

02

## Фрагментация многократно ионизованной молекулы фуллерена

© В.В. Афросимов, А.А. Басалаев, М.Н. Панов, О.В. Смирнов

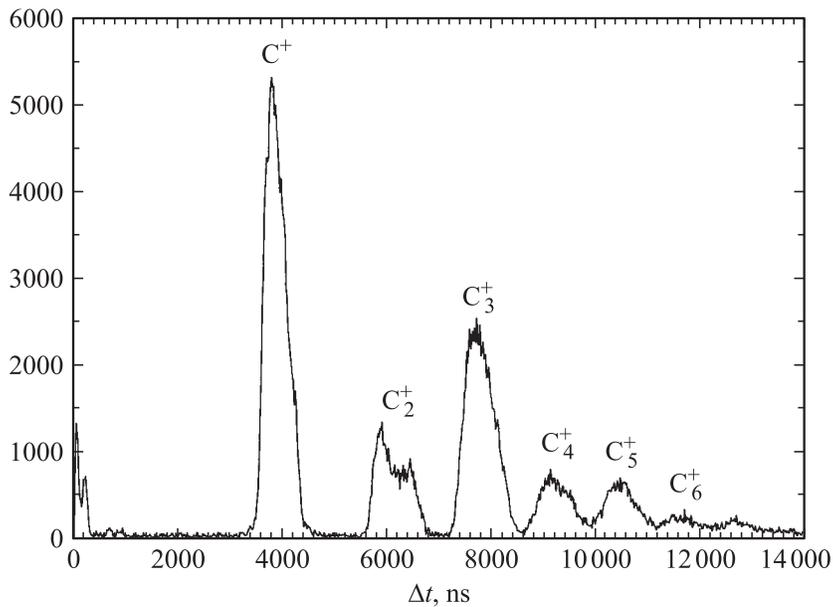
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург  
E-mail: m.panov@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 22 июля 2005 г.

Исследована диссоциация молекул фуллерена  $C_{60}$  на основе анализа кинетических энергий заряженных фрагментов, образованных в результате захвата нескольких электронов молекулы многозарядными ионами  $Ar^{6+}$ . Показано, что кинетическая энергия ионов-фрагментов многократно ионизованной молекулы соответствует механизму ее кулоновского взрыва.

Одним из методов исследования свойств отдельной молекулы фуллерена является изучение процессов столкновения молекул в газовой фазе с налетающими ионами. В результате такого взаимодействия происходят ионизация и фрагментация молекул. Анализ рассеяния налетающих ионов показывает, что ионизация и диссоциация фуллерена происходят преимущественно при расстояниях сближения частиц, превосходящих радиус молекулы фуллерена [1]. Из этого следует, что фрагментация не связана с передачей кинетической энергии налетающей частицы непосредственно атомам углерода в молекуле. В литературе [2,3] приводятся данные о наблюдении стабильных ионов  $C_{60}^{q+}$  с зарядом до  $q = 8$ . Поэтому энергия только кулоновского отталкивания в исследованных в настоящей работе ионов  $C_{60}^{5+}$  не может являться причиной разрыва межатомных связей. В то же время эксперимент показывает, что фрагментация может иметь значительную вероятность и существенно зависит от числа электронов, удаленных из молекулы фуллерена. Это особенно ярко проявляется при захвате электронов многозарядными ионами, который является основным по величине сечения процессом образования ионов фуллерена в области keV-энергий столкновения. Следует отметить, что при увеличении числа захваченных электронов наблюдается диссоциация на более мелкие фрагменты. Захват четырех–пяти электронов из молекулы  $C_{60}$





**Рис. 2.** Масс-спектры ионов-фрагментов при захвате 5 электронов ионом  $Ar^{6+}$  у фуллерена  $C_{60}$ .

В настоящем эксперименте (рис. 1) с помощью времяпролетного масс-спектрометра (TOF) измерялись масс-спектры положительных ионов-фрагментов  $C_m^{k+}$ , образованных в результате распада молекулы фуллерена  $C_{60}$  после многократной ее ионизации в результате захвата электронов налетающими ионами  $Ar^{z+}$ . Стартовым сигналом в масс-спектрометре служил импульс от детектора  $Di$  быстрого иона аргона, конечный заряд которого после столкновения ( $z - s$ ) фиксировался электростатическим анализатором ЕА. Разница конечного и начального зарядовых состояний иона аргона „ $s$ “ определяла минимальный заряд образовавшегося иона  $C_m^{k+}$ . В качестве примера на рис. 2 представлен полный спектр заряженных фрагментов фуллерена, образующихся при захвате пяти электронов шестизарядным ионом  $Ar^{6+}$  с кинетической энергией 60 keV. В этом случае все зарегистрированные фрагменты

являются однозарядными ионами с числом атомов углерода от одного до семи. Форма и величина пика любого иона в спектре определяются вероятностью его образования и пропускной способностью масс-анализатора, которая существенно зависит от начальной энергии образовавшегося иона. Для ионов одной и той же зарядности наибольшую разницу во времени пролета имеют ионы, векторы начальной скорости которых направлены по и против оси масс-анализатора. Таким образом, измерения ширины  $\Delta t$  оснований экспериментальных пиков позволяют определить максимальные кинетические энергии  $E_{\max}$  образованных ионов различных масс  $m$ .  $\Delta t = (kmE_{\max})^{0.5}$ , где коэффициент „k“ определяется напряженностью электрического поля и геометрией системы, извлекающей образованные ионы из области взаимодействия.

