

高电荷态离子与原子碰撞中的电子转移研究*¹

马新文

(中国科学院近代物理研究所 兰州 730000)

摘 要 简要评述了离子与原子碰撞研究实验技术和理论描述的发展、现状和面临的问题, 讨论了高电荷态离子与原子、分子和团簇分子碰撞研究的前景.

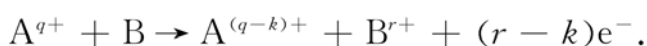
关键词 离子与原子碰撞 多电子转移 经典理论模型 多电子激发态离子

分类号 O562.5

1 引言

原子物理的最基本目标之一就是研究多电子体系的动力学. 高电荷态离子与多电子靶原子碰撞过程涉及多体碰撞动力学, 包括离子与电子、电子与电子之间的库仑作用和电子-电子关联相互作用; 入射离子的强库仑场强烈地扰动了靶原子, 在碰撞过程中许多电子被激发、电离和被转移到入射离子上, 由此形成的多电子激发态离子, 是传统原子物理根本没有涉及的研究领域, 其能量、结构以及衰变规律不论在实验还是在理论方面, 都是新的研究对象. 这些研究不但对基础物理学研究具有重要的意义, 而且对应用物理学、等离子体物理、材料改性、天体等离子体的研究和辐射生物学等学科研究也有重要意义和直接的应用价值. 因此, 高电荷态离子与原子碰撞反应研究是当前原子物理研究领域十分重要的研究课题.

在高电荷态离子与原子发生碰撞的情况下, 离子俘获电子的本领非常大. 在反应中除了单电子俘获过程外, 2 个、3 个、4 个、甚至更多个电子转移的过程都可能发生, 反应过程非常复杂. 高电荷态离子 A^{q+} 与靶原子 B 碰撞反应可以概括描写为



本文主要论述该反应所描述的高电荷态离子与惰性气体靶原子碰撞反应中的多电子转移过程. 首先从实验技术的角度评述离子与原子碰撞研究的发展和现状, 接着评述离子与原子碰撞过程的理论研究进展和存在的问题, 以及采用经典模型描写离子与原子碰撞过程的基本原因.

2 实验技术的发展和现状

离子与原子碰撞反应的实验研究和理论研究虽然都取得了很大的进展, 但是它们的发展是很不平衡的. 在离子与原子碰撞反应的早期研究中, 一般是用质子和 α 离子轰击 H、 H_2 和 He 靶, 主要研究入射离子引起的直接电离和入射离子俘获单个电子的过程. 实验方法相对简单, 但这些研究工作已经积累了许多低能裸离子与 H、 H_2 、He 原子反应中单电子俘获截面的数据, 也对单电子俘获机制进行了许多探索^[1], 并用分子轨道理论分析了实验结果. 到 70 年代末, Klinger 和 Mueller 等利用低能 (<100 keV)、较低电荷态的重离子与多电子靶原子碰撞, 测量了入射离子俘获电子的总截面. 截面用增长率方法确定. 但是, 他们只测量了入射离子俘获

■ 1998 - 04 - 28 收稿.

* 国家自然科学基金(项目号 19704012)和中国科学院“九五”青年科学基金(项目号 KJ952-S1-455)资助.

电子的情况，而没有考虑靶原子被电离的状态，因此所测量的反应信息是不完全的，也是不清晰的。尽管如此，从早期实验研究结果中还是能够发现 3 个普遍存在的特点：(1) 低能碰撞反应中，离子的电子俘获反应截面很大 ($>10^{-16} \text{ cm}^2$)；(2) 单电子俘获截面与入射离子能量无关；(3) 电子俘获截面随靶原子核电荷数的增大而增加。

80 年代中期，Cocke^[2]和 Mueller 等^[3]相继发展了第二代离子与原子碰撞符合实验研究技术，它克服了第一代实验方法的不足，在确定了散射离子电荷态的同时，采用符合飞行时间技术也确定了反冲离子的末电荷态，而且散射离子采用通道电子倍增器逐个进行探测。在这一时期，随着离子源技术和加速器技术的迅速发展，实验室能够得到的离子电荷态越来越高，而高电荷态离子的能量也向高能和低能两个方向扩展。由于高电荷态离子与原子碰撞反应中有多个电子发生转移，反应道数目大大增加，反应结果变得非常复杂，这对实验技术提出了新的挑战。于是，自 80 年代末以来，发展、改进了多种实验技术，对高电荷态离子与原子碰撞反应中的多电子转移过程进行了研究。

