

中能  $\text{Ne}^{4+}$  离子诱导的羰基硫分子三体碎裂动力学分析

申丽丽 闫顺成 马新文 朱小龙 张少锋 冯文天 张鹏举 郭大龙 高永 海帮 张敏 赵冬梅

Three-body fragmentation dynamics of  $\text{OCS}^{3+}$  induced by intermediate energy  $\text{Ne}^{4+}$  ion impact

Shen Li-Li Yan Shun-Cheng Ma Xin-Wen Zhu Xiao-Long Zhang Shao-Feng Feng Wen-Tian  
Zhang Peng-Ju Guo Da-Long Gao Yong Hai Bang Zhang Min Zhao Dong-Mei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 043401 (2018) DOI: 10.7498/aps.20172163

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.20172163>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I4>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[带有三体相互作用的  \$S=1\$  自旋链中的保真率和纠缠熵](#)

Fidelity susceptibility and entanglement entropy in  $S=1$  quantum spin chain with three-site interactions

物理学报.2018, 67(2): 020302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172087>

[一种生成质量最优路径纠缠微波信号的压缩参量选择方法](#)

An approach to selecting the optimal squeezed parameter for generating path entangled microwave signal

物理学报.2017, 66(23): 230302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.230302>

[一维自旋 1 键交替 XXZ 链中的量子纠缠和临界指数](#)

Quantum entanglement and critical exponents in one-dimensional spin-1 bond-alternating XXZ chains

物理学报.2017, 66(12): 120301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.120301>

[基于量子图态的量子秘密共享](#)

Quantum secret sharing with quantum graph states

物理学报.2016, 65(16): 160301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.160301>

[量子 BB84 协议在联合旋转噪声信道上的安全性分析](#)

Security analysis of BB84 protocol in the collective-rotation noise channel

物理学报.2016, 65(3): 030302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.030302>

# 中能 $\text{Ne}^{4+}$ 离子诱导的羰基硫分子三体碎裂动力学分析\*

申丽丽<sup>1)2)</sup> 闫顺成<sup>1)†</sup> 马新文<sup>1)‡</sup> 朱小龙<sup>1)</sup> 张少锋<sup>1)</sup> 冯文天<sup>1)</sup>  
张鹏举<sup>1)</sup> 郭大龙<sup>1)</sup> 高永<sup>1)</sup> 海帮<sup>1)2)</sup> 张敏<sup>1)2)</sup> 赵冬梅<sup>1)</sup>

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)

(2017年9月30日收到; 2017年12月11日收到修改稿)

利用反应显微成像谱仪开展了56 keV/u的 $\text{Ne}^{4+}$ 离子与羰基硫(OCS)气体的交叉碰撞实验, 研究了 $\text{Ne}^{4+}$ 离子诱导的 $\text{OCS}^{3+}$ 的碎裂动力学. 通过符合探测三个末态离子, 重构了 $\text{OCS}^{3+}$ 离子三体碎裂对应的牛顿图和Dalitz图, 并明确区分了直接解离和次序解离两种碎裂过程. 重构了 $\text{OCS}^{3+}$ 离子解离过程的动能释放(KER)分布, 发现其峰值在25 eV处, 同时在18 eV处有肩膀结构的存在, 其中25 eV左右的峰来源于直接解离过程, 18 eV处的肩膀结构来源于次序解离和非次序解离两种过程. 通过分析不同能量和不同电荷态下重离子碰撞实验所得到的KER谱, 发现微扰强度不是影响态布居的主要因素.  $\text{OCS}^{3+}$ 次序解离中的第二步KER的峰值在6.2 eV处. 结合以往的实验结果, 我们得出结论: 多电离态的分子发生次序碎裂的根源在于二价离子碎片存在亚稳态, 而重构得到的第二步KER可以反映亚稳态离子的电子态信息.

**关键词:** 羰基硫, 碎裂机制, 次序解离, 动能释放

**PACS:** 34.50.Gb, 34.50.Fa, 34.70.+e, 34.80.Gs

**DOI:** 10.7498/aps.67.20172163

## 1 引言

利用快离子或者快电子作为炮弹轰击分子, 可以在 $10^{-17}$ — $10^{-18}$  s的短时间内, 使分子垂直跃迁到多电离态, 此时分子间核-核的排斥力远大于化学键形成的吸引力, 导致多电离态的分子发生库仑爆炸, 末态生成多个碎片离子和电子. 对于这一碰撞过程的研究, 不但可以用来还原库仑爆炸瞬间分子的结构, 而且可以研究分子碎裂动力学, 即寻找化学键断裂的影响参数, 通过控制这些参数, 达到控制化学反应的目的. 另外, 分子的多电离解离过程广泛存在于等离子体物理、行星大气化学等领域, 对解释相关现象有重要的应用价值<sup>[1]</sup>.

