

纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂中轻碎片离子 $C_n^+(n < 30)$ 的产生机理研究^{*}

钱东斌^{1)†} 马新文¹⁾ 张大成¹⁾²⁾ 祖凯玲¹⁾ 刘惠萍¹⁾ 汶伟强¹⁾²⁾

1) 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

2) 中国科学院研究生院, 北京 100049)

(2007 年 11 月 29 日收到, 2008 年 1 月 31 日收到修改稿)

采用飞行时间质谱计测量了纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂中轻碎片离子 $C_n^+(n \leq 11)$ 的初始平均动能, 结果显示轻碎片离子具有相同的初始平均动能(约为 0.34 eV), 并且该动能在一定范围内不随激光通量的变化而明显改变. 结合前人的实验结果, 对纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂中轻碎片离子 $C_n^+(n < 30)$ 的主要产生模式作了新的阐述, 即 C_{60} 分子级联发射 15 个 C_2 分子和一个电子形成自身不稳定的 C_{30}^+ 离子, 在皮秒时间尺度内 C_{30}^+ 离子的笼形结构塌陷, 进而轻碎片离子产生.

关键词: 飞行时间质谱计, 轻碎片离子, 笼形结构塌陷, 初始动能

PACC: 6148

1. 引 言

富勒烯分子被发现以后^[1], 研究人员就采用质谱分析方法对纳秒激光诱导 C_{60} 分子的碎裂机理开始了研究^[2]. 纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂产生的碎片质谱具有典型的双峰(bimodal)分布特征. 富勒烯碎片离子 $C_{60-2n}^+(n \leq 14)$ 主要是由 C_{60}^+ 离子级联发射中性 C_2 分子产生, 对此 Scheier 等人通过实验已给出了直接证据^[3]. 对于轻碎片离子 $C_n^+(n < 30)$ 的具体产生途径目前仍有争议. 采用控制纳秒激光通量诱导 C_{60} 分子碎裂时发现^[4], 随着激光通量的增加质谱中富勒烯离子的尺寸由 C_{60}^+ 逐步减小到 C_{32}^+ , 激光通量继续增加到某一临界值后所有轻碎片离子在质谱中同时出现, 该结论充分说明了两类碎片离子具有完全不同的产生模式.

实验中通过测量碎片离子的初始动能, 可以获得更详细的碎裂信息. 由于至今对于轻碎片离子的产生路径没有一个合理的阐述, 许多研究人员认为即使实验得到轻碎片离子的初始动能也无法为具体的碎裂过程提供信息, 因此, 他们把工作焦点一直放

在了富勒烯离子的单步解离反应 $C_{60-2n}^+ \rightarrow C_{60-2(n+1)}^+ + C_2$ 中碎片离子初始动能的测量上^[5-7], 并且这些测量都基于 mass-analyzed ion kinetic energy (MIKE) 技术. 最近, Climen 等人首次采用离子成像技术, 得到了纳秒激光诱导 C_{60} 分子级联碎裂成 C_{44}^+ 离子的衰变链中所有富勒烯碎片离子 $C_{60-2n}^+(8 \leq n \leq 14)$ 的初始平均动能^[8], 从此人们对 C_{60} 分子级联发射若干 C_2 分子和一个电子产生富勒烯碎片离子的碎裂过程有了更深层次的认识. 也有一些实验对纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂中所有碎片离子 $C_n^+(n \leq 58)$ 的初始速度(动能)进行了测量^[4,9], 并且作者采用两体碎裂模式 $C_{60}^+ \rightarrow C_{60-n}^+ + C_n$ 对测量结果进行了解释, 但是这个解释需要假定每个碎裂通道具有相同的动能释放(kinetic energy release), 目前我们知道该结论与许多实验结果相矛盾.

综上所述, 除了较早时期文献 [4,9] 给出了纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂产生的轻碎片离子的初始动能信息, 至今没有其他工作报道. 而文献 [8] 测量的富勒烯碎片离子的初始平均动能与文献 [4,9] 中的实验结果具有较大差别(该差别可能是由于两种实验技术的可靠性不同所致), 前者的测量是基于目前

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 10605034)和国家自然科学基金重点项目(批准号: 10434100)资助的课题.

