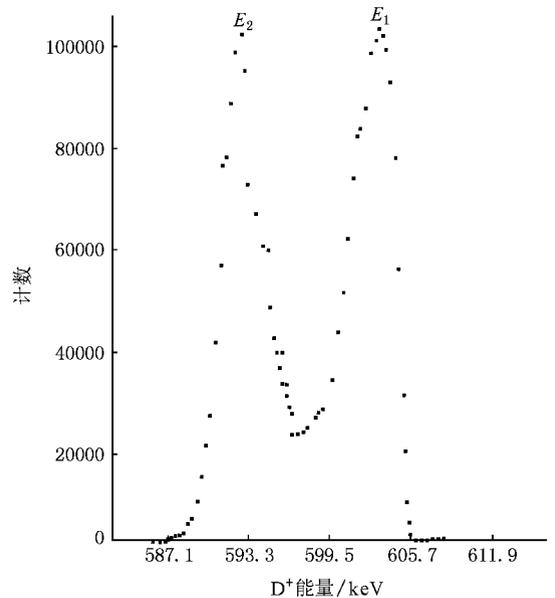


图 2 1.4977 MeV HD_2^+ 贯穿薄碳膜的氘子库仑爆炸能谱

3.2. HD_2^+ 的结构

首先, 双峰结构的能谱清楚表明不存在 $D-H-D^+$ 或 $H-D-D^+$ 线形结构的 HD_2^+ . 虽然 H^+ 的中间位置出现一小峰, 但采用稍厚的靶膜时, 这个峰位随即消失. Gaillard 等人^[1]对 H_3^+ 做类似的碰撞实验时也出现相似的结果. 值得提出的是, 实验中首先确定

H_3^+ 为正三角形结构是在库仑爆炸技术出现后完成的^[14].

同时,由于 H_3^+ 的爆炸将使沿束流方向的 H^+ 产物获得更多的动能,会在能谱的双高峰外产生两个小峰位,但整个实验过程都未发现有任何外部小峰的存在,说明谱峰中不存在 H_3^+ 的影响.

我们设定 HD_2^+ 的结构在分解前为等腰三角形,为 C_{2v} 对称结构.在爆炸过程中,两种产物 D^+ 和 H^+ 在实验室系的附加动能分别为 8.65/2 keV 和 10.54/2 keV,依此可方便获得质心系两个产物爆炸后的动能.假设爆炸前 D-D 和 D-H 的核间距分别为 $r_{\text{D-D}}$ 和 $r_{\text{D-H}}$,在用计算机模拟整个受力及运动过程后发现,产生这样产物能谱分布的 HD_2^+ 结构可以有两个,即两种初始核间距的 HD_2^+ 结构爆炸后产生相同的产物能谱分布.这两种 C_{2v} 对称的 HD_2^+ 结构,如图 3 所示.

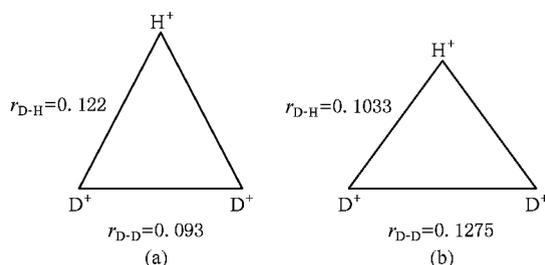


图 3 从 H^+ 和 D^+ 的能量分布推算的 HD_2^+ 的 C_{2v} 对称的两种可能结构(核间距单位为 nm)

图 3 中,结构(a)的 $r_{\text{D-D}}$ 小于 $r_{\text{D-H}}$,而结构(b)的 $r_{\text{D-D}}$ 大于 $r_{\text{D-H}}$,其对应的平均核间距如图 3 所标示.由于实验所测为平均核间距,这两种结构有着完全不同的含义,即在 HD_2^+ 中, H-D 与 D-D 的结合那个更紧密的问题.

