

文章编号: 1007-4627(2002)02-0234-04

## H<sub>3</sub><sup>+</sup> 团簇离子的实验研究\*

杨百方, 缪竞威, 杨朝文, 师勉恭, 刘晓东

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

**摘要:** 报道了 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 离子通过碳膜后, 在其中产生的各种微量产物的测量结果, 讨论了离子与碳膜作用中的电荷交换过程, 分析了这些微量产物的形成机理, 证明在产物的形成中电荷交换过程起关键作用, 研究了离子与碳膜作用中的团簇效应和尾流效应.

**关键词:** 团簇离子; 电荷交换; 团簇效应; 尾流效应

**中图分类号:** O561.1      **文献标识码:** A

### 1 引言

H<sub>3</sub><sup>+</sup> 是最简单最稳定的团簇离子. 在  $n > 3$  的 H<sub>n</sub><sup>+</sup> 团簇形成中, H<sub>3</sub><sup>+</sup> 是关键的分离子<sup>[1, 2]</sup>. 与 H<sup>+</sup> 离子一样, 快 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 离子在碳膜中运行时也会与靶电子发生电荷交换, 形成各种微量产物. 但是 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 含有两个束缚电子和三个质子. 理论计算表明<sup>[3]</sup>, 在 MeV 能区, 电子损失截面比电子俘获截面大几个数量级, 即  $\sigma_i \gg \sigma_c$ . 因此 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 必然是首先失去束缚电子, 形成三质子裸核团(在本文中用 (3H<sup>+</sup>) 表示), 然后 (3H<sup>+</sup>) 发生强烈的库仑爆炸. 库仑爆炸是 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 与固体相互作用中的重要过程<sup>[4-8]</sup>; 而 (3H<sup>+</sup>) 在碳膜中运行期间也会与靶电子发生电荷交换, 形成各种微量产物. 由于质子之间的互相关联, 使得电荷交换的结果变得丰富多样. 质子间相关性的强弱影响产物的种类和变化趋势; 而且质子的相关性也使尾流势发生明显的作用. 在相同速度下, 将 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 的各种产物与 H<sup>+</sup> 的产物的产额相比较, 可以清楚地看出相互作用过程中, 团簇关联效应和尾流效应的影响.

### 2 测量结果

快 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 离子通过各种厚度的碳膜时, 除了产生大量的 H<sup>+</sup> 产物之外, 还可能形成 H<sub>3</sub><sup>+</sup>, H<sub>2</sub><sup>+</sup>, H,

H<sub>2</sub> 和 H<sup>-</sup> 等微量产物. 我们在 1.2 和 1.8 MeV 的能量下, 测量了 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 离子在碳膜中产生的正离子产物、中性产物以及负离子产物的产额  $\phi_3(i)$ ,  $i$  代表 H<sub>3</sub><sup>+</sup>, H<sub>2</sub><sup>+</sup>, H, H<sub>2</sub> 和 H<sup>-</sup> 等微量产物. 图 1、图 2 分别是 1.2 和 1.8 MeV 的 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 离子的各种产物的产额  $\phi_3(i)$  测量结果. 在 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 的各种产物的产额拟合曲线中,  $\phi_3(\text{H}_3^+)$  是 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 的透射产物 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 的测量结果;  $\phi_3(\text{H}_2)$  是 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 的 H<sub>2</sub> 产额测量结果. 它们与束缚电子寿命  $\tau$  有关, 其拟合公式形式为

$$\phi_3(\text{H}_3^+, \text{H}_2) = (1 - A) \exp\left(-\frac{t_d}{\tau}\right) + A \exp\left(-\frac{t_d}{\tau_2}\right), \quad (1)$$

其中,  $t_d$  为停留时间,  $\phi_3(\text{H}_2^+)$  是 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 的 H<sub>2</sub><sup>+</sup> 产额测量结果,  $\phi_3(\text{H})$  是 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 的 H 产额测量结果,  $\phi_3(\text{H}^-)$  是 H<sub>3</sub><sup>+</sup> 的 H<sup>-</sup> 产额测量结果. 它们与束缚电子寿命  $\tau$  无关, 其拟合公式为

$$\phi_3(\text{H}_2^+, \text{H}, \text{H}^-) = A \exp\left(-\frac{t_d}{\tau_2}\right), \quad (2)$$

为了比较, 图 1、图 2 中同时画出了相应速度下入射 H<sup>+</sup> 离子产生的 H 和 H<sub>2</sub> 产物的产额  $\phi(\text{H})$  和

收稿日期: 2002-03-05; 修改日期: 2002-04-09

\* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(19975033, 19975034, 10175041)

作者简介: 杨百方(1941-), 男(汉族), 四川蒲江人, 研究员, 从事原子分子物理研究.

