



50-keV/u Ne^{8+} 离子碰撞导致的 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+}$ 三体解离机制*

李桃桃¹⁾ 苑航¹⁾²⁾ 王兴¹⁾ 张震¹⁾ 郭大龙²⁾³⁾ 朱小龙²⁾³⁾ 闫顺成²⁾³⁾
赵冬梅²⁾ 张少锋²⁾³⁾ 许慎跃^{2)3)†} 马新文²⁾³⁾

1) (西安交通大学物理学院, 物质非平衡合成与调控教育部重点实验室, 西安 710049)

2) (中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000)

3) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2021 年 11 月 30 日收到; 2022 年 1 月 21 日收到修改稿)

利用反应显微成像谱仪开展了 50-keV/u Ne^{8+} 离子与 C_3H_4 分子碰撞实验, 研究了丙二烯 (CH_2CCH_2) 和丙炔 (CH_3CCH) 两种同分异构分子形成 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+}$ 二价离子并解离产生 $\text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 的过程. 实验获得了 H^+ 和 C_3H_2^+ 的动量, 进而通过动量守恒得到第 3 个碎片的动量. 通过分析 3 个碎片的动能及解离的动能释放鉴别出未被探测的碎片为中性 H 原子的事件. 借助 Dalitz 图、Newton 图以及碎片产物的角分布等分析了该通道的动力学机制. 结果表明, 次序解离是该解离通道的主要机制, 在碎裂过程中二价母体离子先解离成 H^+ 和 C_3H_3^+ , 中间体的 C_3H_3^+ 离子再进一步解离成 C_3H_2^+ 和 H 原子.

关键词: 高电荷态离子, 同分异构体, 解离机制, 次序解离

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

DOI: 10.7498/aps.71.20212202

1 引言

多原子分子解离碎裂动力学是原子分子物理研究中的热点问题, 同时在等离子体物理^[1]、行星大气化学^[2]、生物组织辐射损伤^[3]等领域具有潜在应用价值. 尤其是分子的三体碎裂过程中, 涉及至少两个化学键的同时或次序断裂, 近年来引起了极大关注^[4–15].

目前, 大多数关于三体解离过程的研究是针对二氧化碳等三原子分子^[4–8]或小团簇^[9–11]进行. 在荷电粒子碰撞导致的分子三体解离方面, Wang 等^[14]利用较高能量 (500 eV) 电子碰撞研究了三电荷分子离子 CO_2^{3+} 的碎裂过程, 发现次序解离过程

主要发生在基态和较低激发态. Wang 等^[15]利用 200 eV 电子碰撞研究了 CO_2^{2+} 二价离子的两体和三体解离通道, 通过对比高入射能量下的实验结果, 发现不同入射电子能量下离子状态的变化对碎裂机制的影响. 高电荷态离子也常常被选作炮弹离子用于分子碎裂动力学研究. Neumann 等^[4]研究了低能 (3.2-keV/u) 高电荷 Ar^{8+} 离子碰撞导致 CO_2^{3+} 离子三体解离过程, 通过测量碎片动量区分了直接碎裂、次序解离等不同机制, 并发现沉积在系统中的总能量是决定解离机制的关键因素. Yan 等^[7]利用 56-keV/u 的 Ne^{4+} 离子研究了 CO_2^{3+} 三体解离过程, 通过分析碎片离子的动量关联和动能分布, 鉴别了次序解离和直接解离的解离机制, 并根据次序过程中 CO^{2+} 亚稳态离子解离释放的

* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0402300) 和国家自然科学基金 (批准号: 11674332) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: s.xu@impcas.ac.cn

能量确定了所对应的电子态.

碳氢化合物广泛存在于自然界,且在工业生产中起着重要作用,其解离碎裂机制研究不仅具有重要的基础意义,而且在等离子体物理^[1]、星际介质演化^[12]等领域具有潜在应用价值.碳氢化合物分子由四个或以上原子组成,其解离过程相比于三原子分子更为复杂,在解离机制鉴别方面增加了新的挑战.丙炔和丙二烯是自然界中存在的具有稳定同分异构体的最小分子,常被选为模型分子研究有机分子解离碎裂机制及同分异构效应.Kusakabe等^[16]在电子碰撞导致的 C_3H_4 分子解离过程研究中观测到明显的同分异构效应,并发现丙二烯结构异构化至丙炔结构的过程存在.Scully等^[17]在 C^+ 离子碰撞导致的解离碎裂研究中同样发现了明显的同分异构效应.Mebel与Bandrauk^[18]和Psiuk等^[19]在理论上对 C_3H_4 阳离子可能存在的解离路径进行了模拟计算.Yamanouchi课题组^[20–24]利用超快强场激光诱导丙二烯发生库仑爆炸,研究了丙二烯的两体与三体解离过程,并发现了氢迁移过程的存在;Ma等^[25]研究了 Ne^{8+} 离子碰撞导致的丙二烯三价离子 $CH_2CCH_2^{3+}$ 三体碎裂解离过程,发现直接解离过程是三体解离通道的主要机制,次序解离过程的贡献相对较少.

分子碎裂过程中既会产生带正电荷的离子碎片,也可能产生不带电荷的中性碎片,对包含中性碎片的通道的研究是认识分子碎裂机制必不可少的部分.但是,关于丙二烯(CH_2CCH_2)和丙炔(CH_3CCH)解离碎裂中涉及中性碎片过程的研究还未有详细报道.这是由于在实验中探测器往往只能探测到带电粒子,而对中性碎片的直接探测比较困难.在本工作中,利用中国科学院近代物理研究所的反应显微成像谱仪装置,研究了 Ne^{8+} 诱导丙炔和丙二烯分子三体解离过程.通过碎片离子动能及解离的动能释放分析鉴别出第三个碎片为中性H原子的事件,进一步结合Newton图、Dalitz图及碎片离子角度分布等,对该通道的解离机制进行了详细分析.