由于能量转移对研究 A^{q+} 与 B 碰撞中电

子转移和被俘获电子的中间态的布居能够提供有用的信息，Ohtani 等发展了能量损失谱仪来测量高电荷态离子-原子碰撞反应中的能量变化，但因受谱仪能量分辨率的限制，测量结果不能明确鉴别出碰撞反应中的电子转移过程。Barat 等^[4]结合符合实验技术，发展了符合能量损失谱仪，使得实验研究离子与原子碰撞过程中的多电子俘获机制成为可能，但是谱仪的能量分辨率不高仍然是研究工作的主要障碍^[5]。

光谱技术是原子物理研究中的最重要手段，Martin 等采用可见光谱仪与离子符合测量技术，研究了离子-原子碰撞中形成的高里德堡态 (High Rydberg States)^[6]。由于在离子与双电子靶原子碰撞中形成的双电子自电离激发态相对简单，而且不需要进行符合测量，因此 Mack 等对裸离子与 He 原子碰撞反应中的出射电子能谱进行了大量的研究^[7]，发现经典模型给出的“反应窗”能很好地描述自电离态布居的总体特征；并在 $N^{6+} + \text{He}$ 碰撞体系的 K LX 谱中观察到了电子自旋取向现象。Posthumus 等研究了 $N^{7+} + \text{Ar}$ 等多电子碰撞体系中的三重和四重多电子激发态的衰变，直接观察到多电子激发态的级联衰变现象^[8]。