[†] E-mail: qiandb@impcas.ac.cn

较为先进的离子成像技术,由此推测,后者给出的轻碎片离子的初始平均动能还存在着诸多不确定因素.本工作采用飞行时间质谱计测量碎片离子的飞行时间峰形,并通过离子峰形分布确定纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂产生的轻碎片离子 C_n^+ ($n \leq 11$) 的初

始平均动能,同时对纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂中轻碎片离子 C_n^+ ($n < 30$) 的主要产生模式作新的阐述,并采用该阐述对本工作以及前人的一些理论和实验结果给予合理解释.

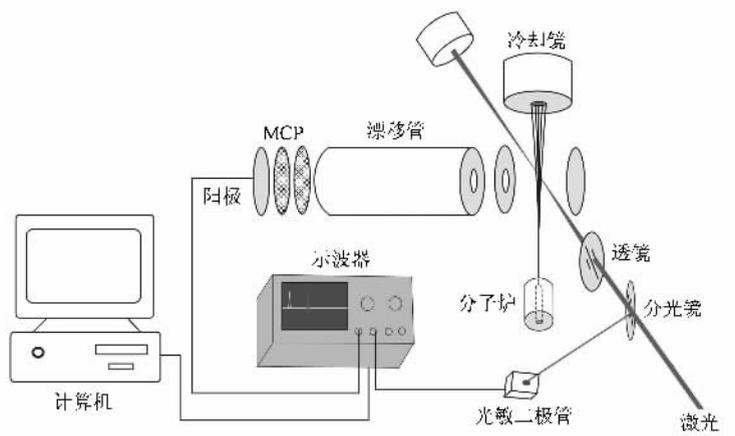


图 1 实验装置布局示意图

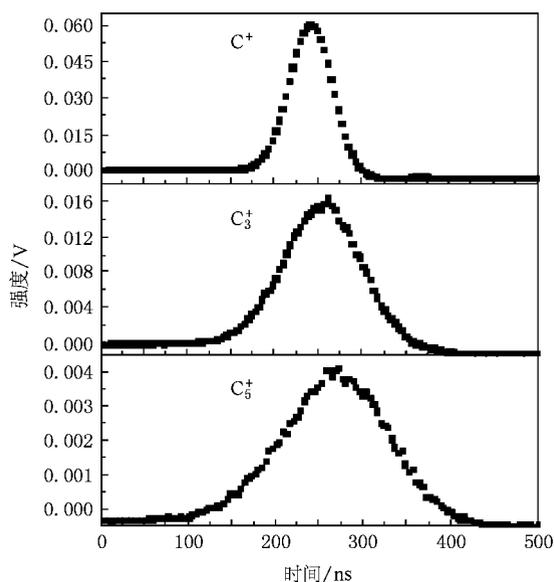


图 2 激光通量为 10.7 J/cm^2 时离子 C^+ 、 C_3^+ 和 C_5^+ 的飞行时间峰形分布

2. 实验设备和程序

本实验采用的实验装置如图 1 所示,主要包括飞行时间质谱计 (TOFMS)、产生 C_{60} 分子束的分子炉和实现质谱获取的数字示波器.纯度为 99.5% 的 C_{60} 分子束由电阻加热式分子炉加热到 800 K 产生,通过三个限束孔准直后 C_{60} 分子束在作用区处的直径

小于 3 mm. C_{60} 分子束与 Nd:YAG 激光器的二次倍频激光束 (532 nm , 7 ns) 垂直交叉碰撞,产生的碎片离子被垂直于激光束和分子束所在平面方向的静电场引出作用区,并经过加速后进入无场漂移管,然后由离子探测器接收并给出离子到达探测器的时间和产额信息,最后被数字式荧光示波器记录,获得包含所有碎片离子的飞行时间质谱.

