

文章编号: 1007-4627(2016)04-0513-05

50 keV/u Ne⁸⁺ 与 CO 转移电离反应中分子轴取向效应测量

高永^{1,2}, 张少峰¹, 朱小龙¹, 闫顺成¹, 冯文天¹, 张瑞田¹, 郭大龙¹, 李斌¹,
汪寒冰^{1,2}, 黄忠魁^{1,2}, 海帮^{1,2}, 张敏^{1,2}, 马新文¹

(1. 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000;

2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 利用反应显微成像谱仪, 研究了 50 keV/u Ne⁸⁺ 碰撞 CO 转移电离反应中生成的 CO²⁺ 碎裂过程。通过重构分子离子爆炸碎片 C⁺ 和 O⁺ 的三维动量, 获得了质心系中 CO²⁺ 碎裂过程中释放的动能 (KER)。在 KER 谱中发现了来自亚稳态 ¹Σ⁺, ¹Π, ³Π 解离的峰、³Σ⁺ 态解离的峰和 ¹Σ⁺_(II) 态解离的峰, 同时发现了排斥态 ³Σ⁻ 的贡献。在 ³Σ⁻ 态解离的分子轴取向分布中, 首次观测到 CO²⁺ 解离的分子轴取向效应。

关键词: 取向效应; KER; CO; 反应显微成像谱仪

中图分类号: O562.5 **文献标志码:** A **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.33.04.513

1 引言

过去几十年里, 使用各种入射粒子碰撞双原子分子(如 N₂, O₂, CO, NO 等), 诱使分子电离是离子分子碰撞研究的热点问题之一^[1-16]。反应中产生的分子离子通常会发生解离, 其解离过程中释放的动能 (KER) 直接反映了分子离子所处的分子态信息, 因此 KER 是这些实验的重要观测量。这些研究的主要物理目标有两类: 第一类追求获得高的 KER 分辨^[9-10], 进而研究分子离子各亚稳态振动能级的布居, 但是这类实验为了追求高的 KER 分辨往往牺牲测量立体角, 因此不能对解离碎片进行 4π 立体角测量(即全向测量); 第二类追求对解离碎片进行全向测量, 根据碎片动量方向来确定碰撞中分子轴取向, 从而研究碰撞反应中的分子轴取向效应, 此取向效应是指: 随着分子轴相对入射离子方向的取向变化, 反应截面发生改变。这类研究为了实现对高能碎片的全向收集往往牺牲 KER 分辨, 因此无法实现分子态分辨。

到目前为止, 第二类研究已经在产生高电荷态分子离子的反应中观测到分子轴取向效应^[4-5,7,11], 即分子轴平行于离子入射方向时反应截面明显地大于分子轴垂直于入射离子方向时的截面, 这种取向效应是由双原子分子电子云形状决定的。而在分子被制备成低电荷态离子的反应中, 没有观测到明显的分子轴取向效应。原因

可能是: 这类实验通过测量解离碎片的动量方向来确定碰撞中分子轴的取向, 这样的测量方法依赖于轴反冲近似假设, 所谓轴反冲近似是指反应后双原子分子迅速解离, 由于库仑排斥, 解离碎片将沿分子轴方向背对背飞行, 因此解离碎片的动量方向即为碰撞中分子轴取向。这个假设成立的前提是碰撞时间及分子离子寿命远小于分子转动周期。对于常见的离子分子碰撞反应(如 25 keV p+H₂), 碰撞时间一般在 10⁻¹⁷ s 量级, 远小于典型的分子转动周期(10⁻¹² s 量级), 高电荷态分子离子寿命一般也远小于分子转动周期。因此, 在产生高电荷态分子离子的离子分子碰撞反应中, 轴反冲近似是成立的。但是低电荷态分子离子的亚稳态寿命往往与分子转动周期相当甚至更长^[17], 所以在涉及低电荷态分子离子解离的离子分子碰撞反应中, 轴反冲近似可能不成立, 而以前研究分子轴取向效应时并不曾注意到这一问题。