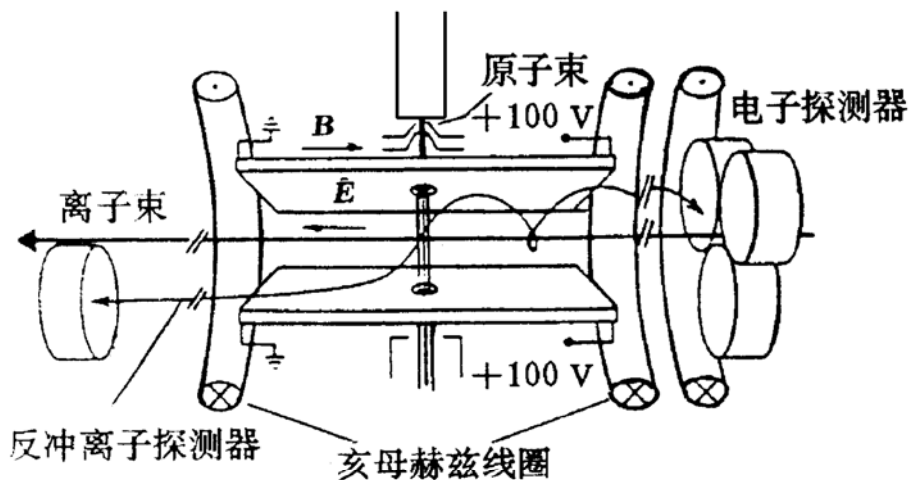


图 1 GSI 的反应显微镜简图

德国 Frankfurt 大学的 Schmidt-Boecking 等人研制的反冲离子动量谱仪 (RIMS)，可通过测量末态反冲离子的动量和末态散射

离子的横向动量得到有关多电子关联发射的信息^[9]。GSI 的科学家利用该装置研究了重离子入射引起靶原子单次和双重电离的反应

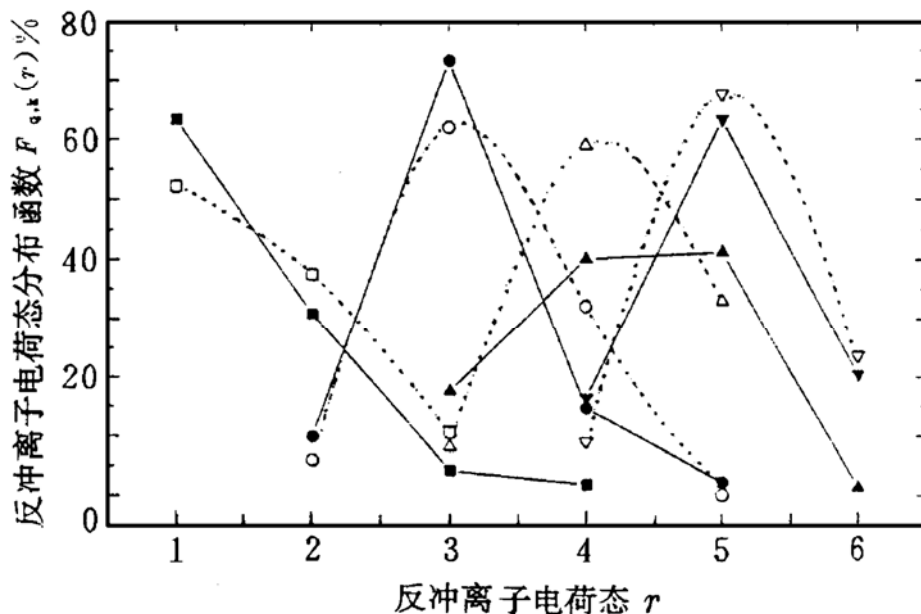


图 2 $\text{Ar}^{8+} + \text{Ar}$ 碰撞中反冲离子电荷态分布函数^[12]

实心符号为实验结果, 空心符号为理论计算结果.

动力学. 美国 Kansas 大学的 J. R. Macdonald 实验室也将此技术用于研究低能高电荷态离子与原子碰撞反应中的动力学, 发现了 $\text{O}^{8+} + \text{He}$ 碰撞中双电子俘获到很不对称激发态的现象; 而 Frankfurt 大学和 GSI 等合作, 将这一技术与发射电子进行符合测量, 从而把研究电子关联运动的实验技术推向一个新的高度, 并在 GSI 建成了“反应显微镜(The GSI Reaction-Microscope)”(见图 1)^[10]. 与此同时, 研究高电荷态离子与原子碰撞反应中多电子转移的实验技术也有了很大进步, Kansas 大学的原子物理研究人员采用先进的符合关联技术, 可同时研究反应中的各种子过程, 大大提高了实验效率和精度. 中国科学院近代物理研究所原子物理研究小组在 ECR 离子源上也建立了类似的符合关联测量装置^[11], 研究了低能电荷态离子与原子碰撞反应中的多电子转移过程, 图 2 给出了他们在 $\text{Ar}^{8+} + \text{Ar}$ 碰撞反应中测量到的反冲离子电荷态分布和理论计算结果.

3 描述离子原子碰撞过程的理论现状

在实验技术迅速发展的同时, 理论研究工作也在处理裸离子与 H 原子碰撞方面取得

了很大进展^[13], 但对有关离子与复杂原子碰撞中多电子转移的研究仍没有大的突破^[14], 尽管电子关联作用在激发态的描述中起着重要作用, 但是在碰撞过程中的电子关联势还不清楚. 这里主要介绍中、低能高电荷态离子与原子碰撞过程中电子转移的理论研究现状.

在入射离子速度 V_p 远大于靶原子中相关电子的速度 v_e 时, 直接库仑激发是靶原子电离的主要因素, 用微扰理论可对离子引起的单重电离机制进行很好地描述. 这些理论包括半经典近似(SCA)、平面波玻恩近似(PWBA)、两体碰撞近似(BEA)、冲击近似(IA)和 OBK 模型(Oppenheimer, Brinkman and Kramers Model)等. 多重电离中必须考虑原子中电子之间的关联相互作用, 但目前理论模型仍处于发展阶段, 因此其适用范围有限. Russek 发展了处理高能碰撞中靶原子电离的统计模型, 该模型完全忽略了靶原子中电子之间的关联相互作用. 目前处理多重电离经常采用的是多体经典轨道蒙特卡罗理论(nCTMC), 但它也没有考虑电子关联相互作用, 计算结果与实验值存在一定的差异. 因此, 这些理论都需要进一步完善.