近几十年人们对 HD_2^+ 的一系列研究使我们对这个问题有个基本的推断.这些研究结论典型的有:1986 年, Carrington 和 Kennedy 等人^[21]对 HD_2^+ 进行光分解实验中发现, H^+ 的产物明显比 D^+ 的产物多; Alvarez 等人^[22]利用 1—5 keV 的 HD_2^+ 和 He 相互作用,测量了 HD^+ 和 D_2^+ 的角和速度分布,结果发现平均生成 D_2^+ 的截面是生成 HD^+ 截面的 1.5 倍,而不是统计比例的 1:2,出现产物比例反转;2004 年, Strasser 等人^[13]对 HD_2^+ 和 H_2D^+ 的 DR 实验作了详细的研究,发现 HD_2^+ 分解时其结构趋于线状几何结构,并且氦处于中心的情形有很大的概率,也就是说

在 HD_2^+ 分解时,氢核先与两个氦核中的一个化学键断列的概率很大.这些研究表明了, HD_2^+ 分解时, $\text{D}_2^+ + \text{H}$ 的分解概率更大.预示着两个氦核相对于氦氢核结合的更紧密些.也使我们理由相信图 3 中结构(a)是正确的 HD_2^+ 结构形式.对该结论我们将在随后进行的三体尾流场造成的能谱分布形式予以证实.我们将从尾流效应出发,从尾流效应的结果上直接肯定结构(a)的正确性.

实验发现, H_3^+ 及其氦的同位素分子离子中, HD_2^+ 中的 H^+ 产物所受尾流效应的影响是最强烈的,如图 1 所示.其他分子离子的尾流场造成的影响和图谱已分别在文献 3—7 中报道.

在详细讨论尾流效应之前,我们先给出实验确定的 HD_2^+ 的结构形状,其平均核间距分别为

$$\begin{aligned} r_{\text{D-H}} &= 0.122 \text{ nm}, \\ r_{\text{D-D}} &= 0.093 \text{ nm}. \end{aligned}$$

如前所述,实验所测量的这个核间距结构是 HD_2^+ 的激发态的平均值.文献[22]认为激发态的 HD_2^+ 多以 $^1A_1(\nu=9)$, 3A_1 , 3B_1 , 3B_2 等态的形式存在.

4. 三体微团簇的尾流效应和对 HD_2^+ 的结构确定

荷正电荷的“快”带电粒子穿过固体时,会使附近的电子发生取向径向方向的位移,引发一个电子极化的尾迹,会对随后通过的离子产生偏转和阻滞作用,人们称之为尾流效应.在分子离子通过固体时,可以形成大量的、满足以上要求的时空相关的运动离子,所以微团簇的库仑爆炸的一个特点之一就是显著的尾流效应^[1-7].

在进行库仑爆炸的理论和实验研究中, Vager 等人发展的尾流效应的等离子模型被实验证明是较为成功的一种理论.

依电磁理论,极化电荷和束流电荷的傅里叶分量有如下关系:

$$\rho_{\text{pol}}(\mathbf{r}, \omega) = \rho_{\text{proj}}(\mathbf{r}, \omega) \{ \epsilon(\omega) \}^{-1} - 1 \}, \quad (15)$$

则随时间变化的极化电荷密度为

$$\begin{aligned} \rho_{\text{pol}}(\mathbf{r}, t) &= \frac{Ze}{2\pi v} \delta(x) \delta(y) \\ &\times \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\omega(z/\omega - t)} \{ \epsilon(\omega) \}^{-1} d\omega \quad (16) \end{aligned}$$

其中 ϵ 为介电函数.这是沿 z 轴(束流方向)的线电荷分布.

(2)式的求解需要介电函数的形式,在 Vager 等人引入的等离子体模型中,可简单地表述为(更精确的表述为林哈德函数)

$$\epsilon(\omega) = 1 - \omega_p^2/\omega^2, \quad (17)$$

其中 ω_p 为固体介质的等离子体频率,表述为 $\omega_p = (4\pi n l^2/m)^{1/2}$, n 为固体中参与共振运动的平均电子密度(通常是外层导电子体密度),对于碳膜,其值为 $4.5^{[23]}$.

将(17)式代入(16)式后积分,得

$$\rho_{pol}(z, t) = Ze/a \sin[(z - vt)/a] \times \delta(x) \delta(y) \delta(vt - z), \quad (18)$$

其中 $a = v/\omega_p$,

$$\theta(x) = \begin{cases} 0, & x < 0, \\ 1, & x \geq 0. \end{cases}$$

这里空间振动的线密度电荷分布,其波长 $\lambda = 2\pi a$ 通常为 1 到几个 nm.而且,表达式意味着这种极化波只在束流粒子之后存在,而在其前,是不存在的.