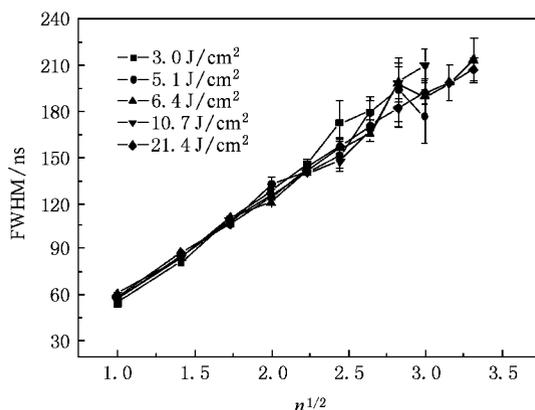


图 3 不同激光通量下轻碎片离子 C_n^+ ($n \leq 11$) 峰的 FWHM 与碎片尺寸之间的关系曲线

纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂实验中,只有激光强度超过 10^{13} W/cm^2 时质谱中才会有少量的二价离子出现^[10],而我们使用的激光强度在 4×10^8 — $3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ 范围内,远低于产生高价态离子的条

件,所以质谱中的每个碎片离子均来自于不同的 C_{60} 分子.本实验采用的 TOFMS 设计满足一级聚焦条件,因此在 TOFMS 轴线方向上可以把该激光离子源看作一点源,也即在飞行时间质谱中的离子峰宽度主要由离子束的初始动能在 TOFMS 轴线方向上引起的飞行时间差决定.图 2 给出了激光通量为 10.7 J/cm^2 时对应的飞行时间质谱中部分轻碎片离子峰的形状.通过分析轻碎片离子 C_n^+ ($n \leq 11$) 的峰形分布,得到不同激光通量下碎片离子峰的半高全宽 (FWHM) 与碎片离子尺寸之间的关系如图 3 所示.下面讨论从碎片离子峰的 FWHM 获得碎片离子初始平均动能的数据分析过程.

3. 数据分析

若实验运行时各参数保持恒定,那么离子 (m/q) 的飞行时间只与 TOFMS 的轴线方向的初始速度分量 v_x 有关.碎片离子的初始动能弥散主要包括两部分:热动能弥散和碎裂过程的动能释放 (KER) 引起的动能弥散.通过离子峰的 FWHM 获得碎片离子的初始平均动能的原理性分析,文献 [10] 中已经作了详细推导,在此我们针对本次实验的具体情况给出概括性的描述.

热动能弥散导致的飞行时间峰的 FWHM 可由下式表示:

$$W_{\text{FWHM}}^{\text{th}} = 1.664 \text{tg} \alpha (2kTm)^{1/2} / qE_s, \quad (1)$$

其中 T 为 C_{60} 分子炉加热的绝对温度; α 为 C_{60} 分子束的发散半角; m 和 q 分别为碎片离子质量和带电量; E_s 为 TOFMS 的引出电场强度.

碎裂过程的 KER 引起的动能弥散导致的飞行时间峰形 FWHM 由下式表示:

$$W_{\text{FWHM}}^{\text{KER}} = \chi (2\bar{\epsilon}m)^{1/2} / qE_s, \quad (2)$$

其中 $\bar{\epsilon}$ 为碎裂引起的碎片离子的初始平均动能.

因此,碎片离子总的飞行时间峰形 FWHM 可表示为

$$\begin{aligned} W_{\text{FWHM}}^{\text{total}} &= \sqrt{(W_{\text{FWHM}}^{\text{th}})^2 + (W_{\text{FWHM}}^{\text{KER}})^2} \\ &= \frac{\sqrt{5.538 (\text{tg} \alpha)^2 kT + 8\bar{\epsilon}}}{qE_s} m^{1/2}, \quad (3) \end{aligned}$$

$W_{\text{FWHM}}^{\text{total}}$ 在实验中可直接测量.由于实验运行时各参数保持恒定,并且每个碎片离子的最初形态都是从分子炉蒸发出来的 C_{60} 分子,因此对于每个碎片离子 (3) 式中的 α, T, q, E_s 值都相等.

