

02;12

Процессы изменения зарядовых состояний при взаимодействии ионов He^{2+} с фуллеренами

© В.В. Афросимов¹, А.А. Басалаев¹, В.П. Белик¹, Ю.В. Майдль¹, М.Н. Панов¹, О.В. Смирнов²

¹Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,
194021 Санкт-Петербург, Россия

²Санкт-Петербургский государственный технический университет,
195251 Санкт-Петербург, Россия

(Поступило в Редакцию 15 января 1997 г.)

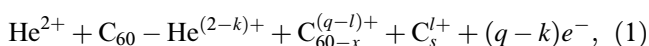
Впервые проведены измерения сечений элементарных процессов изменения зарядового состояния обеих частиц при взаимодействии ионов He^{2+} с молекулами фуллерена в широком интервале eV энергий. Обнаружено, что процессы захвата одного или двух электронов ионами He^{2+} с большой вероятностью сопровождаются дополнительной ионизацией фуллерена, причем с увеличением скорости столкновений вклад процессов захвата с ионизацией возрастает. Захват одного электрона практически не сопровождается фрагментацией фуллерена. Захват двух электронов с наибольшей вероятностью приводит к фрагментации с образованием нескольких легких заряженных осколков и с меньшей вероятностью — с образованием тяжелого заряженного фрагмента, содержащего четное число атомов углерода, и легких фрагментов в незаряженном состоянии.

1. Введение

В настоящее время активно проводятся работы по изучению взаимодействия фуллеренов и их ионов с электронами [1,2] и ионами [3–6]. При масс-спектрометрическом анализе образующихся ионов обнаружено, что в столкновениях фуллеренов как с ионами, так и с электронами происходит образование ионов C_{60}^{q+} , $q = 1–5$. При исследовании ионизации фуллеренов электронным ударом [1] было показано, что фрагментация значительна лишь в процессах с многократной ионизацией молекулы. Относительно невысока роль процессов с фрагментацией фуллерена по сравнению с образованием однозарядного иона C_{60}^+ при столкновении с медленными (10–100 eV) ионами Na^+ и Ne^+ [4,5].

Прецизионный анализ энергии ионов после взаимодействия с фуллеренами, выполненный в работе [7], показал, что процессы чистого возбуждения и ионизации фуллерена в keV диапазоне энергий столкновений пренебрежимы по сравнению с процессами, связанными с захватом одного или двух электронов.

Все перечисленные исследования были основаны на анализе зарядового состояния только одного из партнеров столкновения, за исключением работы [3], в которой измерения были проведены с регистрацией обеих частиц, но лишь при одном значении энергии столкновений. Целью настоящей работы было непосредственное исследование процессов изменения зарядового состояния обоих партнеров столкновения при захвате электронов ионами у фуллеренов в широком диапазоне скоростей столкновений. Очевидно, что процессы могут приводить как к дополнительной ионизации молекулы-мишени, так и к ее фрагментации. Для случая ионов He^{2+} схема исследуемых процессов может быть записана как



где $k = 1, 2$ — число электронов, захваченных налетающим ионом; $(q-k)$ — число свободных электронов, образовавшихся в результате процесса захвата электрона с ионизацией мишени; C_s^{l+} — фрагмент, содержащий s атомов углерода, образовавшийся при фрагментации молекулы; $l = 0, 1, \dots$ — заряд фрагмента.

В дальнейшем для обозначения элементарного процесса без фрагментации используется общепринятая нотация, содержащая начальные и конечные зарядовые состояния обоих партнеров столкновения $\{20(2-k)q\}$.

2. Методика эксперимента

Монокинетический, хорошо коллимированный пучок ионов $^3\text{He}^{2+}$ пересекал струю фуллеренов, выходящую из капилляра эффузионного источника, нагреваемого до температуры 450–480°C. Зарядовое состояние ионов пучка после столкновения анализировалось с помощью 30° цилиндрического электростатического анализатора. Медленные ионы вытягивались из области взаимодействия однородным электрическим полем с напряженностью 50 V/cm и направлялись во времяпролетный анализатор. Потенциалы ионно-оптической системы анализатора были подобраны так, чтобы минимизировать разброс во времени пролета ионов, образовавшихся в области взаимодействия первичного пучка со струей фуллеренов.