Weber^[10]和同事实验检验了 CO²⁺ 解离反应中轴反冲近似的可靠性, 他们发现对于势能曲线上有极大值的那些亚稳态, CO²⁺ 解离前已经发生了明显的旋转, 因此解离碎片的动量方向不能正确地反映碰撞中分子轴取向, 所以轴反冲近似是不成立的; 而处于排斥态的 CO²⁺ 解离前没有发生明显的转动, 因此解离碎片的动量方向即为碰撞中分子轴取向, 即轴反冲近似成立。这项研究结果说明: 对所有的低电荷态分子离子解离情

收稿日期: 2016-04-01; 修改日期: 2016-04-11

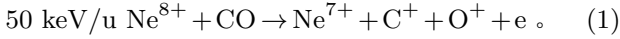
基金项目: 国家自然科学基金资助项目(U1332128, 11274317, 11574327, 11504387)

作者简介: 高永(1984-), 男, 安徽亳州人, 博士研究生, 从事离子-原子分子碰撞动力学研究;

通信作者: 马新文, E-mail: x.ma@impcas.ac.cn。

况, 均通过测量解离碎片的动量来研究反应中分子取向效应是不可行的。只有解离碎片由排斥态离子解离而来时, 其动量方向才能反映碰撞中分子轴真实取向。

我们实验研究了 50 keV/u Ne⁸⁺ 轰击 CO 转移电离过程中产生的 CO²⁺ 的碎裂过程:



实验不仅实现了对 KER < 20 eV 的 C⁺ 和 O⁺ 全向收集, 而且在测量的 KER 谱中我们鉴别出了来自亚稳态 ¹Σ⁺, ¹Π, ³Π 解离的峰、³Σ⁺ 态解离的峰和 ¹Σ⁺(_{II}) 态解离的峰, 同时发现了排斥态 ³Σ⁻ 的贡献。亚稳态解离中, C⁺ 极角分布近似均匀分布, 而排斥态 ³Σ⁻ 解离中, C⁺ 极角分布 90° 方向截面几乎是 180° 方向的 3 倍, 即存在明显的取向效应。

2 实验方法

本实验在中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态离子综合研究高压平台 2# 终端的反应显微成像谱仪上进行, 该谱仪已经在文献[18]中做了详细介绍, 因此这里只做简单介绍。首先 Ne⁸⁺ 离子在 ECR 源中产生, 经过电荷分析、加速、准直后被输送至反应显微成像谱仪。在反应靶室中心, Ne⁸⁺ 离子束与由安装于反应靶室顶端的超音速冷靶喷射的 CO 束垂直交叉进而发生反应, 反应后散射离子被静电分析器分析, 电荷态不变的主束被法拉第筒收集, 电荷态改变的散射离子被引导到散射探测器上, 散射离子到达探测器的时刻和位置被记录。反应中生成的 CO 离子及其解离产生的带电碎片(统称为反冲离子)被飞行时间谱仪(TOF)产生的 186 V/cm 的均匀电场(电场方向垂直于入射离子束及 CO 束方向)加速后进入漂移区, 完成漂移后打在反冲离子探测器上, 反冲离子到达的时刻及位置信息被反冲探测器记录。利用反冲离子的飞行时间信息及打在探测器上的位置信息, 我们可以获得反冲离子的三维动量。为了提高 TOF 方向反冲离子的动量分辨, 我们的反应显微成像谱仪使用了加速区与漂移区长度之比为 1:2 的 TOF^[19]。

单次碰撞中第一个到达反冲离子探测器的离子称为一击反冲离子, 本次实验使用了散射离子和一击反冲离子之间的两重符合测量技术, 另外需要指出的是本实验可以同时探测单次碰撞中产生的 C⁺ 和 O⁺。