2 实验方法

本实验在中国科学院近代物理研究所 320 kV 高电荷态离子综合实验平台的离子与原子分子碰撞动力学实验终端完成^[3,25–28].电子回旋共振离子

源 (ECR) 产生的 50-keV/u Ne^{8+} 高电荷态离子束先后经过二级磁铁偏转、可调光阑限束及静电偏转后,得到高品质的炮弹离子束,进入反应谱仪 (reaction microscope spectroscopy) 实验终端,并在反应区与超音速气体喷嘴产生的 C_3H_4 分子束交叉碰撞.碰撞产生的离子碎片被垂直于入射炮弹和气体束方向的均匀电场 (180 V/cm) 加速引出,通过无场漂移区后由反冲离子探测器收集.碰撞之后的散射离子通过静电偏转板与未反应的束流分离后被散射探测器探测,未参与反应的 Ne^{8+} 离子则被法拉第筒收集.反冲和散射探测器由微通道板和延迟线阳极组成,记录被测离子的二维位置 (x, y) 和到达时间 (t) 信息.测量中将炮弹离子到达散射探测器的时间作为触发信号,用于确定碎片离子的绝对飞行时间 (time of flight, TOF).实验选取 C_3H_4 的两种同分异构体:丙二烯和丙炔作为研究对象,在相同的实验参数下进行测量. C_3H_4 分子解离末态存在多种碎片离子,在离线数据分析中,通过 TOF 谱上离子飞行时间信息区离子种类.

本研究关注以下两个反应通道:

转移电离: $Ne^{8+} + C_3H_4 \rightarrow Ne^{7+} + H^+ + C_3H_2^+ + H + e^-$;

双电子俘获: $Ne^{8+} + C_3H_4 \rightarrow Ne^{6+} + H^+ + C_3H_2^+ + H$.

实验中直接测量质子和 $C_3H_2^+$ 离子两个荷电碎片的飞行时间和位置,据此获得这两种离子的动量 P_{H^+} 和 $P_{C_3H_2^+}$,进一步通过动量守恒得到未测量的中性 H 原子的动量:

$$P_H = 0 - P_{H^+} - P_{C_3H_2^+}.$$

通过动量计算出离子的动能及解离过程的动能释放 (kinetic-energy release, KER, 定义为 3 个碎片的动能之和).

在本研究中,母体离子 $C_3H_4^{2+}$ 可以通过转移电离或双电子俘获两种不同反应通道产生.我们之前关于 Ne^{8+} 碰撞导致 C_3H_4 两体解离的相关研究表明,这两种不同反应通道对解离过程没有明显影响^[28].故接下来选择的二维飞行时间谱的计数是两种电离路径的总贡献.

3 结果与讨论

3.1 $C_3H_4^{2+} \rightarrow H^+ + C_3H_2^+ + H$ 通道鉴别

在实验测量中, $H^+ + C_3H_2^+ + H$ 通道中的中

性 H 原子不能被直接探测, 该通道通过 H^+ 和 C_3H_2^+ 离子的二维飞行时间符合信息进行鉴别, 如图 1(a) 和图 1(b) 红色椭圆区域所示. 这将不可避

免地混入三价母体离子解离产生两个质子和 C_3H_2^+ 离子 ($\text{C}_3\text{H}_4^{3+} \rightarrow 2\text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+$) 的事件. 由于两种事件所对应的母体离子价态不同, 将导致末态碎片

