

原子、分子和团簇与同步辐射¹⁾

李热西 巨新

(中国科学院高能物理研究所, 北京 100039)

摘要 介绍了同步辐射,特别是第三代同步辐射对原子、分子和团簇物理研究的意义。第三代同步辐射光源能为它们提供哪些新的实验手段是上述领域内广大研究人员共同关心的问题。作者尝试表明自己的一些观点。

关键词 原子,分子,团簇,同步辐射

Abstract The importance of synchrotron radiation, especially the third generation synchrotron radiation light source, in atomic, molecular and cluster physics is discussed and some views presented on new methods which may become available for research in the above fields.

Key words atom, molecule, cluster, synchrotron radiation

原子、分子和团簇物理实验研究的首要目的在于揭示它们的电子结构。正是它们的电子结构决定了宏观世界所有物质的物理和化学性质,光与原子、分子和团簇相互作用的研究从纯科学角度来说是十分重要的,而且对于认识复杂体系(如表面、固体)的光致过程具有基础性作用;从更为实用角度上讲,对等离子体物理、大气反应、天体物理、化学反应、生物过程及激光等方面的研究有着极大的促进作用。正是基于上述原因,伴随着同步辐射光源由兼用型(第一代)到高亮度专用型的(第三代)的发展,原子、分子和团簇物理研究工作由表及里,由简单到复杂,得到了迅速的发展。因此,可以说如果在我国建造第三代同步辐射装置,势必为我国的原子、分子和团簇物理研究工作登上新台阶提供良好的机遇。

1 研究现状及展望

1.1 原子分子物理^[1-4]

早在 60 年代,在同步辐射对稀有气体的光电离研究中,发现了连续区分立共振态,显示出同步辐射在原子物理研究中的潜力。从那时

起,一系列高分辨光电离实验以及与之有关的多通道量子亏损理论研究表明,在过去几十年里,同步辐射的应用使原子、分子物理领域发生了深刻变化。

对于绝大多数原子、分子来说,电离发生在光子能量大于 10eV 的区域。同步辐射配合相应的单色器,为原子、分子外壳层和内壳层电离及光致激发过程的系统研究提供了优异的光源。伴随着各种实验技术和理论方法的发展,使原子、分子物理在结构和动力学方面的研究得到了新生。

原子、分子科学研究的对象是稀薄性的气体靶,因此光源应是经单色化后的强光源,这样才能在短时间内收集到满足要求的数据。第三代光源上的插入件引出的紫外和软 X 射线,光强可达 10^{18-20} photons/s · mm² · mrad² · 0.1% BW (带宽),经单色器后可满足实验要求。

1.2 团簇物理^[5,6]

团簇一般是指由 2—10⁵ 原子、分子或离子构成的相对稳定的集团,它们的物理和化学性质随包含的粒子数目而变化。团簇的空间尺度

1) 国家教委留学回国人员科研经费资助项目。
1995 年 6 月 20 日收到。

在 1--10nm 量级,既可被看做各种物质由原子分子向固体转变过程中的特殊物相,也可被认为代表了凝聚态物质的初始状态。正如胚胎学研究中,可以特殊的,有时甚至是唯一的方式说明生物学规律一样,团簇的研究有助于我们认识凝聚态物质生长的某些性质和规律。从团簇的形态来看,可分为自由、支撑 (supported) 和嵌埋 (doped) 团簇,而自由团簇的研究是理解支撑和嵌埋团簇乃至凝聚态物质生长性质和规律的基础。在实验中,通过各种物理和化学方法制备的自由团簇往往是极为稀薄的气体,因此,与原子分子物理实验相同,也需要高亮度的单色化光源。

事实上,团簇物理仍有许多基本问题需要解决。例如,团簇生长过程的终点,从团簇到固体材料的结构特性和物理化学性质的过渡方式等等。而同步辐射应用尚在起步阶段,未来的工作可以在下列几个方面开展:

首先,高亮度同步辐射光源的全波段连续特性,可为从原子到固体的全尺寸结构特性的过渡过程研究提供最优的实验条件,可研究电子组态和原子排列结构的量子尺寸效应以及尺寸与内部无序度的关系,研究表面原子、电子壳层性质和键长收缩效应等。

再者,同步辐射新光源的高稳定脉冲和极化特性可用于研究团簇的动力学性质。如电离和碎裂机制、输运性质、簇内原子的运动状态、相互作用方式以及整体运动形态及其与结构的关系等。

第三,光谱测量可直观地描述团簇的结构特性。结合各种同步辐射实验技术,如荧光、共振电离和多重光离子-光电子符合等,建立普适的理论模型,把计算机模拟和物理图像结合起来,研究各种条件下的团簇生长过程。