3 实验结果与讨论

分子解离实验中, KER 谱至关重要, 通过 KER 谱研究人员可以获得分子解离过程中态布居信息, 测得

的 KER 谱分辨越高越有利于揭示分子态的布居情况。影响 KER 分辨的其中两个重要因素是初态靶分子的热运动和碰撞位置的不确定, 对于像本次实验一样同时对所有分子碎片进行测量的实验来说, 利用库仑爆炸中分子碎片动量守恒, 在质心系中还原 KER 可以克服初态靶分子的热运动或者碰撞位置不确定的影响, 以简单的分子两体碎裂为例, 如果靶分子的初态热运动可以忽略, 而碰撞位置不确定的影响不可忽略, 我们可以根据分子碎片的飞行时间和打到探测器上的位置准确求解出每次碰撞发生的位置。设分子碎片的质量分别为 m_1 , m_2 , 碎片的飞行时间分别为 t_1 , t_2 , 碎片打在探测器上的位置分别为 (x_1, y_1) 、 (x_2, y_2) , 碰撞位置为 (x_0, y_0) , 忽略靶分子初态热运动, 则:

$$x_0 = \frac{m_1 x_1 t_2 + m_2 x_2 t_1}{m_1 t_2 + m_2 t_1}, \quad (2)$$

$$y_0 = \frac{m_1 y_1 t_2 + m_2 y_2 t_1}{m_1 t_2 + m_2 t_1}. \quad (3)$$

同理, 如果碰撞位置不确定的影响可以忽略, 而靶分子的初态热运动不可忽略, 仍然以分子两体碎裂为例, 碎片质量、飞行时间、打在探测器上的位置及初始位置同上, 设初态分子热运动的速度为 (v_x, v_y) , 则:

$$v_x = \frac{x_1 - x_0}{(1 + \frac{m_2}{m_1})t_1} + \frac{x_2 - x_0}{(1 + \frac{m_1}{m_2})t_2}, \quad (4)$$

$$v_y = \frac{y_1 - y_0}{(1 + \frac{m_2}{m_1})t_1} + \frac{y_2 - y_0}{(1 + \frac{m_1}{m_2})t_2}. \quad (5)$$

因为在质心系中可以克服初态靶分子的热运动或者碰撞位置不确定的影响, 所以在质心系中还原 KER 能够极大提高 KER 谱的分辨。

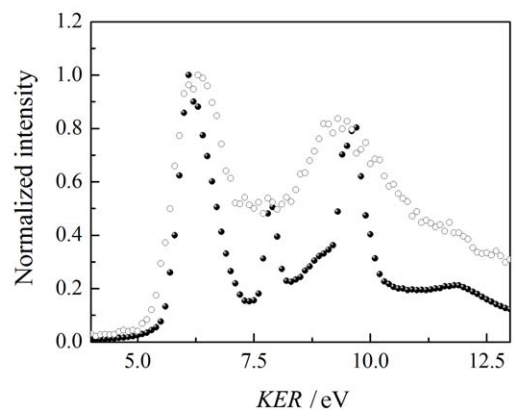


图 1 CO²⁺ → C⁺ + O⁺ 过程中释放的动能(KER)分布
空心圆为实验室系中还原结果, 实心圆为质心系中还原结果。

本次实验中, 靶分子由超音速冷靶产生, 温度低于 1 K, 所以靶分子热运动影响小, 因此在 KER 还原

中我们忽略了初态靶分子热运动的影响, 从而在质心系中消除碰撞位置不确定造成的不利影响。图1展示了我们在实验室系中(空心圆)和质心系中(实心圆)还原CO²⁺碎裂为C⁺和O⁺的KER谱, 为了方便对比, 我们对分布的最大计数进行了归一。对比实验室系中还原的KER谱, 可以发现质心系下KER的分辨显著提高, 在实验室系中没有观测到的结构在质心系中显现了出来, 例如峰中心在7.85 eV处的小峰。好的KER分辨使我们鉴别和区分分子解离前所处的分子态成为可能, 进而为分别研究各个分子态的性质提供了基础。

