

国防科技大学建校 70 周年专题

强飞秒激光场下二氧化碳二聚体
四价离子的多体解离动力学*曾平¹⁾ 宋盼^{1)2)†} 王小伟¹⁾ 赵晶¹⁾ 张栋文¹⁾ 袁建民¹⁾³⁾ 赵增秀^{1)‡}

1) (国防科技大学理学院, 湖南省极端条件物理及应用重点实验室, 长沙 410073)

2) (河南师范大学物理学院, 河南省红外材料光谱测量与应用重点实验, 新乡 453007)

3) (中国工程物理研究院研究生院, 北京 100193)

(2023 年 4 月 29 日收到; 2023 年 5 月 23 日收到修改稿)

开展了强飞秒激光场诱导的二氧化碳二聚体离子 $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 的三体库仑爆炸过程的实验研究. 利用冷靶反冲离子动量成像谱仪测量了关联的碎片离子的三维动量矢量和动能. 结果表明, $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 离子通过序列解离通道和非序列解离通道分解为 $\text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$ 离子. 在序列解离过程中, 弱范德瓦耳斯键先断裂, 然后是强的共价键 $\text{C}=\text{O}$ 断裂; 而在非序列解离过程中, 3 个碎片离子在一次动力学事件内几乎同时产生. 通过对比两个解离通道的事件比率, 表明序列的解离通道在 $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 离子的三体库仑爆炸中占主导作用. 发现这种同时包含范德瓦耳斯键和共价键的二聚体或团簇在多体库仑爆炸过程中相比单体和仅有范德瓦耳斯键的团簇具有特殊的动力学性质, 两种化学键在强场动力学过程中扮演不同的角色.

关键词: 二聚体, 库仑爆炸, 序列解离, 非序列解离**PACS:** 79.77.+g, 34.80.Ht, 33.20.Xx, 33.80.Rv**DOI:** 10.7498/aps.72.20230699

1 引言

二聚体和团簇是原子分子通过弱的范德瓦耳斯键 (van der Waals, vdW) 结合在一起形成的. 通过研究二聚体和团簇的物理和化学性质, 可以填补对单体原子分子行为和凝聚态物质之间的认知空白. 气体分子形成的二聚体通常有着更长的核间距, 这导致了电子局域于两个分子附近, 二聚体两个单体之间的分子轨道几乎不重合. 二聚体物质在强激光场作用下会表现出与单体原子分子不同的电离解离方式, 有着更为丰富的强场动力学现象,

使得二聚体成为研究电荷共振增强电离^[1,2]、原子间的库仑衰变^[3,4]、分子间的库仑衰变^[5,6]、辐射电荷转移^[7,8]等分子动力学过程的理想候选者.

目前, 二聚体和团簇在强激光场中的电离和碎片解离动力学得到了广泛的研究^[9–15]. 由于气体分子组成的二聚体是强共价键和弱 vdW 键共存的复合体, 不同性质的化学键相对激光场的取向影响强场电离以及多电离中电子释放的顺序, 进而影响二聚体的多体解离动力学过程. 二氧化碳二聚体具有平行滑动结构^[16–18], 它在强激光中表现出丰富的动力学现象. 2019 年 Iskandar 等^[19]采用单光子吸收电离的方式, 发现了二氧化碳二聚体在单体的双

* 国家重点研发计划 (批准号: 2019YFA0307703)、国家自然科学基金重大研究计划 (批准号: 91850201)、国家自然科学基金重点项目 (批准号: 12234020)、国家自然科学基金 NSAF 重点项目 (批准号: U1830206) 和国家自然科学基金 (批准号: 11974426, 11974425, 11774322) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: songpan14@nudt.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: zhaozengxiu@nudt.edu.cn

电离阈值时发生分子间库仑衰变的实验证据. 最近的研究表明, $(\text{CO}_2)_2$ 的电离和解离过程强烈地依赖于激光强度, 在低光强下弱 vdW 键在强场电离中起着重要作用^[20].