80 年代初, 相对简单的隧道模型和 Landau-Zener 模型都能给出单电子跃迁过程中有关末态 n 、 l 布居的细节, 基于半经典紧耦合方法 (Semi-classical Close-coupling Method) 的计算结果与 $Z < 6$ 的实验结果符合得很好. 到了 80 年代末, 使用紧耦合方法的计算把入射离子的电荷态扩展到了 $Z = 10$ 的碰撞系统^[15], 使用紧耦合方法对 H 原子和准单电子靶原子 (如 Li) 碰撞体系的计算结果与实验结果相一致. 然而, 由于受计算条件的限制, 目前此方法还无法进行处理涉及多电子过程, 甚至是双电子过程,

在低能离子与原子碰撞时, 离子与靶原子会形成准分子, 因此通常采用分子轨道^[16]和原子轨道^[17]展开方法处理碰撞过程中的电子转移. 对于纯单电子体系, 理论处理已经比较成熟, 例如对裸离子 O^{8+} 与 H 体系的势能曲线研究表明^[18]: $O^{8+} + H(1s)$ 的入射道势能曲线与来自 $O^{7+}(n) + H^+$ 反应道的势能曲线经历了一系列交叉点, 然而, 在相应于 $O^{7+}(n=5)$ 的简并态的 $(n-1)\sigma$ 斯塔克态 (Stark States) 中, 只有一个分子态是激活的; $5g\sigma$ 态与入射的 $6h\sigma$ 态在一个交叉点处具有强的相互作用, 而导致了单电子俘获; $5s\sigma$ 、 $5p\sigma$ 、 $5d\sigma$ 和 $5f\sigma$ 都是非激活态, 它们与 $6h\sigma$ 态存在交叉而无相互作用, 因此不直接参与电子俘获过程. 这种性质是由于单电子双中心问题的特殊对称性所致. 因此, 主要的俘获机制仅包括了入射的 $7i\sigma$ - $6h\sigma$ 具有的有效态 (n , $l=n-1$, σ , $5g\sigma$, $4f\sigma$, $3d\sigma$, $2p\sigma$, ...) 之间的径向耦合, 而且在计算总截面时只需考虑这些有效态, 从这些有效态的布居中, 可以确定出 n 的布居. 在多数情况下, 或者至少对中等电荷态和惰性气体靶, 电子俘获中只有一个或者两个 n 值被显著地布居. 另一方面, 准类氢简并混淆了初始的 m_l 选择性; l 分布的确定需要考虑斯塔克态之间的径向耦合和不同的 σ 、 π ... 分子态之间的转动耦合. 使用单电子描述, 对从双电子靶原子中俘获一个电子的过程也进行了理论处理,

作为一般特性, 只有一个 (最多两个) n 值被俘获电子所布居, 理论计算很好地给出了总截面, 但是在角量子数 l 的分布上存在着分歧. 许多理论工作对多电子体系的单电子俘获进行了研究, 一般采用的是从头算 (ab initio) 模型势或者赝势来描写相关的相互作用^[19].

高电荷态离子与靶原子的相互作用强, 碰撞体系的共同特征是: (1) 由于入射离子的强库仑场引起的靶原子电子云强烈畸变, 使靶原子的电子被激发、转移和电离, 从而使反应末态的布居数很大; (2) 初态必然通过上述过程耗散; (3) 详细描述电子运动的理论必须考虑碰撞过程中所有重要的末态和它们之间的相互作用. 高电荷态离子的主要作用是使反应中电子转移道要比激发和电离反应道强, 而且在转移反应道中被俘获电子主要布居在高激发态, 而这些态的密度很大, 这正是量子理论处理碰撞的困难所在. 因此, 目前甚至对双电子转移的理论研究都十分缺乏. 造成这种状况的原因很多, 在大多数情况下, 至少在 $q > 5$ 时, 双电子俘获中电子布居的激发态均在第一电离态之上, 对这样的自电离准分子态的处理并非简单. 另外, 困难在于要很好地描述一系列态中的某一个态的单独布居所需要的分子态数目很多. 例如, 为了完全描述在 $N^{7+} + He$ 碰撞中布居的 $N^{5+}(n=3, n'=3)$ 系列, 至少需要 28 个分子态.