图2(a)中我们将所测得的KER谱与Lundqvist等^[9]测量的振动能级分辨的结果(图2(a)中红色短垂线所示)进行对比, 我们发现中心在6.1 eV的峰来自亚稳态¹Σ⁺, ¹Π和³Π解离的贡献, 峰中心在7.85 eV的窄峰来自³Σ⁺态解离的贡献, 峰中心约在9.7 eV的峰来自¹Σ⁺(_{II})态解离的贡献。图2(b)展示了CO²⁺能量

最低的7条势能曲线(引用自^[20]), 本次实验气体靶温度小于1 K, 因此反应前CO电子态及振动态均处于基态, 这意味着初态靶分子核速度很小, 且核间距大约在0.108 ~ 0.118 nm(图2(b)中灰色区域宽度所示)范围内。另外本实验中入射离子与CO分子作用时间在10⁻¹⁷ s量级, 远小于分子的振转周期, 因此该碰撞过程是一个Frank-Condon过程, 即碰撞不会改变靶分子原子核的初始位置及运动速度, 所以反应后CO²⁺将主要布居在各态灰色区域所覆盖的势能曲线段上。对于³Σ⁺态, 灰色区域覆盖的势能曲线段在纵轴方向上投影长度短, 导致该态在KER分布中对应的峰宽度窄; 对于¹Π, 灰色区域覆盖的势能曲线段在纵轴上投影长度更长, 因此该态在KER分布中对应的峰宽度更宽。同时, 根据图2(b)及上述分析, 我们推断KER=8.3~9.1 eV的肩膀来自排斥态³Σ⁻解离的贡献, 中心在11.8 eV的宽结构可能来自多个态解离的贡献^[21]。

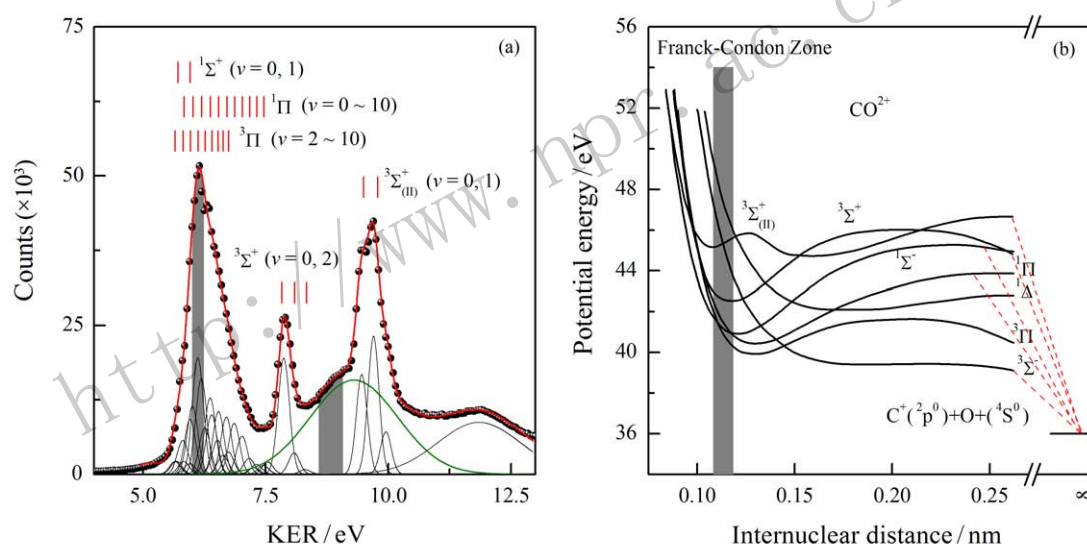


图2 (在线彩图) 质心系中CO²⁺→C⁺+O⁺过程中释放的动能(KER)分布及势能曲线

(a) 红色短垂线标记各分子态振动能级的位置(引自文献^[9]), 灰色区域为下文研究分子轴取向效应时选择的范围; (b) CO²⁺能量最低的7条势能曲线(引自文献^[20]), 灰色区域为CO初态核间距分布范围。

