

# $H_2D^+$ 与固体的相互作用及 $H_2D^+$ 的结构测量\*

朱洲森<sup>1)†</sup> 袁学东<sup>2)</sup> 缪竞威<sup>2)</sup> 师免恭<sup>2)</sup> 廖雪花<sup>1)</sup> 方才进<sup>1)</sup>

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, 辐射物理与技术重点实验室, 成都 610064)

(2012 年 3 月 19 日收到; 2012 年 4 月 10 日收到修改稿)

报道了分子离子  $H_2D^+$  与超薄固体膜相互作用的实验研究. 阐述了  $H_2D^+$  对天体物理等领域的重要性, 简述了近几年针对  $H_2D^+$  的研究, 分析了在实验室条件下  $H_2D^+$  的形成机理, 给出了其与固体膜相互作用产生库仑爆炸的能谱. 进行了辅助实验, 使  $D_2^+$  与相同固体膜发生作用, 并利用这个结果和其他分析与处理方法, 将  $H_2D^+$  的  $D^+$  能谱中  $D_2^+$  计数部分做了去除. 实验再次证实了分子离子与固体相互作用时尾流效应的存在, 采用三体尾流效应对比的方法最终确定了  $H_2D^+$  结构形状和键长. 对  $H_2D^+$  库仑爆炸后的较重离子尾流谱形状的反常现象做了讨论和分析.

**关键词:** 分子离子  $H_2D^+$ , 库仑爆炸, 三体尾流势, 团簇结构

**PACS:** 92.20.Rf, 36.40.-c, 61.48.-c

## 1 引言

人们对  $H_3^+$  及其氘化同位素分子离子的实验研究很多时候只集中在三种离子  $H_3^+$ ,  $D_3^+$  和  $HD_2^+$  上<sup>[1-3]</sup>, 对  $H_2D^+$  的实验研究大多采取回避的方式, 这主要是因为实验中离子源产生  $H_2D^+$  的同时, 会不可避免地混入  $D_2^+$ , 难以将其从  $H_2D^+$  中分离, 从而影响实验结果. 我们前面的研究也同样采用这种方式, 分别让 MeV 量级的纯净  $H_3^+$ ,  $D_3^+$  和  $HD_2^+$  的束流与超薄固体膜相互作用发生库仑爆炸, 以此为基础, 分析讨论了这三种分子离子的形成机理, 根据产物能谱分布, 确定了它们的结构<sup>[3-5]</sup>, 并第一次利用库仑爆炸技术确定了同位素分子离子  $HD_2^+$  的结构形式<sup>[5]</sup>. 但有一个无法回避的因素是  $H_2D^+$  恰恰是一种非常重要的分子离子, 在天体物理和天体化学中具有举足轻重的地位, 被认为是第一代氘化星际分子产物<sup>[6]</sup>, 在多氢分子的氘化分馏中起着关键的作用, 并且在星际云中有很高

的丰度. 近 10 年来尤其是近两三年, 人们对  $H_2D^+$  又进行了各种观测和研究: 2011 年, 为了对小质量恒星的研究, Chapillon 等<sup>[7]</sup> 深入探测研究了原行星盘 (protoplanetary disks) 中的  $H_2D^+$ ; 2006 年, Vastel 等<sup>[8]</sup> 以  $H_2D^+$  为研究对象, 在实验室模拟早期星际形成的演变等; 2010 年, Sochi 和 Tennyson<sup>[9]</sup> 在很宽的能级范围内研究了  $H_2D^+$  的震动转动光谱; 2005 年, Kokoouline 和 Greene<sup>[10]</sup> 用理论的方式研究了  $H_2D^+$  的分解复合 (DR) 反应; 2004 年, Strasser 等<sup>[11]</sup> 对  $H_2D^+$  的 DR 实验做了详细的研究, 发现  $HD_2^+$  分解时其结构趋于线状几何结构, 并且氘处于中心的情形有很大的概率. 这些研究对  $H_2D^+$  的物理特性以及在天体进化等领域的应用都更进一步.

本文在相同实验条件下对  $D_2^+$  和相同的超薄碳膜相互作用进行了测量和研究, 并参照此结果和其他分析方法将混入  $H_2D^+$  束流中的  $D_2^+$  的影响用合成与分解的方式除去. 在确定  $H_2D^+$  化学结构时, 采用了我们提出并得到较好应用的三体尾流效

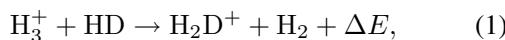
\* 国家自然科学基金 (批准号: 11125175, 10574095) 和四川高校科研创新团队建设计划 (批准号: 12TD008) 资助的课题.