$\phi(H^-)$ .

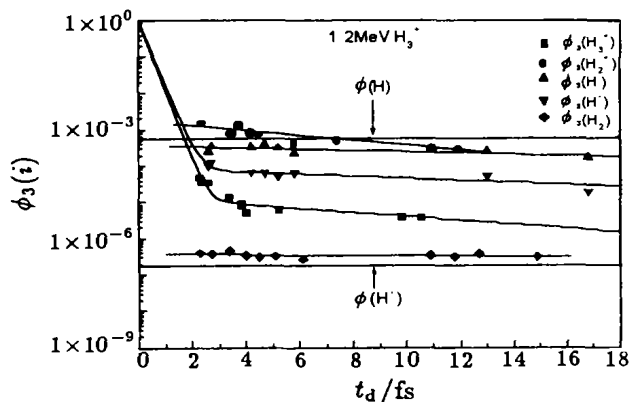


图 1 1.2 MeV  $H_3^+$  的  $\phi_3(i)$  测量结果( $H_3^+$  的各种产物的产额拟合曲线)

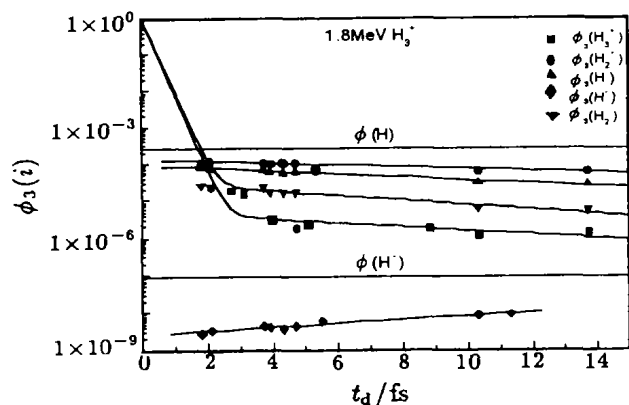
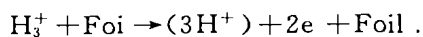


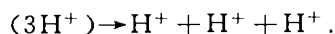
图 2 1.8 MeV  $H_3^+$  的  $\phi_3(i)$  测量结果( $H_3^+$  的各种产物的产额拟合曲线)

### 3 产物的形成机理

当快  $H_3^+$  团簇离子过碳膜相时,  $H_3^+$  迅速失去它们的束缚电子, 形成了三质子裸核团 ( $3H^+$ ):



在库仑排斥力作用下, ( $3H^+$ ) 裸核团发生强烈的库仑爆炸:



裸核团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. 这将会引起 ( $3H^+$ ) 的电荷态发生改变, 形成各种出射产物. 所以  $H_3^+$  的各种微量产物的产额主要由电荷交换截面确定. 在下面的分析中将看到, 团簇效应和尾流效应可能影响它们的变化趋势. ( $3H^+$ ) 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:

- (a)  $(3H^+) + e \rightarrow H_2^+ + H^+$ ;
- (b)  $(3H^+) + e \rightarrow H + H^+ + H^+$ ;
- (c)  $(3H^+) + e \rightarrow H_3^{++}$ .

那么会不会发生(c)这个反应呢? 我们试图观察是否有  $H_3^{++}$  离子存在. 但是在我们的测量条件下, 没有测到  $H_3^{++}$  产物. 此外 ( $3H^+$ ) 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:

- (d)  $(3H^+) + 2e \rightarrow H_3^+$ ;
- (e)  $(3H^+) + 2e \rightarrow H_2 + H^+$ ;
- (f)  $(3H^+) + 2e \rightarrow H^- + H^+ + H^+$ ;
- (g)  $(3H^+) + 2e \rightarrow H_2^+ + H$ ;
- (h)  $(3H^+) + 2e \rightarrow H + H + H^+$ .

在(h)过程中, 由于团簇关联效应, 两个氢原子和质子可能重新组成  $H_3^+$  或其它产物. 此外, ( $3H^+$ ) 裸核团在膜中还可能俘获 3 个电子形成  $H_2$  和 H 等中性产物:

- (i)  $(3H^+) + 3e \rightarrow H + H + H$ ;
- (j)  $(3H^+) + 3e \rightarrow H_2 + H$ .

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, 在现有的测量条件下没有测到  $H_3$  产物.