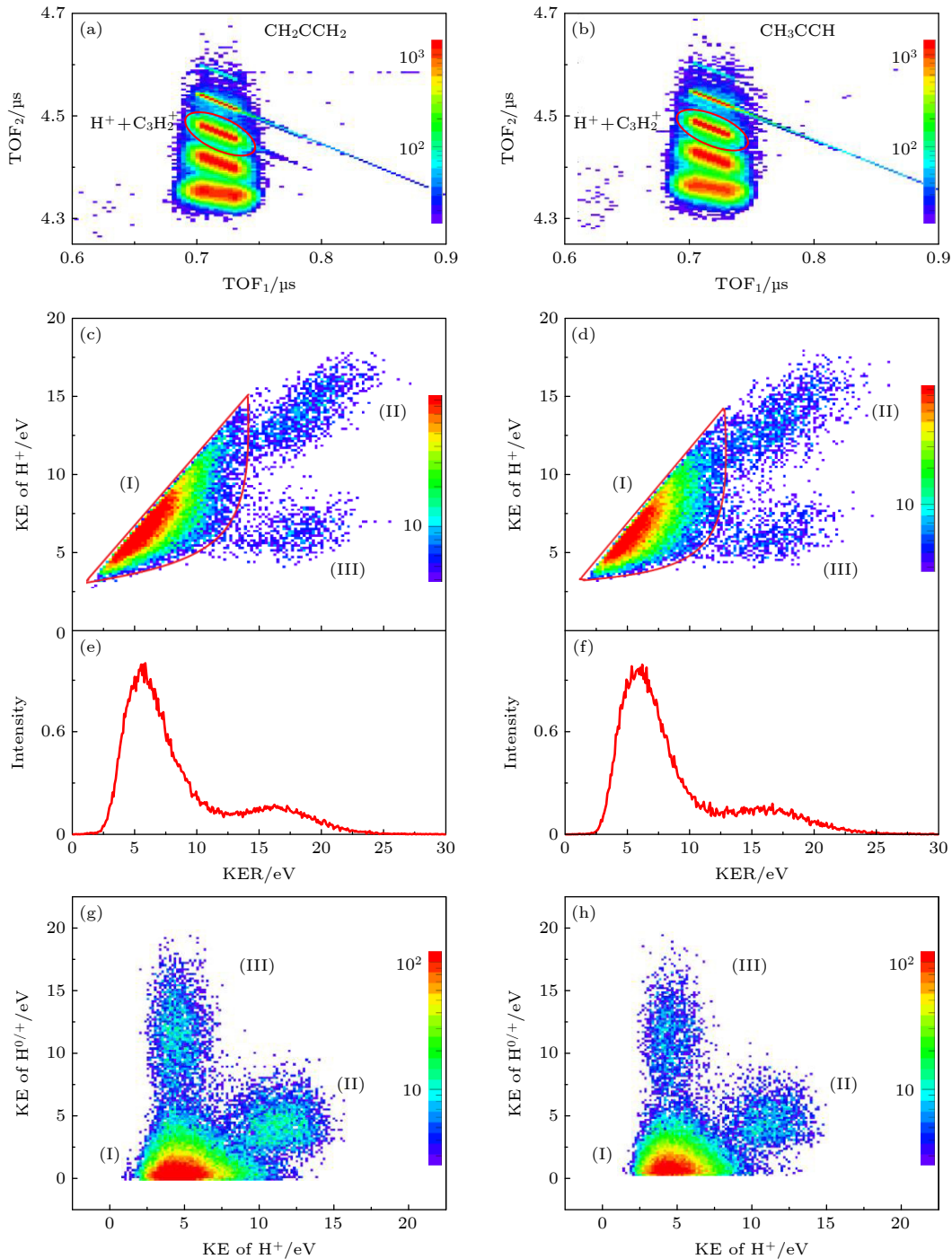


图 1 (a) CH_2CCH_2 和 (b) CH_3CCH 二维飞行时间谱^[8], 其中红色椭圆对应 $\text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+$ 的事件; (c) CH_2CCH_2 和 (d) CH_3CCH 分子的 KER- H^+ 能量的二维符合谱; (e) CH_2CCH_2 和 (f) CH_3CCH 三体碎裂 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 通道的 KER 分布; (g) CH_2CCH_2 和 (h) CH_3CCH 对应的 H^+ 和未探测粒子动能 (H^+/H^0) 的二维符合谱

Fig. 1. Two-dimensional time-of-flight (TOF) spectra, in which the events of red oval corresponds to the $\text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+$ for (a) CH_2CCH_2 and (b) CH_3CCH ; two-dimensional coincidence correlation spectra of KER- H^+ energy of (c) CH_2CCH_2 and (d) CH_3CCH ; the KER distribution of (e) CH_2CCH_2 and (f) CH_3CCH for three-body fragmentation of $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ channel; two-dimensional coincidence spectra of kinetic energies between H^+ and undetected particle (H^+/H^0) of (g) CH_2CCH_2 and (h) CH_3CCH .

离子携带不同的动能, 三价母体离子将对应更大的末态碎片动能及 KER. 为了进一步区分母体离子为二价和三价的事件, 首先对末态碎片的动能进行详细分析, 其中对于未测量的第 3 个碎片 (H 原子或质子), 首先根据动量守恒得出其动量, 进一步计算出其能量.

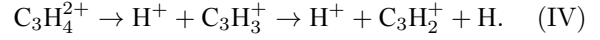
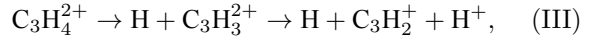
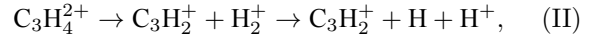
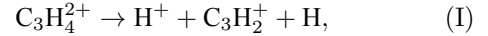
图 1(c) 和图 1(d) 为 KER 和质子能量的二维符合谱. 从图 1(c) 和图 1(d) 可以看出, 对于丙二烯和丙炔两种分子, 二维符合谱上都存在 3 种结构, 其中结构 I 对应的 KER 较小, II 和 III 对应的 KER 较大. 图 1(e) 和图 1(f) 分别为 CH_2CCH_2 和 CH_3CCH 分子的 KER 分布, 即图 1(c) 和图 1(d) 在 x 轴方向的投影. 两种分子的 KER 都呈双峰结构, 其中低能峰位于 5.5 eV 左右, 来源于二维谱中的结构 I, 能量较高的峰位于 16.5 eV 左右, 来源于结构 II 和 III. 根据图 1(e) 和图 1(f) 初步判断结构 I 来自于二价母体离子解离, 结构 II 和 III 来自于三价母体离子的解离过程.

在图 1(g) 和图 1(h) 中, 进一步通过 H^+ 离子与未探测粒子 (H^+/H^0) 动能的二维符合谱对来自不同结构的事件进行分析. 对于结构 II, H^+ 动能远大于结构 I 和 III, 进一步表明结构 II 对应的 H^+ 离子来自较高价态的离子解离, 即三价母体离子的解离过程. 而结构 I 和 III, H^+ 离子的动能集中在 3—6 eV, 表明这两结构对应的 H^+ 离子来自较低价态的离子解离 (二价离子). 不同的是, 结构 III 未探测粒子动能 (12 eV) 远大于结构 I (0—2 eV), 说明结构 III 中未探测粒子来自更高价态 (三价母体离子) 的解离过程. 而结构 I 未被探测的粒子的动能集中在 0—2 eV, 这是由于其不携带电荷, 动能不是来自库仑爆炸过程, 结合以上分析表明, 结构 I 对应于 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 的事件, 结构 II 和 III 则对应于 $\text{C}_3\text{H}_4^{3+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}^+$ 的次序解离过程. 在后面的讨论中, 以图 1(c) 和图 1(d) 中的红色实线所包围的区域作为条件, 选择出 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 的事件, 深入分析该通道的动力学机制.