† E-mail: zhuzhousen@yahoo.com

应确定分子离子结构的方法, 并实验得到了  $\text{H}_2\text{D}^+$  的结构形状和键长。实验测量得到了  $\text{H}_2\text{D}^+$  的化学立体结构, 实验测量了所有的  $\text{H}_3^+$  及其氘化同位素分子离子的结合能与结构。实验装置以及实验过程所需要的苛刻的实验条件的实现与实验原理在我们以前文章中有详细介绍<sup>[3-5]</sup>, 此处不做过多陈述, 只在涉及与本文相关的地方做适当说明。

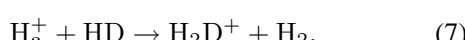
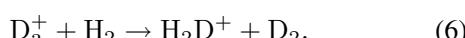
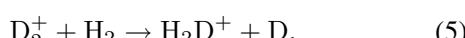
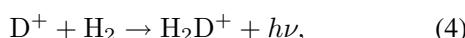
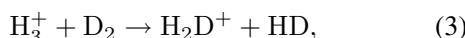
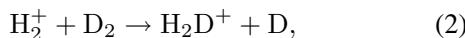
## 2 $\text{H}_2\text{D}^+$ 同位素分子离子的形成机理

在星际云中, 一个非常重要的反应是<sup>[12]</sup>:



其反应截面  $a = 3 \times 10^{-10} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ . 由于这个反应在星际条件下是不可逆的, 所以  $\text{H}_2\text{D}^+$  具有较高的丰度, 常被用来作为探究星际空间的演变和形成等的对象。

在实验室条件下, 在高频离子源纯净的氢气电离会产生大量的  $\text{H}^+$ ,  $\text{H}_2^+$  和  $\text{H}_3^+$  离子, 纯净的氘气电离同样会产生大量的  $\text{D}^+$ ,  $\text{D}_2^+$  和  $\text{D}_3^+$  离子, 这些离子在高频离子源混合后, 会形成包含  $\text{H}_2\text{D}^+$  在内的一系列同位素分子离子<sup>[3]</sup>. 涉及形成  $\text{H}_2\text{D}^+$  的主要的反应为:



当然, 还存在其他形成  $\text{H}_2\text{D}^+$  的反应道, 但以上述的反应道为主。

以上反应后, 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约为  $10^{-6} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ <sup>[13]</sup>. 但得注意的是,  $\text{H}_3^+$  的复合反应在 Admas 和 Smith<sup>[14]</sup> 的 VT-FALP 实验观察中, 在 95—600 K 温度范围, 其复合反应进行得非常慢. 其上限值仅约为  $10^{-11} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ , 大大低于

其他分子离子的复合反应速度. 对于  $\text{H}_2\text{D}^+$  也得到类似的结果. 所以, 对于离子源处于振动激发态的  $\text{H}_2\text{D}^+$ , 几乎很少发生与电子的复合分解反应, 使得  $\text{H}_2\text{D}^+$  在离子源中的丰度较高, 方便引出稳定的强束流. Kevin 等<sup>[15]</sup> 在 1992 年专门研究了通过  $\text{H}_2$  和  $\text{D}_2$  混合形成  $\text{H}_3^+$ ,  $\text{HD}_2^+$ ,  $\text{H}_2\text{D}^+$ ,  $\text{D}_3^+$  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  $\text{HD}_2^+$  和  $\text{H}_3^+$  相似, 几乎很少发生与电子的复合分解反应, 从而使生成的  $\text{H}_2\text{D}^+$  有较高的稳定性.

$\text{H}_3^+$  和其同位素分子离子的这一特性, 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. 也由于这个原因, 使它们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  $\text{H}_3^+$  及同位素分子离子进行探索研究的原因之一.

需要说明的是, 由于磁分析器无法将  $\text{H}_2\text{D}^+$  和  $\text{D}_2^+$  区分开来,  $\text{H}_2\text{D}^+$  的束流中势必掺入  $\text{D}_2^+$ . 为了分离实验结果中  $\text{D}_2^+$  对  $\text{H}_2\text{D}^+$  库仑爆炸测量结果的影响, 我们单独进行了相同条件下纯净  $\text{D}_2^+$  的库仑爆炸测量, 并参照其他有效的分析方法, 最终确定了  $\text{H}_2\text{D}^+$  库仑爆炸能谱和结构.

## 3 $\text{H}_2\text{D}^+$ 与固体的相互作用

MeV 量级的分子离子在进入固体时, 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<sup>[16,17]</sup>. 这一过程称为“库仑爆炸”, 是团簇与固体相互作用的一个重要领域,  $\text{H}_3^+$ ,  $\text{D}_3^+$  和  $\text{HD}_2^+$  的化学结构就是由库仑爆炸技术首先确定的<sup>[17,4,3]</sup>.