近年来, 由于激光技术和符合测量技术的进步, 对高价分子离子多体库仑爆炸过程产生的碎片离子的符合测量成为可能. 在强激光场下, 激光与二聚体的相互作用是极其复杂的, 由于库仑排斥力的作用, 光诱导的高电荷分子离子通常是不稳定的并快速解体而发生库仑爆炸. 产生 3 个碎片离子的库仑爆炸过程可通过序列或非序列的方式发生^[21–23], 在序列解离过程中, 碎片离子是分步产生的, 其时间间隔长于中间体的旋转周期, 而非序列解离过程所有碎片离子都是在一次动力学事件中产生的. 通过多体符合测量技术直接测定相关碎片离子的内部量子态和三维动量分布, 可精确地识别和筛选序列解离通道和非序列解离通道. 2016 年, Fan 等^[24]对 $(\text{CO}_2)_2^{3+}$ 离子的三体库仑爆炸通道进行了研究, 结果表明二聚体的三体解离以序列解离通道为主, 弱 vdW 键先断裂, 再是强共价键断裂. 而 Song 等^[25]的研究提供了 $(\text{CO}_2)_2^{3+}$ 离子序列解离和非序列解离都存在的证据, 并尝试揭示了两种解离通道的本质, 它们与 CO_2^{2+} 离子分解为 CO^+ 离子和 O^+ 离子的动力学过程中的亚稳态解离和瞬时解离相一致.

本文在实验上探究了二氧化碳二聚体在强飞秒激光场中发生了四电离之后的解离动力学过程, 利用多体符合测量技术收集了解离通道 $(\text{CO}_2)_2^{4+} \rightarrow \text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$ 产生的所有离子碎片的三维动量和动能. 结果表明, 在强激光场的作用下 $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 离子的三体库仑爆炸通过序列和非序列两种通道发生, 并且序列解离通道占主导作用.

2 实验条件

本文的实验是基于自建的冷靶反冲离子动量成像谱仪系统 (cold-target recoil-ion momentum spectrometer, COLTRIMS)^[26,27] 完成的. 二氧化碳二聚体由 10 bar (1 bar = 10^5 Pa) 的 CO_2 气体经过 30 μm 的喷嘴进入真空腔体超音速膨胀时产生. 通过掺钛蓝宝石激光脉冲放大系统输出中心波长 790 nm, 脉冲持续时间 25 fs, 重复频率 10 kHz 的线偏振激光脉冲, 并且使用焦距为 75 mm 的球面

镜聚焦于分子束上, 实验过程使用的激光峰值光强为 $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 此次实验只采集了离子数据, 激光脉冲从 $(\text{CO}_2)_2$ 分子上电离掉 4 个电子, 产生的离子在 60 V/cm 的匀强电场的约束和引导下到达位于探测腔底部的延迟线位置灵敏探测器 (MCP). 通过探测器获得所有离子碎片的飞行时间和位置信息, 从而重构它们的三维动量.

3 结果与讨论

图 1 给出了强飞秒激光场诱导的二氧化碳超音速分子束产生的 3 个碎片离子的飞行时间关联图, 峰值光强为 $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 它是探测器同一次事件内探测到的第 1 个离子与第 3 个离子的飞行时间之和对第 2 个离子的飞行时间的函数, 称为光子-光子-光子符合谱. 其中沿反对角线方向的亮线表示不同的三体库仑爆炸通道, 而平行或垂直坐标轴的亮线是误符合的结果. COLTRIMS 系统的优点之一是在一次实验中可以记录所有反应通道的数据, 在离线分析中, 来自不同反应通道的数据可通过对实验数据施加不同的筛选条件得以区分.

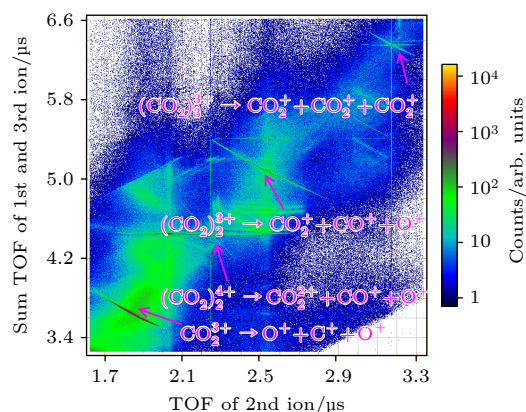


图 1 光子-光子-光子符合谱, 即 CO_2 超音速分子束冷靶在光强为 $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的强飞秒激光场作用下产生的 3 个碎片离子的关联图. 其中横轴是第 2 个离子的飞行时间, 纵轴是第 1 个和第 3 个离子的飞行时间之和
Fig. 1. Coincidence spectrum of the time of flight of three correlated fragmentation ions for CO_2 gas breakup using intense femtosecond laser field, namely, photoion-photoion-photoion coincidence plot. The X axis is the time of flight for the second ion, whereas the Y axis is the sum of the time of flight for the first and third ions.