3.2 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 通道解离机制判断

对于三体解离通道 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$, 可能存在同步碎裂和次序解离等不同通道, 在次序解离过程中又涉及不同的中间体离子, 将可能

存在的解离路径列举如下:



反应路径 (I) 为同步解离过程, 路径 (II)—(IV) 为次序解离过程. 在同步碎裂过程 (I) 中, 当 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+}$ 离子发生库仑爆炸时, 中性氢原子由于没有库仑排斥作用, 其平均动量远小于另外两个荷电碎片. 而 H^+ 和 C_3H_2^+ 由于相互排斥将获得大小相当的动量. 对于次序解离路径 (II)—(IV), 在第一步中所对应的亚稳态中间体离子分别为 H_2^+ , $\text{C}_3\text{H}_3^{2+}$ 和 C_3H_3^+ , 中间体离子存在一定时间之后发生第二步解离.

为了阐明该通道的形成过程, 采用广泛用于三体碎裂机制研究的 Dalitz 图和 Newton 图展示 3 个碎片离子的动量关联, 进而对解离机理进行详细分析. 图 2 给出了 CH_2CCH_2 和 CH_3CCH 分子的 Dalitz 图. 在本研究中, Dalitz 坐标 X 和 Y 被定义为

$$X = (P_b^2 - P_a^2) / (\sqrt{3} \sum P_i^2), \quad (1)$$

$$Y = P_c^2 / \sum P_i^2 - 1/3, \quad (2)$$

其中 a, b, c 分别代表 3 个碎片离子 H^+ , C_3H_2^+ 和 H , P_i ($i \in \{a, b, c\}$) 表示每个碎片的动量大小.

从 Dalitz 图看到明显的宽带状结构, 这是由于中间体离子在进一步解离之前发生转动所造成的典型次序解离特征^[5], 此结构表明直接解离路径 (I) 不是该通道形成的主要原因. 从图 2 可看出, 大多数事件对应的 H 原子的动量比 H^+ 和 C_3H_2^+ 碎片的动量小得多, 即 $p_{\text{C}_3\text{H}_2^+} \approx p_{\text{H}^+} \gg p_{\text{H}}$. 通过动量关系, 次序解离路径 (II) 的贡献可以排除, 原因如下: 在次序解离路径 (II) 中, 第二步解离时 H_2^+ 分解为两个质量相同的 H^+ 和 H 碎片, 可以预期中性粒子 H 的动量应该与质子 H^+ 相当, 即 $p_{\text{H}^+} \approx p_{\text{H}}$, 这与 Dalitz 图中呈现的动量关系不符.

而对于次序解离路径 (III) 和 (IV), 均会导致 $p_{\text{C}_3\text{H}_2^+} \approx p_{\text{H}^+} \gg p_{\text{H}}$. 路径 (III) 要求 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+}$ 离子有较大的概率解离成 $\text{H} + \text{C}_3\text{H}_3^{2+}$, 而 Mebel 和 Bandrauk^[18] 关于 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+}$ 解离通道的计算表明: $\text{C}_3\text{H}_4^{2+}$ 形成 $1\text{-C}_3\text{H}_3^{2+} + \text{H}$ 和 $\text{CHCHCH}^{2+} + \text{H}$ 所

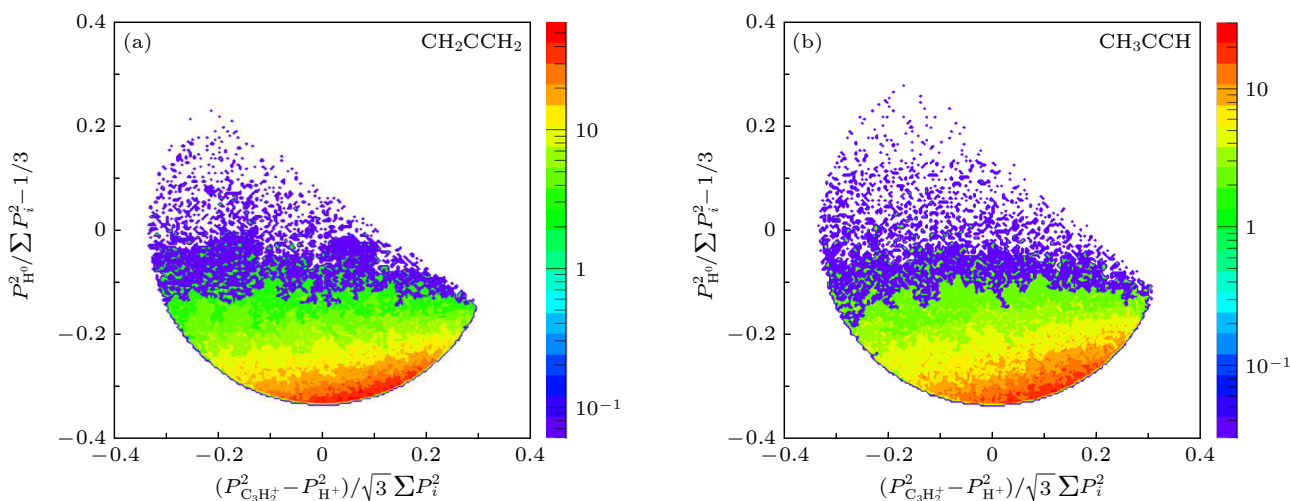


图 2 (a) CH_2CCH_2 和 (b) CH_3CCH 三体解离 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 过程的 Dalitz 图

Fig. 2. Dalitz plot for three-body dissociation channel $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ of (a) CH_2CCH_2 and (b) CH_3CCH .