从图 3 可以看出,在实验误差范围内轻碎片离子 C_n^+ ($n \leq 11$) 的峰形 FWHM 不随激光通量的变化而改变.根据以上实验结果,由 (3) 式可以推断每个轻碎片离子的初始平均动能 $\bar{\epsilon}$ 在一定范围内不随激光通量的变化而改变.为了获得碎裂引起的轻碎片离子的平均动能 $\bar{\epsilon}$,我们把实验中的 α, T, q, E_s 值以及图 3 中的每个碎片离子的峰形 FWHM 在所有激光通量下的平均值代入 (3) 式,得到轻碎片离子 C_n^+ ($n \leq 11$) 的 $\bar{\epsilon}$ 值,如表 1 所示.在实验误差范围内,碎裂引起的轻碎片离子 C_n^+ ($n \leq 11$) 的初始平均动能 $\bar{\epsilon}$ 值相等 (约为 0.34 eV).1997 年 Muigg 等人在电子诱导 C_{60} 分子碎裂实验中,通过控制电子能量保证只有单电荷态离子产生,并采用 MIKE 技术同样得到了轻碎片离子 C_n^+ ($4 \leq n \leq 19$) 具有基本相同的初始平均动能的实验结果^[11],由此推断 Muigg 等人的实验中轻碎片离子的主要产生模式与纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂实验中的相同.为了解释实验测量到的轻碎片离子的初始平均动能,在下面章节中我们对纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂实验中轻碎片离子的具体产生过程作深入探索.

表 1 通过碎片离子的峰形 FWHM 得到的碎片离子的初始平均动能

碎片离子	初始平均动能/eV
C^+	0.35 ± 0.01
C_2^+	0.34 ± 0.01
C_3^+	0.35 ± 0.01
C_4^+	0.34 ± 0.01
C_5^+	0.34 ± 0.01
C_6^+	0.34 ± 0.02
C_7^+	0.35 ± 0.01
C_8^+	0.38 ± 0.03
C_9^+	0.34 ± 0.03
C_{10}^+	0.32 ± 0.03
C_{11}^+	0.33 ± 0.03

4. 轻碎片离子的产生路径讨论

在所有纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂实验中都没有发现稳定的 C_{30}^+ 离子存在,说明具有笼形结构的 C_{30}^+ 离子自身很不稳定.基于 C_{30}^+ 离子的自身不稳定性以及 Climen 等人^[8] 给出的富勒烯碎片离子产生途径,我们对纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂实验中轻碎

片离子的主要产生模式作一新的阐述,即 C₆₀ 分子级联发射 15 个 C₂ 分子和一个电子形成自身不稳定的 C₃₀⁺ 离子,在皮秒时间尺度内 C₃₀⁺ 离子的笼形结构塌陷,进而轻碎片离子产生.该描述强调了所有轻碎片离子都来源于自身极其不稳定的 C₃₀⁺ 离子的笼形结

构塌陷,因此它们与处于中间态的 C₃₀⁺ 离子对应着相同的表观能(apparent energy),这与文献 [4] 中得到的富勒烯碎片离子 C₃₂⁺ 在质谱中出现后,激光通量继续增加到某一临界值时所有轻碎片离子同时产生的实验结果相一致.

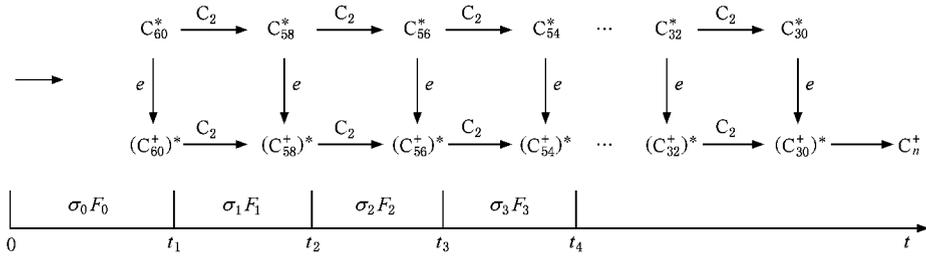


图 4 纳秒激光诱导 C₆₀ 分子碎裂实验中轻碎片离子 C_n⁺ (n < 30) 的具体产生过程

我们描述的轻碎片离子 C_n⁺ (n < 30) 的具体产生过程如图 4 所示,包括处于中间态的 C₃₀⁺ 离子的产生和 C₃₀⁺ 离子的笼形结构塌陷两个过程.轻碎片离子的初始平均动能可表示为