### 3.1 $\text{H}_2\text{D}^+$ 的库仑爆炸产物能谱

图 1 是 1.5232 MeV 的  $\text{H}_2\text{D}^+$  束经超薄碳膜后在 0° 方向出射的质子能谱, 能量由高分辨静电分析器测量. 如图 1 所示, 所得到的能谱是典型的库仑爆炸产物能谱: MeV 级的  $\text{H}_2\text{D}^+$  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  $\text{H}_2\text{D}^+$  中的质子, 图 1 中能谱的两个谱峰分别对应在质心系裂开时沿束流方向的朝前与朝后的质子。需要指出的是, 虽然  $\text{H}_2\text{D}^+$  的束流中含有  $\text{D}_2^+$ , 但对于质子能谱不会产生任何影响。

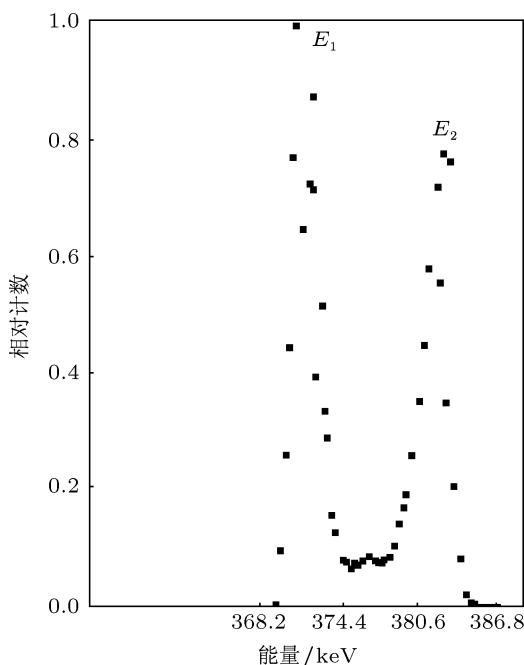


图 1 1.5232 MeV 能量入射的  $\text{H}_2\text{D}^+$  质子的库仑爆炸能谱

两个峰值间的能量差  $\Delta E_{\text{Hmax}} = 10.23 \text{ keV}$ , 能量峰的半高宽 (FWHM) 为  $2.2 \text{ keV}$ . 实验中的最高计数为 9987. 质子能谱与氘子的能量峰间距以及谱峰形状一起决定  $\text{H}_2\text{D}^+$  的结构, 将在后节讨论分析。两个能量峰之间出现了一个小峰, 这是在靶的前几层质子俘获电子成为中性粒子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的谱峰<sup>[17]</sup>. 实验中采用的靶膜是  $3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  的碳靶, 其厚度仅为  $100 \text{ \AA}$  ( $1 \text{ \AA} = 0.1 \text{ nm}$ ) 左右。明显地, 高低能峰的产物比例存在明显的差别, 这就是带电离子穿过固体时产生的尾流效应造成的结果,  $\text{H}_2\text{D}^+$  通过碳膜产生的针对  $\text{H}^+$  尾流场的分析将在下文进行分析和阐述。需要指出的是, 对确立  $\text{H}_2\text{D}^+$  的结构形状, 尾流效应将起到十分重要的作用。在分析处理尾流效应中, 将采用文献 [3] 中提出的解决三体库仑爆炸的尾流场模型, 利用该模型对  $\text{H}^+$  进行了爆炸能谱的理论模拟, 与实验结果进行了对比, 最终确定了  $\text{H}_2\text{D}^+$  的结构形状。

图 2 是在相同条件下  $\text{H}_2\text{D}^+$  的  $\text{D}^+$  的爆炸能谱分布。 $\text{D}^+$  裂开速度较  $\text{H}^+$  为小, 造成零度方向以及附近更多的  $\text{D}^+$  进入静电分析器。同时  $\text{D}^+$  的分辨率比  $\text{H}^+$  的为小, 造成  $\text{D}^+$  的能谱分辨比  $\text{H}^+$  的能谱分辨差。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和定位。需要指出, 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, 甚至出现高能端略高的反常现象, 将在文章后部分进行讨论。