对应的势能值远高于 $c\text{-C}_3\text{H}_3^+ + \text{H}^+$ 和 $1\text{-C}_3\text{H}_3^+ + \text{H}^+$ 的势能, 即从 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+}$ 解离生成 H 原子的概率远小于产生 H^+ . 据此可以推断路径 (III) 不是主要贡献, 通道 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 主要来自次序解离路径 (IV).

为了进一步确认以 C_3H_3^+ 作为中间体离子的次序解离路径 (IV) 是实验观测到的 $\text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 通道的主要贡献, 进一步在图 3 中给出该通道的 Newton 图. 如图 3 所示, 将 H^+ 离子的动量定义为 1 arb. unit, 碎片粒子 C_3H_2^+ 和 H 的动量矢量归一化到 H^+ 离子动量, 分别绘制在 Newton 图的上、下半平面上. 其中图 3(a) 和图 3(g) 分别是 CH_2CCH_2 和 CH_3CCH 所有 $\text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 事件的 Newton 图. 在次序解离路径 (IV) 中, H^+ 离子在第 1 步解离中释放, 然后 C_3H_3^+ 离子分解为 C_3H_2^+ 离子和中性 H 原子. 在第 2 步解离过程中, C_3H_3^+ 离子在第 1 步获得的动量由 C_3H_2^+ 和 H 碎片分配, 分配比等于碎片离子的质量比. 从图 3(a) 和图 3(g) 可以看到, C_3H_2^+ 和 H 原子动量分布中心位置与其质量比符合.

在此基础上, 以中性 H 碎片的能量范围为条件, 给出不同 H 原子能量条件下的 Newton 图, 分段范围为: 0—0.5 eV (b), (h); 0.5—1.0 eV (c), (i); 1.0—2.0 eV (d), (j); 2.0—4.0 eV (e), (k); 4.0—6.0 eV (f), (l). 从分段 Newton 图中可以清晰地观察到两个半圆形结构, 这是次序解离过程的典型特征. 由于在第 1 步解离过程中, 出射的质子与 C 链并不在一条直线上, 中间体 C_3H_3^+ 离子在与质

子的库仑作用下会获得一定的角动量而发生旋转, 旋转的 C_3H_3^+ 离子在与质子相互远离的过程中进一步发生第二步解离, 产生 C_3H_2^+ 与中性 H 原子, 从而形成了 Newton 图中上下两个半圆环结构. 同时注意到图 3(a) 与图 3(b) 和图 3(g) 与图 3(h) 并不是典型的半圆型结构, 这是由于随着 H 原子能量的降低半圆环直径连续减小至 0 造成的.

为了进一步确定次序解离通道 (IV) 的贡献, 分析次序解离中两步过程所发生方向的夹角 α 的分布. 对于通道 (IV), α 定义为第 1 步出射的 H^+ 的动量 (P_{H^+}) 与在中间态离子 C_3H_3^+ 质心系中 C_3H_2^+ 和中性 H 的动量之差 ($P_{\text{C}_3\text{H}_2^+} - P_{\text{H}}$) 之间的夹角. 对于完全次序解离过程 α 为正弦分布 [5,13].

假定 $\text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 通道全部来自于次序解离路径 (IV), 即 H^+ 为第一步出射的粒子, 图 4(a) 和图 4(b) 分别为 CH_2CCH_2 和 CH_3CCH 分子所对应 α 角分布. 从图 4(a) 和图 4(b) 可以看出, 两个分子的 α 分布都与正弦分布 (蓝色实线) 符合. 同时, 以 H 的能量作为条件, 在图 4(c) 和图 4(d) 中分别给出不同能量段的 α 分布, 分段范围依次为 0—0.5 eV, 0.5—1.0 eV, 1.0—2.0 eV, 2.0—4.0 eV, 4.0—6.0 eV. 从图 4(c) 和图 4(d) 可以看出, 对于每一个能量区间, 两个分子的 α 角均服从正弦分布. 值得注意的是, 在 0—0.5 eV 范围内同样满足正弦分布, 进一步表明 Newton 图 3(b) 和图 3(h) 的结构是由于 H 原子能量降低时半圆环直径连续减小而形成的连续区域, 其同样来自于次序解离路径 (IV). α 角分布进一步证明次序解离解