从以上论述推断,若一快粒子在固体中运动时,又有一粒子紧随其后运动(相距 1 nm 之内)则跟随的粒子必然会受到前方粒子所引发的极化波——尾流的力作用,使其运动受到某些影响,反过来,亦可以从这种影响中研究尾流场.

以下的讨论以 HD_2^+ 中的质子受尾流场影响为例.做一种考虑,将 HD_2^+ 作用情形限制在一特殊条件下,即 H^+ 在接近 0° 方向爆炸.也就是说, HD_2^+ 在固体中分解时, H^+ 核的运动与束流线平行.

严格的库仑爆炸实验条件下,不测量产物的角分布时,不在 0° 方向爆炸的质子,在 0° 方向是不会被探测到的.但是由于尾流波的存在,使本来不在 0° 方向,但接近 0° 方向的较低能质子被极化的尾流“拉”入 0° 方向,从而增加了 0° 方向的低能粒子计数,造成低能峰的计数高于高能峰.

需要说明的是,当相距很近的两个离子(0.1—0.2 nm)在固体中穿越时,其尾流势并非两个分立尾流势的线性叠加.这方面成熟的理论尚不存在.为了研究像 HD_2^+ 那样三体尾流效应,我们在等离子模型的基础上,提出一个处理三体尾流效应的模式.这个模型结合分子离子在固体中的快速分解过程,处

理过程中做了以下考虑和近似:

1. 重产物离子 D^+ 的分离速度小于轻离子产物 H^+ 的分离速度,近似情况下, $D-D$ 的间距变化接近于 $D-H$ 间距变化的质量比,即 $1/2$.

2. 产生尾流势的前方两个离子之间的起始核间距对极化的尾流场有较大的影响,我们不妨用因子 $e^{-r_{D-D}}$ 标记这个影响.当 $r_{D-D} = 0$ 时,影响因子为 1,这时两个氦核等同于一个 He^{++} 产生的尾流场.而在分离过程中,其影响类似地可以用因子 $e^{-r_{D-D}} \times e^{-z/2}$ 这个因子考虑了上述中的近似;因子中的 r_{D-D} 和 z 为以 0.1 nm 为单位的纯数值.

3. 尾流所产生的线电荷密度随时空呈震荡波的形式出现,但如前所述,其波长通常 1 到几个 nm,而 MeV 量级的分子离子在超薄膜(10 nm)中穿过时,其平均间距为 0.2—0.5 nm,受尾流场影响的后方离子在尾流场中的受力情况主要集中在爆炸开始的前几个 $1/10$ nm 内.

4. 在质心系,产物按立体角均匀分布.

根据库仑爆炸理论,在模拟计算中做以下假设:裸核间作用势只有:①直接的库仑势,其形式为

$$F = k \cdot \frac{e^2}{r},$$

其中 r 为两核间距离,②尾流波的作用力,尾流极化波的表达式如(18)式.

这样, HD_2^+ 在接近 0° 方向分解后,低能质子 P_L 受力:

$$F(\mathbf{r}) = \epsilon(E(\mathbf{r})_{2D-p} + E(\mathbf{r}')_{wake}), \quad (19)$$

其中 \mathbf{r} 为氦子和质子间的位移.

$$E(\mathbf{r})_{2D-p} = k \cdot \frac{e^2}{r^3} \mathbf{r}, \quad (20)$$

$$E(\mathbf{r}')_{wake} = k \cdot \int_0^z \frac{e \rho_{pol}(z)}{r'^3} \mathbf{r}' dz, \quad (21)$$

其中 $\rho_{pol}(z)$ 如(18)式所示.