Сечения конкретных элементарных процессов (1), определялись из измеряемых в эксперименте спектров времени задержки между моментами регистрации налетающей частицы и частицы отдачи, участвующих в одном и том же столкновении. В схеме регистрации была предусмотрена возможность введения регулируемой временной задержки сигналов в каждый из двух каналов детектирования частиц. Это позволяло разде-

лить процессы, сопровождающиеся фрагментацией на один заряженный и один нейтральный фрагменты, от процессов с фрагментацией на два и более заряженных фрагмента с различной массой. Все приведенные ниже данные о сечениях представлены в одинаковых относительных единицах.

3. Экспериментальные результаты

Захват одного электрона. Типичные масс-спектры частиц мишени, образовавшихся при захвате одного электрона ионами $^3He^{2+}$, приведены на рис. 1. В спектре хорошо видны пики, соответствующие образованию в процессе столкновения одно- и двухзарядных ионов C_{60} и C_{70} . Процессы одноэлектронного захвата $\{2011\}$ и захвата с ионизацией $\{2102\}$ не вызывают заметной фрагментации фуллерена. Лишь при больших энергиях столкновений вблизи пика C_{60}^{3+} , соответствующего процессу захвата электрона с двукратной ионизацией мишени $\{2103\}$, наблюдается серия сателлитов, обусловленных фрагментацией молекулы-мишени с вылетом легких фрагментов с массой, кратной двум атомам углерода. Однако доля ионов C_{60}^{3+} , подвергшихся фрагментации в процессе захвата одного электрона с двукратной ионизацией, составляет менее 10% от сечения указанного процесса.

Во всем исследованном диапазоне скоростей столкновений основным по величине сечения (рис. 2) является процесс $\{2001\}$. Относительная роль процессов захвата с ионизацией мишени $\{201q\}$, ведущих к образованию многозарядных ионов C_{60}^{q+} , $q = 2, 3$ в исследованном диапазоне скоростей возрастает от 14 до 45% с увеличением скорости столкновения. Это объясняется, по-видимому, ростом вероятности захвата одного из внутренних σ -электронов молекулы при увеличении скорости сталкивающихся частиц, что приводит, как следует из электронной структуры фуллерена [8], к образованию автоионизационного состояния. Увеличение вклада сече-

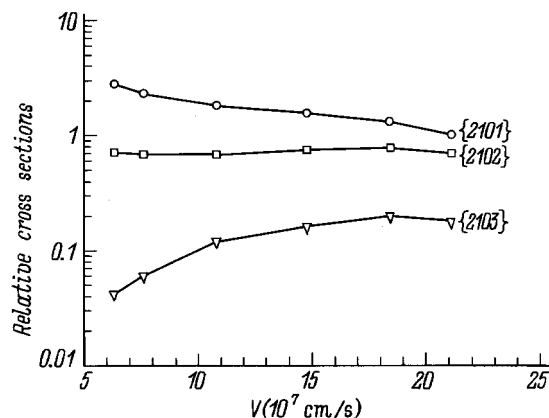


Рис. 2. Относительные сечения элементарных процессов $\{201q\}$, обусловленных захватом одного электрона. \circ — процесс $\{2101\}$, \square — процесс $\{2102\}$, ∇ — процесс $\{2103\}$.