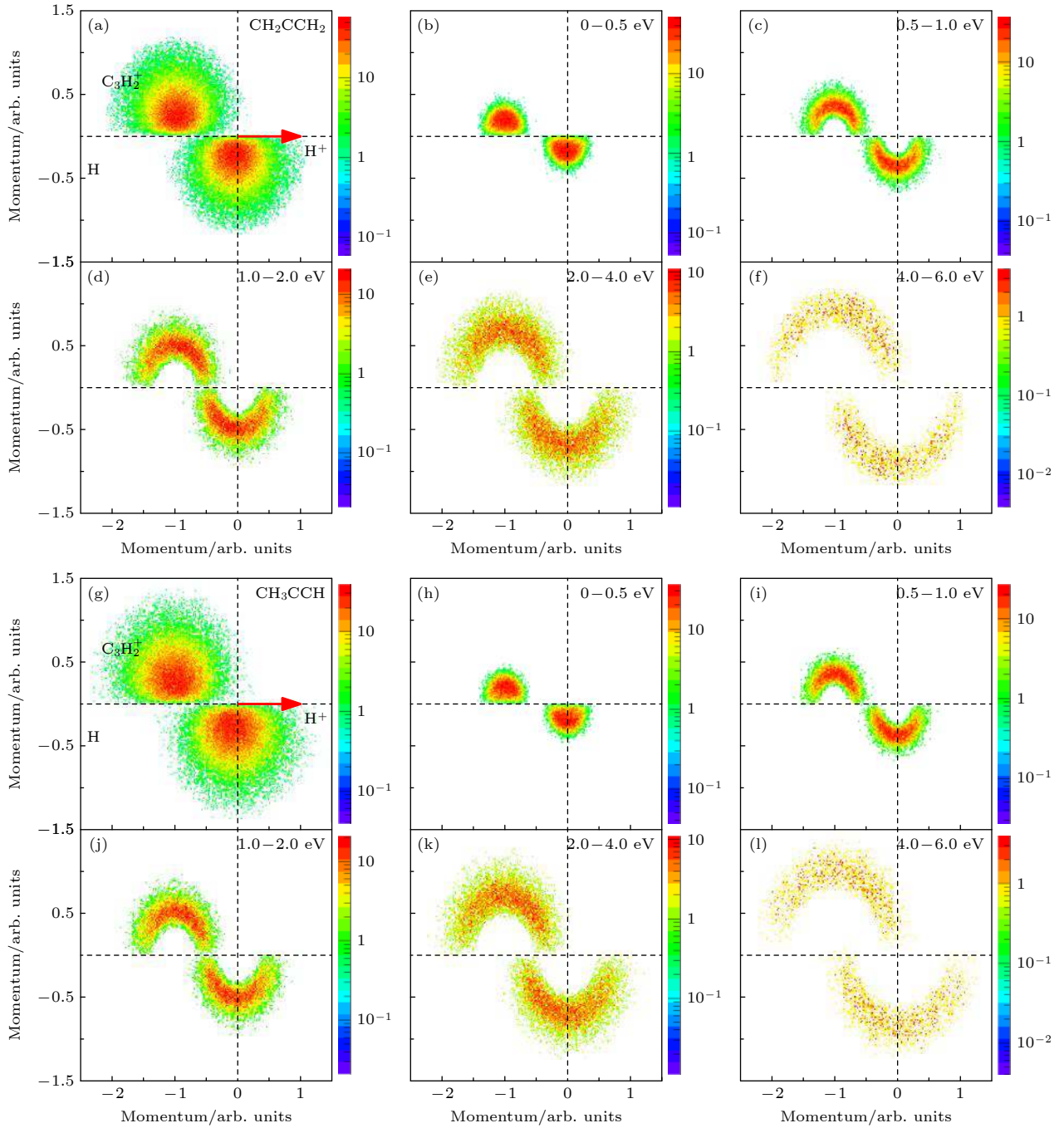


图3 CH_2CCH_2 (a)–(f) 和 CH_3CCH (g)–(l) 三体解离 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 过程的 Newton 图 (a) 和 (g) 包含所有事件, 其他为以第 3 个粒子 H 的能量为选择条件的 Newton 图, 相应能量分别为 0–0.5 eV (b), (h); 0.5–1.0 eV (c), (i); 1.0–2.0 eV (d), (j); 2.0–4.0 eV (e), (k); 4.0–6.0 eV (f), (l)

Fig. 3. Newton diagrams of CH_2CCH_2 (a)–(f) and CH_3CCH (g)–(l) for three-body fragmentation channel $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$. (a) and (g) are Newton diagrams for all the events. The others are for different energy ranges of the neutral H: 0–0.5 eV for (b), (h), 0.5–1.0 eV for (c), (i); 1.0–2.0 eV for (d), (j); 2.0–4.0 eV for (e), (k); 4.0–6.0 eV for (f), (l).

离通道 (IV) 是 $\text{CH}_2\text{CCH}_2^{2+}$ 和 $\text{CH}_3\text{CCH}^{2+}$ 两种同分异构体三体解通道 $\text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 的主要贡献。

同时, 注意到对于通道 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$, 两种同分异构体分子 (CH_3CCH 和 CH_2CCH_2) 在 Dalitz, Newton 和 α 角分布图中均表现出高度

的相似性, 这种相似性表明异构体效应对 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+}$ 出射中性 H 的三体解离过程没有显著影响. 这可能是由于在解离前分子离子的结构会发生变化^[19,28], 导致初始结构的影响降低, 故在 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 通道中并未观测到明显的同分异构效应。