作为小分子碎裂动力学的研究标本,  $\text{CO}_2$ 分子的多电离解离过程研究已经获得了广泛的关注<sup>[2]</sup>. 首先, 在高电荷态离子碰撞实验中发现 $\text{CO}_2$ 分子的解离机制与沉积在分子离子中的能量有关<sup>[1]</sup>: 沉积能量高时, 两个CO键趋向于同时碎裂; 而沉积能量低时, 两个CO键趋向于次序碎裂. 即第一步解离导致一个CO键先断裂, 产生亚稳态的二价离子 $\text{CO}^{2+}$ 和一个 $\text{O}^+$ 离子, 经过若干转动周期后,  $\text{CO}^{2+}$ 在第二步碎裂成 $\text{C}^+$ 和 $\text{O}^+$ 离子. Singh和Lodha<sup>[3]</sup>利用同步辐射光电离 $\text{CO}_2$ 分子, 获得了 $\text{CO}_2^{3+}$ 离子经由 $\text{CO}_2^{3+} \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{O}^+$ 通道解离所释放的总能量. Wu等<sup>[4]</sup>利用强激光场研究了 $\text{CO}_2^{3+}$ 的直接解离过程和次序解离过程. Wang等<sup>[5]</sup>利用500 eV的电子碰撞 $\text{CO}_2$ 分子, 通过

\* 国家重点研发计划“大科学装置”重点专项(批准号: 2017YFA0402300)和国家自然科学基金(批准号: U1532129, 11304325)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yanshuncheng@impcas.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: x.ma@impcas.ac.cn

分析 Dalitz 图区分了  $\text{CO}_2^{3+}$  离子的直接解离和次序解离过程, 并发现  $\text{CO}_2^{3+}$  离子次序解离过程来源于基态 ( $^2\Pi$ ) 和低激发态 ( $^4\Pi^2\Sigma^+$ ). Yan 等<sup>[6]</sup> 利用 56 keV/u 的  $\text{Ne}^{4+}$  离子碰撞  $\text{CO}_2$  分子, 测量到次序解离过程中  $\text{CO}^{2+}$  亚稳态分子解离释放的能量.

在  $\text{CO}_2$  分子研究成果的带动下, 人们开展了多种分子和团簇碎裂的研究工作<sup>[7-22]</sup>, 其中就包括羰基硫分子 (OCS). 与  $\text{CO}_2$  分子的对称型结构不同, 由 CO 键和 CS 键构成的 OCS 具有非对称结构, 人们可以研究这种非对称性所引起的 CS 键断裂和 CO 键断裂在碰撞过程中的竞争. 同时, OCS 分子存在于地球表面大气、火山喷发气体、南极冰芯以及星际介质中, 不仅是早期地球大气的重要组分, 而且具有催化生物分子形成的作用, 在生命起源过程中具有积极的影响<sup>[7]</sup>. 研究 OCS 分子的多电离解离过程, 对深入理解 OCS 分子本身的性质以及 OCS 分子与生物分子的相互作用过程有推动作用.

但是, 对 OCS 碎裂过程的研究到目前为止还很少. 首先, Wales 等<sup>[8]</sup> 开展了高电荷态离子  $\text{Ar}^{8+}$  和  $\text{Ar}^{4+}$  离子的碰撞实验, 区分了直接解离和次序解离过程. 其次, Ramadhan 等<sup>[9,10]</sup> 利用 90—173 eV 的 X 射线照射 OCS 气体分子, 测量得到了  $\text{OCS}^{2+}$ ,  $\text{OCS}^{3+}$ ,  $\text{OCS}^{4+}$  离子碎裂所释放的总动能, 并且利用 Dalitz 图分析了直接解离和次序解离过程随入射光能量的变化, 发现解离机制与能量沉积有关. Wales 等<sup>[11]</sup> 利用强飞秒激光脉冲照射 OCS 气体分子, 发现  $\text{OCS}^{3+}$  三体解离的主要机制随脉冲长度的变化而变化. Shen 等<sup>[12]</sup> 开展了电子碰撞 OCS 三体碎裂实验, 结果表明只有  $\text{OCS}^{2+} \rightarrow \text{O} + \text{C}^+ + \text{S}^+$  和  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  离子的三体解离过程包含次序解离通道, 其他的解离通道都以直接解离机制为主. 但是, 对于  $\text{OCS}^{3+}$  离子次序解离中分步总动能释放 (KER) 的还原工作, 至今还没有相关文献报道. 鉴于此, 我们对  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{CO}^{2+} + \text{S}^+ \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  次序碎裂中的 KER 和第二步的 KER 进行还原和深入讨论, 并由此得到 OCS 次序碎裂机制的根源.

本文利用中国科学院近代物理所的反应显微成像谱仪, 开展了 56 keV/u 的  $\text{Ne}^{4+}$  离子与 OCS 气体的交叉碰撞实验, 通过符合探测三个末态离子, 并借助于牛顿图和 Dalitz 图, 明确区分了直接解离过程和次序解离过程. 对于  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{CO}^{2+} + \text{S}^+ \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  次序解离过

程, 我们重构了第二步碎裂的 KER 谱, 并给出了相应的分子离子态信息.