1.3 在新光源条件下可进行的研究及方法

综上所述,在原子、分子和团簇科学中,有以下共同的前沿课题等待实验数据去检验理论:

(1) 原子、分子和团簇结构:原子、分子和团簇与电磁辐射相互作用的动力学研究。

(2) 多体效应:电子-电子相关性及其他

超越独立粒子模式的现象。

(3) 相对论和量子电动力学效应。

在上述研究领域,可应用以下同步辐射实验研究技术:

(1) 吸收谱:绝对截面、近边结构、X射线圆二色性等。

(2) X射线散射:绝对散射率、共振荧光的去极化、角分布等。

(3) X射线荧光:极化度和角分布、化学位移、多电子效应等。

(4) 可见-紫外荧光:分子和团簇解离、分子振动/转动分辨等。

(5) 光电子能谱:截面、角分布和自旋分布、多电子效应、形体和自电离共振、后碰撞相互作用、时间分辨、符合研究、双色实验等。

(6) Auger 电子谱:Auger 产额、多重电离离子能级、卫星峰和多电子效应、时间分辨研究、近阈共振、瀑布效应、后碰撞相互作用、角分布和分子准直、自旋分辨及符合研究等。

(7) 离子光谱:分子和团簇解离、多重电离、离子符合研究、捕获离子的研究、双色实验等。

高强度、高极化度和全波段(从红外到硬 X 射线)的连续波长特性的同步光与原子(分子)或团簇发生相互作用,大大拓宽了原子、分子和团簇物理的研究领域。例如,光电子在自电离结构中的角分布测定,激发原子态荧光的角分布测定,离子光电离研究,以及由激光激发制备选择态的光电离研究等。

1.3.1 能谱分析

紫外波段的高通量同步光与原子分子或团簇相互作用,使两个或更多个价壳层电子产生单光子激发。这种激发又可以导致双重激发态,产生单电离和激发(即卫星态)或多重电离。后一种相互作用不同于 Auger 过程,只在电子相关过程发生。对电子相关性的理解是理论研究的重要领域。已有的研究指出:卫星态是通过高位双重激发能级的自电离而布居。这些卫星态既可以利用光电子谱仪观察,也可以通过激发态弛豫时发射的荧光光谱来进行研究。对

于双重激发态及多重电离动力学研究,仍需要高亮度光源进行荧光辐射与发射的光电子之间的符合测量。

在原子、分子和团簇物理实验研究中,要求高能量分辨率的单色光,才能进行原子、分子和团簇光电离及其动力学过程的研究。能量分辨率与光亮度成反比,即能量分辨率愈高,经单色化后可与靶物质作用的光强衰减愈烈。因此,在目前运行的第一、二代同步辐射光源上,很难实现超高分辨率的实验。

1.3.2 时间分辨分析

第三代同步辐射光源所提供的具有高度稳定性的脉冲光可用于开展时间分辨研究工作。在第一、二代装置上,在单束团运行模式下,光子通量低,采谱时间很长,对于第三代同步光源,即使在单束团运行模式下,也具有足够数量光子(10^8 photon/0.1% BW)用于进行时间分辨研究。

利用同步光的时间结构特性进行原子、分子和团簇的时间分辨研究,目的在于得到有关激发态寿命的信息。目前,除了理论估计外,还没有直接的实验结果。只是通过有关能谱进行一些半定量的估计。而激发态寿命的数据在原子、分子和团簇物理研究中具有基础性的地位。我国现有光源条件尚不能开展这方面的研究。

在激发态寿命的研究中,需要同时进行荧光过程和电子的检测。由于内壳层电子激发后,激发态既可通过发射光电子弛豫,也可通过发射荧光回到稳定态。只有对电子和荧光同时进行检测,才可得到全部信息。因此,在进行时间分辨研究时,对于激发态弛豫所产生的光电子及荧光同时进行探测,可得到综合性较强的数据,给出有关激发态寿命一个完整的图像。

利用新光源的高亮度和稳定的脉冲特性进行的实验,使原子、分子和团簇的研究从电子态的层次,深入到角动量、电子自旋和振动及转动等的精细层次。同步辐射新光源在原子、分子和团簇物理实验研究中的作用是目前任何其他光源无法替代的。

1.3.3 双色实验

在迄今为止所进行的原子、分子和团簇物理实验研究中,使用单色光作为激发源,得到的大都是始态为基态,而终态为各种激发态或电离态的信息。将两种光源联合使用进行双色实验,即用一种能量的光源(如激光),将原子、分子或团簇从基态抽运到某一特定的激发态,然后利用另一种光(如同步辐射光)作为探针,对该激发态进行探测。可将原子、分子或团簇的各种激发态作为初始态而进行研究。这类实验的关键是双色光都要有足够的亮度,且两者强度差异要尽量小。这只有激光与同步辐射新光源才能满足要求。