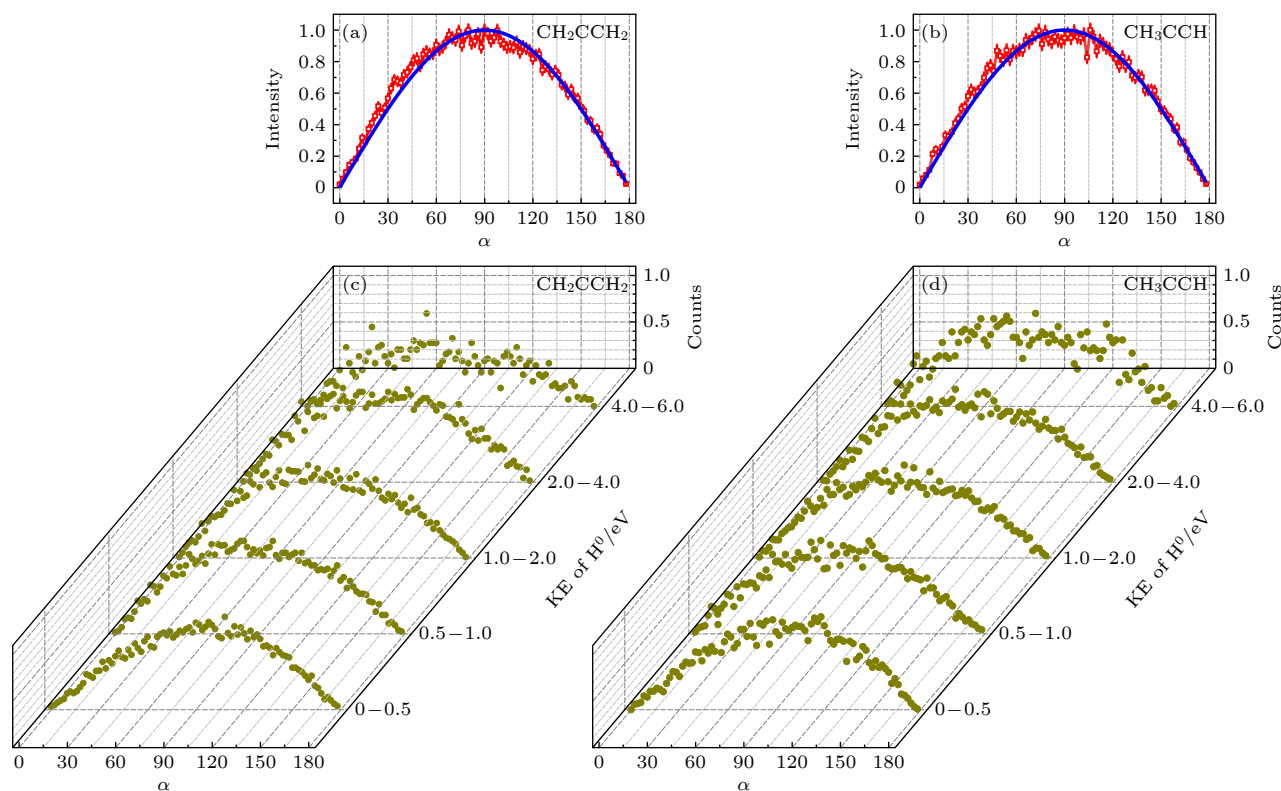


图 4 (a) CH_2CCH_2 和 (b) CH_3CCH 分子次序解离路径 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_3^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 中两步解离过程之间夹角 α 分布; (c), (d) 不同 H 碎片能量条件 (0–0.5 eV, 0.5–1.0 eV, 1.0–2.0 eV, 2.0–4.0 eV, 4.0–6.0 eV) 下 α 分布. 图中蓝色曲线为标准的正弦分布曲线, 所有曲线都在最大值处作归一化处理

Fig. 4. Intensity distribution of the angle α between the first dissociation and second step for sequential dissociation $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_3^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ of (a) CH_2CCH_2 and (b) CH_3CCH ; (c), (d) the intensity distributions of the angle α for different energy region of H (0–0.5 eV, 0.5–1.0 eV, 1.0–2.0 eV, 2.0–4.0 eV, 4.0–6.0 eV). The blue lines are the standard sinusoidal distribution curves. All curves are normalized at the maximum value.

4 结 论

本文研究了丙二烯和丙炔与 50-keV/u Ne^{8+} 离子碰撞导致的三体解离过程, 选取在二维飞行时间谱中观察到的不完全探测通道 $\text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+$, 利用反冲离子的飞行时间和在探测器上的位置信息还原了解离所产生的碎片离子的三维动量, 在此基础上根据动量守恒获得第 3 个碎片的动量信息. 通过 KER 及 3 个碎片的动能分析, 鉴别出未探测碎片为中性 H 的事件, 从而确定 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+}$ 二价离子解离产生 $\text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 的三体解离通道. 通过 3 个碎片离子的动量绘制了该通道的 Dalitz 图、Newton 图, 详细分析了该通道的发生机制, 还给出了第一步和第二步解离方向的夹角 (α 角) 分布, α 角呈正弦分布, 进一步表明次序解离路径 $\text{C}_3\text{H}_4^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_3^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{C}_3\text{H}_2^+ + \text{H}$ 为该通道发生的主要途径. 通过对比两种同分异构分子

的 Dalitz 图、Newton 图和角分布, 表明分子结构不是影响此通道的主要因素.

感谢中国科学院近代物理研究所 320 千伏高压平台工作人员的技术支持.