## 2 实验方法

本实验是在中国科学院近代物理研究所的 320 kV 高电荷态离子综合研究平台<sup>[23]</sup> 二号终端的反应显微成像谱仪上开展的. 电子回旋共振离子源产生的 Ne 离子束经由分析磁铁选择电荷态、加速管加速、四级铁聚焦以及狭缝准直后, 形成束斑直径小于 0.5 mm 且平行度好的 56 keV/u 的  $\text{Ne}^{4+}$  离子束. 该束流进入反应显微成像谱仪后, 与超音速冷靶系统产生的 OCS 气体进行碰撞. 反应产生的多个离子碎片在飞行时间谱仪提供的 220 V/cm 均匀电场作用下, 飞向反冲离子探测器. 反冲离子探测器给出离子的飞行时间信号和二维位置信号; 碰撞反应后的散射离子, 经由平行板电极进行电荷态分析后, 被散射探测器探测, 并给出对应的时间信号和二维位置信号; 未反应的离子则被法拉第筒收集. 在离线数据分析中, 通过飞行时间信息和位置信息, 可以重构所有末态离子的三维动量.

OCS 气体发生多电离反应后会产生多个碎片离子, 而每个离子具有特定的荷质比, 在引出电场的作用下, 会对应特定的飞行时间 (time of flight, TOF). 通过对 TOF 谱上离子飞行时间信息的分析, 就可以确定相应的离子种类. 图 1 展示的是反冲离子的 TOF 二维谱图, 其中图 1(a) 是第一击离子和第二击离子的 TOF 符合谱, 图 1(b) 是第二击离子和第三击离子的 TOF 符合谱, 在两图中分别标定了不同飞行时间所代表的离子种类. 图上狭长的细线代表二体碎裂过程, 椭圆及方形代表三体碎裂过程. 在图 1(a) 中选择  $\text{C}^+/\text{O}^+$  离子的符合岛 (红色椭圆区域), 在图 1(b) 中选择对应的  $\text{O}^+/\text{S}^+$  的符合岛 (红色椭圆区域) 后, 就可以确定  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  通道.

根据动量守恒原理, 在忽略  $\text{OCS}^{3+}$  离子的初始动量的情况下, 末态离子  $\text{C}^+$ ,  $\text{O}^+$  和  $\text{S}^+$  的动量为零, 那么三个离子在探测器上的位置是关联的. 即如果三个离子来自于同一次碎裂反应, 那么对应的质心会落到探测器上特定的位置, 否则就会弥漫在整个探测器上. 我们重构了质心在探测器上的位置, 在选择相应区域后, 成功扣除了偶然符合事件的影响. 但是, 反冲离子同位素的存在, 会造成单

个离子的飞行时间谱存在多峰结构, 进一步造成三个离子在 TOF 方向的动量和存在多峰结构. 因此, 在离线数据处理过程中, 我们在 TOF 方向加上了动量守恒条件, 选择丰度最高的主峰后, 就可以排除其他同位素的影响.

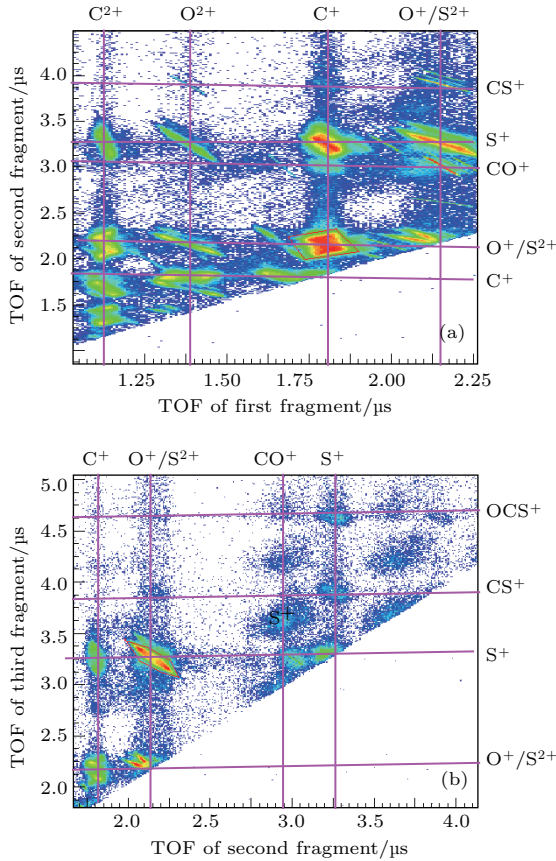


图1 反冲离子的飞行时间二维谱图 (a) 反冲离子的一击和二击二维符合图; (b) 反冲离子的二击和三击二维符合图  
Fig. 1. Coincidence time-of-flight (TOF) map of ions from fragmentation of  $OCS^{3+}$ : (a) The TOF of first ions vs that of second ones; (b) the TOF of the second ions vs that of third ones.

