

专题: 超快原子分子谱学仪器与测量方法

上海软 X 射线自由电子激光上的复合速度成像谱仪*

廖剑峰¹⁾ 封云飞¹⁾ 吴可非¹⁾ 陶建飞¹⁾ 朱文韬¹⁾
黄健业¹⁾ 丁伯承^{2)†} 刘小井^{1)‡}

1) (上海科技大学, 大科学中心, 上海 201210)

2) (苏州实验室, 苏州 215128)

(2025 年 8 月 29 日收到; 2025 年 11 月 7 日收到修改稿)

时间和角度分辨的光电离实验能够跟踪原子分子的几何构型和电子态演化, 这需要在自由电子激光中测量电子离子全空间角分布. 本文报道在上海软 X 射线自由电子激光装置上的复合速度成像谱仪的首次实验结果. 在 263.8 eV 下, 用自由电子激光电离 Kr 和 CCl₄ 样品, 通过 Andor 和 TPX3CAM 两台相机分别获得电子动量图像与离子质谱. Kr 的 3p, 3d, 4p 光电子及俄歇电子峰的强度与前人实验符合, 角分布参数 β 与前人计算符合. 同样, CCl₄ 分子 Cl 的 2p 光电子、2p 俄歇电子及价壳层电子的角分布也与已有计算结果符合良好. 采用 TPX3CAM 相机测量了碎片离子的动量分布, 揭示了 CCl₄ 的光解离路径. 结果表明, 复合速度成像谱仪在实验中兼具全立体角收集与高分辨率优势, 为自由电子激光光诱导动力学研究提供了可靠的实验平台.

关键词: 自由电子激光, 速度成像谱仪, 带电粒子角分布

PACS: 32.80.-t, 32.80.Aa, 32.80.Hd, 07.81.+a

DOI: 10.7498/aps.74.20251176

CSTR: 32037.14.aps.74.20251176

1 引言

X 射线自由电子激光 (X-ray free-electron laser, XFEL)^[1] 作为新一代相干光源, 其本质是相对论电子束在周期磁场中受激辐射产生的电磁波. 相较于第三代同步辐射光源, XFEL 的峰值亮度提升 10 个量级, 脉冲宽度可压缩至 200 as^[2]. 在德国 FLASH^[3] 率先实现出光后, 全球相继建成多台 XFEL 装置^[4], 包括美国 LCLS^[5]、日本 SACLA^[6]、意大利 FERMI^[7]、韩国 PAL-FEL^[8]、瑞士 SwissFEL^[9]、欧洲 XFEL^[10], 以及我国自主建设的上海软 X 射线自由电子激光装置 (SXFEL)^[11]. 新一代装置正在建设中, 包括美国的 LCLS-II^[12] 和我国上海硬 X 射线自由电子激

光项目 (SHINE)^[13].

XFEL 可产生 keV 能量、飞秒脉宽的超短 X 射线脉冲, 在单光子电离、多光子电离^[14]、俄歇电子发射^[15] 等过程中会发射动能高达 keV 的光电子, 因此需要具备测量高动能光电子能力的谱仪对实验过程进行探测. 尽管目前国际上存在一些能够测量 1 keV 的电子的装置, 但它们都存在一定的局限性. 角分辨电子飞行时间谱仪^[16] (angular resolved electron time-of-flight spectrometer) 和半球能量分析器^[17] (hemispherical electron energy analyzer) 能够测量 keV 的电子, 并且具有出色的能量分辨率. 然而, 这两种谱仪的高分辨是以牺牲电子收集效率实现的, 其电子收集立体角约 $0.5\% \times 4\pi$; 磁瓶谱仪^[18,19] (magnetic bottle spectrometer) 可以测

* 国家自然科学基金 (批准号: 1574020)、上海市 2022 科技创新行动计划国际科技合作项目 (批准号: 22560780300) 和上海科技大学“双一流”建设基金资助的课题.

† 通信作者. E-mail: dingbc@szlab.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: liuxj@shanghaitech.edu.cn

量能量高达 keV 的电子, 其电子收集立体角高达 $95\% \times 4\pi$, 但是无法提供角分布信息; 冷靶反冲动量成像谱仪^[20] (cold target recoil ion momentum spectrometer, COLTRIMS) 虽然能够全立体角收集电子和离子碎片, 并且可以获得电子和离子的初始三维动量. 然而, COLTRIMS 优势在符合测量每发光脉冲产生的单反应事例. 在超高强度的自由电子激光实验中的高事例数使得 COLTRIMS 的使用很困难. 目前 COLTRIMS 的高动能电子最好分辨是 $8\% @ 125 \text{ eV}$ ^[21].

速度成像谱仪^[22] (velocity-map imaging spectrometer, VMI) 因其全立体角的收集能力成为激光与物质相互作用的理想方案, 而传统 VMI 能够测量的电子能量一般不超过 40 eV^[23]. 为了拓展 VMI 测量的电子能量上限, Skruszewicz 等^[24] 和 Klings 等^[25] 通过厚电极结构设计, 在模拟中分别实现 600 eV 与 1000 eV 电子探测; Schomsa 等^[26] 进一步将模拟上限推至 1200 eV; Ding 等^[27] 和 Feng 等^[28] 依托上海软 X 射线自由电子激光装置自主研发了一台复合速度成像谱仪 (composite velocity map imaging spectrometer, CpVMI). 该仪器可同时测量电子、离子的能量及角度信息, 实验中实现了 510 eV 电子的高分辨测量, 在模拟中最高可实现 keV 电子全角度测量.

本研究展示了 CpVMI 在 SXFEL 中的首次实验结果, 通过 263.8 eV FEL 脉冲诱导 Kr 原子与 CCl_4 分子光致解离, 获取了电子动量谱与离子质谱及动量谱, 验证该谱仪满足 FEL 实验需求, 且已具备稳定运行条件.