这里筛选了三体库仑爆炸通道 $(\text{CO}_2)_2^{4+} \rightarrow \text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$ 作为研究对象, 并选择爆炸

通道 $(\text{CO}_2)_2^{4+} \rightarrow \text{CO}_2^{2+} + \text{CO}_2^{2+}$ 和 $\text{CO}_2^{2+} \rightarrow \text{CO}^+ + \text{O}^+$ 作为参考. 对于三体解离通道, 为了保证符合测量的真实性, 设置了相应的筛选条件用来过滤原始的实验数据: 1) 根据反应通道产生的离子种类和数量, 设置了每个激光脉冲事件内 MCP 采集到有且仅有一个 CO_2^{2+} , CO^+ 和 O^+ 离子, 此筛选条件可以保证得到产生 3 个离子碎片的数据; 2) 每个激光脉冲事件内测得的 3 个碎片离子必须满足动量守恒条件: $|\mathbf{P}(\text{CO}_2^{2+}) + \mathbf{P}(\text{CO}^+) + \mathbf{P}(\text{O}^+)| < 10 \text{ a.u.}$, 动量守恒是非常严格的物理条件, 这个筛选条件可以确保 3 个碎片离子是关联的, 也就是来自同一个母体离子, 但是动量守恒条件不能过滤零动量附近的离子, 因此还需要设置第 3 个筛选条件; 3) 它们的相对动量须足够大: $|\mathbf{P}(\text{CO}^+) - \mathbf{P}(\text{O}^+)| > 50 \text{ a.u.}$ 和 $|\mathbf{P}(\text{CO}_2^{2+})| > 50 \text{ a.u.}$, 测量结果显示, 此三体库仑爆炸产生的 3 个碎片离子的动量大小都在 100 a.u. 以上, 因此设置相对动量大于 50 a.u. 是合理的. 通过这些筛选条件能够尽可能地排除误符合事件, 获得的碎片离子可以确保是关联的, 也就是来自同一个 $(\text{CO}_2)_2$ 母体粒子的真实库仑爆炸事件. 通过设置不同的过滤条件, 可以将不同反应通道的数据分离开来, 并且提取出特定反应通道的数据.

为分析三体库仑爆炸通道 $(\text{CO}_2)_2^{4+} \rightarrow \text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$ 的解离机制, 将 3 个关联的碎片离子 $\text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$ 的动量矢量固定在一个平面内获得动量关联图. 首先, 将每一个三体库仑爆炸事件中 CO_2^{2+} 离子的动量归一化赋值为 1 个原子单位, 并以 CO_2^{2+} 离子的动量方向作为 p_x ; 其次, 将另外两个离子 CO^+ 和 O^+ 的动量按照 CO_2^{2+} 离子的动量大小进行归一, 并将 O^+ 离子的动量矢量旋转至动量关联图的上半平面, 将 CO^+ 离子的动量矢量旋转至下半平面, 这样作出的二维动量关联图称为牛顿图 (如后文图 3). 牛顿图可以直观地显示 3 个反应产物的动量关联, 并清晰有效地识别三体库仑爆炸过程的解离机制^[28–30]. 图 2 给出了此三体库仑爆炸过程产生的 CO^+ 和 O^+ 离子的动能关联图, 可以看到两个离子的关联效应主要分为两部分, 其中红色圆圈内的数据表现为 CO^+ 和 O^+ 离子的动能具有确定的值, 说明两个离子是通过直接的库仑爆炸过程产生的, 这是非序列解离的特征; 而红色梯形内的数据表现为 CO^+ 和 O^+ 离子的动能

不是确定的值, 这与序列解离的情况相符合.

将图 2 中的两部分数据分别标记为通道 I 和通道 II, 它们对应的牛顿图分别如图 3(a) 和图 3(b) 所示. 从图 3(a) 可以看出, 牛顿图中两个离子 O^+ 和 CO^+ 的动量矢量分布于两个错位的半圆形的环上, 这种移位源于 CO^+ 和 O^+ 离子的质量不同. 牛顿图中的半圆形结构表明发生了序列的三体库仑爆炸过程, 它是分步解离的. 在第一步中, 二聚体离子 $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 中的弱 vdW 键断裂, 解离成两个 CO_2^{2+} 离子, 这两个离子在库仑排斥力下自由传播; 当第一步产生的两个中间产物 CO_2^{2+} 离子之间的距离足够远且相互作用可以忽略不计时, 其中一个中间产物 CO_2^{2+} 离子会在库仑排斥力作用下进一步破裂而发生第二步解离, CO_2^{2+} 离子中一个共价键断裂产生 CO^+ 和 O^+ 离子, 并且这两步解离过程是相对独立的. 中间产物 CO_2^{2+} 离子在第一步解离时获得角动量, 旋转的 CO_2^{2+} 离子在第二步解离的过程中将角动量分配给 CO^+ 和 O^+ 离子, 导致了序列解离事件产生的 3 个碎片离子的动量矢量之间的夹角发生了变化, 在牛顿图中表现为环形结构. 相比之下, 图 3(b) 中展示的牛顿图 3 个碎片离子的动量分别集中于特定的区域, 没有出现环形的结构, 说明三体解离过程是非序列的, 即 $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 离子在