在图2(a)中, 根据³Σ⁺态振动能级位置及当前测量的³Σ⁺态对应峰的中心位置和形状判断, 这个峰几乎完全来自于该态振动基态解离, 且本实验中振动能级的宽度可以忽略, 因此测量的振动态对应的KER分布为高斯分布, 对当前测量的³Σ⁺态对应峰进行高斯拟合, 我们得到当前实验KER分辨约为0.24 eV。根据Lundqvist等^[9]测量的振动能级的位置, 我们用半高宽0.24 eV的高斯分布对亚稳态解离的贡献进行拟合, 用高斯分布对KER分布中排斥态的贡献进行拟合, 同时, 对中心在约11.8 eV的结构也进行高斯拟合, 最终

得到了图2(a)中红色曲线所示的拟合结果。拟合结果与实验结果很好地重合。这里需要指出的是KER分布中排斥态的贡献并非高斯分布, 这里我们使用高斯分布近似导致高估了¹Π态v=8~10及³Σ⁺态v=2, 3振动能级的贡献。

根据Weber等^[10]的研究结论, 亚稳态分子离子解离前分子轴已发生明显的旋转, 由于旋转的随机性, 即使反应中存在分子轴取向效应, 解离碎片的动量方向也必然会趋向于各向同性, 而排斥态解离前分子轴没有发生明显旋转, 因此解离碎片动量方向能够

准确反映碰撞中分子轴取向。我们选取亚稳态解离事例 ($KER = 6.0 \sim 6.2$ eV, 即图 2(a) 中左侧阴影部分) 与排斥态解离事例 ($KER = 8.6 \sim 9.1$ eV, 即图 2(a) 中右侧阴影部分), 研究 C^+ 发射极角 (即 C^+ 动量方向与入射离子方向的夹角) 分布, 如图 3(a)、(b) 所示 (几何效应已被考虑), 两个角分布明显不同。图 3(a) 中角分布几乎是均匀的, 图 3(b) 中 C^+ 极角分布在 90° 方向附件的强度几乎是 180° 方向强度的 3 倍, 即实验观测到了明显的取向效应。另一方面, 这一研究结果也说明在研究涉及低电荷态分子离子解离的分子轴取向效应时, 需要挑选排斥态解离事例进行研究, 因此需要实验上区分不同的分子态。

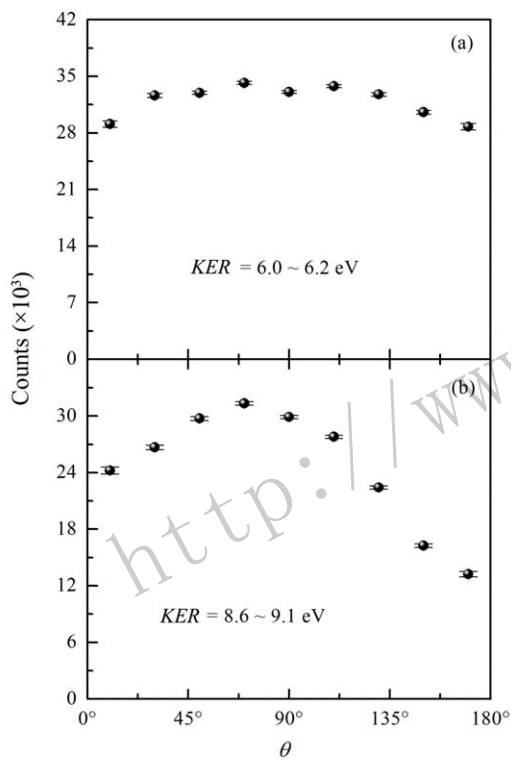


图 3 $KER = 6.0 \sim 6.2$ eV 和 $8.6 \sim 9.1$ eV 范围内 C^+ 发射极角 (θ) 分布, 需要指出的是, 为了便于观察我们对每一道的计数除以了相应的 $\sin \theta$ 。