2 实验部分

2.1 复合速度成像谱仪

复合速度成像谱仪 (图 1) 是为上海软 X 射线自由电子激光分子动态成像实验站研发的一台实验终端. 在 Simion 模拟中, 该仪器能够同时收集反应产生的 1000 eV 的电子和 20 eV 的离子. 在同步辐射验收实验中^[27], 电子臂独立工作时, CpVMI 在电子动能 510 eV 的情况下, 能量分辨率达到了 1.5%. 此外, 在电子臂测量 100 eV 电子时, CpVMI 可同时探测动能为 5.6 eV 的离子, 并获得了 4% 的离子能量分辨率.

CpVMI 的结构设计已经在文献^[27] 中被详细

讨论过, 此处进行简单的总结. CpVMI 主要包括真空获取系统、气体进样系统、静电透镜系统、磁场屏蔽系统以及数据采集系统五大模块. 实验时, 样品气体从喷口直径为 $100 \mu\text{m}$ 的压电脉冲阀 (ACPV2-100) 绝热膨胀至背景真空 $5 \times 10^{-9} \text{ mbar}$ ($1 \text{ bar} = 10^5 \text{ Pa}$) 的源腔中, 形成超声速气体束流. 该束流通过一个直径为 0.3 mm 的取束器 (skimmer) 与两个直径 1 mm 的不锈钢膜孔后进入背景真空 $2 \times 10^{-10} \text{ mbar}$ 的主腔, 最终由偏心安装的分子泵捕获. 此外, 为了在超声分子束故障或者光太弱时仍然能做实验, CpVMI 配备了一套空心针进样系统. 空心针的外径为 0.3 mm, 内径为 0.1 mm, 材质为不锈钢, 其空间位置可以通过三维移动平台调节.

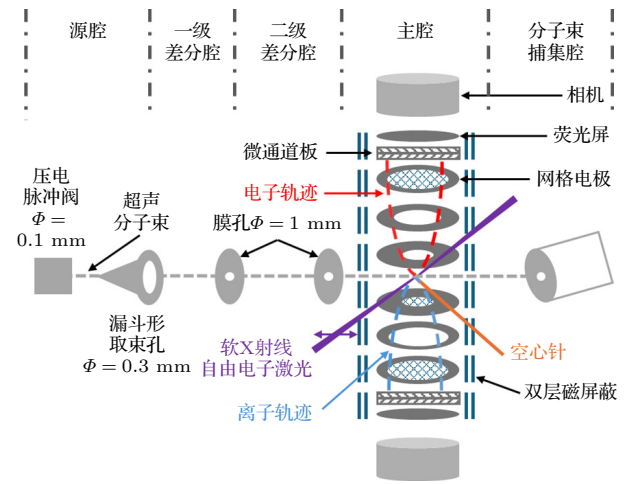


图 1 复合速度成像谱仪示意图, 其中气体样品通过超声分子束或者空心针注入主腔, 气体样品与光相互作用后, 产生的电子和离子在电场的引导下飞行到两端的荧光屏探测器, 利用相机记录实验图像

Fig. 1. Schematic diagram of the velocity imaging spectrometer. The gas sample is injected into the main chamber through an ultrasonic molecular beam or a hollow needle. After interacting with the light, the electrons and ions produced by the gas sample fly to the fluorescent screen detectors at both ends under the guidance of an electric field. The experimental images are recorded by two cameras.

在理想状态下, 超声速气体束流与激光焦点于主腔中心垂直交汇, 电离解离产生的电子与离子碎片在电场的引导下分别朝向上/下探测器运动. 为抑制杂散电磁场对粒子轨迹的干扰, 静电透镜系统外侧装有两个厚度为 1 mm 的磁屏蔽筒. 双层磁屏蔽筒由高磁导率坡莫合金加工而成, 安装完成后, 主腔中心剩磁实测为 8 mG ($1 \text{ G} = 10^{-4} \text{ T}$).

电子和离子探测器均由两片微通道板 (MCP) 和一个 P46 荧光屏组成, MCP 的有效直径为 75 mm,

两块板微孔按“V”形装配. 带电粒子飞行至 MCP 时, 在微通道内激发次级电子. 次级电子经过多次倍增放大后, 形成电子束团, 轰击在 P46 荧光屏上形成光斑. 该光斑形成的图像由后置的 Andor Zyla 4.2 PLUS 相机或 TPX3CAM 相机记录, 图像中携带着带电粒子的初始动量信息和角分布信息. 通过对相机采集到的二维位置分布图像进行反阿贝尔变换 (inverse Abel inversion)^[29], 可以还原带电粒子的初始三维动量分布.

相机是数据采集系统的核心组件, CCD 或 CMOS 相机 (例如 Andor Zyla 4.2 PLUS) 虽然像素分辨率高 (2048×2048), 但无法获取单个粒子的飞行时间 (time-of-flight, TOF) 信息. 虽然通过图像反阿贝尔变换可以计算出粒子的三维空间分布, 但该方法要求粒子的原始空间分布具有柱对称性, 否则无法进行反阿贝尔变换.

TPX3CAM 是一种基于新型硅像素探测器的时间戳相机, 其集成了 Timepix3ASIC 与专用读出芯片, 时间分辨率可达 1.5 ns^[30]. 该相机能够记录每个粒子在探测器上的位置 (x, y)、到达时间 (time-of-arrival, ToA) 以及过阈时间 (time-over-threshold, ToT)^[31], 从而同时获取粒子的位置和飞行时间. 其中 ToT 反映信号强度. 这一特点使其突破了传统速度成像中反阿贝尔变换需要满足柱对称性的严格限制, 可直接重构粒子的三维动量分布. 需要指出的是, 高时间分辨率牺牲空间分辨, TPX3CAM 的有效像素仅为 256×256.