由此上述分析可见,  $H_3^+$  的各种产物是电荷交换的结果, 而电荷交换截面与入射离子的速度有关. 各种产物的产额毫无例外都随着速度变化而有显著变化就是最好的实验证明. 在所测的两组能量下, 每一种产物的产额相差较大, 甚至可能有一个数量级. 从图 1、图 2 的拟合曲线看出, 各种产额随着  $t_d$  的增加几乎都有相同的变化趋势. 在一定的能量下, 随着停留时间的增大, ( $3H^+$ ) 裸核团的质子之间的距离增大, 团簇效应渐渐减弱, ( $3H^+$ ) 俘获电子之后重新形成  $H_3^+$ ,  $H_2^+$  和  $H_2$  的几率减小, 而重新形成  $H^-$  和 H 的几率增大. 运动的质子产生的尾流势使电子密度增大, 因而紧随其后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共同作用的结果, 造成产物的增加或减小, 影响产物的产额随  $t_d$  变化的趋势.

## 4 测量结果分析

从图 1、图 2 看出,  $\phi_3(H_3^+)$  在长、短停留时间下有不同变化的趋势. 在短停留时间下, 它随  $t_d$  的增加而迅速减小, 并且可以决定束电子损失寿命  $\tau$ . 在长停留时间下 ( $t_d \geq 3$  fs),  $\phi_3(H_3^+)$  随  $t_d$  的增加而缓慢减小. 此时入射  $H_3^+$  的束缚电子全部损失, 但  $(3H^+)$  内的质子之间仍存在一定的关联. 当它在膜中再俘获到两个电子时, 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, 它们俘获电子后重新形成  $H_3^+$  的几率逐渐减小. 因此新形成的  $H_3^+$  产额随着停留时间的增加而缓慢减小. 由此可见, 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; 另一部分是重新组成的. 在 1.2 和 1.8 MeV 下由透射  $H_3^+$  得到  $\tau$  分别为 0.23 和 0.21 fs, 可见  $\tau$  与离子能量有关. 在文献[8]中给出  $\tau$  的观察值为 0.212 fs, 与我们的结果一致. 由  $\tau$  的结果可以推测电子损失截面. 从  $H^+$  的 H 和  $H^-$  产物测量得到了  $\sigma_c/\sigma_l$  的经验公式, 因此由我们的测量结果可以确定电子俘获截面  $\sigma_c$  和电子损失截面  $\sigma_l$ .

从图 1 和图 2 看出, 在同一能量下,  $\phi(H)$  比  $\phi_3(H)$  大. 因为分子关联作用  $(3H^+)$  俘获一个电子后可能形成 H 和  $H_2^+$  两种产物, 而  $H^+$  俘获一个电子后只形成 H 一种产物.  $\phi_3(H_2)$  比  $\phi_3(H)$  小, 这是因为出射 H 是质子俘获一个电子形成的, 而  $H_2$  产物是两个有关联的质子都要俘获一个电子才能形成的产物. 另外,  $\phi_3(H_2)$  比  $\phi_3(H_3^+)$  的变化快, 估计有  $H_3^+$  与电子的复合反应发生. 在长停留时间下,  $\phi_3(H_2)$  随停留时间的变化类似于  $\phi_3(H_3^+)$  的变化趋势, 它们都是  $(3H^+)$  俘获电子后重新组成的. 在相同的速度下,  $\phi_3(H_2) > \phi_3(H_3^+)$ , 因为  $(3H^+)$  俘获两个电子后更容易重新组成  $H_2$  分子而不是  $H_3^+$  分子离子. 由此看来, 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.

## 参 考 文 献:

[1] Hirao K, Yamabe S. The Theoretical Study on the Structure and Stabilization of  $H_n^+$  and  $H_n^-$  ( $n=3, 5, 7, 9, 11, 13$ ) Hydrogen Cluster Ions[J]. Chem Phys, 1983, 80: 237.  
[2] 杨百方, 缪竞威, 师勉恭等,  $H_n^+$  离子的产生和鉴别[J]. 四川

对于负离子产物  $H^-$  的产额  $\phi(H^-)$  和  $\phi_3(H^-)$ , 从图 1、图 2 看到, 在 1.8 MeV 下  $\phi_3(H^-) < \phi(H^-)$ , 相反在 1.2 MeV 下,  $\phi_3(H^-) > \phi(H^-)$ , 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,  $H_2^+$  或  $H_3^+$  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. 分子的关联效应造成  $\phi_3(H^-)$  减小. 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  $H^-$ . 尾流效应使负离子产额增加. 在长停留时间下, 分子关联效应减弱, 而尾流效应仍起作用, 结果使负离子产额明显增大. 因此, 尾流效应部分抵消甚至超过分子关联效应影响, 可能出现  $\phi_3(H^-)$  比  $\phi(H^-)$  大的情况. 在  $(3H^+)$  裸核团中, 总有两个质子受到尾流势的作用, 或者一个质子受到双重尾流势的作用. 在低能下随着电子俘获截面增加和更强的尾流势作用, 因而在 1.2 MeV 下出现了  $\phi_3(H^-) > \phi(H^-)$  的反常情况. 这说明, 在有些情况下尾流效应的影响更明显, 可能部分抵消甚至超过团簇关联效应的影响.