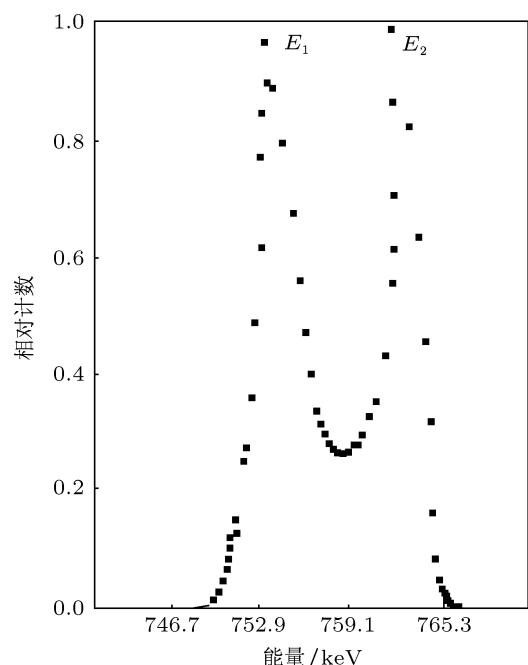


图 2 1.5232 MeV 能量入射的  $\text{H}_2\text{D}^+$  氚子的库仑爆炸混合能谱, 包含  $\text{D}_2^+$  的氘子能谱

直接测量的能谱是  $\text{H}_2\text{D}^+$  和  $\text{D}_2^+$  的混合库仑爆炸能谱,  $\Delta E_{\text{Dmax}} = 8.68 \text{ keV}$ , 能量峰 FWHM 为  $2.9 \text{ keV}$ , 实验中的最高计数为 88605. 为了获取  $\text{H}_2\text{D}^+$  的结合能和几何结构, 就必须将两部分分离开, 为此, 我们做了纯  $\text{D}_2^+$  在相同试验条件下的库仑爆炸, 测得  $\text{D}^+$  的能谱峰, 并在实测的对比基础上准确获得相对比例, 将其最后用图谱解析的方式获取  $\text{H}_2\text{D}^+$  的  $\text{D}^+$  谱图。

$\text{D}_2^+$  与固体相互作用后的  $\text{D}^+$  能谱是个简单的库仑爆炸能谱, 两个峰值间的能量差  $\Delta E_{\text{max}} = 8.15 \text{ keV}$ . 依此得到  $\text{D}_2^+$  的核间距为  $1.32 \text{ \AA}$ .

由此看出, 在  $\text{H}_2\text{D}^+$  的混合  $\text{D}^+$  能谱中,  $\text{D}_2^+$  与固体相互作用后的能谱峰位比混合  $\text{D}^+$  峰位内移  $(8.68 - 8.15)/2 = 0.26 \text{ keV}$ . 那么这个因素会对  $\text{H}_2\text{D}^+$  的  $\text{D}^+$  内移产生多大的偏差, 就可得出这

两个计数的相对比例。这里需要指出，这个偏差相对是比较小的，因为在测量中，每个计数点的测量间距为 0.3 keV，这个偏差小于一个计数点。但为了准确获得真正的  $\text{H}_2\text{D}^+$  的  $\text{D}^+$  谱图峰间距，这个偏差必须推算出来。

为了获得测量结果中  $\text{D}^+$  的能谱峰的产物中  $\text{H}_2\text{D}^+$  的  $\text{D}^+$  数量，我们用  $\text{HD}_2^+$  的爆炸产物碎片做比较。这是由于在整个实验过程中，装置对  $\text{D}^+$  和  $\text{H}^+$  的分辨能力保持不变，而实测和理论都说明，在库仑爆炸中，由于在质心系爆炸产物的各向的均匀分布，加上试验装置对某种离子的分辨能力也是固定的，使得在试验测量的张角一定的情况下，对异构分子离子 ( $\text{H}_2\text{D}^+$ ,  $\text{HD}_2^+$ ) 的测量中，各产物的比例总是一定的。具体在  $\text{H}_2\text{D}^+$  或者  $\text{HD}_2^+$  上，也就是说，对一种分子离子而言，对应于一定数量的  $\text{H}^+$ ，总会探测到固定比例的  $\text{D}^+$  产物。而在结构类似的不同的分子离子中，这个比例相对于分子离子中某种离子的含量也是成正比例的。这就使我们可以通过  $\text{H}_2\text{D}^+$  库仑爆炸中  $\text{H}^+$  的计数和  $\text{HD}_2^+$  爆炸能谱中  $\text{H}^+$  和  $\text{D}^+$  的比例以及  $\text{H}_2\text{D}^+$  与  $\text{HD}_2^+$  中两种产物的含量比例，能比较准确地获取  $\text{D}^+$  的混合能谱中  $\text{H}_2\text{D}^+$  的  $\text{D}^+$  所占的比例及数量。