在考虑以上讨论的情形下,三体尾流场的影响极化电荷密度分布用以下的形式取代:

$$\rho_{pol}(z, t) = Ze/a e^{-r_{D-D}} e^{-z/2} \times \sin[(z - vt)/a] \delta(x) \delta(y) \delta(vt - z),$$

即

$$E(\mathbf{r})_{wake} = k \cdot \int_0^z \frac{Ze^2 e^{-r_{D-D}} e^{-z/2} \sin[(z - vt)/a] \delta(x) \delta(y) \cdot \theta(vt - z)}{a \cdot r'^3} \mathbf{r}' dz, \quad (22)$$

\mathbf{r}' 由下式决定

$$\mathbf{r}' = \mathbf{r}_0 + x\mathbf{i} + z\mathbf{k},$$

其中 r_0 为初始质子的位移, 计算中作为常量, i, k 分别为垂直和平行束方向的单位矢量.

$$\dot{x} = v_x = \int_0^{z/v_0} (v_{0x} + a_x(t)) dt, \quad (23)$$

其中

$$a_x(t) = e \cdot (E_{12D-P} + E'_{1wake}) / m.$$

实际处理中, 考虑前方两个氘子对沿接近束流方向运动的随后的质子的 x 方向的库仑力相互抵消, 上式简化为

$$a_x(t) = e \cdot E'_{1wake} / m, \quad (24)$$

同样

$$\dot{z} = v_z = \int_0^{z/v_0} (v_{0z} + a_z(t)) dt, \quad (25)$$

其中

$$a_z(t) = e(E_{HP} + E'_{\parallel wake}) / m,$$

由于尾流势对爆炸产物的能损及束流方向的阻滞作用微乎其微, 通常不做考虑^[1-3, 6], 上式进一步表示为

$$a_z(t) = eE_{HP} / m, \quad (26)$$

(22) 式中的 Z 为两个氘核的核电荷数之和, $r_{D,D}$ 和 z 为以 0.1 nm 为单位的纯数值.

令靶厚为 z_0 , 则 $\dot{x}|_{z=z_0} / \dot{z}|_{z=z_0} = \text{tg}\theta$ 为质心系下低能质子出射角(于束流方向)的正切值, 通过坐

标系变换, 实验室系下:

$$\text{tg}\varphi = \frac{\left(\frac{ke^2}{r_0 m}\right)^{1/2} \sin\theta}{v_0 + \left(\frac{ke^2}{(1 + \text{tg}^2\theta)r_0 m}\right)^{1/2}}, \quad (27)$$

实验装置中测量系统的入口对靶的张角为 4.5×10^{-4} rad, 即两核连线与束流线夹角位于 $(4.5 \times 10^{-4})/2$ rad 的产物方可被探测到.

由于在质心系不计尾流场时, 产物的角分布是均匀的, 计算相对产物时只需计算在尾流场作用下, 原来多大范围的立体角产物在尾流场作用下进入特定范围立体角即可.

为了计算完整的 H⁺ 产物能谱, 则需要入射束流的能谱. 需要说明的是, 模拟计算尾流场造成对能谱分布影响时, 只需要计算出高低能谱的相对比例, 所得到的能谱为相对能谱, 即代表爆炸碎片的计数为相对计数. 为了方便, 我们不妨用质子产物的实际能谱形状拟合出的高斯分布谱作为入射束流的能谱形状:

$$C_E = C_0 \exp(-K \cdot \text{Abs}(E - E_0)), \quad (28)$$

其中, E_0 为测量的入射束能量 1.4977 MeV. 考虑到 H⁺ 谱峰的半高宽为 2.1 keV, 拟合得到的系统 K 为

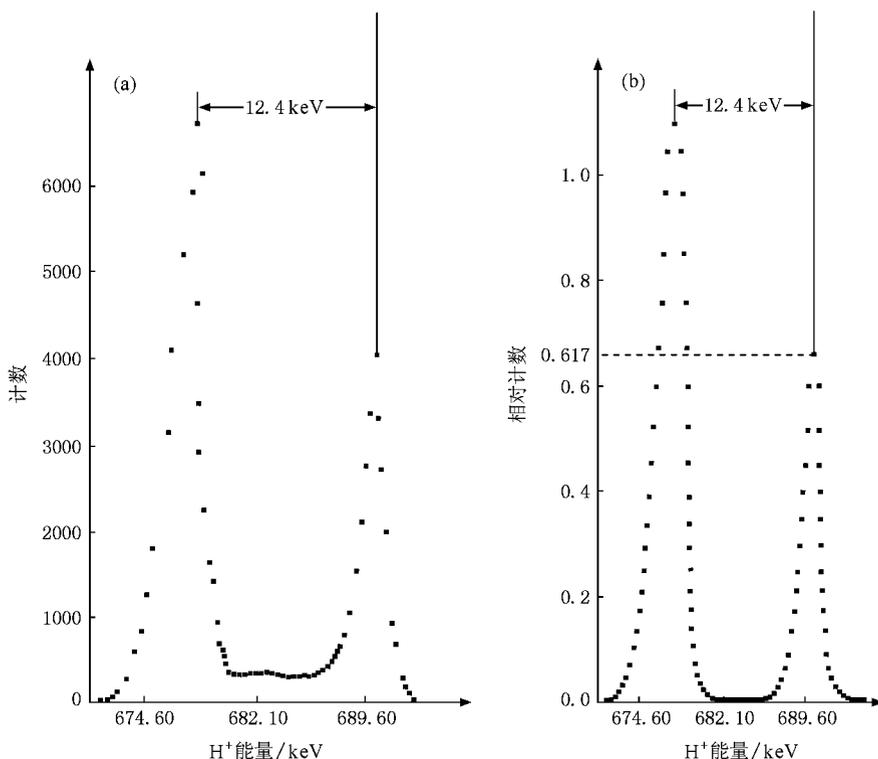


图 4 2.060 MeV H₃⁺ 在 10 nm 碳膜中库仑爆炸后在尾流场作用下 0° 方向 H⁺ 的模拟计算的相对能谱 (b) 和实际测量能谱 (a)

0.66 keV^{-1} . 考虑到受尾流场影响的后方离子在尾流场中的受力主要集中在爆炸开始的前几个 $1/10 \text{ nm}$ 内, 在实际计算中, 对 $E(r')_{\text{wake}}$ 的积分处理只考虑半个极化波长 (极化波长通常是 1 到几个 nm). 计算中忽略了离子在薄膜中的能量歧离和能损, 产物能谱上每一处的尾流场认为是一样的, 也就是说每一处对应的高低峰比例一样. 这样, 我们就可以只计算一处的 (例如峰位中心) 的计数比, 就可以得到整个产物分布的能谱分布.

为了验证这一对尾流场处理模式的合理性, 我们采用了实验过程中各种数据参量, 先用之计算了对 H_3^+ 和 D_3^+ 库仑爆炸在尾流场作用下在 0° 方向附近的相对记数的模拟能谱图. 图 4 是针对实测得到的核间距为 $0.098 \text{ nm}^{[5]}$ 的 H_3^+ 的模拟计算谱图和实测谱图的比较. 实验能谱中高低峰位计数比: $C_L/C_H = 6782/4008 = 1.69$. 按以上模式计算时, 计算的相对立体角之比 (相对计数比) 为 $C_{L-Relative}/C_{H-Relative} = 1/0.617 = 1.62$. 其结果与实验结果 (谱图形状) 吻合得较好.

在验证了对三体尾流场处理模式合理性的基础上, 依据以上的讨论, 我们进一步计算了图 3 中两种结构形状下, 1.4977 MeV 的 HD_2^+ 在 0° 方向的爆炸能谱的模拟谱图. 如图 5 所示.