### 3 结果与讨论

实验中的 56 keV/u 的  $Ne^{4+}$  离子与 OCS 靶分子的相互作用时间在阿秒 ( $10^{-18}$  s) 量级, 在这个时间尺度内, 原子核的运动可以忽略, 因而对应的是弗兰克-康登垂直跃迁. 随着炮弹离子沉积在分子中的能量不同, 分子会垂直跃迁到不同的  $OCS^{3+}$  分子离子态, 而这些分子离子不稳定, 会接着发生二体或三体碎裂. 由于不同的分子态离子所处的势能曲线的形状不同以及  $CO^{2+}$  和  $CS^{2+}$  亚稳态离子的存在, 最终会导致  $OCS^{3+}$  在碎裂的同时伴随着其分子结构的演变. 此时, 我们可以通过牛顿图和

Dalitz 图来分析  $OCS^{3+}$  碎裂中存在的不同的解离机制.

首先在图 2(a) 中给出了  $OCS^{3+} \rightarrow C^+ + O^+ + S^+$  碎裂过程所对应的 Dalitz 图, 用以展示末态  $C^+$ ,  $O^+$ ,  $S^+$  离子之间的能量分配关系. 横坐标定义为  $(E_{O^+} - E_{S^+})/\sqrt{3}E_K$ , 纵坐标定义为  $E_{C^+}/E_K - 1/3$ ; 其中  $E_{O^+}$ ,  $E_{S^+}$ ,  $E_{C^+}$  分别为  $O^+$ ,  $S^+$ ,  $C^+$  离子的动能; 而  $E_K$  为三个末态离子的动能和. 可以很明显的发现, 图 2(a) 由红色亮点区域(椭圆框) 和 X 形双翼结构两部分构成. 其中前者对应 CO 键、CS 键同时断裂的直接解离过程, 这是因为双键同时断裂会造成  $S^+$  和  $O^+$  离子近似背对背出射且具有较大的动量, 导致  $C^+$  获得的能量比较小. 而 X 形结构的左翼代表 CS 先断裂, CO 后断裂的次序解离过程, 即 CS 键先断裂后形成  $CO^{2+}$  亚稳态离子和  $S^+$ , 随后  $CO^{2+}$  离子经过若干转动周期后再解离成  $C^+$  和  $O^+$  离子. 在  $OCS^{3+}$  第一步的解离过程中由于  $CO^{2+}$  亚稳态离子的存在, 使得  $S^+$  的动能与系统总动能的比值是一个常数, 由能量守恒定律得到,  $C^+$  和  $O^+$  的能量和占系统总动能的比值也是一个常数; 但是在第二步的解离过程中,  $C^+$  和  $O^+$  之间的能量分配是不固定的, 所以在 Dalitz 图上显示为斜线结构. 同理, X 形结构的右翼所在的区域代表  $OCS^{3+}$  离子先解离成  $CS^{2+}$  亚稳态离子和  $O^+$ , 随后  $CS^{2+}$  亚稳态离子转动一段时间再解离成  $C^+$  和  $S^+$  的次序解离过程.

对于上述直接解离过程和次序解离过程, 同样可以用牛顿图直观地展现出来. 如图 2(b) 所示, 在牛顿图中将  $S^+$  的动量大小定义为 1, 方向与 X 轴方向平行, 将  $C^+$  和  $O^+$  的动量归一化到  $S^+$  的动量值之后, 分别绘于上半平面和下半平面. 显然, 牛顿图由红色岛状结构和圆环结构组成, 其中岛状结构对应直接解离过程, 而圆环结构则生动再现了  $OCS^{3+}$  离子的次序解离过程. 因为, 次序解离的第一步碎裂产生了  $S^+$  和  $CO^{2+}$  离子,  $CO^{2+}$  离子以特定的动量出射, 第二步碎裂中由于  $CO^{2+}$  离子处于转动态而发生转动. 但是根据动量守恒, 无论  $CO^{2+}$  转动多少角度,  $C^+$  和  $O^+$  的动量和始终为一常数. 因此,  $C^+$  和  $O^+$  会分布在半径固定的圆环结构上. 按照同样的方法, 定义  $O^+$  的动量大小为 1, 重构  $C^+$  和  $S^+$  的动量后, 同样发现了圆形结构, 说明我们的实验明确区分了直接解离过程和次序解离过程.