由于电子飞行时间窗口极短 (约 2 ns), 难以通过 TPX3CAM 实现其三维动量测量. 因此, 在本实验中, 采用 Andor 相机采集电子图像 (经多脉冲累积), 而 TPX3CAM 则用于记录离子的位置与飞行时间信息 (由 FEL 信号触发单脉冲采集), 从而实现两种探测器在时间与空间分辨能力上的互补. 需要说明的是, 本实验中电子与离子图像并非同步采集. 在同步测量模式下, 可通过记录每发 FEL 的 bunch ID 以实现数据在时间上的精确关联.

2.2 实验

为评估 CpVMI 与 TPX3CAM 相机在 FEL 下的综合性能, 并建立用户实验标准流程, 我们选择氪 (Kr) 原子与四氯化碳 (CCl₄) 分子开展光电离实验. 实验依托我国首台 X 射线自由电子激光用户装置——上海软 X 射线自由电子激光装置 (SXFEL)

进行, 该装置配备 2 条波荡器线、2 条光束线及 5 个实验终端, 可提供波长 2—15 nm (对应光子能量 80—620 eV) 的 X 射线脉冲^[32]. 本次实验在 SXFEL 的 SUD 线开展. 相对论电子束团经过波荡器后产生波长为 4.7 nm (263.8 eV) 的软 X 射线激光脉冲, 单脉冲能量约为 1 μJ, 脉冲宽度为 100 fs, 重复频率为 25 Hz. FEL 经过 KB 镜后聚焦到主腔与样品气体反应, 焦距为 1500 mm, 焦点光斑尺寸约 100 μm, 焦点处光强约为 1.3×10^{11} W/cm².

本次实验使用了空心针进样. 设置静电透镜于弱聚焦模式^[27], 且使针在电场零势能面上. 实验时, 空心针端口距激光焦点 2.5 mm, 其样品靶密度最大可达超声分子束的 1000 倍. 通过调节空心针上游的针阀, 可以调节靶密度的大小, 从而控制反应事件的数量. 需要说明的是, 与超声分子束相比, 尽管空心针进样可以显著提升样品靶密度, 但是扩大了样品与激光的作用区尺寸, 并且气体样品温度也会更高, 这些因素会导致仪器的分辨下降.

3 数据处理和测量结果

3.1 Kr 的电子图像

实验采用的软 X 射线光子能量为 263.8 eV, 介于 Kr 的 3p (222.2 eV) 与 3s (292.8 eV) 电离能之间^[33]. 由此设置电子透镜为弱聚焦模式且能量探测上限为 290 eV. Andor 相机曝光时间 200 ms 每帧, 累计采集 30000 张图像 (总时长 1.5 h). 图 2(a) 的左半部分是 30000 张照片累加后得到的电子的原始图像, 右半部分是经反阿贝尔变换 (Hansen law^[34]) 获得的电子二维动量分布, 位于图像中心的红色双箭头表示 FEL 极化方向. 可以看到, 图像中心被大量电子污染 (停止进气时依然存在). 这是因为强 FEL 光脉冲传输过程中可能产生杂散光, 杂散光在电极表面产生了很多杂散电子. 由于电场的聚焦作用, 这些杂散电子集中于中心区域, 对图像边缘光电子信号的影响有限. 后续工作中将优化限光孔的结构设计, 进一步抑制杂散电子数量.

图 2(b) 是二维动量谱全角度积分之后得到的一维电子能谱, 其中 54.8, 170, 239 eV 峰分别对应 Kr 3p, 3d, 4p 光电子, 32 与 95 eV 附近的峰归属于 3d 和 3p 俄歇电子^[35,36]. 整体上此电子能谱与 Tamenori 等^[37] 2004 年在 SPring-8 上使用同步辐射测量到的谱型相似. 但是, 由于他们使用的筒

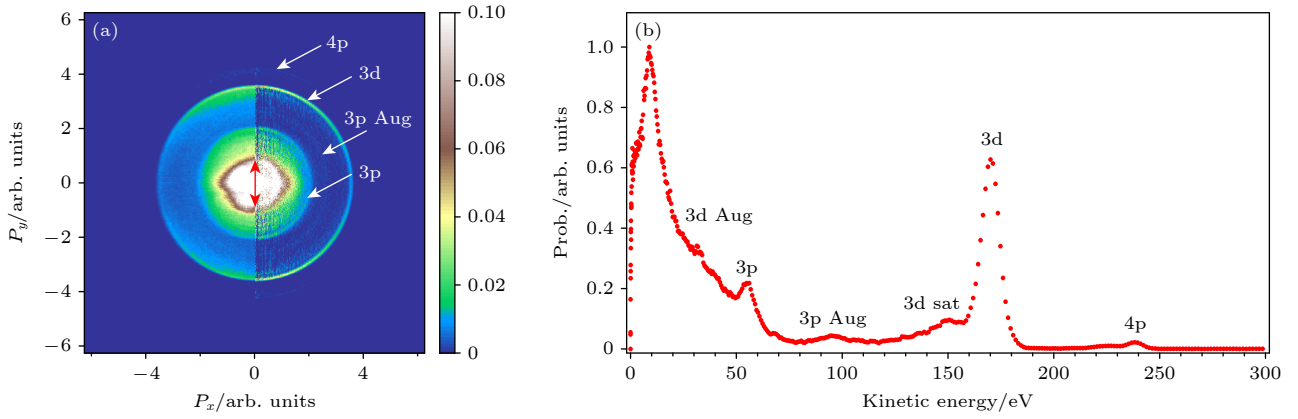


图2 Kr的光电子图像 (a) 图像左半部分是原始图像, 右半部分是反阿贝尔变换后的动量谱, 中间红色的双箭头表示自由电子激光的极化方向; (b) 将动量谱全角度积分后得到的电子能谱

Fig. 2. Photoelectron images of Kr: (a) The left half of the image is the raw image, and the right half is the momentum spectrum obtained after the inverse Abel transformation. The red double-headed arrow in the middle indicates the polarization direction of the free electron laser. (b) The electron energy spectrum obtained by integrating the momentum spectrum over all angles.