从图 1、图 2 看出, 在相同速度下负离子产物的产额比中性分子的产额小 3 个数量级左右. 这是因为出射  $H^-$  是每个质子俘获两个电子形成的; 而  $H_2$  是裸核团俘获两个电子形成的.  $\phi_3(H^-) \propto (\sigma_c/\sigma_l)^2$ , 而  $\phi_3(H_2) \propto \sigma_c/\sigma_l$ . 在 1 MeV 能量区域, 它们应该有 3—4 个数量级的差别.

最后再看  $H_3^+$  的  $H_2^+$  产物, 这是  $(3H^+)$  俘获一个电子形成的产物. 由图 1、图 2 看到, 由于团簇关联效应,  $(3H^+)$  俘获一个电子后更容易形成  $H_2^+$  而不是 H, 因此  $\phi_3(H_2^+) > \phi_3(H)$ . 由图 2 看到  $\phi_3(H_2^+) < \phi(H)$ ; 相反由图 1 看到, 在低能短停留时间下,  $\phi_3(H_2^+) > \phi(H)$ . 这说明在  $(3H^+)$  裸核团中在更强的尾流势作用下形成的  $H_2^+$  比  $H^+$  的 H 产物多, 这又是一个尾流效应作用的明显例证.

大学学报(自然版), 1999, 36: 236.  
[3] Ben Hamu D, Baer A, Faldman, et al. Energy Loss of Fast Clusters Through Matter [J]. Phy Rev, 1997, A56(6): 4786.

- [4] Miao J W, Yang B F, Hao S D, *et al.* Internuclear Separations from Foil Breakup of Fast  $H_2^+$ ,  $H_3^+$ ,  $D_2^+$  and  $D_3^+$  [J]. Nucl Instr and Meth, 1986, **B13**:181.
- [5] 缪竞威, 杨百方, 郝士琢等.  $H_3^+$  立体化学结构的测量[J]. 物理学报, 1985, **34**: 1 315.
- [6] Gaillard M J, Poizat J C, Ratkowski A, *et al.* Nonequilibrium Effects in the Proton Neutral Fraction Emerging from Solids Bombarded with MeV  $H^0$ ,  $H^+$ ,  $H_2^+$ , and  $H_3^+$  Beams[J]. Phys Rev, 1977, **A16**: 2 323.
- [7] Cue N, de Castro Faria, N V, Faillard M J, *et al.* Transimission of Fast  $H_2^+$  Through Thin Foils[J]. Phys Rev Lett, 1980, **45**(8): 613.
- [8] Remmilieux J. Interaction of Fast Molecular Ions with Solids [J]. Nucl Instr and Meth, 1980, **170**: 31.
- [9] 杨百方, 缪竞威, 杨朝文等.  $H^+$  离子在固体中的电子俘获 [J]. 中国科学, 2002, **30**: 216.
- [10] 蒋增学, 郝士琢, 杨百芳等. 高分辨多功能原子碰撞装置[J]. 四川大学学报(自然版), 1988, **25**: 195.
- [11] 杨百方, 缪竞威, 郝士琢等. 固体中氢、氘负离子的形成和电荷交换截面的测量[J]. 四川大学学报(自然版), 1989, **26**: 317.

## Experimental Study of $H_3^+$ Cluster\*

YANG Bei-fang, MIAO Jing-wei, YANG Chao-wen, SHI Mian-gon, LIU Xiao-dong

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

**Abstract:** The yields of  $H^-$ ,  $H$ ,  $H_2$ ,  $H_2^+$  and  $H_3^+$  for  $H_3^+$  ions passing through carbon foils have been measured respectively. The results show that the charge exchange process in the interaction of Hydrogen ions with carbon foils plays a key role in the formation of these products. The cluster effects and wake effect of  $H_2^+$  and  $H_3^+$  ions in carbon foils are also discussed.

**Key words:** cluster ion; charge exchange; cluster effect; wake effect

\* **Foundation item:** National Natural Science Foundation of China (19975033, 19975034, 10175041).