图 4 中我们将所测得的取向效应 (黑色实心圆) 与 Siegmann 等^[4] 的结果 (红色空心方) 进行对比, Siegmann 等观测到的分子轴取向分布在 90° 方向出现极小值, 这种取向效应是分子电子云分布形状决定的, 而我们的结果中, 分子轴取向分布在 90° 方向附件出现极大值, 这意味着我们观测到的取向分布与 Siegmann 等观测到的取向分布并不是来自相同的效应, 在后续的研究中, 我们将对观测到的取向效应的物理原因进行深入分析。

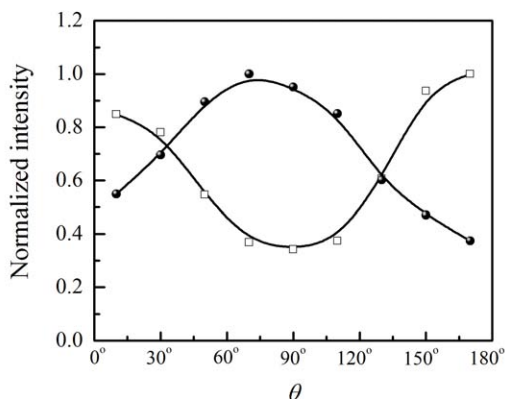


图 4 (在线彩图) 50 keV/u Ne^{8+} 碰撞 CO 的转移电离过程中 CO 分子轴取向分布 (黑色实心圆) 及 100 keV D^+ 碰撞 CO 的四重电离过程中 CO 分子轴取向分布 (红色空心方) 黑色实心圆为本次实验的结果, 红色空心方为文献 [4] 的实验结果, 为了方便比较我们对两次实验的最大计数进行归一化。图中实线仅为方便观察分布趋势。

4 结论与展望

利用反应谱仪我们研究了 50 keV/u Ne^{8+} 与 CO 碰撞的转移电离反应, 重构了 CO^{2+} 解离产生的 C^+ 与 O^+ 的三维动量, 因此质心系中 CO^{2+} 解离过程释放的动能被获得。实验中我们不仅实现了对 $KER < 20$ eV 的解离碎片全向收集, 而且实现了对 CO^{2+} 分子态的分辨。在当前反应中 CO^{2+} 主要布居于亚稳态 $^1\Sigma^+$ 、 $^1\Pi$ 和 $^3\Pi$, 同时我们发现了 $^3\Sigma^+$ 态、 $^1\Sigma^+_{(II)}$ 态 CO^{2+} 解离分别对应的 KER 峰, 与亚稳态贡献相比, 排斥态 $^3\Sigma^-$ 的贡献分布在一个更宽的 KER 范围内。对比亚稳态解离与排斥态解离的 C^+ 极角分布, 我们发现亚稳态解离的 C^+ 极角分布几乎是各向同性的, 而排斥态解离存在明显的取向效应, 这也是人们首次在 CO^{2+} 解离的反应中观测到明显的分子轴取向效应。而且这种取向效应与以前观测到的取向效应不同^[4], 它并不是 CO 分子的电子云形状导致的。同时, 这一研究结果也说明利用轴反冲近似研究分子轴取向效应时, 需要考虑分子离子寿命, 因此实验不仅需要解离碎片进行全向收集, 而且需要对不同寿命的分子态进行鉴别, 即需要实现分子态分辨。

参考文献:

[1] ULLRICH J, MOSHAMMER R, DORN A, *et al.* Rep Prog Phys, 2003, **66**: 1463.
 [2] ALI I, DÖNER R, JAGUTZKI O, *et al.* Nucl Instr and Meth B, 1999, **194**: 490.