При переходе пяти электронов фуллерена на свободные уровни шестизарядного иона аргона выделяется энергия, равная разнице суммарных энергий связей этих электронов в  $C_{60}$  и в образовавшемся однозарядном ионе  $Ar^+$ . Затраты энергии на последовательную ионизацию  $n$  электронов молекулы фуллерена равны  $\sum I_n = \sum (3.5 + 4n)_n = 77.5$  eV, где  $I_n$  — потенциал ионизации иона  $C_{60}^{(n-1)+}$  [4,5]. При заселении пяти свободных электронных уровней иона  $Ar^{6+}$  выделяется энергия 276–303 eV, в зависимости от конечного электронного состояния иона  $Ar^+$  [6]. Затраты потенциальной энергии на увеличение кинетической энергии образующегося иона  $Ar^+$  за счет кулоновского отталкивания от пятизарядного иона фуллерена при их разлете составляют примерно 20 eV при расстоянии сближения частиц, равном радиусу нейтральной молекулы  $C_{60}$  [7]. В результате 178–205 eV расходуется на разрыв межатомных связей в ионе  $C_{60}^{5+*}$  и энергию возбуждения фрагментов.

Поскольку при захвате пяти электронов у  $C_{60}$ , как следует из рис. 2, образуются только легкие однозарядные ионы-фрагменты, их количество в данном случае должно быть не менее пяти. Была исследована корреляция в образовании этих легких ионов и установлено, что при диссоциации отдельного молекулярного иона фуллерена могут возникать любые комбинации однозарядных фрагментов различной массы.

Для оценки величины  $E_{\max}$  каждого из фрагментов на основе ширины их пиков в экспериментальном масс-спектре необходимо учесть аппаратную функцию самого масс-анализатора. За нее была принята

форма пиков ионов  $\text{Ag}^+$  и недиссоциированных ионов  $\text{C}_{60}^+$ . Установленные таким образом величины  $E_{\text{max}}$  для ионов  $\text{C}^+$ ,  $\text{C}_2^+$ ,  $\text{C}_3^+$ ,  $\text{C}_4^+$ ,  $\text{C}_5^+$  оказались равными соответственно 19.8, 19.7, 14, 10.7, 8.4 eV.

При разлете ионов-фрагментов фуллерена в результате кулоновского отталкивания суммарный импульс всей системы не меняется. Из этого следует, что величины скоростей ионов-фрагментов и их энергии должны быть обратно пропорциональными их массе. Сумма максимальных энергий ионов от  $\text{C}_2^+$  до  $\text{C}_5^+$  составляет 52.8 eV, что примерно соответствует электростатической энергии пяти зарядов, расположенных на сфере с радиусом иона фуллерена, а соотношения величин  $E_{\text{max}}$  для различных фрагментов соответствуют разлету под действием только кулоновских сил, т.е. механизму „кулоновского взрыва“. Из приведенной выше зависимости энергии фрагментов от их массы неожиданно низкой оказывается величина энергии одноатомного иона  $\text{C}^+$ , что указывает на то, что эти ионы, по-видимому не образуются в момент начала фрагментации. Тот факт, что пик ионов  $\text{C}^+$  в масс-спектрометрах значительно уже пиков других ионов, отмечался и ранее [8].

Можно предположить, что только часть образующихся ионов-фрагментов сохраняют свои массы в процессе разлета. Эта составляющая ионов и определяет максимальное уширение линий в спектрах ионов-фрагментов. Более крупные возбужденные многоатомные ионы могут во время разлета распадаться с отщеплением легких ионов, в частности  $\text{C}^+$ , в результате чего образуются фракции низкоэнергичных ионов-фрагментов, вносящие вклад в соответствующие линии масс-спектра. Следует отметить, что при таком распаде заметная доля потенциальной энергии преобразуется в кинетическую энергию возникающих нейтральных фрагментов.

**Заключение.** При многократной ионизации молекулы фуллерена за счет захвата электронов многозарядным ионом фрагментация происходит в результате электронного возбуждения молекулы. Захват четырех и более электронов приводит к образованию легких однозарядных ионов-фрагментов. Ионы-фрагменты, образующиеся при диссоциации многозарядного фуллерена, могут иметь кинетические энергии, превышающие 10 eV. Соотношение максимальных кинетических энергий фрагментов различных масс соответствует кулоновскому взрыву многозарядного иона фуллерена, т.е. его распаду в результате кулоновского отталкивания ионов-фрагментов.

## Список литературы

- [1] Афросимов В.В., Басалаев А.А., Кашиников К.В. и др. // ФТТ. 2002. Т. 44. С. 486–487.
- [2] Jin J., Khemliche H., Prior M.H. et al. // Phys. Rev. A. 1996. V. 53. P. 615–618.
- [3] Seifert G., Gutierrez R., Smidt R. // Phys. Lett. A. 1996. V. 211. P. 357–362.
- [4] Javahery G., Vincel H., Petrie S. et al. // Chem. Phys. Lett. 1993. V. 204. P. 467.
- [5] Афросимов В.В., Басалаев А.А., Панов М.Н. // ЖТФ. 1996. Т. 66. С. 10–20.
- [6] Moore C.E. // Atomic Energy Levels. NBS Circular NSRDS-NBS 35. Washington DC, 1971.
- [7] Opitz J., Lebius H., Saint B. et al. // Phys. Rev. A. 1999. V. 59. P. 3562–3568.
- [8] Tomito S., Lebius H., Brenac A. et al. // Phys. Rev. A. 2002. V. 65. P. 053201.