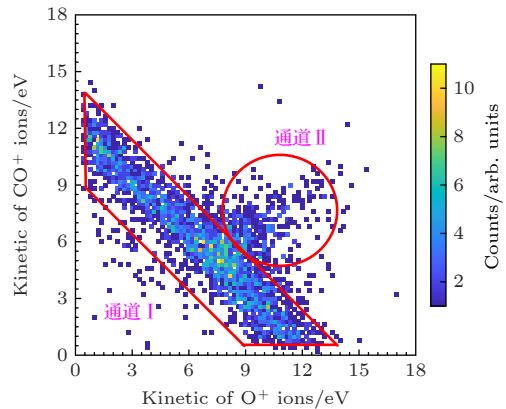


图 2 三体库仑爆炸产生的 CO^+ 和 O^+ 离子的动能关联图. 将数据分为两部分以作为通道筛选的条件, 其中红色梯形内的数据记为通道 I, 此部分数据对应序列解离; 红色圆圈内的数据记为通道 II, 此部分数据对应非序列解离.

Fig. 2. Kinetic energy correlation diagram of CO^+ and O^+ ions generated by three-body Coulomb explosion. We divide the data into two parts, which can be used as the conditions for channel selecting. The data in the red trapezoid is denoted as channel I, which is sequential dissociation; and the data in the red circle is denoted as channel II, which is non-sequential dissociation.

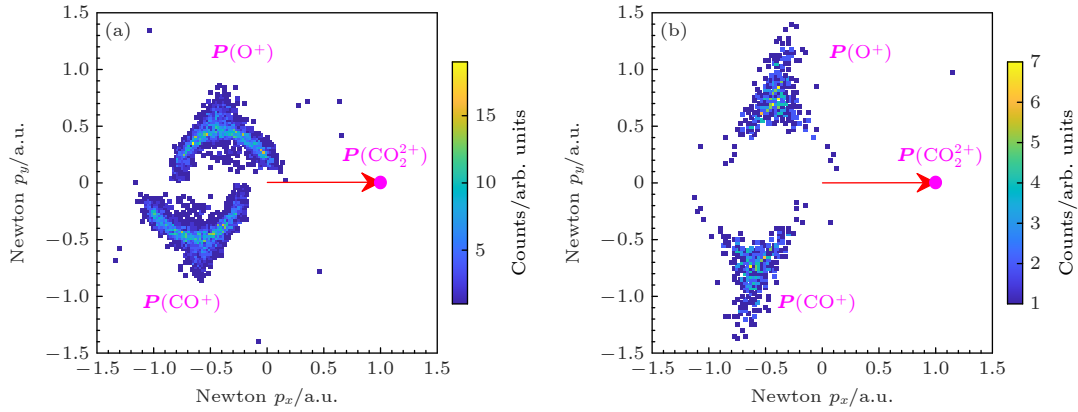


图 3 两种三体库仑爆炸通道对应的牛顿图 (a) 通道 I 对应于序列解离; (b) 通道 II 对应于非序列解离

Fig. 3. Newton diagrams corresponding to two kinds of three-body Coulomb explosion channels: (a) Channel I is sequential breakup; (b) channel II is non-sequential fragmentation.

一次动力学事件中几乎同时破裂成 3 个碎片离子 $\text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$.

这两种解离机制也可以从库仑爆炸释放的能量中进一步区分开来. 图 4 给出了三体库仑爆炸通道 $(\text{CO}_2)_2^{4+} \rightarrow \text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$ 两种解离机制释放的总动能谱 (kinetic energy release, KER). COLTRIMS 系统可以测量每个解离通道产生的所有碎片离子的三维动量, 进而可以获得每个碎片离子的动能, 在特定的解离通道中, 所有产物 (碎片离子) 的动能之和是这个解离过程释放的总动能. 其中黄色正三角线表示解离通道 I 的 KER 谱, 其峰值位于 20.1 eV; 紫色倒三角线为解离通道 II 的 KER 谱, 其峰值位于 21.8 eV, 两个解离通道对应的能量释放有明显的差异. 为了说明 $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 离子两种不同的三体库仑爆炸过程, 选取 $(\text{CO}_2)_2^{4+} \rightarrow \text{CO}_2^{2+} + \text{CO}_2^{2+}$ 和 CO_2 单体的破裂通道 $\text{CO}_2^{2+} \rightarrow \text{CO}^+ + \text{O}^+$ 作为参考, 这两个通道的 KER 谱如图 4 中的棕色方形线 (峰值为 14.8 eV) 和蓝色圆圈线 (峰值为 5.4 eV). 可以看到解离通道 I 释放的能量等于两个参考通道释放的能量之和, 这是由于序列解离过程中的两步解离是相对独立的, 两步解离释放的能量按照动量守恒最终分配给序列解离过程产生的 3 个碎片离子.