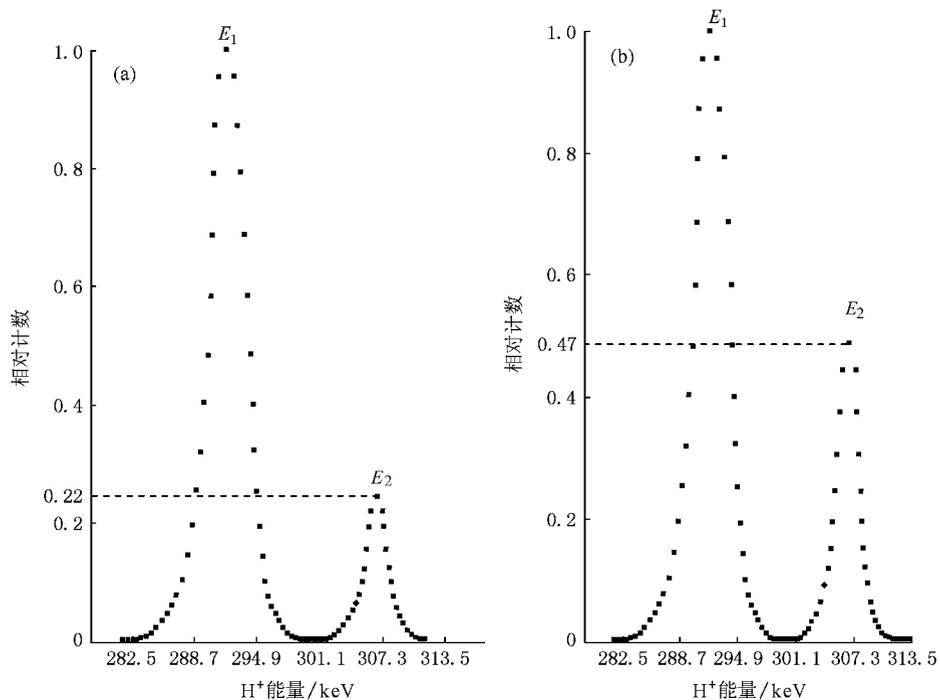


图 5 1.4977 MeV HD_2^+ 在 10 nm 碳膜中库仑爆炸后在尾流场作用下 0° 方向 H^+ 的模拟计算的两种结构模式下的相对能谱 (a) 中 $r_0 = 0.122 \text{ nm}$, $r_{D-D} = 0.093 \text{ nm}$ (b) 中 $r_0 = 0.1033 \text{ nm}$, $r_{D-D} = 0.1275 \text{ nm}$)

实验能谱中 HD_2^+ 的 H^+ 的高低峰位计数比: $C_L/C_H = 50812/11656 = 4.36$. 对结构 (a), 按以上模式计算时, 计算的相对立体角之比 (相对计数比) 为 $C_{L-Relative}/C_{H-Relative} = 1/0.21 = 4.55$.

但对结构 (b), 按以上模式计算时, 计算的相对立体角之比 (相对计数比) 为 $C_{L-Relative}/C_{H-Relative} = 1/0.47 = 2.13$.

计算结果表明, 结构 (a) 非常接近于实际测量能谱图结构, 而结构 (b) 则有较大差别. 这一结果进一步证实了结构 (a) 的正确性.

这里, 我们可以对实验中发现的 HD_2^+ 的 H^+ 的尾流效应相对于 H_3^+ 和其他 H_3^+ 的氘化同位素分子离子的尾流效应强得多的现象加以解释了. 正如确定的那样, $r_{D-H}/r_{D-D} = 1.3$, 即 r_{D-D} 和 r_{D-H} 的差别相对较大, 加上爆炸中 r_{D-D} 的变化远比 r_{D-H} 的变化小, 这样的结果是容易理解的. 这多少有点类似 HeH^+ 库仑爆炸后 H^+ 的尾流场情形. 事实上, HD_2^+ 的 H^+ 的分解能谱非常类似于 HeH^+ 库仑爆炸后 H^+ 的分解能谱^[8], 只是后者的高低能峰相差更加悬殊, C_L/C_H 之比达到 5.05.

值得注意的是, 对质量不等的核子组成的微团簇, 其重离子能谱的尾流效应往往表现不明显. 实验往往无法测到其尾流效应. 我们也没有发现不同质

量的元素的库仑爆炸能谱中较重离子受尾流场影响造成的能谱的高低能峰差异的报道,所有公布的结果都是针对较轻的离子产物. 在我们针对 HD⁺, HeH⁺, HD₂⁺ 等离子体的多次测量中,重产物能谱都没有尾流场造成的谱峰的显著变化. 我们认为这主要基于以下三个方面的原因(以 HD₂⁺ 为例):

1. D⁺ 的分辨率比 H⁺ 的分辨率低. 尽管库仑爆炸的实验条件已经非常苛刻,也能够将 D⁺ 的高低能谱清楚地分辨出来,但对接近 0° 爆炸的 D⁺ 来讲,不少 D⁺ 产物即使在没有尾流场的作用也会进入探测设备(高分辨静电分析仪). 装置无法将其完全分开.