$$\bar{\epsilon} = \bar{\epsilon}_{30} + \bar{\epsilon}_n, \quad (4)$$

其中 $\bar{\epsilon}_{30}$ 是 C₃₀⁺ 离子的形成过程导致的轻碎片离子 C_n⁺ 的平均动能弥散, $\bar{\epsilon}_n$ 为 C₃₀⁺ 离子的笼形结构塌陷导致的 C_n⁺ 离子的平均动能弥散.由于纳秒激光脉冲持续时间要远远长于 C₆₀ 分子以及富勒烯碎片离子的电子-声子耦合时间(约 250 fs)^[12,13],因此它们在纳秒激光场中的碎裂过程可用基于细致平衡原理的统计模型进行描述^[14,15].先看 C₃₀⁺ 离子的产生,共有 (60 - 30 + 2) / 2 = 16 个可能的产生路径.为方便讨论,我们只考虑 C₃₀⁺ 离子通过 C₆₀ 分子电离,然后级联发射 15 个 C₂ 分子的产生路径.在此路径中 C₃₀⁺ 离子的平均动能可表示为

$$\bar{\epsilon}_{30} = \sum_{m=0}^{14} \frac{3}{2} k_B T_m \frac{2}{60 - 2m}, \quad (5)$$

其中 T_m 是 C_(60-2m-1)⁺ → C_(60-2m)⁺ + C₂ 反应中子核离子的温度. C₃₀⁺ 离子的自身不稳定性决定了它对应着很低的笼形结构塌陷势垒,在此情况下 C₃₀⁺ 离子的笼形结构塌陷过程的动能释放可以被忽略,即 $\bar{\epsilon}_n \ll \bar{\epsilon}_{30}$. 因此通过(4)式可以解释本工作得到的所有轻碎片离子具有相同的初始平均动能的结论,并且得到所有轻碎片离子的初始动能与 C₃₀⁺ 离子的初始动能相等的推论.