在  $\text{HD}_2^+$  的库仑爆炸能谱测量中，中心峰的最高计数比  $C_{\text{Dmax}}/C_{\text{Hmax}} = 168027/49763 = 3.38$ ，在  $\text{H}_2\text{D}^+$  的爆炸谱的  $\text{H}^+$  的中心最高计数为 9987。考虑到以上的几个因素以及比例，以此推算得到的  $\text{H}_2\text{D}^+$  的  $\text{D}^+$  的能谱峰的中心计数应为 16878。由此看来，在实验所测的混合的  $\text{D}^+$  的能谱中， $\text{D}_2^+$  的贡献要占大多数，这也符合离子源中离子种类分布的实际情况。因为离子源中形成  $\text{H}_2\text{D}^+$  时，是由氢气和氘气混合后电离，然后经过分子反应形成的，正如文章的第 2 节所述。而电离氘气会产生数量较多的  $\text{D}_2^+$  离子。这样，根据实际测量的能谱使用高斯拟合先拟合出混合  $\text{D}^+$  能谱，然后根据实际测量的  $\text{D}_2^+$  的爆炸能谱拟合出  $\text{D}_2^+$  爆炸后贡献部分的能谱，参照实测的能谱计数分布以及产物的相对比例，最终采用高斯拟合分解的方法得到的  $\text{H}_2\text{D}^+$  的  $\text{D}^+$  能谱峰，如图 3 所示。

图 3 的相对于直接测量获取的能谱，图 3 的峰位偏移了 0.29 keV，这是去除了  $\text{D}_2^+$  的影响形成的。这样  $\text{H}_2\text{D}^+$  的结果中， $\text{D}^+$  的能谱的两个峰位的

能量差  $\Delta E_{\text{Dmax}} = 9.26 \text{ keV}$ ， $\text{D}^+$  能量峰的 FWHM 为 2.9 keV。

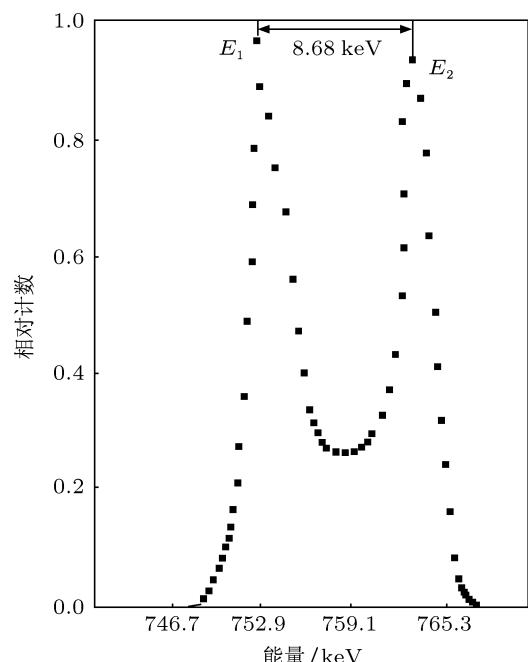


图 3 实测  $\text{H}_2\text{D}^+$  的  $\text{D}^+$  能谱经过高斯拟合去除  $\text{D}_2^+$  的  $\text{D}^+$  能谱后得到的 1.5232 MeV 能量入射的  $\text{H}_2\text{D}^+$  的氘的库仑爆炸高斯拟合能谱

### 3.2 $\text{H}_2\text{D}^+$ 的几何结构

首先，双峰结构的能谱清楚表明不存在  $\text{H}-\text{H}-\text{D}^+$  或  $\text{H}-\text{D}-\text{H}^+$  线形结构的  $\text{H}_2\text{D}^+$ 。虽然  $\text{H}^+$  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<sup>[16]</sup> 对  $\text{H}_3^+$  做类似的碰撞实验时也出现相似的结果。

我们设定  $\text{HD}_2^+$  的结构在分解前为等腰三角形，为  $C_{2v}$  对称结构<sup>[10]</sup>。在爆炸过程中，两种产物  $\text{D}^+$  和  $\text{H}^+$  在实验室系的附加动能分别为  $8.68/2$  和  $10.23/2 \text{ keV}$ ，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  $\text{H}-\text{H}$  和  $\text{D}-\text{H}$  的核间距分别为  $r_{\text{H}-\text{H}}$  和  $r_{\text{D}-\text{H}}$ ，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  $\text{H}_2\text{D}^+$  结构可以有两个，这个现象与  $\text{HD}_2^+$  类似实验中的情形是一样的<sup>[3]</sup>，即两种初始核间距的  $\text{H}_2\text{D}^+$  结构爆炸后产生相同的产物能谱分布。这两种  $C_{2v}$  对称的  $\text{H}_2\text{D}^+$  结构，其中一种 a 结构中， $r_{\text{D}-\text{H}} = 1.29 \text{ \AA}$ ， $r_{\text{H}-\text{H}} = 0.99 \text{ \AA}$ ，氘氢核间距比氢氢核间距大；而另一种 b 结构中， $r_{\text{D}-\text{H}} = 1.09 \text{ \AA}$ ， $r_{\text{H}-\text{H}} = 1.23 \text{ \AA}$ ，氘氢核间距比氢氢核间距小，它们代表不同的物理含义，即在  $\text{H}_2\text{D}^+$  结构中，哪类化学键结合更紧密的问题。