如图 2 所示, 梯形区域内 CO^+ 和 O^+ 离子的动能大小此消彼长, 并且两个离子的动能之和几乎不变, 这是由于 CO^+ 和 O^+ 离子的动能除了在序列解离的第二步共价键 ($\text{C}=\text{O}$ 键) 断裂获得的能量之外, 还包含中间离子 CO_2^{2+} 在序列解离第一步 vdW 键断裂的解离中获得的能量. 根据图 3(a) 牛顿图

中出现完整的圆环可知, 中间产物 CO_2^{2+} 离子在解离之前发生了旋转并至少旋转了一个完整的周期 [24]. 在序列解离的第一步解离过程中 CO_2^{2+} 离子在库仑排斥力的作用下除了获得平动动能之外, 还获得了较高的转动动能, 此时 CO_2^{2+} 离子并不处于转动基态, 转动一周需要的时间远小于 CO_2 分子的转动周期 (42.7 ps). 当中间离子 CO_2^{2+} 旋转到不同取向发生第二步解离时, 中间离子 CO_2^{2+} 在第一步中获得的动能以不同的比例分配给 CO^+ 和 O^+ 离子. 解离通道 $\text{CO}_2^{3+} \rightarrow \text{O}^+ + \text{C}^+ + \text{O}^+$ 作为三体库仑爆炸的原型系统被广泛地研究 [31–34]. 通过强飞秒激光脉冲作用产生 CO_2^{3+} 离子的三体库仑爆炸同时存在序列和非序列通道, 但最近的实验结果表明, CO_2^{2+}

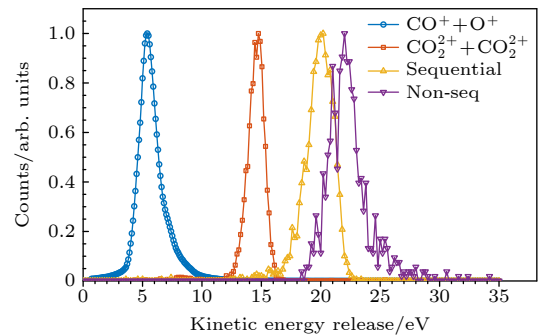


图 4 $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 离子三体库仑爆炸序列解离通道 (黄色正三角线) 和非序列解离通道 (紫色倒三角线) 释放的动能谱, 以及参考通道 $(\text{CO}_2)_2^{4+} \rightarrow \text{CO}_2^{2+} + \text{CO}_2^{2+}$ (棕色方形线) 和 $\text{CO}_2^{2+} \rightarrow \text{CO}^+ + \text{O}^+$ (蓝色圆圈线) 的动能谱

Fig. 4. Kinetic energy release of $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ ion by the three-body Coulomb explosion sequential (yellow triangle line) and nonsequential fragmentation (purple inverted triangular line) channel, and kinetic energy release from reference channels $(\text{CO}_2)_2^{4+} \rightarrow \text{CO}_2^{2+} + \text{CO}_2^{2+}$ (brown square line) and $\text{CO}_2^{2+} \rightarrow \text{CO}^+ + \text{O}^+$ (blue circle line).

($n = 4-6$) 离子只存在非序列的解离通道^[35], 并且三体库仑爆炸产生的所有碎片离子都处于基电子态. 团簇 Ar_3^{n+} ($n = 3-6$) 离子的三体库仑爆炸也均以非序列通道为主, 产生的碎片离子既可以处于基电子态, 也可以处于高里德伯态^[36]. 而 $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 离子的三体库仑爆炸两种解离机制释放的能量都是有且仅有一个高斯分布的峰, 说明 3 个碎片离子都是处于电子基态. 如图 2 所示, 我们注意到通道 I 中的事件数明显多于通道 II, 这是由于 vdW 键相较于强共价键要弱得多, vdW 键更容易断裂, 因此采集到的非序列解离通道的事件数远少于序列解离通道, 这说明 $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 离子主要是以序列解离过程破裂成 $\text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$.