图 5 给出了 Sergio 等人^[16]采用 B3LYP 密度泛函理论计算出的富勒烯碎片离子发射 C₂ 分子对应的

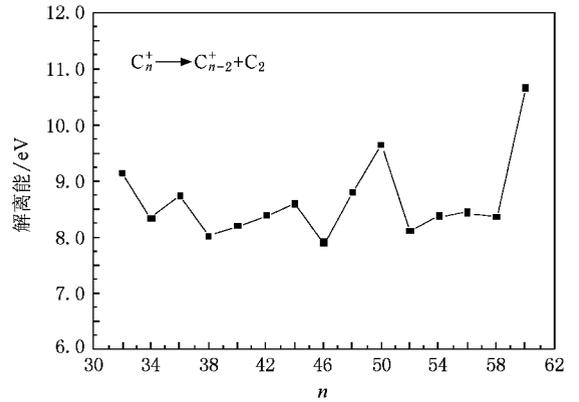


图 5 富勒烯离子发射 C₂ 分子的解离能

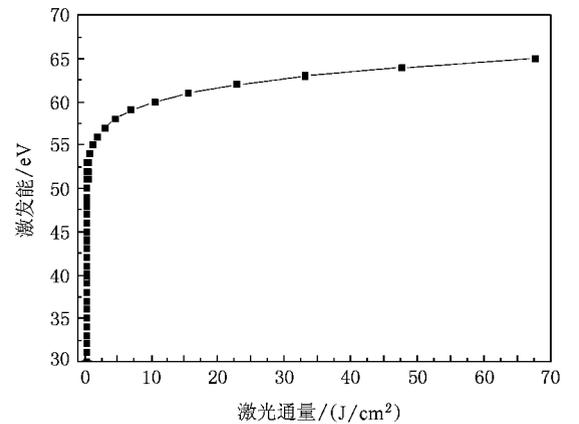


图 6 纳秒激光场(532 nm, 7 ns)中 C₆₀ 离子的内能随激光通量的变化曲线

解离能,如果轻碎片离子按照图 4 设定的路径产生时,必须要求 C₆₀ 分子在一个激光脉冲内吸收多于

130 eV 的光子能量,用来克服级联发射 15 个 C_2 分子对应的解离能.由前人的工作我们知道, C_{60} 分子的微正则温度在 5000—6000 K 范围内(对应内能为 60—80 eV)发射中性 C_2 分子的寿命只有 ps 量级^[17],从而决定了图 4 描述的轻碎片离子产生过程在纳秒激光脉冲持续时间内的某一时刻就开始了.设激光脉冲通量为 F ,激光脉冲持续时间为 w ,激光脉冲到来时刻为时间零点,富勒烯离子 $C_{60-\chi(i-1)}^+$ 在激光脉冲持续时间内的产生时刻为 t_i , σ_0 为 C_{60} 分子的光吸收截面, σ_i 是富勒烯离子 $C_{60-\chi(i-1)}^+$ 的光吸收截面, D_i 是富勒烯离子 $C_{60-\chi(i-1)}^+$ 的裂解能,IP 是 C_{60} 分子的第一电离势.因此,富勒烯离子 C_{60-2m}^+ ($m \leq 14$) 的内能可表示为

$$E_{C_{60-2m}^+} = \sigma_0 F_0 + \sum_{i=1}^{m+1} \sigma_i F_i - \sum_{i=1}^m D_i - IP, \quad (6)$$

其中

$$F_0 = \frac{F}{w} t_1, F_i = \frac{F}{w} (t_{i+1} - t_i), \quad (7)$$

$t_{i+1} - t_i$ 可理解为处于中间态的富勒烯离子 $C_{60-\chi(i-1)}^+$ 的寿命.由(6)式看出, C_{60} 分子以及富勒烯离子 C_{60-2m}^+ ($m \leq 14$) 在激光脉冲内边吸收光子能量边发射 C_2 分子的动态过程,不但避免了由于它们内部沉积的能量过高造成多级碎裂的发生,同时还保证了它们吸收的光子能量总和能够顺利克服发射 15 个 C_2 分子对应的解离能,最终达到产生轻碎片离子的条件.(6)式和(7)式还告诉我们,在激光脉冲宽度一定的情况下,富勒烯离子 C_{60-2m}^+ 的内能只与激光通量 F 和处于中间态的富勒烯离子 $C_{60-\chi(i-1)}^+$ 的寿命 $t_{i+1} - t_i$ 有关.为了得到离子 C_{60-2m}^+ 的内能随激光通量的变化关系,以单步解离反应 $C_{60}^+ \rightarrow C_{58}^+ + C_2$ 为例,并假设纳秒激光脉冲到来之前 C_{60}^+ 离子处于基态,其内能与寿命 $\tau_{C_{60}^+}$ 之间的关系可表示为

$$E_{C_{60}^+} = \begin{cases} \sigma_1 F, & \tau_{C_{60}^+} > w, \\ \sigma_1 \frac{F}{w} \tau_{C_{60}^+}, & \tau_{C_{60}^+} \leq w. \end{cases} \quad (8)$$

本实验采用的激光脉冲持续时间为 7 ns,激光波长为 532 nm,该激光波长下光吸收截面的近似取值为^[18,19] $\sigma_1 = 1.8 \times 10^{-21} \text{ m}^2$; C_{60}^+ 离子的微正则温度与其内能之间关系为^[20] $E_{C_{60}^+} [\text{eV}] = 0.01448 T [\text{K}] - 7.02$ ($T > 1500 \text{ K}$),与其寿命 $\tau_{C_{60}^+}$ 的关系由文献^[17] 中的实验数据拟和得到,即 $\ln \tau_{C_{60}^+} = -47.438 +$