当具有两个以上的电子被激活时, 多电子俘获反应道的数目变得非常多, 在准分子框架内, 使用耦合道方法计算, 已经超出了目前计算机的能力, 这正是现在仍然使用经典模型和统计模型描述多电子转移反应的一个原因. 这些经典模型都是基于独立电子模型而建立的, 没有考虑原子中电子与电子的关联相互作用, 而且模型多是静态的. Bohr 和 Lindhardt 首先提出了描述电子转移的库仑位垒图像, 计算结果与实验结果定性地符合^[20], 但是该模型只适用于单电子转移过程. Ryufuku 用势垒概念描述了高电荷态离

子与原子碰撞中的单电子俘获^[21]. 在此基础上, Barany 建立了描述高电荷态离子与原子碰撞中多电子俘获过程的过垒模型(OBM)^[22], 由于该模型实际上处理的是碰撞的中间过程, 因此计算结果与实验结果无法比较. Barany 引进了自电离几率修正因子, 其困难在于非常缺乏有关多电子激发态自电离衰变几率的数据. Niehaus 对 OBM 进行了细致的分析后, 建立了分子库仑过垒模型(MCBM). 分子库仑过垒模型将离子与原子碰撞过程划分为入射过程和出射过程: 在入射过程中, 靶原子中的电子逐个被分子化而形成复合分子; 在出射过程中, 随着核间距离的增大, 核间势垒开始起作用, 把分子化了的电子以一定的几率俘获到入射离子或者靶离子的局部势阱中, 并用特定的数字串来表征电子在整个碰撞过程中的行为. MCBM 不但能给出电子俘获的绝对截面, 还能计算电子被俘获到能级的能量和主量子数, 以及碰撞反应中的能量转移, 而且计算得到的能量转移与实验结果符合很好. 但是, MCBM 的最大问题是, 它描述的仍然是碰撞反应的中间过程, 即纯电子俘获过程, 而不能给出反应末态离子电荷态的信息, 因此计算结果无法与实验结果进行比较, 也就不能用现有的实验结果直接检验它的正确性.

综上所述, 由于各种实验技术的发展和离子源以及加速器技术的发展, 实验将面临新的机遇; 理论方面, 由于缺少真正的量子力学理论来处理电子转移中电子关联相互作用, 因此必须发展全相关的量子力学理论, 深入进行多电子转移以及多电子激发态及其能量和衰变方式的研究, 也必须尽快进入高电荷态离子与团簇分子碰撞的研究.