4 结 论

综上所述, 本文利用冷靶反冲离子动量成像谱仪实验研究了二氧化碳二聚体在强飞秒激光场中的多电离和解离动力学. 利用符合测量技术将不同反应通道的数据筛选出来, 通过对相关碎片离子的三维动量和动能进行统计分析之后, 结果表明 $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 离子破碎成 $\text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$ 的三体库仑爆炸通过序列解离和非序列解离两种机制发生, 但是以序列解离机制为主. 其中非序列解离在同一次动力学事件中几乎同时产生 3 个碎片离子. 而序列解离是分步的, 首先, 弱的 vdW 键断裂, $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ 破裂成 $\text{CO}_2^{2+} + \text{CO}_2^{2+}$ 离子; 然后, 其中一个 CO_2^{2+} 离子共价键断裂进一步解离成 $\text{CO}^+ + \text{O}^+$. 根据牛顿图中的圆环结构可知这两步之间时间间隔大于 CO_2^{2+} 离子的旋转周期.

参考文献

- [1] Seideman T, Ivanov M Y, Corkum P B 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 2819
- [2] Wu J, Meckel M, Schmidt L Ph H, Kunitski M, Voss S, Sann H, Kim H, Jahnke T, Czasch A, Dörner R 2012 *Nat. Commun.* **3** 1113
- [3] Schnorr K, Senftleben A, Kurka M, Rudenko A, Foucar L, Schmid G, Broska A, Pfeifer T, Meyer K, Anielski D, Boll R, Rolles D, Kübel M, Kling M F, Jiang Y H, Mondal S, Tachibana T, Ueda K, Marchenko T, Simon M, Brenner G, Treusch R, Scheit S, Averbukh V, Ullrich J, Schröter C D, Moshhammer R 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 093402
- [4] Kim H K, Gassert H, Schöffler M S, Titze J N, Waitz M, Voigtsberger J, Trinter F, Becht J, Kalinin A, Neumann N, Zhou C, Schmidt L Ph H, Jagutzki O, Czasch A, Merabet H, Schmidt-Böcking H, Jahnke T, Cassimi A, Dörner R 2013

- Phys. Rev. A* **88** 042707
- [5] Jahnke T, Sann H, Havermeier T, Kreidi K, Stuck C, Meckel M, Schöffler M, Neumann N, Wallauer R, Voss S, Czasch A, Jagutzki O, Malakzadeh A, Afaneh F, Weber T, Schmidt-Böcking H, Dörner R 2010 *Nat. Phys.* **6** 139
- [6] Zhou J Q, Yu X T, Luo S Z, Xue X R, Jia S K, Zhang X Y, Zhao Y T, Hao X T, He L H, Wang C C, Ding D J, Ren X G 2022 *Nat. Commun.* **13** 5335
- [7] Matsumoto J, Leredde A, Flécharde X, Hayakawa K, Shiromaru H, Rangama J, Zhou C L, Guillois S, Hennecart D, Muranaka T, Mery A, Gervais B, Cassimi A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 263202
- [8] Ren X G, Al Jabbour M E, Dorn A, Denifl S 2016 *Nat. Commun.* **7** 11093
- [9] Ulrich B, Vredenburg A, Malakzadeh A, Meckel M, Cole K, Smolarski M, Chang Z, Jahnke T, Dörner R 2010 *Phys. Rev. A* **82** 013412
- [10] Wu J, Vredenburg A, Ulrich B, Schmidt L Ph H, Meckel M, Voss S, Sann H, Kim H, Jahnke T, Dörner R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 043003
- [11] von Veltheim A, Manschwetus B, Quan W, Borchers B, Steinmeyer G, Rottke H, Sandner W 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 023001
- [12] Amada M, Sato Y, Tsuge M, Hoshina K 2015 *Chem. Phys. Lett.* **624** 24
- [13] 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
- [14] Gong X C, Heck S, Jelovina D, Perry C, Zinchenko K, Lucchese R, Wörner H J 2022 *Nature* **609** 507
- [15] Wang Y L, Lai X Y, Yu S G, Sun R P, Liu X J, Dorner-Kirchner M, Erattupuzha S, Larimian S, Koch M, Hanus V, Kangaparambil S, Paulus G, Baltuška A, Xie X H, Kitzler-Zeiler M 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 063202
- [16] Dehghany M, McKellar A R W, Afshari M, Moazzen-Ahmadi N 2010 *Mol. Phys.* **108** 2195
- [17] Xie X G, Wu C, Liu Y R, Huang W, Deng Y K, Liu Y Q, Gong Q H, Wu C Y 2014 *Phys. Rev. A* **90** 033411
- [18] Schriver A, Schriver-Mazzuoli L, Vigasin A A 2000 *Vib. Spectrosc.* **23** 83
- [19] Iskandar W, Gatton A S, Gaire B, Sturm F P, Larsen K A, Champenois E G, Shivaram N, Moradmam A, Williams J B, Berry B, Severt T, Ben-Itzhak I, Metz D, Sann H, Weller M, Schoeffler M, Jahnke T, Dörner R, Slaughter D, Weber Th 2019 *Phys. Rev. A* **99** 043414
- [20] Song P, Zhu Y L, Yang Y, Wang X W, Meng C S, Zhao J, Liu J L, Lv Z H, Zhang D W, Zhao Z X, Yuan J M 2022 *Phys. Rev. A* **106** 023109
- [21] Lin K, Hu X Q, Pan S Z, Chen F, Ji Q Y, Zhang W B, Li H X, Qiang J J, Sun F H, Gong X C, Li H, Lu P F, Wang J G, Wu Y, Wu J 2020 *J. Phys. Chem. Lett.* **11** 3129
- [22] Rajput J, Severt T, Berry B, Jochim B, Feizollah P, Kaderiya B, Zohrabi M, Ablikim U, Ziaee F, Raju P K, Rolles D, Rudenko A, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 103001
- [23] Yu X T, Zhang X Y, Hu X Q, Zhao X N, Ren D X, Li X K, Ma P, Wang C C, Wu Y, Luo S Z, Ding D J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 023001
- [24] Fan Y M, Wu C Y, Xie X G, Wang P, Zhong X Q, Shao Y, Sun X F, Liu Y Q, Gong Q H 2016 *Chem. Phys. Lett.* **653** 108
- [25] Song P, Wang X W, Meng C S, Dong W P, Li Y J, Lv Z H, Zhang D W, Zhao Z X, Yuan J M 2019 *Phys. Rev. A* **99**