$\frac{118841.85}{T [\text{K}]}$.将以上关系代入(8)式后得到 C_{60}^+ 离子的内能随激光脉冲能量的变化曲线如图 6 所示,在此展示的激光通量范围为 0.25—67.5 J/cm².从图 6 看出, $F < 0.47 \text{ J/cm}^2$ 时, C_{60}^+ 离子的寿命大于激光脉冲宽度,其内能随着激光通量呈线性增加趋势,激光通量增加到 0.47 J/cm² 时对应 C_{60}^+ 离子的内能为 53 eV,此时其寿命与激光脉冲宽度相等; $F > 0.47 \text{ J/cm}^2$ 时, C_{60}^+ 离子的碎裂将发生在纳秒激光脉冲持续时间内的某一时刻,在此区间内 C_{60}^+ 离子的内能是激光通量 F 和寿命 $\tau_{C_{60}^+}$ 的共同函数,因此最终导致了内能随着激光通量的增加速度迅速减缓,即在 0.47—67.7 J/cm² 区间内(对应后面的 12 个计算点)的激光通量增加了 140 倍, C_{60}^+ 离子内能的增加不到 20%.通过类推我们知道,所有富勒烯碎片离子 C_{60-2m}^+ 的内能随激光通量的变化具有类似趋势.基于以上讨论,就可以通过(4)和(5)式对我们以及前人^[4,9] 实验中发现的轻碎片离子的初始平均动能在一定范围内不随激光通量的增加而有明显改变的结论给予定性理解.

以往纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂的理论计算中^[8,21] 人们把 C_{60} 分子看作是在整个激光脉冲持续时间内吸收完光子后再进行碎裂,此时,通过实验得到的末态富勒烯碎片离子 C_{60-2n}^+ ($n \leq 14$) 的内能推算处于中间态的富勒烯离子 C_{60-2m}^+ ($m < n$) 的内能采用的关系式为

$$E_{C_{60-2m}^+} = E_{C_{60-2n}^+} + \sum_{i=m+1}^n D_i. \quad (9)$$

实际上纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂实验中末态碎片离子的产生是一个吸热放热交替进行的过程,同时富勒烯离子 C_{60-2n}^+ ($n \leq 14$) 在质谱中出现时对应的临界激光通量随着 n 的增加而增加^[4],这就决定了实验中处于中间态的富勒烯离子 C_{60-2m}^+ ($m < n$) 的内能随末态离子尺寸 n (激光通量)的变化并不明显,而采用(9)式计算出的富勒烯离子 C_{60-2m}^+ ($m < n$) 的内能随 n 值(激光通量)增加具有明显增加趋势,因此,由(9)式得到的中间态富勒烯离子的内能会随着 n 值的增加逐渐高于实际值.以上是导致 Climen 等人^[8] 理论计算的富勒烯碎片离子的初始平均动能从 C_{46}^+ 处开始越来越明显高于实验测量值的主要原因.

采用我们提出的纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂中轻碎片离子 C_n^+ 的产生模式得到的一个重要推论是

所有轻碎片离子的初始动能等于处于中间态的 C_{30}^+ 离子的平均动能,该推论还没有直接实验验证,同时目前只有实验中得到的碎片离子的表观能和初始平均动能对我们提出的轻碎片离子 C_n^+ 的产生模式提供了证据,因此今后还需要通过更深入的实验来获得支持该产生模式的其他证据。

5. 结 论

本文采用 TOFMS 对纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂中轻碎片离子 C_n^+ ($n \leq 11$) 的初始平均动能进行了系统的测量,结果显示这些离子对应着相同的初始

平均动能值约为 0.34 eV,并且该动能值在一定范围内不随激光通量的变化而改变。结合前人的实验结果,我们对纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂中轻碎片离子 C_n^+ ($n < 30$) 产生的主要模式作了新的阐述,即 C_{60} 分子级联发射 15 个 C_2 分子和一个电子形成自身不稳定的 C_{30}^+ 离子,在皮秒时间尺度内 C_{30}^+ 离子的笼形结构塌陷,进而轻碎片离子产生。该阐述不仅解释了前人在纳秒激光诱导 C_{60} 分子碎裂实验中发现的激光通量增加到某一临界值后所有轻碎片离子同时产生的实验结果,同时还对本工作得到的轻碎片离子的初始平均动能分布特征,以及最近的一些理论计算与实验测量值的比较结果给予了更细致的分析讨论。