2. 由于进入探测设备的 D⁺ 产物的数量(几十万)和相同条件下进入探测设备的 H⁺ 的数量(几百万)有数量级的差别,所以尽管进入探测设备的有些 D⁺ 离子确实是尾流场作用下才进入的,加上 D⁺ 离子的尾流效应相对 H⁺ 要小,造成这些离子相对比

例不大. 其次,对横向速度相同的离子产物,速度快的(高能端产物)进入分析仪器的产物会多些. 所以甚至会出现高能峰比低能峰稍高的反常现象. 如图 2 中所显示的那样.

3. 一个重要的原因是,当 D⁺ 在爆炸中沿 0° 方向直线或接近 0° 方向运行时,其余的两个产物 D⁺ 和 H⁺ 并不是直线运动的,造成不规则的尾流场. 考虑到 D⁺ 和 H⁺ 的分离速度比 D⁺ 和 D⁺ 的分离速度快,更使这种尾流场偏离直线,这些极大减少了 D⁺ 通过碳膜时受到尾流场的定向作用.

5. HD₂⁺, H₃⁺ 和 D₃⁺ 的库仑爆炸结果与对比

表 1 是三种分子离子在入射能量 E 下,质心系产物总动能 ϵ , 质子产物动能 ϵ_H , 氘核产物动能 ϵ_D 和彼此间核间距 r 的列表.

表 1 H₃⁺ 及其氘化同位素分子离子的离解动能 ϵ 和核间距 r 列表

	E/MeV	ϵ_H/eV	ϵ_D/eV	ϵ/eV	$r_{\text{H-H}}/\text{nm}$	$r_{\text{H-D}}/\text{nm}$	$r_{\text{D-D}}/\text{nm}$	形状
H ₃ ⁺	2.060	16.68		44.04	0.098			等边三角
D ₃ ⁺	1.8233		15.56	46.67			0.093	等边三角
HD ₂ ⁺	1.4977	16.25	11.61	39.47		0.122	0.093	等腰三角

实验得到的核间距是震动激发态的平均值. 库仑爆炸直接测量的核间距就是进入靶瞬间这些激发态的“快照”^[1]. 理论上,震动激发态寿命 $t \propto \frac{1}{\nu}$, 而 ν

$\propto \frac{1}{\sqrt{\mu}}$, ν 为震动频率, μ 为震动核子的折合质量. 说明如果在离子源三种分子离子各核子震动激发态是一样的,应该测量到的氘的核间距大于氢的核间距或氘核的核间距. 但实验结果却是相反的.

这表明,相对于 D₃⁺, H₃⁺ 更容易处于激发态. 对 HD₂⁺ 而言, H 核更容易受激发处于较高的震动态.

实际测量结果中, D₃⁺ 的核间距和 HD₂⁺ 中两个

氘核的核间距都是 0.093 nm, 而氢核的核间距却是最大的,说明异构同位素分子离子较轻离子容易处于较高震动激发态,同时也较容易分解.

无论从产物动能分析看,还是从核间距分布看,三种同位素分子离子的结合紧密程度依次为 D₃⁺, H₃⁺, HD₂⁺.

整个实验工作得到了四川大学原子核科学技术研究所静电加速器老师的积极配合与支持,在此表示敬意与感谢. 文章的部分计算工作得到研究生刘玲和蒋相站同学的协助和验证,一并表示感谢.

[1] Gaillard M J, Poizat J C, Ratkowski A, Remillieux J 1977 *Phys. Rev. A* **16** 2323

[2] Gemmell D A, Vager Z 1975 *Phys. Rev. Lett.* **34** 1420

[3] Miao J W, Yang B F, Shi M G, 1985 *Acta Phys. Sin.* **34** 1315 (in Chinese) [缪竞威、杨百方、师免恭 1985 物理学报 **34** 1315]

[4] Miao J W, Shi M G, Yang B F, Tang A Y, N. Cue 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1058 (in Chinese) [缪竞威、师免恭、杨百方、唐啊友、N. Cue 2000 物理学报 **49** 1058]