镜电子能量分析仪^[38](cylindrical mirror electron energy analyser)不能全角度全能量收集电子, 本实验在完整性与收集效率上更具优势. 将3p, 3d, 4p光电子谱峰的面积积分后, 按3d面积归一化所得的相对截面分别为0.4, 4.6和0.08, 理论计算^[39]的光电离截面分别为0.7, 4.6和0.12 Mb, 实验值与理论值有较高的一致性, 验证了CpVMI的能量标定与定量精度.

二维动量分布图中还包含了各个电子谱峰的角度分布信息. 对于单光子过程, 光电子强度的角分布可用以下公式描述:

$$I = \frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi} [1 + \beta P_2(\cos\theta)],$$

其中 σ 表示总吸收截面, β 为角分布参数, θ 为激光偏振方向与电子动量之间的夹角, P_2 是二阶勒让德多项式.

本次实验测得的光电子和俄歇电子角分布参数归纳于表1. 其中, β^a 是本研究的实验结果, β^b 是Yeh和Lindau^[39]用Hartree-Fock计算的原子数据. 可以发现, 实验值与理论值总体吻合良好;

表1 Kr和CCl₄的光电子以及俄歇电子角分布
Table 1. Angular distribution of photoelectrons and Auger electrons of Kr and CCl₄.

样品名称	Kr					CCl ₄ -Cl			
能级	3p	3p Aug	3d	3d sat	4p	2p	2p Aug	3p	
β^a	0.15	-0.16	0.93	0.75	1.5	0.96	0.05	1.63	
β^b ^[39]	0.5		0.8		1.5	1.2		1.6	

Kr 3p的 β 实验值更趋向于0, 这是由于其信号靠近图像中心区域, 受到杂散电子的干扰所致. 此外, 3p俄歇电子的各向异性参数为-0.16, 趋于各向同性发射, 符合理论预期.

3.2 Kr的离子质谱

TPX3 CAM相机记录Kr离子飞行时间时, 因为样品是原子, 为避免探测器中心饱和, 离子透镜工作于匀强电场模式, 数据采集时长为1 h. 基于TOF与质荷比平方根的正比关系, 获得Kr质谱如图3所示. 质谱显示Kr²⁺与Kr³⁺离子丰度显著高于Kr⁺, Kr⁴⁺和Kr⁵⁺, 且5个离子价态的同位素清晰可辨. 根据Tamenori等^[37]报道的离子产率数据, Kr 3d轨道电离后生成Kr²⁺和Kr³⁺离子的概率分别为67%和32%; Kr 3d satellite电离后产生Kr²⁺和Kr³⁺离子的概率为22%和77%; Kr 3p轨道电离后则为1%和63.5%. 结合图2光电子能谱中3d, 3d satellite和4p谱峰的积分面积(分别为7.34, 2.27和0.64), 计算得到Kr²⁺和Kr³⁺离子的产量比为5.4:4.5 = 1.2. 对TOF谱峰进行积分, Kr²⁺与Kr³⁺的峰面积比值为1.1, 与通过光电子计算出来的比值(1.2)高度吻合. 实验结果表明, 本次实验使用TPX3CAM相机获得的质谱与Tamenori等^[37]在240 eV光子能量下报道的结果谱型相似, 离子产率分布一致, 且质量分辨率显著提高, 充分验证了CpVMI与TPX3CAM相机联用的可靠性.

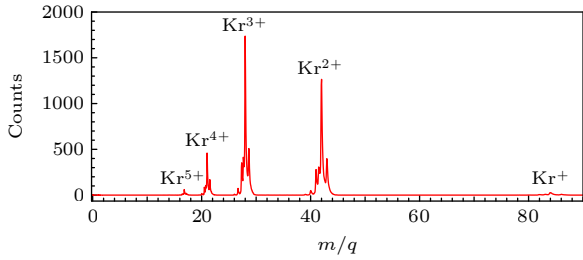


图3 Kr的飞行时间质谱
Fig. 3. ToF mass spectrum of Kr.

3.3 CCl₄的电子图像

除单原子体系 Kr 外, 本研究进一步测量了 CCl₄ 分子. CCl₄ 的实验条件与 Kr 相似, 仍使用空心针进样, FEL 参数不变, 数据采集时长为 1.5 h. FEL 的光子能量 (263.8 eV) 在 Cl 2p(207 eV)^[40] 和 2s(276 eV)^[41] 的电离能之间, 且低于 C 1s 电离能 (296.3 eV)^[41]. 由于 CCl₄ 在 25 °C、一个标准大气压下为液态, 其饱和蒸气压为 15.26 kPa. 准备样品时做液氮冷冻/抽真空/解冻样品的循环, 重复 3 次, 以此去除管道以及液体样品中溶解的空气.

使用 Andor 相机获取电子图像后, 得到的二维原始图像、动量谱以及一维电子能谱如图 4 所示. 动量谱的中心区域仍被杂散电子污染; 外围区域可见 3 个环, 由内到外依次对应 Cl 2p 光电子、Cl 2p 俄歇以及价壳层 (6t₂)⁶(2e)⁴(7t₂)⁶(2t₁)⁶ 光电子, 这 3 个环在右侧的一维能谱中表现为 3 个清晰峰位, 能量位置与 Fournier 等^[40] 测得的俄歇电子谱的能量以及 Cl 的 2p 和价壳层电离能在误差范围内一致. 对 Cl 2p 光电子、2p 俄歇电子和价壳层

光电子峰进行积分, 面积分别为 5.4, 12.1 和 0.8. 似乎 2p 俄歇电子数高于 2p 光电子数, 这不符合预期. 推测是由于中心区域电子信号过多导致附近的电子倍增系数降低, 并且中心区域使用频次较高, 这都导致内侧探测效率比外侧的低.