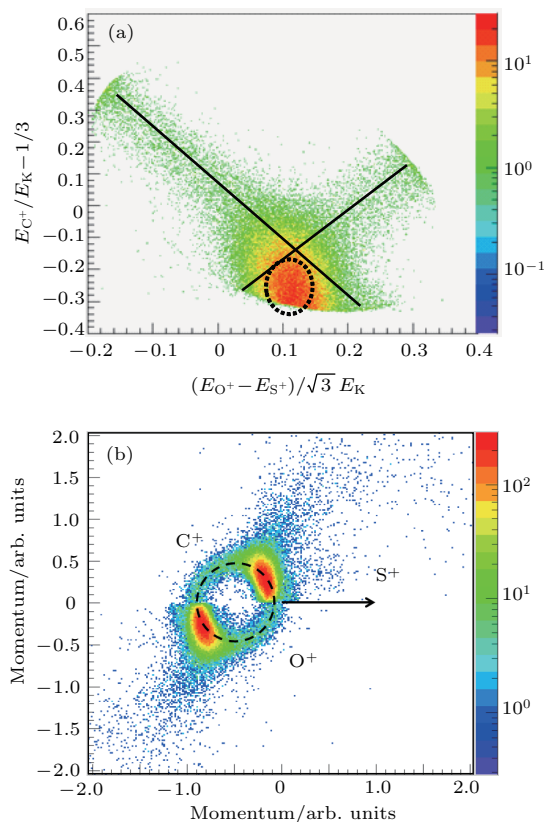


图2  $OCS^{3+}$  三体碎裂的Dalitz图和牛顿图 (a)  $OCS^{3+}$  三体碎裂的Dalitz图, Dalitz图上不同区域代表不同的解离通道, X形区域代表次序解离过程, 椭圆红色区域代表直接解离过程; (b)  $OCS^{3+}$  三体碎裂的牛顿图的圆环结构代表次序解离过程, 对称的两个红色区域代表直接解离过程

Fig. 2. Dalitz plot and Newton diagram for three-body fragmentation of  $OCS^{3+}$ : (a) Momentum correlation features for all events from three-body fragmentation of  $OCS^{3+}$  in the Dalitz plot, the different areas labeled in the Dalitz plot correspond to different dissociation pathways, red oval area: nonsequential dissociation, X-shaped area is sequential dissociation; (b) Newton diagram for all events from three body fragmentation of  $OCS^{3+}$ , the dashed circle marks the sequential dissociation, while the two red islands represent the non-sequential dissociation.

布居到不同电子态的  $OCS^{3+}$  母体离子碎裂时所释放的动能不同, 导致末态离子碎片获得KER不同, 因而通过分析KER, 可以得到  $OCS^{3+}$  初态离子所布居的态信息. 首先, 我们重构了  $OCS^{3+}$  解离过程的KER (不区分直接解离和次序解离过程), 如图3(a)曲线(1)所示, 实验得到的总KER峰值在25 eV左右, 同时在18 eV处有肩膀结构存在. 这种现象说明我们的实验同时制备了高激发态和低激发态的  $OCS^{3+}$  母体离子. 为了揭示该KER峰值结构隐含的动力学信息, 在Dalitz图上分别选取

$OCS^{3+}$  三体碎裂的直接解离和次序解离过程, 来重构它们对应的总KER. 如图3(a)曲线(2)和曲线(3)所示: 直接解离过程的KER峰值在26 eV, 同时在18 eV处有肩膀结构出现, 而次序解离过程的KER峰值在18 eV. 这一结果说明, 低激发态的母体离子  $OCS^{3+}$  可以发生次序解离和非次序解离, 而高激发态的离子趋向于发生非次序解离.

对于图3(a)中的曲线(1), 25 eV处主峰的形状、峰位与Jana等<sup>[13]</sup>利用5 MeV/u的  $Si^{12+}$  离子的研究结果24 eV一致. 而且与Wales等<sup>[8]</sup>利用15 keV·q<sup>-1</sup>的  $Ar^{4+}$  和  $Ar^{8+}$  作为炮弹撞击OCS分子的结果一致. 虽然在上述不同实验中, 微扰强度从  $(q/v, q$  为入射离子电荷态,  $v$  为其速度) 从26.7变化到0.85, 但是KER峰位始终没有显著变化, 由此我们认为, 微扰强度不是重离子碰撞中影响态布居的主要因素.

对于曲线(1)中18 eV处的肩膀结构, 其形状、峰位与Wales等<sup>[8]</sup>低能  $Ar^{8+}$  的实验结果类似, 而且与Wales等<sup>[11]</sup>利用强场激光电离OCS的结果也一致. 这是一个比较新颖的发现, 因为在强场激光实验中主要发生的是激光场调制的隧穿电离, 由此产生的  $OCS^{3+}$  多处在电子基态或者低激发态. 与之类似, 在低能高电荷态离子碰撞实验中, 由于碰撞参数大, 发生的多为外层电子俘获过程, 由此得到的  $OCS^{3+}$  也多处于电子基态, 因此在上述两个实验中发现18 eV的峰并不奇怪. 但是对于本实验中的中能电荷态离子而言, 碰撞参数相对较小, 因此产生的激发态母体离子的比重会增加, 这就导致在KER分布中高能峰相对比例会增加, 而低能峰会变得不明显. 但是在本实验中却能发现明显的低能峰所形成的肩膀结构. 对于这一结构, 还需要进一步的研究.