近年对  $\text{H}_2\text{D}^+$  的其他研究使我们对这个问题有个初步的推断: 2004 年, Strasser 等<sup>[11]</sup> 对  $\text{HD}_2^+$  和  $\text{H}_2\text{D}^+$  的 DR 实验做了详细的研究, 发现  $\text{H}_2\text{D}^+$  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, 也就是说在  $\text{H}_2\text{D}^+$  分解时, 氢氢化学键断裂的概率很大, 表明  $\text{H}_2\text{D}^+$  分解时,  $\text{HD}^+ + \text{H}$  的分解概率更大, 预示氘氢核相对于氢氢核结合得更紧密些. 这使我们有理由相信结构 a 是正确的  $\text{H}_2\text{D}^+$  结构形式. 对这一结论的直接支持, 将用我们提出的解决三体库仑爆炸中尾流效应的模式进行推断<sup>[3]</sup>, 用我们的模型得到的能谱形状与实际测量的爆炸能谱进行比较的方式予以证实. 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.

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<sup>[16,17]</sup>.

三体库仑爆炸后处理尾流效应的模型在文献[3]中有详细的介绍和推算方式, 模型经检验与实际的库仑爆炸能谱符合得很好. 在这里我们只引用这一模型针对  $\text{H}_2\text{D}^+$  采用这一方式后得到的处理结果. 图 4(a) 是  $\text{H}_2\text{D}^+$  结构 a 的库仑爆炸后的模拟尾流能谱, 图 4(b) 是  $\text{H}_2\text{D}^+$  结构 b 的库仑爆炸后的模拟计算的尾流能谱.

实验能谱中  $\text{H}_2\text{D}^+$  的  $\text{H}^+$  高低峰位计数比为  $C_{\text{L}}/C_{\text{H}} = 9987/7187 = 1.40$ . 对结构 a, 按以上模式计算时, 计算的相对立体角之比<sup>[3]</sup> (相对计数比) 为  $C_{\text{L-relative}}/C_{\text{H-relative}} = 1/0.74 = 1.35$ . 但对结构 b, 按以上模式计算时, 计算的相对立体角之比<sup>[3]</sup> (相对计数比) 为  $C_{\text{L-relative}}/C_{\text{H-relative}} = 1/0.52 = 1.92$ .

计算结果 a 非常接近于实际测量能谱图结构, 而 b 则有较大差别. 这一结果较直接地证实了结构 a 的正确性.

这里, 我们最终给出的实验确定的  $\text{H}_2\text{D}^+$  的结构形状, 其核间距分别为

$$R_{\text{H-H}} = 1.29 \text{ \AA},$$

$$R_{\text{H-D}} = 0.99 \text{ \AA}.$$

实验所测量的这个核间距结构是  $\text{H}_2\text{D}^+$  的激发态的平均值. 文献 [18] 认为激发态的  $\text{HD}_2^+$  和  $\text{H}_2\text{D}^+$  多以  ${}^1A'_1 (\nu = 9)$ ,  ${}^3A_1$ ,  ${}^3B_1$ ,  ${}^3B_2$  等态的形式存在.

下面对实验中发现的  $\text{HD}_2^+$  的  $\text{H}^+$  的尾流效应相对于  $\text{H}_2\text{D}^+$  的尾流效应强得多的现象进行解释<sup>[3]</sup>. 正如我们测量的那样, 在  $\text{HD}_2^+$  的结构中,  $r_{\text{D-H}}/r_{\text{D-D}} = 1.3$ , 即  $r_{\text{D-D}}$  和  $r_{\text{D-H}}$  的差别相对较大, 而在  $\text{H}_2\text{D}^+$  的结构中,  $r_{\text{D-H}}/r_{\text{H-H}} = 0.8$ , 加上爆炸中  $r_{\text{D-D}}$  的变化远比  $r_{\text{D-H}}$  的变化小, 而  $r_{\text{D-H}}$  的变化又比  $r_{\text{H-H}}$  的变化小, 这样的结果是容易理解的.