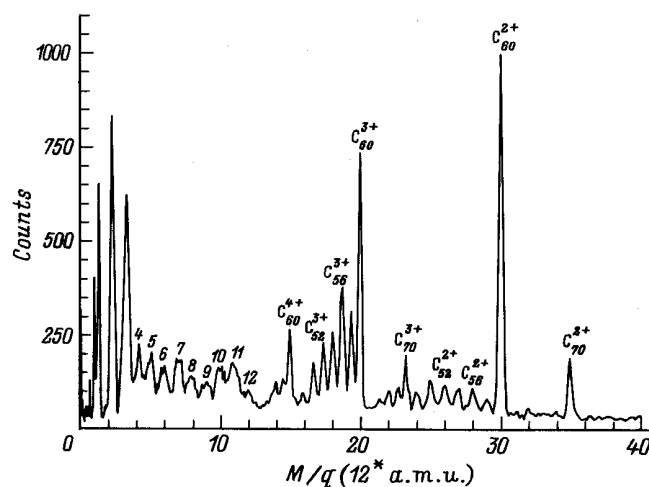


Рис. 3. Масс-спектр ионов отдачи, образующихся в процессах захвата двух электронов. Энергия иона $^3He^{2+}$ $E = 6 \text{ keV}$.

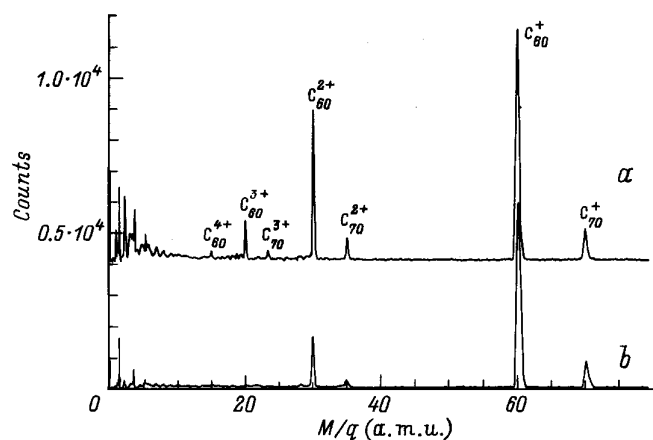


Рис. 1. Масс-спектр ионов отдачи, образующихся в процессах захвата одного электрона. Энергия иона $^3He^{2+}$ $E = 68$ (a), 6 keV (b).

ний процессов захвата с ионизацией в результате захвата внутренних электронов типично для взаимодействия α -частиц с многоэлектронными мишенями [9].

Захват двух электронов. Масс-спектр ионов отдачи, образовавшихся в результате захвата двух электронов ионов He^{2+} (рис. 3), существенно сложнее, чем при захвате одного электрона. У каждого пика, соответствующего образованию ионов C_{60}^{q+} , $q > 1$ находится группа сателлитов, обусловленная процессом фрагментации молекулы. Наиболее интенсивная группа соответствует процессу захвата двух электронов с ионизацией и с образованием серии фрагментов C_{60-s}^{3+} . Вероятность фрагментации ионов C_{60}^{q+} увеличивается с ростом их зарядности, причем процесс осуществляется с отрывом четного числа атомов углерода. Из анализа масс-спектров, полученных при различных временах задержки в канале регистрации налетающей частицы, было установлено, что для рассматриваемых процессов