CCl₄ 中 Cl 的光电子及俄歇电子角分布参数如表 1 所列. 限于缺少发表的 CCl₄ 光电子和 Auger 电子角分布数据, 我们与 Hartree-Fock 计算的原子数值^[39] 比较. 实验测得的 Cl 2p 和 3p 光电子的各向异性参数分别为 0.96 与 1.63, 与 Hartree-Fock 计算的原子数值 (1.2 和 1.6)^[39] 趋势相同. 与 Cl 3p 电离相比, Cl 2p 电离导致外层电子弛豫, 电子关联效应更强, 所以实验值与理论值差异更大. 此外, Cl 2p 俄歇电子的各向异性参数为 0.05, 表明其角分布接近各向同性, 与预期相符.

3.4 CCl₄的离子质谱以及二维动量分布

使用 TPX3CAM 相机采集离子位置及飞行时间. 因为要测量碎片动量, 离子透镜工作在聚焦模式, 数据采集时长为 1 h. CCl₄ 解离产生的离子飞行时间质谱如图 5 所示. 得益于 TPX3 CAM 相机的像素级四维数据采集能力 ($x, y, \text{ToA}, \text{ToT}$), 无需依赖反阿贝尔变换的对称性假设, 即可直接重构各碎片离子的二维动量分布. 图 5 上方所有二维动量切片中相同半径代表相同动量大小.

在质谱中没有看到 CCl₄⁺ 母体离子. 虽然价壳层电离后产生 CCl₃⁺, 但 Kime 等^[42] 指出其热力学不稳定, 会解离成 CCl₃⁺ + Cl; Kischlat 和 Morgner^[43]

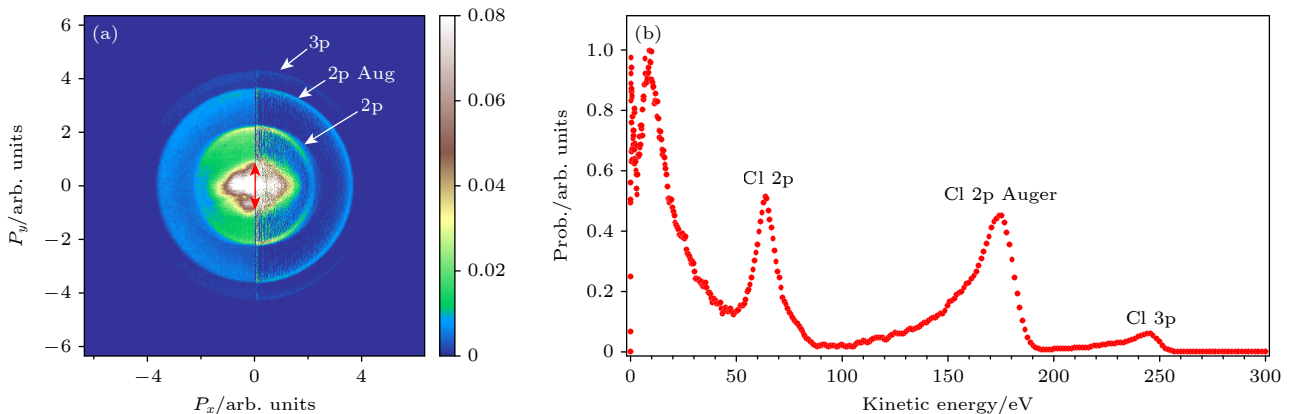


图4 CCl₄的光电子图像 (a) 图像左半部分是原始图像, 右半部分是经反阿贝尔变换后得到的动量谱, 中间红色的双箭头表示自由电子激光的极化方向; (b) 将动量谱全角度积分后得到的电子能谱

Fig. 4. Photoelectron images of CCl₄: (a) The left half of the image is the raw image, and the right half is the momentum spectrum obtained after the inverse Abel transformation. The red double-headed arrow in the middle indicates the polarization direction of the free electron laser. (b) The electron energy spectrum obtained by integrating the momentum spectrum over all angles.

实验证实最终产物中 CCl_2^+ 比 CCl_3^+ 略多. 对于内壳层俄歇过程产生的 CCl_4^{2+} 离子, 根据 Santos 等^[44] 的研究, 其解离路径包括:

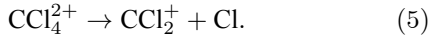
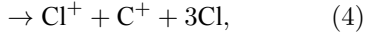
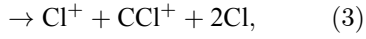
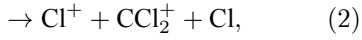


图 5(c), (g) 分别展示了 Cl^+ 和 CCl_3^+ 的动量分布, 二者均呈现清晰的环状结构, 且动量大小相近. 这一特征与解离路径 (1) 中 CCl_4^{2+} 解离成 CCl_3^+ 和 Cl^+ 的动量守恒预期相符. 值得注意的是, 图 5(g) 中 CCl_3^+ 的环形分布在光偏振方向强度较高, 这是因为与光偏振方向平行的 C—Cl 键更容易被电离; 而图 5(c) 中 Cl^+ 图像各向同性, 这是因为它的来源多样, 其角分布特征被整体平均. 此外, 图 5(g) 中 CCl_3^+ 动量分布在中心区域存在一圆斑, 对应于 CCl_4^+ 解离生成 CCl_3^+ 与 Cl 的过程, 该通道解离时间长, 释放动能较低, 因此碎片动量较小且角分布几乎各向同性. 图 5(d), (f) 中 CCl_2^+ 和 CCl^+ 其动量分布呈现各向同性, 且分布半径随碎片质量减小而略微增大. 这是因为碎片来自多步解离路径 (上述路径 (2), (3)), 解离过程中每丢失一个中性 Cl 原子, CCl_x^+ 还会获得一定的动量. 图 5(b) 中 C^+ 碎片动量

相对较小, 反映了在逐步解离过程中因所有氯原子对称脱离而导致的净动量抵消的机制. 图 5(e) 中 CCl_3^{2+} 是唯一观测到的双电荷碎片. 从 CCl_3^{2+} 的动量图中可以知道其动量较小且集中在中心区域, 表明主要经由路径 (5) 生成, 即 CCl_4^{2+} 离子解离生成 CCl_3^{2+} 和一个中性 Cl 原子, 无库仑斥力导致的动能释放, 符合中性氯原子解离通道的动力学特征.