参 考 文 献

- Guillemot L, Roncin P, Gaboriaud M N H *et al.* Critical Study of the Molecular Coulombic Barrier Model for Multiple Electron Capture by Highly Charged Ions. *J Phys*, 1990, B23: 4293~4312
- Cocke C L, Dubois R, Gray T J *et al.* Coincidence Measurements of Electron Capture and Ionization in Low Energy $Ar^{q+} + (He, Ne, Ar, Xe)$ Collisions. *Phys Rev Lett*, 1981, 46: 1671~1676
- Mueller A, Groh W, Salzborn E. Statistical Interpretation of Transfer Ionization in Slow Collisions of Multiply Charged Ion Colliding with Atoms. *Phys Lett*, 1983, 55A: 107~109
- Barat M, Gaboriaud M N, Guillemot L *et al.* Coincident Energy Gain Spectroscopy of Electron Capture in Multiply Charged Ions Colliding with He, H₂, and Heavy Rare Gas Targets. *J Phys*, 1987, B20: 5771~5782
- Said R, Kamber E Y, Yaltkaya S *et al.* Experimental Study of Single Electron Capture by Low Energy Ne^{q+} Recoil Ions ($q = 3 \sim 6$) from He, Ne And Ar Using Translational Energy Spectroscopy. *J Phys*, 1994, B27: 3993~4002
- Martin S, Denis A, Ouerdane Y *et al.* Multi-electron Capture in Kr^{18+} Collision with Kr and Ar at Low Energies by Rydberg Transition Spectroscopy. *Phys Rev Lett*, 1990, 64: 2633~2640
- Mack M, Nijlang J H, Straten P v d *et al.* Correlation in Double Electron Capture in Collision of Fully Stripped Ions on He and H₂. *Phys Rev*, 1989, A39: 3846~3854
- Posthumus J H, Luchey P, Morgenstern R. Atomic Physics of Highly Charged Ions. eds Salzborn E, Mokler P H, Mueller A, Springer-Verlag, 1990, S287~S288
- Doener R, Mergel V, Liu Zhaoyuan, Three-body Final-state Momentum Distributions for Swift H⁺ and He²⁺ on He Collisions. *J Phys*, 1995, B28: 435~440
- Moshammer R, Unverzag M, Schmitt W *et al.* A 4π Recoil-ion Electron Momentum Analyzer: a High-resolution "microscope" for the Investigation of the Dynamics of Atomic, Molecular, and Nuclear Reactions. *Nucl Instr and Meth*, 1996, B108: 425~445
- 马新文, 刘惠萍, 王树金等. 多电子转移研究的符合关联实验测量系统. *中国科学 A 辑*, 1997, 27(11): 1019~1023
- 马新文. 高电荷态氙离子与原子碰撞过程中的多电子转移研究. 博士学位论文, 中国科学院近代物理研究所, 兰州: 1998
- Fritsch W. Description of Electron Transfer in Low-energy, Multiply-ionized Atomic Collision Systems: Successes and Problems, *Nucl Instr and Meth*, 1987, B23: 9~16

- 14 Barat M, Roncin P. Multiple Electron Capture by Highly Charged Ions at keV Energies. *J Phys*, 1992, B25: 2205~2243
- 15 Gayet R, Hannssen J, Harel C *et al.* Electron Capture from Atomic Hydrogen in the keV/amu Energy Range, *Nucl Instr and Meth*, 1985, B9: 413~416
- 16 Green T A, Shipsey E J, Browne J C. Modified Method of Perturbed Stationary States, IV Electron Capture Cross Sections for the Reaction $C^{6+} + H(1s)$. *Phys Rev*, 1982, A25: 1364~1374
- 17 Brasden B H, Noble C J. Charge Transfer in $Li^{3+} + H$ Collisions. *J Phys*, 1982, B15: 451~474
- 18 Harel C, Salin A. Proc 15th Int Conf on Phys of Electronic and Atomic Collisions. eds Newell W R, Smith A C, Gilbody H B. Invited Talks and Progress Report, Amsterdam; North-Holland 1994, 631
- 19 Gargaud M, McCarroll R, Valiron P. Influence of Rotational Coupling on Charge Transfer in Low Energy C^{4+}/H Collisions. *J Phys*, 1987, B20: 1554~1568
- 20 Knudsen H, Andersen L H, Hvelplund P *et al.* An Experimental Investigation of Double Ionization of Helium Atoms in Collisions with Fast, Fully Stripped Ions. *J Phys*, 1984, B17: 3545~3564
- 21 Ryufuku. Oscillatory Behavior of Charge Transfer Cross Sections as a Function of the Charge of the Projectiles in Low Energy Collisions. *Phys Rev*, 1980, A21: 745~760
- 22 Banary A, Astner G, Cederquist H *et al.* Absolute Cross Sections for Multi-electron Processes in Low Energy $Ar^{q+} + Ar$ Collisions; Comparison with Theory. *Nucl Instr and Meth*, 1985, B9: 397~406
- 23 Niehaus A. Extended Classical Method for Multiple Charge Exchange. *Nucl Instr and Meth*, 1987, B23: 17~22

Progress of Research of Electron Transfer in Highly Charged Ion-atom Collisions

Ma Xinwen

(*Institute of Modern Physics, the Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000*)

Abstract The progress of the research of electron transfer in highly charged ion-atom collisions was briefly reviewed in two ways. The various experimental techniques were reviewed first, then the theoretical description of multiple electron transfer were discussed, and the successes and the problems existing in this field were also approached.

Key words highly charged ion-atom collisions multiple electron transfer classical theoretical models multiply excited ions