053427

- [26] Ullrich J, Moshhammer R, Dorn A, Dörner R, Schmidt L P H, Schmidt-Böcking H 2003 *Rep. Prog. Phys.* **66** 1463
- [27] Ullrich J, Moshhammer R, Dörner R, Jagutzki O, Mergel V, Schmidt-Böcking H, Spielberger L 1997 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30** 2917
- [28] Neumann N, Hant D, Schmidt L Ph H, Titze J, Jahnke T, Czasch A, Schöffler M S, Kreidi K, Jagutzki O, Schmidt-Böcking H, Dörner R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 103201
- [29] Pitzer M, Kunitski M, Johnson A S, Jahnke T, Sann H, Sturm F, Schmidt L Ph H, Schmidt-Böcking H, Dörner R, Stohner J, Kiedrowski J, Reggeline M, Marquardt S, Schiesser A, Berger R, Schoeffler M S 2013 *Science* **341** 1096
- [30] Lu C X, Shi M H, Pan S Z, Zhou L R, Qiang J J, Lu P F, Zhang W B, Wu J 2023 *J. Chem. Phys.* **158** 094302
- [31] Singh R K, Lodha G S, Sharma V, Prajapati I A, Subramanian K P, Bapat B 2006 *Phys. Rev. A* **74** 022708
- [32] 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
- [33] 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
- [34] Jana M R, Ghosh P N, Bapat B, Kushawaha R K, Saha K, Prajapati I A, Safvan C P 2011 *Phys. Rev. A* **84** 062715
- [35] Wu C Y, Wu C, Fan Y M, Xie X G, Wang P, Deng Y K, Liu Y Q, Gong Q H 2015 *J. Chem. Phys.* **142** 124303
- [36] Xie X G, Wu C Y, Yuan Z Q, Ye D F, Wang P, Deng Y K, Fu L B, Liu J, Liu Y Q, Gong Q H 2015 *Phys. Rev. A* **92** 023417

SPECIAL TOPIC—The 70th anniversary of National University of Defense Technology

Dynamics of many-body fragmentation of carbon dioxide dimer tetravalent ions produced by intense femtosecond laser fields*

Zeng Ping¹⁾ Song Pan^{1)2)†} Wang Xiao-Wei¹⁾ Zhao Jing¹⁾

Zhang Dong-Wen¹⁾ Yuan Jian-Min¹⁾³⁾ Zhao Zeng-Xiu^{1)‡}

1) (Hunan Key Laboratory of Extreme Matter and Applications, College of Science, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China)

2) (Henan Key Laboratory of Infrared Materials & Spectrum Measures and Applications, School of Physics, Henan Normal University, Xinxiang 453007, China)

3) (Graduate School of China Academy of Engineering Physics, Beijing 100193, China)

(Received 29 April 2023; revised manuscript received 23 May 2023)