4 结 论

本文报道了上海软 X 射线自由电子激光装置 CpVMI 的首次通光实验结果. 利用 263.8 eV 的 FEL 脉冲对 Kr 和 CCl_4 开展光电离研究, 通过 Andor 相机成功观测到 Kr 的 3p, 3d 和 4p 光电子峰和 3d, 3p 的俄歇电子峰, 同时在 CCl_4 中识别出 Cl 2p 光电子、2p 俄歇电子和 3p 光电子峰, 与同步辐射下测量到的结果呈现良好的一致性. 角分布测量进一步表明, Kr 和 CCl_4 中光电子和俄歇电子的各向异性参数 β 与理论值吻合良好, 表明 CpVMI 具备可靠的角分辨探测能力. 离子测量方面, 通过 TPX3CAM 相机获得了 Kr 的高分辨飞行时间质谱, 并直接重构了 CCl_4 碎片离子的二维动量分布. 结合质谱与动量成像数据, 解析了 CCl_4 分子在 263.8 eV 的自由电子激光下的解离路径. 实验结果充分表明该谱仪在能量、角度及动量测量方面均满足自由电子激光用户实验的技术要求.

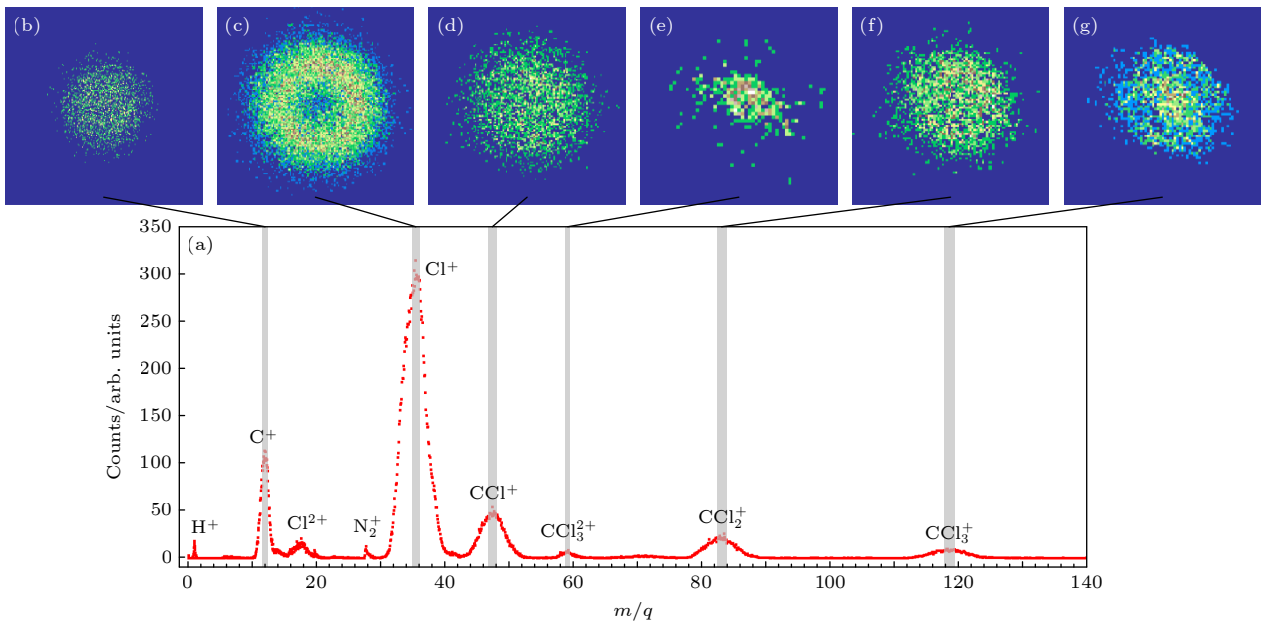


图 5 (a) CCl_4 的飞行时间质谱; (b)–(g) 灰色区间内的离子二维动量切片

Fig. 5. (a) The ToF mass spectrum of CCl_4 ; (b)–(g) the ion momentum images within the gray area of the mass spectrum.

当前实验条件仍有优化空间. 一是 KB 镜聚焦后的光斑直径约 100 μm , 我们正在优化光路, 优化后预计可将焦点缩小一个量级, 可以显著提升靶点功率密度. 二是空心针进样时样品温度约 40 K 且作用区长约 6 mm, 使得分辨率下降. 未来切换至超声分子束后, 样品温度降至 4 K, 作用区缩短到 1 mm, 预期仪器分辨率能够显著提升.