实验中, 我们没有观测到  $\text{D}^+$  的能谱的尾流效应. 在我们针对  $\text{H}_2\text{D}^+$  分子离子的多次测量中, 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:  $\text{D}^+$  的分辨率比  $\text{H}^+$  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  $\text{D}^+$  的高低能谱清楚地分辨出来, 但对接近  $0^\circ$  爆炸的  $\text{D}^+$  来讲, 不少  $\text{D}^+$  产物即使没有尾流场的作用也会进入探测设备(高分辨率静电分析仪), 装置无法将其完全分开, 尽管进入探测设备的  $\text{D}^+$  产物的数量(几十万)和相同条件下进入探测设备的  $\text{H}^+$  的数量(几万)有数量级的差别, 但就如前面所述, 这些重离子能谱的计数主要是由  $\text{D}_2^+$  所贡献的, 加上两个能谱的谱峰位置又有少许偏差, 模糊了尾流效应的影响; 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; 另一个重要的原因是, 当一个  $\text{H}^+$  在爆炸中沿  $0^\circ$  方向直线或接近  $0^\circ$  方向运行时, 其余的两个产物  $\text{D}^+$  和  $\text{H}^+$  并不是直线运动的, 造成不规则的尾流场, 考虑到  $\text{D}^+$  和  $\text{H}^+$  的分离速度比  $\text{H}^+$  和  $\text{H}^+$  的分离速度慢, 更使这种尾流场偏离直线, 从而极大地减少了  $\text{D}^+$  通过碳膜时受到尾流场的定向作用.

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”<sup>[17]</sup>. 理论上, 震动激发态寿命  $t \propto \frac{1}{\nu}$ , 而  $\nu \propto 1/\sqrt{\mu}$ ,  $\nu$  为震动频率,  $\mu$  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氢氘的核间距. 但实验结果却是相反的. 这表明, 对  $\text{H}_2\text{D}^+$  而言, H 核更容易受激发而处于

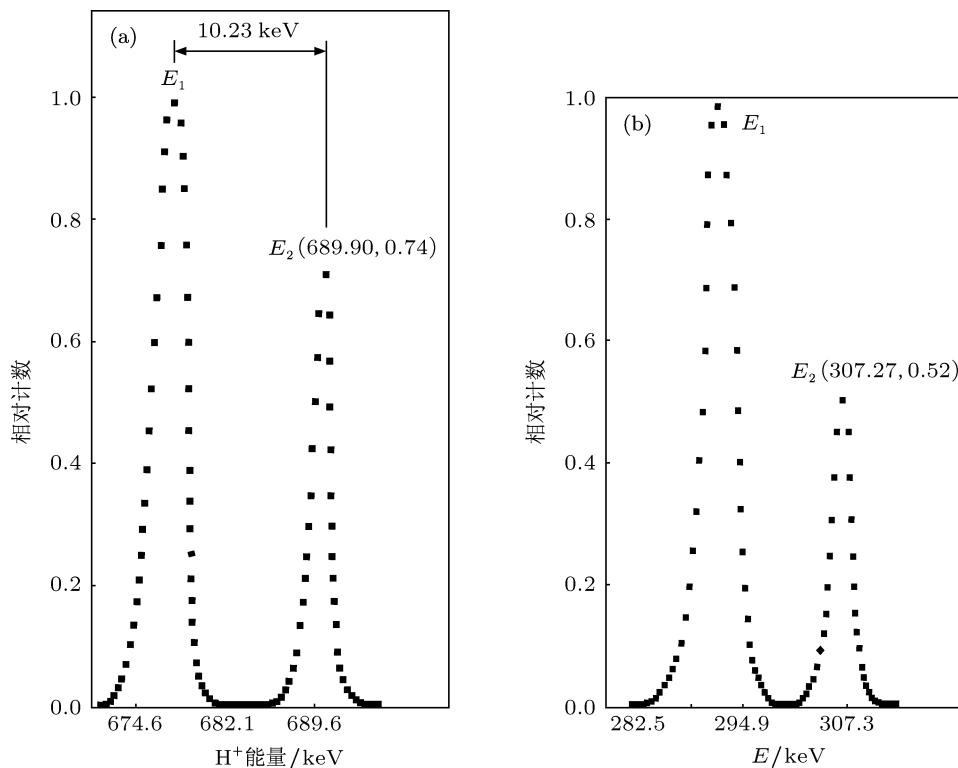


图 4 1.5232 MeV  $\text{H}_2\text{D}^+$  在 100 Å 碳膜中库仑爆炸后在尾流场作用下 0° 方向  $\text{H}^+$  模拟计算的相对能谱 (a) 结构 a 的模拟计算尾流效应能谱; (b) 结构 b 的模拟计算尾流效应能谱

较高的震动态.