-
- [1] Kroto H W ,Heath J R ,O' Brein S C ,Curl R F ,Smalley R E 1985 *Nature* **318** 162
- [2] O'Brien S C ,Heath J R ,Curl R F ,Smalley R E 1988 *J. Chem. Phys.* **88** 220
- [3] Scheier P ,Dunser B ,Worgotter R ,Muigg D ,Matt S ,Echt O ,Foltin M ,Mark T D 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 2654
- [4] Hohmann H ,Ehlich R ,Furrer S ,Kittelmann O ,Ringling J ,Campbell E E B 1995 *Z. Phys. D* **33** 143
- [5] Guch K ,Matt-Leubner S ,Echt O ,Concina B ,Scheier P ,Märk T D 2004 *J. Chem. Phys.* **121** 2137
- [6] Guch K ,Matt-Leubner S ,Echt O ,Deng R ,Andersen J U ,Scheier P ,Märk T D 2004 *Chem. Phys. Lett.* **385** 449
- [7] Lifshitz C 2000 *Int. J. Mass Spectrom* **198** 1
- [8] Climen B ,Concina B ,Lebeault M A ,Lépine F ,Baguenard B ,Bordas C 2007 *Chem. Phys. Lett.* **437** 17
- [9] Gaber H ,Hiss R ,Busmann H G ,Herel I V 1992 *Z. Phys. D* **24** 307
- [10] Franklin J L ,Peter M H ,Whan D A 1967 *J. Chem. Phys.* **47** 3148
- [11] Muigg D ,Denifl G ,Scheier P ,Becker K ,Märk T D 1997 *J. Chem. Phys.* **108** 963
- [12] Campbell E E B ,Hansen K ,Hoffmann K ,Korn G ,Tchaplyguine M ,Wittmann M ,Hertel I V 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 2128
- [13] Hansen K ,Hoffmann K ,Campbell E E B 2003 *J. Chem. Phys.* **119** 2513
- [14] Andersen J U ,Ebonderup ,Hansen K 2002 *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **35** R1
- [15] Lépine F ,Bordas C 2004 *Phys. Rev. A* **69** 053201
- [16] Sergio D T ,Goar S ,Manuel A ,Martín F 2006 *Int. J. Mass Spectrom* **252** 133
- [17] Openov L A ,Podlivaev A I 2006 *JETP Lett.* **84** 68
- [18] Skumanich A 1991 *Chem. Phys. Lett.* **182** 486
- [19] Lassesson A ,Gromov A ,Mehlig K ,Taninaka A ,Shinohara H ,Campbell E E B 2003 *J. Chem. Phys.* **119** 5591
- [20] Tsipinyuk B ,Budrevich A ,Grinberg M ,Kolodney E 1997 *J. Chem. Phys.* **106** 2449
- [21] Mehlig K ,Hansen K ,Heden M ,Lassesson A ,Bulgakov A V ,Campbell E E B 2004 *J. Chem. Phys.* **120** 4281

Formation mechanisms of small fragment ions in nanosecond laser induced fragmentation of C_{60}^*

Qian Dong-Bin^{1)†} Ma Xin-Wen¹⁾ Zhang Da-Cheng^{1)‡} Zu Kai-Ling¹⁾ Liu Hui-Ping¹⁾ Wen Wei-Qiang^{1)‡}

¹⁾ *Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China*

²⁾ *Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*

(Received 29 November 2007; revised manuscript received 31 January 2008)

Abstract

The time of flight mass spectrometric technique was used to determine the initial mean kinetic energy of small fragment ions C_n^+ ($n \leq 11$) produced from C_{60} excited by 532 nm nanosecond laser pulses. The measured kinetic energy shows little variation with the fragment mass and the laser fluence in a broad range. Based on the assumption that C_{30}^+ is produced predominantly by a single electron emission followed by successive C_2 evaporation from hot C_{60} in the nanosecond laser field, the formation of small fragments is interpreted as the complete breakup of the unstable C_{30}^+ cage structure. The interpretation is consistent with the previously observed results.

Keywords : TOFMS, small fragment ion, cage structure breakup, initial kinetic energy

PACC : 6148

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10605034) and the State Key Program of National Science of China (Grant No. 10434100).

† E-mail : qiandb@impcas.ac.cn