参考文献

- [1] Zhao Z T, Feng C 2018 *Physics* **47** 481 (in Chinese) [赵振堂, 冯超 2018 物理 **47** 481]
- [2] Huang S, Ding Y, Feng Y, Hemsing E, Huang Z, Krzywinski J, Lutman A A, Marinelli A, Maxwell T J, Zhu D 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 154801
- [3] Ackermann W, Asova G, Ayvazyan V, et al. 2007 *Nat. Photonics* **1** 336
- [4] Zhong Y P, Yang X 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 194101 (in Chinese) [仲银鹏, 杨霞 2024 物理学报 **73** 194101]
- [5] Emma P, Akre R, Arthur J, et al. 2010 *Nat. Photonics* **4** 641
- [6] Ishikawa T, Aoyagi H, Asaka T, et al. 2012 *Nature Photonics* **6** 540
- [7] Allaria E, Castronovo D, Cinquegrana P, et al. 2013 *Nat. Photonics* **7** 913
- [8] Kang H S, Min C K, Heo H, et al. 2017 *Nat. Photonics* **11** 708
- [9] Milne C J, Schietinger T, Aiba M, et al. 2017 *Appl. Sci.* **7** 720
- [10] Weise H, Decking W 2017 *FEL2017 Santa Fe, USA, August 20-25, 2017* p9
- [11] Zhao Z T, Wang D, Gu Q, Yin L X, Fang G, Gu M, Leng Y B, Zhou Q, Liu B, Tang C, Huang W, Liu Z, Jiang H D 2017 *Synchrotron Radiat. News* **30** 29
- [12] Halavanau A, Decker F J, Emma C, Sheppard J, Pellegrini C 2019 *J. Synchrotron Radiat.* **26** 635
- [13] Liu T, Huang N S, Yang H X, Qi Z, Zhang K Q, Gao Z F, Chen S, Feng C, Zhang W, Luo H, Fu X X, Liu H, Faatz B, Deng H X, Liu B, Wang D, Zhao Z T 2023 *Front. Phys.* **11** 1172368
- [14] Zhaumerchyk V, Kamińska M, Mucke M, et al. 2015 *J. Phys. B At. Mol. Opt.* **48** 244003
- [15] Liu X J, Miao Q, Gel'mukhanov F, Patanen M, Travnikova O, Nicolas C, Ågren H, Ueda K, Miron C 2015 *Nat. Photonics* **9** 120
- [16] Öhrwall G, Karlsson P, Wirde M, Lundqvist M, Andersson P, Ceolin D, Wannberg B, Kachel T, Dürr H, Eberhardt W, Svensson S 2011 *J. Electron Spectrosc.* **183** 125
- [17] Patanen M, Svensson S, Martensson N 2015 *J. Electron Spectrosc.* **200** 78
- [18] Hikosaka Y, Sawa M, Soejima K, Shigemasa E 2014 *J. Electron Spectrosc.* **192** 69
- [19] Liu X J, Chi H J, Xiao Z S 2017 *Sci. Sin. Phys. Mech. Astron.* **47** 033003 (in Chinese) [刘小井, 池华敬, 肖志松 2017 中国科学: 物理学 力学 天文学 **47** 033003]
- [20] Ullrich J, Moshhammer R, Dorn A, Dörner R, Schmidt L P H, Schmidt-Böcking H 2003 *Rep. Prog. Phys.* **66** 1463
- [21] Kastirke G, Schöffler M S, Weller M, et al. 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 163201
- [22] Eppink A T J B, Parker D H 1997 *Rev. Sci. Instrum.* **68** 3477
- [23] O'Keeffe P, Feyer V, Bolognesi P, et al. 2012 *Nucl. Instrum. Meth. B* **284** 69
- [24] Skruszewicz S, Passig J, Przystawik A, Truong N X, Köther M, Tiggesbäumker J, Meiwes-Broer K H 2014 *Int. J. Mass Spectrom.* **365** 338
- [25] Kling N G, Paul D, Gura A, Laurent G, De S, Li H, Wang Z, Ahn B, Kim C H, Kim T K, Litvinyuk I V, Cocke C L, Ben-Itzhak I, Kim D, Kling M F 2014 *J. Instrum.* **9** P05005
- [26] Schomas D, Rendler N, Krull J, Richter R, Mudrich M 2017 *J. Chem. Phys.* **147** 013942
- [27] Ding B C, Xu W Q, Wu R C, Feng Y F, Tian L F, Li X H, Huang J Y, Liu Z, Liu X J 2021 *Appl. Sci.* **11** 10272
- [28] Feng Y F, Ding B C, Wu R C, Jin X, Wu K F, Liao J F, Huang J Y, Liu X J 2024 *Appl. Sci.* **14** 2190
- [29] Dribinski V, Ossadtchi A, Mandelshtam V A, Reisler H 2002 *Rev. Sci. Instrum.* **73** 2634
- [30] Zhao A, van Beuzekom M, Bouwens B, Byelov D, Chakaberia I, Cheng C, Maddox E, Nomerotski A, Svihra P, Visser J, Vrba V, Weinacht T 2017 *Rev. Sci. Instrum.* **88** 113104
- [31] Poikela T, Plosila J, Westerlund T, Campbell M, Gaspari M D, Llopart X, Gromov V, Kluit R, Beuzekom M v, Zappone F, Zivkovic V, Brezina C, Desch K, Fu Y, Kruth A 2014 *J. Instrum.* **9** C05013
- [32] Liu Z, Wan W S, Wang D 2024 *Chin. J. Nat.* **46** 161 (in Chinese) [刘志, 万唯实, 王东 2024 自然杂志 **46** 161]
- [33] Thompson A, Attwood D, Gulikson E, Howells M, Kim K J, Kirz J, Kortright J, Lindau I, Pianetta P, Robinson A 2001 *X-ray Data Booklet* <https://xdb.lbl.gov/xdb.pdf>
- [34] Hickstein D D, Gibson S T, Yurchak R, Das D D, Ryazanov M 2019 *Rev. Sci. Instrum.* **90** 065115
- [35] Palaudoux J, Lablanquie P, Andric L, Ito K, Shigemasa E, Eland J H D, Jonauskas V, Kučas S, Karazija R, Penent F 2010 *Phys. Rev. A* **82** 043419
- [36] Jauhainen J, Kivimaki A, Aksela S, Sairanen O P, Aksela H 1995 *J. Phys. B At. Mol. Opt.* **28** 4091
- [37] Tamenori Y, Okada K, Tanimoto S, Ibuki T, Nagaoka S, Fujii A, Haga Y, Suzuki I H 2003 *J. Phys. B At. Mol. Opt.* **37** 117
- [38] Tamenori Y, Okada K, Nagaoka S, Ibuki T, Tanimoto S, Shimizu Y, Fujii A, Haga Y, Yoshida H, Ohashi H, Suzuki I H 2002 *J. Phys. B At. Mol. Opt.* **35** 2799
- [39] Yeh J J, Lindau I 1985 *At. Data Nucl. Data* **32** 1
- [40] Fournier P G, Comtet G, Fournier J, Svensson S, Karlsson L, Keane M P, Naves de Brito A 1989 *Phys. Rev. A* **40** 163
- [41] Ohta T, Kuroda H 1976 *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **49** 2939
- [42] Kime Y J, Driscoll D C, Dowben P A 1987 *J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2* **83** 403
- [43] Kischlat H, Morgner J 1985 *J. Electron Spectrosc.* **35** 273
- [44] Dos Santos A C F, Maciel J B, Rocha A B, de Souza G G B 2024 *Atoms* **12** 74