2 应用前景

原子、分子和团簇物理实验研究的应用范围非常广泛,下面简要介绍它在若干领域中的应用。

2.1 大气物理与环境保护

保护好人类赖以生存的保护伞——大气,已经成为各国政府的基本国策。目前,应用同步辐射作为探针,模拟宇宙辐射与大气层中原子、分子和团簇间相互作用,研究大气层中臭氧层的破坏机制,其研究结果直接导致各国政府共同制定了禁止使用氟里昂的国际公约。随着工业化进程的加速,以石油资源为基础的能源工业的发展,也在加大空气污染的程度。找到合适的催化剂或方法,有赖于对污染源分子在各种激发状态下的行为的认识。因此,诸如双色实验、激发态寿命等研究,无疑可在更接近于这些分子在大气中经受宇宙辐射的真实过程中进行。

2.2 光化学过程

研究由紫外到软X射线区域内分子和团簇受到光辐射后所发生的一系列化学过程。如在通常情况下,氟里昂无活性,当被释放到大气,受光辐射后即产生具有高度活性的自由基,并导致臭氧层的破坏。

2.3 生物化学过程

在生物体中进行的能量转化、信息传递等

过程都是在常温、常压下进行的。许多过程的启动和停止有着严格的时间机制。对在这些过程中起关键作用的功能基团,在分子水平上给出合理解释是非常重要的。

2.4 计量及标准化科学

原子、分子物理实验研究在宏观物质的研究中,可提供最基本的或标准的参数,如原子尺寸、电离势、电子亲和势、电负性、激发态寿命、跃迁几率等等;在分子物理研究中,可给出分子能量、键长、键角、电离势、振动及转动能等。这些研究工作在计量及标准化科学中具有重要意义。

2.5 材料科学及新材料的合成

原子、分子和团簇基本性质的研究结果是制备具有特殊功能的新材料的基础。例如:团簇微观结构特点和奇特物理化学性质为制造和寻找新型功能材料提供了可能,其中包括敏感器件、贮氢材料、磁性液体、高密度磁记录介质、微波及光吸收材料、超低温和超导材料、高级合金、高效催化剂和烧结剂等。

基于团簇物理化学的纳米材料研究更是一个方兴未艾的重要研究领域。例如:纳米材料展示了优异的热学、力学和磁学性质,由此看到新型合金材料发现的可能性;纳米半导体材料可在薄膜晶体管、气体传感器、光电器件等领域内发挥重要作用。另外,离子束沉积(ICBD)制膜技术也是基于团簇物理的一种很受重视的新型技术,可制备高性能金属、半导体、氧化物、氮化物、硫化物和有机薄膜。

上述研究内容与同步辐射有广泛的联系,其中,许多方面的基础研究是建立在同步辐射发展的基础之上的。

2.6 理论研究

原子、分子和团簇物理理论研究的验证及完善,有赖于实验方法的不断进步,反之,它又可指导实验研究有效地进行。目前,原子、分子和团簇物理理论研究中许多问题有待于实验验证。高能量分辨、高时间分辨及双色实验无疑是十分急需的。

从以上讨论可以看出,具有高亮度、高稳定时间结构的新一代同步辐射光源在原子、分子物理和团簇研究中所起的重要作用是不可替代的。原子、分子和团簇物理实验研究除了在有关学科中占有基础性地位外,还有许多研究成果被直接应用于其他领域。

在本文准备过程中与清华大学物理系许祥源教授进行了多次有益的讨论并得到帮助,特此致谢。

参 考 文 献

- [1] J. A. R. Samson, Gas Phase Spectrometry, in Fifth Annual Meeting of ALS User's Association, LBL-34736, CONT-9208225, UC-411, 97.
- [2] I. Lindau, High Level Core-Level Photoemission, *ibid.*, LBL-34736, CONF-9208225, UC-411, 87.
- [3] B. Crasemann, Atomic and Molecular Physics With Synchrotron Radiation, in XVII International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions, 10-16 July 1991, Australia.
- [4] V. Schmidt, *Rep. Prog. Phys.*, 55(1992), 1483.
- [5] For example: (a) Proceedings of the Fourth International Symposium on Small Particles and Inorganic Clusters, Aix-en-Provence, 1988, *Z. Phys. D-Atoms, Molecules and Clusters* 12(1989); (b) Proceedings of the Fifth International Symposium on Small Particles and Inorganic Clusters, Konstanz, 1991, *Z. Phys. D-Atoms, Molecules and Clusters* 19, 20(1990).
- [6] 巨新、施朝淑、唐孝威,物理学进展,12(1992),226.