选择次序解离通道后, 我们重构了  $OCS^{3+} \rightarrow CO^{2+} + S^+ \rightarrow C^+ + O^+ + S^+$  反应过程中第二步碎裂的KER, 用以解析亚稳态  $CO^{2+}$  离子对应的态信息. 根据动量守恒, 第二步碎裂中释放的KER可以表示为:  $E_{O^+} + E_{C^+} - E_{S^+} \times \frac{32}{28}$ , 其中  $E_{C^+}$  和  $E_{O^+}$  是  $C^+$  和  $O^+$  离子的末态动能. 相应的KER分布对应图3(b)中的红色曲线.

我们的结果表明KER峰值在6.2 eV处, 这与Ding等<sup>[14]</sup>得到的  $CO^{2+}$  亚稳态解离过程释放的能量完全相同, 都来自于  $X^3\Pi, ^1\Sigma^+$  和  $^1\Pi$  态. 另外, 在分析  $OCS^{4+}$  三体碎裂的数据时也发现了次序解

离通道, 并重构了  $\text{CO}^{2+}$  亚稳态离子在第二步碎裂中的 KER 分布, 发现其峰值在 8.4 eV 左右, 可能来自于  $^3\Sigma^+$  态<sup>[15]</sup>. 这些结果都与 Yan 等<sup>[6]</sup> 利用  $\text{Ne}^{4+}$  离子碰撞  $\text{CO}_2$  气体分子得到的结果一致. 因此我们认为, 多电离态的分子及团簇发生次序碎裂的根源, 在于二价离子碎片存在亚稳态. 例如

$(\text{CO})^{2+}$  离子有亚稳态, 导致含有 CO 键的分子或者团簇被多电离解离时都会发生次序解离过程. 而由此所得到的第二步 KER 分布也都类似, 都反映了  $(\text{CO})^{2+}$  离子亚稳态的信息.

### 4 结 论

本文利用中国科学院近代物理所的反应显微成像谱仪, 开展了 56 keV/u 的  $\text{Ne}^{4+}$  离子与 OCS 气体的交叉碰撞电离解离实验, 通过符合测量所有末态离子的三维动量, 重构了  $\text{OCS}^{3+}$  离子三体碎裂对应的牛顿图和 Dalitz 图, 明确区分了  $\text{OCS}^{3+}$  离子的三体碎裂中的直接解离过程、CO 键先断裂的次序解离过程和 CS 键先断裂的次序解离过程. 实验发现,  $\text{OCS}^{3+}$  离子三体碎裂释放的总能量峰值在 25 eV, 这与其他重离子碰撞实验的结果基本一致, 从而表明微扰强度不是重离子碰撞中影响态布居的主要因素. 其次, 在 KER 上的 18 eV 处有肩膀结构存在, 与强场激光实验、低能高电荷态离子实验结果一致, 研究表明该肩膀结构同时来源于次序解离和非次序解离过程.

对于  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{CO}^{2+} + \text{S}^+ \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  的次序解离过程, 我们重构了第二步解离过程的 KER 分布, 发现其峰值在 6.2 eV 处, 这与  $\text{CO}^{2+}$  的  $X^3\Pi$ ,  $^1\Sigma^+$  和  $^1\Pi$  亚稳态对应的 KER 一致. 即  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{CO}^{2+} + \text{S}^+ \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  的次序解离过程的存在, 是因为  $(\text{CO})^{2+}$  离子碎片存在亚稳态. 因此我们得到结论:  $\text{OCS}^{3+}$  离子发生次序碎裂的根源, 在于  $(\text{CS})^{2+}$  和  $(\text{CO})^{2+}$  离子碎片存在亚稳态. 也就是说, 多电离态的分子及团簇发生次序碎裂的根源, 在于二价离子碎片存在亚稳态.