[5] Miao J W, Shi M G, Yang B F 1986 *Nucl. Inst. Meth. B* **13** 181

[6] Zhu Z S, Miao J W, Yang B F, Shi M G 2005 *Journal of Atomic*

- and *Molecular Physics* **22** 361 (in Chinese) [朱洲森、缪竞威、杨百方、师免恭 2005 原子与分子物理学报 **22** 361]
- [7] Yang B F , Miao J W , Yang C W , Shi M G , Tang A Y , Liu X D 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 55 (in Chinese) [杨百方、缪竞威、杨朝文、师免恭、唐啊友、刘晓东 2002 物理学报 **51** 55]
- [8] Miao J W , Wang H , Zhu Z S , Yang C W , Shi M G , Tang A Y , Miao L , Xu Z R , Yuan X D , Liu X D , Yang B F 2005 *Chin. Phys.* **14** 1803
- [9] Zhu Z S , Miao J W , Liao X H , Shi M G 2007 *Journal of Atomic and Molecular Physics* **24** 699 (in Chinese) [朱洲森、缪竞威、廖雪花、师免恭 2007 原子与分子物理学报 **24** 699]
- [10] Hirao K , Yamabe S 1983 *Chem. Phys.* **80** 237
- [11] Mitchell J B A , Ng C T , Forand L , Janssen R , McGowan J 1984 *J. Phys. B* **17** 909
- [12] Hinojosa G , Covington A M , Phaneuf R A , Sant M M 2002 *Phys. Rev. A* **66** 022712
- [13] Strasser D , Lammich L , Kreckel H , Lange M , Krohn S , Schwalm D , Wolf A , Zajfman D 2004 *Phys. Rev. A* **69** 064702
- [14] Astner G , Mannervik S , Veje E 1982 *Phys. Rev. A* **25** 828
- [15] Miao J W , Wang P L , Wang H , Yang C W , Miao L , Zhu Z S , Zheng S X , Liu Z Y , Liao X D , Shi M G 2005 *Nuclear Techniques* **28** 333
- [16] Adams N G , Smith D 1987 *In : Astrochemistry*
- [17] Michels H H , Hobbs R H 1984 *Appl. J. Lett.* **L 27** 286
- [18] Yang B F , Miao J W , Shi M G , Tang A Y , Zhu Z S , Liu X D 1999 *Journal of Sichuan University (Natural Science Edition)* **35** 236 (in Chinese) [杨百方、缪竞威、师免恭、唐啊友、朱洲森、刘晓东 1999 四川大学学报(自然科学版) **35** 236]
- [19] Collings B A , Polanyi J C , Stolow M A , Tarr J W 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 2551
- [20] Kevin G , Nigel G A , David S 1992 *J. Phys. Chem.* **96** 7645
- [21] Carrington A , Kennedy R A 1984 *J. Chem. Phys.* **84** 91
- [22] Alvarez I , Martnez H , Cisneros C , de Urquijo J 1992 *Phys. Rev. A* **45** 285
- [23] Alvarez I , Cisneros C 1976 *Phys. Rev. A* **14** 602

The interaction of HD_2^+ , H_3^+ and D_3^+ with solid foils and the three-body wake effect^{*}

Zhu Zhou-Sen^{1)†} Miao Jing-Wei²⁾ Yuan Xue-Dong²⁾ Shi Mian-Gong²⁾ Liao Xue-Hua¹⁾

1) *Institute of Physics and Electronic Engineering of Sichuan Normal University, Chengdu 610066, China*

2) *Institute of Nuclear and Technology, Sichuan University, Chengdu 610064, China*

(Received 4 December 2007; revised manuscript received 17 February 2008)

Abstract

The mechanism to form HD_2^+ , H_3^+ and D_3^+ from RF ion source is analyzed by experimental study of the interaction of these ions with solid foils. The structural pattern of HD_2^+ and the mean internuclear separations are determined using the Coulomb explosion technique. In our experiment, there is no line-shaped structure for HD_2^+ . A theoretical model to deal with the wake effect of three-body Coulomb explosion is proposed and applied to the interaction of HD_2^+ , H_3^+ and D_3^+ with solid foils. The model is proved to be successful and the structure of HD_2^+ is confirmed.

Keywords: HD_2^+ , H_3^+ and D_3^+ cluster, Coulomb explosion, three-body wake field, cluster structure

PACC: 3400, 3500, 3600

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10574095 and 10675087).

[†] E-mail: zhuzhousen@yahoo.com