参考文献

- [1] Janev R K 1995 *Atomic and Molecular Processes in Fusion Edge Plasmas* (Boston: Springer) p3
- [2] Sada P V, Bjoraker G L, Jennings D E, McCabe G H, Romani P N 1998 *Icarus* **136** 192
- [3] Xu S Y, Zhu X L, Feng W T, Guo D L, Zhao Q S, Yan S C, Zhang P J, Zhao D M, Gao Y, Zhang S F, Yang J, Ma X 2018 *Phys. Rev. A* **97** 062701
- [4] 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
- [5] Hsieh S, Eland J H D 1997 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30** 4515
- [6] 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

- [7] Yan S C, Zhu X L, Zhang P J, Ma X, Feng W T, Gao Y, Xu S Y, 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
- [8] Yang H, Wang E L, Dong W X, Gong M M, Shen Z J, Tang Y G, Shan X, Chen X J 2018 *Phys. Rev. A* **97** 052703
- [9] Wu J, Kunitski M, Schmidt L Ph H, Jahnke T, Dörner R 2012 *J. Chem. Phys.* **137** 104308
- [10] Gong X C, Kunitski M, Ph H Schmidt L, Jahnke T, Czasch A, Dörner R, Wu J 2013 *Phys. Rev. A* **88** 013422
- [11] Ding X Y, Haertelt M, Schlauderer S, Schuurman M, Naumov A, Villeneuve D, McKellar A, Corkum P, Staudte A 2013 *Phys. Rev. Lett.* **118** 153001
- [12] Tielens A 2013 *Rev. Mod. Phys.* **85** 1021
- [13] Zhang Y, Jiang T, Wei L, Luo D, Wang X, Yu W, Hutton R, Zou Y, Wei B 2018 *Phys. Rev. A* **97** 022703
- [14] Wang E L, 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
- [15] Wang X C, Zhang Y, Lu D, Lu G C, Wei B R, Zhang B H, Tang Y J, Hutton R, Zou Y M 2014 *Phys. Rev. A* **90** 062705
- [16] Kusakabe T, Satoh S, Tawara H, Kimura M 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 328
- [17] Scully S, Senthil V, Wyer J, Shah M, Montenegro E, Kimura M, Tawara H 2005 *Phys. Rev. A* **72** 030701
- [18] Mebel A M, Bandrauk A D 2008 *J. Chem. Phys.* **129** 224311
- [19] Psciuk B T, Tao P, Schlegel H B 2010 *J. Phys. Chem. A* **114** 7653
- [20] Xu H L, Okino T, Yamanouchi K 2009 *J. Chem. Phys. Chem. Phys. Lett.* **469** 255
- [21] Xu H L, Okino T, Yamanouchi K 2009 *J. Chem. Phys.* **131** 1659 151102
- [22] Xu H L, Okino T, Yamanouchi K 2011 *Appl. Phys. A* **104** 941
- [23] Okino T, Watanabe A, Xu H L, Yamanouchi K 2012 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **14** 4230
- [24] Okino T, Watanabe A, Xu H L, Yamanouchi K 2012 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **14** 10640
- [25] Ma C, Xu S Y, Zhao D M, Guo D L, Yan S C, Feng W T, Zhu X L, Ma X W 2020 *Phys. Rev. A* **101** 052701
- [26] Ma X W, Zhang R T, Zhang S F, Zhu X L, Feng W T, Guo D L, Li B, Liu H P, Li C Y, Wang J G, Yan S C, Zhang P J, Wang Q 2011 *Phys. Rev. A* **83** 052707
- [27] Yuan H, Xu S Y, Li T T, Liu Y, Qian D B, Guo D L, Zhu X L, Ma X W 2020 *Phys. Rev. A* **102** 062808
- [28] Li Y T, Xu S Y, Guo D L, Jia S K, Jiang X J, Zhu X L, Ma X W 2019 *J. Chem. Phys.* **150** 144311

Three-body fragmentation dynamics of C_3H_4 induced by 50-keV/u Ne^{8+} ion impact^{*}

Li Tao-Tao¹⁾ Yuan Hang¹⁾²⁾ Wang Xing¹⁾ Zhang Zhen¹⁾ Guo Da-Long²⁾³⁾
 Zhu Xiao-Long²⁾³⁾ Yan Shun-Cheng²⁾³⁾ Zhao Dong-Mei²⁾
 Zhang Shao-Feng²⁾³⁾ Xu Shen-Yue²⁾³⁾† Ma Xin-Wen²⁾³⁾

1) (*MOE Key Laboratory for Nonequilibrium Synthesis and Modulation of Condensed Matter, School of Physics, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China*)

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

3) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 30 November 2021; revised manuscript received 21 January 2022)

Abstract

The experiment on collision between 50-keV/u Ne^{8+} ion and C_3H_4 molecule is carried out by reaction microscopic imaging spectrometer. The process of forming the $\text{C}_3\text{H}_4^{2+}$ divalent ion from propylene (CH_2CCH_2) and proacetylene (CH_3CCH) and then dissociating to produce H^+ and C_3H_2^+ C_3H_3^+ ions and H atom is studied. Using the reaction microscope, the momentum vector of H^+ ion and the momentum vector of C_3H_2^+ ion are directly obtained, and then the momentum of the undetected fragment is reconstructed according to momentum conservation. By analyzing the kinetic energy of the three fragments and the total kinetic energy released from the dissociation process, the events with H atom as the third fragment are discriminated from H^+ , and thus the H^+ ion, C_3H_2^+ ion, and H atom are identified. In addition, it is found that the sequential fragmentation pathway in which H^+ ion and C_3H_3^+ ion are produced in the first step followed by dissociation of C_3H_3^+ into C_3H_2^+ ion and H atom in the second step is the dominant dissociation mechanism according to the detailed analyses of the Dalitz plot, Newton diagram and α distribution.

Keywords: highly charged ions, isomers, fragmentation mechanism, sequential dissociation

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

DOI: 10.7498/aps.71.20212202

^{*} Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2017YFA0402300) and the National Nature Science Foundation of China (Grant No. 11674332).

† Corresponding author. E-mail: s.xu@impcas.ac.cn