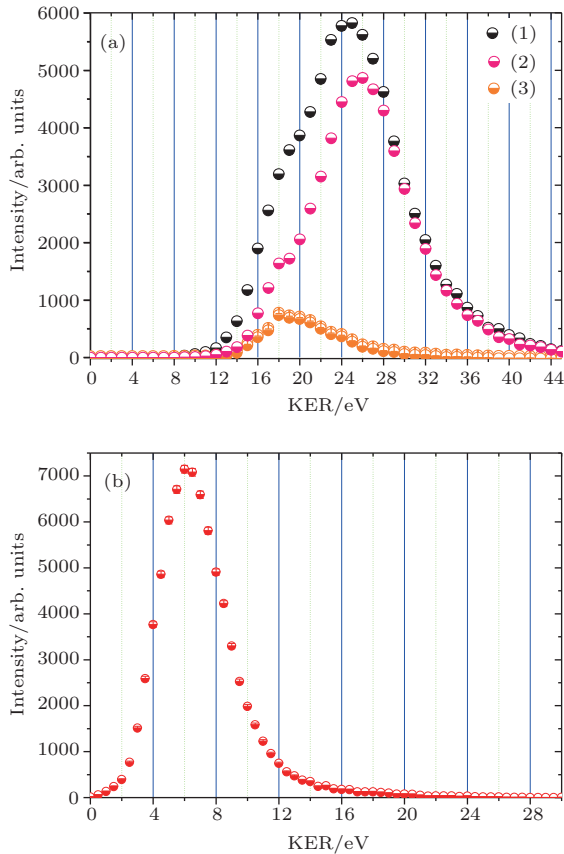


图3  $\text{OCS}^{3+}$  三体碎裂过程释放的能量分布 (a)  $\text{OCS}^{3+}$  三体碎裂过程释放的总能量, 其中曲线 (1) 代表  $\text{OCS}^{3+}$  三体碎裂过程释放的总能量 (包括直接解离和次序解离过程), 曲线 (2) 代表直接解离过程  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  释放的总能量, 曲线 (3) 代表次序解离过程  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{CS}^{2+} + \text{O}^+ \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  和  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{CO}^{2+} + \text{S}^+ \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  释放的总能量; (b)  $\text{OCS}^{3+}$  次序解离过程  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{CO}^{2+} + \text{S}^+ \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  中第二步解离过程释放的能量

Fig. 3. KER distributions for three-body dissociation of  $\text{OCS}^{3+}$ : (a) The total KER distributions for three-body dissociation of  $\text{OCS}^{3+}$ , curve (1) is all events, not distinguishing the nonsequential dissociation from sequential dissociation processes, curve (2) is the events corresponding to nonsequential dissociation process ( $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$ ), curve (3) is the events corresponding to sequential dissociation processes ( $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{CS}^{2+} + \text{O}^+ \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$  and  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{CO}^{2+} + \text{S}^+ \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$ ); (b) the KER distributions corresponding to the second step of the sequential dissociation  $\text{OCS}^{3+} \rightarrow \text{CO}^{2+} + \text{S}^+ \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + \text{S}^+$ .

### 参考文献

[1] Neumann N, Hant D, Schmidt L Ph H, Titze J, Jahnke T, Czasch A, Schöffler M S, Kreidi K, Jagutzki O, Schmidt-Böcking H, Döner R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 103201  
 [2] Wang E, Shan X, Shen Z J, Li X Y, Gong M M, Tang Y G, Chen X J 2015 *Phys. Rev. A* **92** 062713  
 [3] Singh R K, Lodha G S 2006 *Phys. Rev. A* **74** 022708  
 [4] Wu C, Wu C Y, Song D, Su H M, Yang Y D, Wu Z F, Liu X R, Liu H, Li M, Deng Y K, Liu Y Q, Peng L Y, Jiang H B, Gong Q H 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 103601  
 [5] Wang E, Shan X, Shen Z J, Gong M M, Tang Y G, Pan Y, Lau K C, Chen X J 2015 *Phys. Rev. A* **91** 052711

- [6] Yan S, Zhu X L, Zhang P, Ma X, Feng W T, Gao Y, Xu S, Zhao Q S, Zhang S F, Guo D L, Zhao D M, Zhang R T, Huang Z K, Wang H B, Zhang X J 2016 *Phys. Rev. A* **94** 032708
- [7] Jana M R, Ray B, Ghosh P N, Safvan C P 2010 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **43** 215207
- [8] Wales B, Motojima T, Matsumoto J, Long Z J, Liu W K, Shiromaru H, Sanderson J 2012 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **45** 045205
- [9] Ramadhan A, Wales B, Gauthier I, MacDonald M, Zuin L, Sanderson J 2015 *J. Phys.: Conf. Ser.* **635** 112137
- [10] Ramadhan A, Wales B, Karimi R, Gauthier I, MacDonald M, Zuin L, Sanderson J 2016 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49** 215602
- [11] Wales B, Bisson É, Karimi R, Beaulieu S, Ramadhan A, Giguère M, Long Z J, Liu W K, Kieffer J C, Légaré F, Sanderson J 2014 *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* **195** 332
- [12] Shen Z J, Wang E, Gong M M, Shan X, Chen X J 2016 *J. Chem. Phys.* **145** 234303
- [13] Jana M R, Ghosh P N, Ray B, Bapat B, Kushawaha R K, Saha K, Prajapati I A, Safvan C P 2014 *Eur. Phys. J. D* **68** 250
- [14] Ding X Y, Haertelt M, Schlauderer S, Schuurman M S, Naumov A Y, Villeneuve D M, McKellar A R W, Corkum P B, Staudte A 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 153001
- [15] Lundqvist M, Baltzer P, Edvardsson D, Karlsson L, Wannberg B 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 1058
- [16] Wei B, Zhang Y, Wang X, Lu D, Lu G C, Zhang B H, Tang Y J, Hutton R, Zou Y 2014 *J. Chem. Phys.* **140** 124303
- [17] Wang X, Zhang Y, Lu D, Lu G C, Wei B, Zhang B H, Tang Y J, Hutton R, Zou Y 2014 *Phys. Rev. A* **90** 062705
- [18] Guillemin R, Decleva P, Stener M, Bomme C, Marin T, Journel L, Marchenko T, Kushawaha R K, Jänkälä K, Trcera N, Bowen K P, Lindle D W, Piancastelli M N, Simon M 2015 *Nat. Commun.* **6** 7166
- [19] Wu J, Kunitski M, Schmidt L Ph H, Jahnke T, Dörner R 2012 *J. Chem. Phys.* **137** 104308
- [20] Xu S, Ma X, Ren X, Senftleben A, Pflüger T, Dorn A, Ullrich J 2011 *Phys. Rev. A* **83** 052702
- [21] Karimi R, Bisson É, Wales B, Beaulieu S, Giguère M, Long Z, Liu W K, Kieffer J C, Légaré F, Sanderson J 2013 *J. Chem. Phys.* **138** 204311
- [22] Khan A, Misra D 2016 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49** 055201
- [23] Zhu X L 2006 *Ph. D. Dissertation* (Lanzhou: Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences) (in Chinese) [朱小龙 2006 博士学位论文 (兰州: 中国科学院近代物理研究所)]