- [3] ADOUI L, CARABY C, CASSIMI A, *et al.* J Phys B: At Mol Opt Phys, 1999, **32**: 631.
- [4] SIEGMANN B, WERNER U, KALIMAN Z, *et al.* Phys Rev A, 2002, **66**: 052701.
- [5] WERNER U, KABACHINIK N M, KONDRATYEV V N, *et al.* Phys Rev Lett, 1997, **79**: 1662.
- [6] SIEGMANN B, WERNER U, LEBIUS H, *et al.* Nucl Instr and Meth B, 2003, **205**: 629.
- [7] KABACHINIK N M, KONDRATYEV V N, ROLLER-LUTZ Z, *et al.* Phys Rev A, 1998, **57**: 990.
- [8] CHENG S, COCKE C L, FROHNE V, *et al.* Phys Rev A, 1993, **47**: 3923.
- [9] LUNDQVIST M, BALTZER P, EDVARDSSON D, *et al.* Phys Rev Lett, 1995, **75**: 1508.
- [10] WEBER T, JAGUTZKI O, HATTASS M, *et al.* J Phys B: At Mol Opt Phys, 2001, **34**: 3669.
- [11] MIZUNO T, MAJIMA T, TSUCHIDA H, *et al.* Journal of Physics: Conference Series, 2007, **58**: 173.
- [12] MIZUNO T, ITOH A. Journal of Physics: Conference Series, 2014, **488**: 012027.
- [13] ERIKA BENE, MARIE-CHRISTINE, BACCHUS-MONTABONEL. Eur. Phys. J. D, 2014, **68**: 167.
- [14] MIZUNO T, YAMADA T, TSUCHIDA, *et al.* Phys Rev A, 2010, **81**: 012704.
- [15] CARMEN TACHINO, MARIEL GALASSI, ROBERTO RIVAROLA. Phys Rev A, 2008, **77**: 032714.
- [16] MELO W S, SANTOS A C F, SANT'ANNA M M, *et al.* J Phys B: At Mol Opt Phys, 2008, **41**: 205201.
- [17] AMOS, NEWTON S, SCIAMANNA A F. J Chem Phys, 1970, **53**: 132.
- [18] MA X, ZHANG R T, ZHANG S F, *et al.* Phys Rev A, 2001, **83**: 052707.
- [19] WILEY W C, MCLAREN. Review of Scientific Instruments, 1955, **26**: 1150.
- [20] LABLANQUIE P, DELWICHE J, HUBIN-FRANSKIN M -J, *et al.* Phys Rev A, 1989, **40**: 5673.
- [21] PANDEY A, BAPAT B, SHAMASUNDAR K R, *et al.* J. Chem. Phys, 2014, **140**: 034319.

Orientation Effect in Transfer Ionization Processes of 50 keV/u Ne⁸⁺ Impact on CO

GAO Yong^{1,2}, ZHANG Shaofeng¹, ZHU Xiaolong¹, YAN Shuncheng¹, FENG Wentian¹, ZHANG Ruitian¹, GUO Dalong¹, LI Bin¹, WANG Hanbing^{1,2}, HUANG Zhongkui^{1,2}, HAI Bang^{1,2}, ZHANG Min^{1,2}, MA Xinwen¹

(1. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: The fragmentations of CO²⁺ are studied in transfer ionization processes of 50 keV/u Ne⁸⁺ impact on CO with reaction microscopes. The 3D momenta of C⁺ and O⁺ were measured, and the kinetic energy release (KER) of dissociative(CO²⁺) was obtained accordingly. The peaks resulted from the metastable states of ¹Σ⁺, ¹Π and ³Π, of ³Σ⁺, and of ¹Σ⁺_(II) are identified in KER spectrum. Meanwhile, the repulsive state of ³Σ⁻ was also observed, which forms a broad peak lying between the peaks of ³Σ⁺ and ¹Σ⁺_(II). In the CO²⁺ dissociations from ³Σ⁻ state, the orientation effect of CO molecular axis was observed for the first time.

Key words: orientation effect; KER; CO; reaction microscope

Received date: 1 Apr. 2016; Revised date: 11 Apr. 2016

Foundation item: National Natural Science Foundation of China(U1332128, 11274317, 11574327, 11504387)

Corresponding author: MA Xinwen, E-mail: x.ma@impcas.ac.cn.