至此, 我们完成了对  $\text{H}_3^+$  及其所有氘化同位素分子离子结合能与几何结构的测量, 给出了完整的数据. 针对  $\text{H}_2\text{D}^+$  的这一实验结果, 对天体物理与天体化学具有非常重要的意义, 其结构数据为首次直接测量的结果. 实验中, 采用的辅助实验和能谱

解析的分析方法, 以及采用尾流效应模型来确定三体异构分子离子结构的方法, 对类似的研究和结果分析具有很好的借鉴作用.

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组全体老师的积极配合与支持, 在此表示感谢.

- [1] Mitchell J B, Forand L, Janssen R, McGowan J 1984 *J. Phys.* **B17** 909
- [2] Astner G, Mannervik S, Veje E 1982 *Phys. Rev.* **A25** 828
- [3] Zhu Z S, Miao J W, Shi M G 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6240 (in Chinese) [朱洲森, 缪竞威, 师免恭 2008 物理学报 **57** 6240]
- [4] Miao J W, Yang B F, Shi M G 1986 *Nucl. Inst. Meth.* **B13** 181
- [5] Zhu Z S, Miao J W, Shi M G, Yuan X D 2009 *Chin. Phys. B* **18** 4840
- [6] Adams N G, Smith D 1988 *Chem. Phys. Lett.* **144** 11
- [7] Chapillon E, Parise B, Guilloteau S, Du F 2011 *Astron. Astrophys.* **A143** 533
- [8] Vastel C 2006 *Astrophys. J.* **645** 1198
- [9] Sochi T, Tennyson J 2010 *Astron. Astrophys.* **405** 2345
- [10] Kokouline V, Greene C H 2005 *Phys. Rev.* **A72** 188
- [11] Strasser D, Lammich L, Kreckel H, Lange M 2004 *Phys. Rev.* **A69** 702
- [12] Watson W D 1976 *Rev. Modern Phys.* **48** 513
- [13] Bardsley J N, Biondi M A 1970 *Adv. At. Mol. Phys.* **6** 1
- [14] Adams N G, Smith D 1987 *Astrophys. J.* **317** 171
- [15] Kevin G, Nigel G A, David S 1992 *J. Phys. Chem.* **96** 7645
- [16] Gaillard M J, Poizat J C, Ratkowski A, Remillieux J 1977 *Phys. Rev.* **A16** 2323
- [17] Gemmell D A, Vager Z 1975 *Phys. Rev. Lett.* **34** 1420
- [18] Alvarey I 1992 *Phys. Rev. A* **45** 285

# The interaction of H<sub>2</sub>D<sup>+</sup> with thin solid foils and the detection of its structure\*

Zhu Zhou-Sen<sup>1)</sup> Yuan Xue-Dong<sup>2)</sup> Miao Jing-Wei<sup>2)</sup> Shi Mian-Gong<sup>2)</sup>  
Liao Xue-Hua<sup>1)</sup> Fang Cai-Jin<sup>1)</sup>

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

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

(Received 19 March 2012; revised manuscript received 10 April 2012)

## Abstract

The Interaction between molecular ion H<sub>2</sub>D<sup>+</sup> and ultra-thin solid film is reported for the first time. The importance of H<sub>2</sub>D<sup>+</sup> in the areas such as astrophysics is stated and the study on H<sub>2</sub>D<sup>+</sup> of recent years is outlined. The formation mechanism for the H<sub>2</sub>D<sup>+</sup> under laboratory conditions is also analysed. The structural pattern of H<sub>2</sub>D<sup>+</sup> and the mean internuclear separation are determined using Coulomb explosion technique. Once again, the existence of wake effects in the interaction of molecular ions with solid is confirmed and three-body wake effect module is used to determine the geometric structure of H<sub>2</sub>D<sup>+</sup>. Finally, the unusual structure of the wake of energy spectrum for the heavier ions in the H<sub>2</sub>D<sup>+</sup> Coulomb explosion is discussed.

**Keywords:** molecular ion H<sub>2</sub>D<sup>+</sup>, Coulomb explosion, three-body wake effect, cluster structure

**PACS:** 92.20.Rf, 36.40.-c, 61.48.-c

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11125175, 10675087) and the Construction Plan for Scientific Research Innovation Teams of Universities in Sichuan Province, China (Grant No. 12TD008).

† E-mail: zhuzhousen@yahoo.com