# Three-body fragmentation dynamics of $\text{OCS}^{3+}$ induced by intermediate energy $\text{Ne}^{4+}$ ion impact\*

Shen Li-Li<sup>1)2)</sup> Yan Shun-Cheng<sup>1)†</sup> Ma Xin-Wen<sup>1)‡</sup> Zhu Xiao-Long<sup>1)</sup> Zhang Shao-Feng<sup>1)</sup>  
 Feng Wen-Tian<sup>1)</sup> Zhang Peng-Ju<sup>1)</sup> Guo Da-Long<sup>1)</sup> Gao Yong<sup>1)</sup> Hai Bang<sup>1)2)</sup>  
 Zhang Min<sup>1)2)</sup> Zhao Dong-Mei<sup>1)</sup>

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

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

( Received 30 September 2017; revised manuscript received 11 December 2017 )

## Abstract

The fragmentation experiment of  $\text{OCS}^{3+}$  induced by 56 keV/u  $\text{Ne}^{4+}$  ions is performed using reaction microscope, and the corresponding dissociation dynamics is investigated. By detecting the three fragment ions in coincidence, the three-dimensional (3D) momenta of all ions and the corresponding kinetic energy release (KER) distributions are reconstructed. It is found that a peak maximum of the KER distribution is located at about 25 eV, and a shoulder structure appears around 18 eV. This result is consistent with previous heavy ion experimental results with different perturbation strengths. Taking into account that the KER distribution is related to the initial state population of the  $\text{OCS}^{3+}$  parent ions, it can be concluded that the perturbation strength is not a decisive parameter leading to the initial state population of  $\text{OCS}^{3+}$  ions. We also reconstruct the Newton diagram and Dalitz plot for the three-body fragmentation of  $\text{OCS}^{3+}$  ion, from which the sequential dissociation is distinguished from nonsequential dissociation clearly. By analyzing the kinetic energy of ions from each fragmentation process, we find that the KER peak at 25 eV corresponds to nonsequential dissociation process, but the shoulder at 18 eV arises from both sequential and nonsequential dissociation processes. This phenomenon suggests that the parent  $\text{OCS}^{3+}$  ions in ground state and low excitation states tend to fragment through sequential dissociation, while those in high excitation states tend to fragment through nonsequential dissociation. Furthermore, we reconstruct the KER distributions in the second fragmentation step of sequential dissociation, whose peak maximum is at 6.2 eV, corresponding to  $X^3\Pi$ ,  $^1\Sigma^+$  and  $^1\Pi$  metastable states of  $\text{CO}^{2+}$  ion. A similar KER distribution is obtained for the second fragmentation step of the  $\text{OCS}^{4+}$  ion. By comparing our experimental results with previous ones, we conclude that the origin of sequential dissociation process is the existence of metastable state, and the reconstructed KER in the second step reflects the initial state information about the metastable state.

**Keywords:** carbonyl sulphide, dissociation mechanism, sequential dissociation, kinetic energy release

**PACS:** 34.50.Gb, 34.50.Fa, 34.70.+e, 34.80.Gs

**DOI:** 10.7498/aps.67.20172163

\* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2017YFA0402300) and the National Nature Science Foundation of China (Grant Nos. U1532129, 11304325).

† Corresponding author. E-mail: [yanshuncheng@impcas.ac.cn](mailto:yanshuncheng@impcas.ac.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [x.ma@impcas.ac.cn](mailto:x.ma@impcas.ac.cn)