Abstract

We study experimentally the three-body Coulomb explosion dynamics of carbon dioxide dimer $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ ions produced by intense femtosecond laser field. The three-dimensional momentum vectors as well as kinetic energy are measured for the correlated fragmental ions in a cold-target recoil-ion momentum spectrometer (COLTRIMS). Carbon dioxide dimer is produced during the supersonic expansion of $(\text{CO}_2)_2$ gas from a 30 μm nozzle with 10 bar backing pressure. The linearly polarized laser pulses with a pulse duration (full width at half maximum of the peak intensity) of 25 fs, a central wavelength of 790 nm, a repetition rate of 10 kHz, and peak laser intensities on the order of $8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ are produced by a femtosecond Ti:sapphire multipass amplification system. We concentrate on the three-particle breakup channel $(\text{CO}_2)_2^{4+} \rightarrow \text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$. The two-particle breakup channels, $(\text{CO}_2)_2^{4+} \rightarrow \text{CO}_2^{2+} + \text{CO}_2^{2+}$ and $\text{CO}_2^{2+} \rightarrow \text{CO}^+ + \text{O}^+$, are selected as well for reference. The fragmental ions are guided by a homogenous electric field of 60 V/cm toward microchannel plates position-sensitive detector. The time of flight (TOF) and position of the fragmental ions are recorded to reconstruct their three-dimensional momenta. By designing some constraints to filter the experimental data, we select the data from different dissociative channels. The results demonstrate that the three-body Coulomb explosion of $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ ions break into $\text{CO}_2^{2+} + \text{CO}^+ + \text{O}^+$ through two mechanisms: sequential fragmentation and non-sequential fragmentation, in which the sequential fragmentation channel is dominant. These three fragmental ions are produced almost instantaneously in a single dynamic process for the non-sequential fragmentation channel but stepwise for the sequential fragmentation. In the first step, the weak van der Waals bond breaks, $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ dissociates into two CO_2^{2+} ions; and then one of the C=O covalent bonds of CO_2^{2+} breaks up, the CO_2^{2+} ion breaks into CO^+ and O^+ . The time interval between the two steps is longer than the rotational period of the intermediate CO_2^{2+} ions, which is demonstrated by the circle structure exhibited in the Newton diagram. We find that the sequential fragmentation channel plays a dominant role in the three-body Coulomb explosion of $(\text{CO}_2)_2^{4+}$ ions in comparison of the event ratio of the two fragmentation channels.

Keywords: dimer, Coulomb explosion, sequential breakup, nonsequential fragmentation

PACS: 79.77.+g, 34.80.Ht, 33.20.Xx, 33.80.Rv

DOI: 10.7498/aps.72.20230699

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2019YFA0307703), the Major Research Plan of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 91850201), the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12234020), the Key Program of the NSAF Joint Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. U1830206), and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11974426, 11974425, 11774322).

† Corresponding author. E-mail: songpan14@nudt.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: zhaozengxiu@nudt.edu.cn



强飞秒激光场下二氧化碳二聚体四价离子的多体解离动力学

曾平 宋盼 王小伟 赵晶 张栋文 袁建民 赵增秀

Dynamics of many-body fragmentation of carbon dioxide dimer tetravalent ions produced by intense femtosecond laser fields

Zeng Ping Song Pan Wang Xiao-Wei Zhao Jing Zhang Dong-Wen Yuan Jian-Min Zhao Zeng-Xiu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 187901 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230699

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230699>

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

BCl_3 同位素分离中二聚体的浓度

Concentration of dimers for BCl_3 and rare gas atoms in BCl_3 isotope separation

物理学报. 2022, 71(24): 243401 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221517>

金属纳米颗粒二聚体阵列的消光截面

Extinction cross section of dimer array of metallic nanoparticles

物理学报. 2021, 70(2): 024201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20200964>

劈裂环-盘二聚体结构的多重Fano共振

Multiple Fano resonances in gold split ring disk dimers

物理学报. 2022, 71(2): 027802 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20210855>

等离子体风洞中释放二氧化碳降低电子密度

Electron density depletion by releasing carbon dioxide in plasma wind tunnel

物理学报. 2022, 71(14): 145202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212353>

不依赖激发光偏振方向的芯帽异构二聚体

Core-cap heterodimer independent of polarization direction of excitation light

物理学报. 2022, 71(3): 037801 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211381>

中能 Ne^{4+} 离子诱导的羰基硫分子三体碎裂动力学分析

Three-body fragmentation dynamics of OCS_3^+ induced by intermediate energy Ne^{4+} ion impact

物理学报. 2018, 67(4): 043401 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172163>