SPECIAL TOPIC—Instrumentation and metrology for ultrafast atomic and molecular spectroscopy

Composite velocity imaging spectrometer on Shanghai soft X-ray free electron laser facility*

LIAO Jianfeng¹⁾ FENG Yunfei¹⁾ WU Kefei¹⁾ TAO Jianfei¹⁾ ZHU Wentao¹⁾
HUANG Jianye¹⁾ DING Bocheng^{2)†} LIU Xiaojing^{1)‡}

1) (*Center for Transformative Science, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China*)

2) (*Suzhou Laboratory, Suzhou 215128, China*)

(Received 29 August 2025; revised manuscript received 7 November 2025)

Abstract

Temporal- and angular-resolved photoionization experiments are essential for probing the geometric configuration and electronic state evolution of atoms and molecules, which requires measuring the full spatial angular distributions of electrons and ions in free electron laser (FEL) experiments. Here, we present the first experimental results from the composite velocity imaging spectrometer (CpVMI) on the Shanghai soft X-ray free electron laser facility (SXFEL). The study demonstrates its ability to capture energy and angular information of electrons and ions with high resolution and full solid-angle collection.

Krypton (Kr) atoms and carbon tetrachloride (CCl₄) molecules are ionized using FEL pulses at 263.8 eV. Electron momentum images are recorded with an Andor Zyla 4.2 PLUS camera, and ion time-of-flight mass spectra and momentum distributions are acquired using a TPX3CAM. For Kr, the electron spectrum contains peaks from 3p, 3d, and 4p photoionization, as well as the Auger electrons from 3d and 3p levels. The measured anisotropy parameters (β) of these electrons show good agreement with previous theoretical Hartree-Fock calculations. The ion abundance in the time-of-flight mass spectra of Kr is consistent with the ratio derived from the intensities of the corresponding photoelectron peaks.

For CCl₄, the electron spectrum contains Cl 2p photoelectrons, 2p Auger electrons, and valence-shell photoelectrons, with their angular distribution parameters also aligning with theoretical predictions. The TPX3CAM can directly measure the momenta of fragment ions without the need of inverse Abel transformation. By integrating the high-resolution flight time mass spectrometry and momentum imaging data obtained from TPX3CAM, we successfully visualize and analyze the key photodissociation pathways of CCl₄ molecules under the action of soft X-ray FEL. In particular, it can distinguish between direct two-body dissociation and multi-step dissociation processes, and observe the unique angular distributions and kinetic energy release characteristics of different dissociation channels.

In conclusion, the experimental results clearly show that the CpVMI fully meets the technical requirements for FEL user experiments in terms of energy, angular distribution, and momentum measurement, providing a platform for FEL light-induced dynamics research. Future enhancements, including improved light focusing and the use of supersonic molecular beams, are expected to further improve the performance of the instrument.

Keywords: X-ray free electron laser, velocity imaging spectrometer, angular distribution of charged particles

PACS: 32.80.-t, 32.80.Aa, 32.80.Hd, 07.81.+a

DOI: [10.7498/aps.74.20251176](https://doi.org/10.7498/aps.74.20251176)

CSTR: [32037.14.aps.74.20251176](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20251176)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11574020), the STCSM Fund (Grant No. 22560780300), and the Double First-Class Initiative Fund of ShanghaiTech University, China.

† Corresponding author. E-mail: dingbc@szlab.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: liuxj@shanghaitech.edu.cn

上海软X射线自由电子激光上的复合速度成像谱仪

廖剑峰 封云飞 吴可非 陶建飞 朱文韬 黄健业 丁伯承 刘小井

Composite velocity imaging spectrometer on Shanghai soft X-ray free electron laser facility

LIAO Jianfeng FENG Yunfei WU Kefei TAO Jianfei ZHU Wentao HUANG Jianye DING Bocheng
LIU Xiaojing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 74, 243203 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20251176

CSTR: 32037.14.aps.74.20251176

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20251176>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

上海软X射线自由电子激光单脉冲成像定时的设计与实现

Design and implementation of timing system for single-shot imaging at Shanghai soft X-ray free-electron laser

物理学报. 2024, 73(12): 120701 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240383>

基于自由电子激光的散射技术及谱学方法进展

Advances in free-electron-laser based scattering techniques and spectroscopic methods

物理学报. 2024, 73(19): 194101 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240930>

自由电子激光制备高强度亚稳态氦原子和类氦离子

Free electron laser prepared high-intensity metastable helium and helium-like ions

物理学报. 2024, 73(15): 150201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240554>

高重频硬X射线自由电子激光脉冲到达时间诊断方法研究

Arrival time diagnosis method of high refrequency hard X-ray free electron laser

物理学报. 2023, 72(10): 105203 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222424>

面向先进光源线站等大科学装置的低温X射线能谱仪原理及应用进展

Development of basic theory and application of cryogenic X-ray spectrometer in light sources and X-ray satellite

物理学报. 2021, 70(18): 180702 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210350>

基于匀光管的极紫外消相干和光强均匀化仿真研究

Simulation study of decoherence and light intensity uniformization for extreme ultraviolet of uniform light pipe

物理学报. 2024, 73(11): 114201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240335>