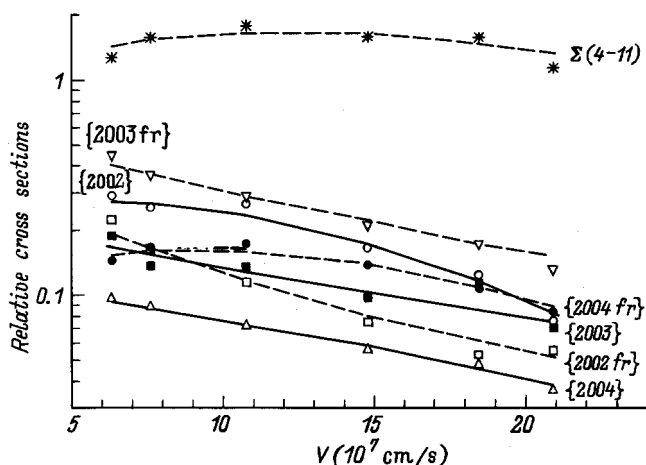


Рис. 4. Относительные сечения элементарных процессов $\{200q\}$, обусловленных захватом двух электронов. Процессы без фрагментации: \circ — $\{2002\}$, \blacksquare — $\{2003\}$, \triangle — $\{2004\}$; процессы с фрагментацией на тяжелый заряженный осколок $C_{(60-2n)}$, $n = 1-6$ и легкие нейтральные осколки: \square — $\{2002 fr\}$; ∇ — $\{2003 fr\}$, \bullet — $\{2004 fr\}$; $*$ — $\Sigma(4-11)$, процессы с фрагментацией на два и более заряженных осколка.

характерно образование легкого фрагмента в незаряженном состоянии. Такая схема распада, как следует из нашей работы [10], энергетически более выгодна, так как коэффициент поляризуемости тяжелого фрагмента значительно больше, чем молекулы C_2 .

В левой части масс-спектра наблюдается группа пиков с массами M/q от 4 атомов до 12, связанная с фрагментацией фуллерена. Экспериментально было показано, что эта часть спектра соответствует процессам с фрагментацией фуллерена на два и более заряженных осколков.

Стабильность многозарядного кластера зависит от его размера, и в работе [1] было показано, что минимальные размеры экспериментально наблюдаемых осколков фуллерена следующие: C_{12}^{2+} , C_{20}^{3+} , C_{27}^{4+} , C_{36}^{5+} . Принимая во внимание эти данные, можно считать, что из наблюдаемых в спектре пиков только помеченные индексами 4 и 5 могут идентифицироваться как соответствующие только однозарядным фрагментам фуллерена C_4^+ и C_5^+ . С другой стороны, из наших экспериментальных данных следует, что небольшой пик, помеченный индексом 12, обусловлен образованием иона C_{60}^{5+} . Пики 6–11 могут соответствовать также многозарядным фрагментам фуллерена.

Сечения элементарных процессов, сопровождающихся захватом двух электронов ионом He^{2+} , приведены на рис. 4. Символом $\{200qfr\}$ обозначены суммарные сечения процессов с образованием фрагментов C_{58}^{q+} – C_{48}^{q+} , а символом $\Sigma(4-11)$ — суммарное сечение процессов с распадом на несколько заряженных легких фрагментов. Вклад канала $\Sigma(4-11)$ в процесс двойного захвата является наибольшим во всем исследованном диапазоне и растет со скоростью сталкивающихся частиц. Именно этот факт позволяет предположить, что процессы с

распадом фуллерена на несколько осколков, требующим большой затраты энергии, обусловлены захватом ионом He^{2+} двух внутренних σ -электронов фуллерена в основное состояние атома гелия. Образование иона отдачи с двумя внутренними вакансиями и последующий оже-распад автоионизационного состояния, а также прямая передача импульса налетающей частицей атомам углерода являются наиболее вероятной причиной доминирующей роли процессов с фрагментацией на несколько заряженных осколков.

Список литературы

- [1] Mark T.D., Scheier P. // Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. 1995. Vol. B98. P. 469–478.
- [2] Volpel R., Hofman G., Steidl M. et al. // Phys. Rev. Lett. 1993. Vol. 71. P. 3439–3431.
- [3] Walsh B., Cocke C.L., Volpel R. et al. // Phys. Rev. Lett. 1994. Vol. 72. P. 1439–1442.
- [4] Wan Z., Christian J.F., Basir Y. et al. // J. Chem. Phys. 1993. Vol. 99. P. 5858–5870.
- [5] Christian J.F., Wan Z., Andersen S.L. // J. Chem. Phys. 1993. Vol. 99. P. 3468–3479.
- [6] LeBrun T., Berry H.G., Cheng S. et al. // Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. 1995. Vol. B98. P. 479–481.
- [7] Selberg N., Barany A., Biederman C. et al. // Phys. Rev. 1996. Vol. A53. P. 874–879.
- [8] Thumm U., Bastug T., Frike B. // Phys. Rev. 1995. Vol. A52. P. 2955–2964.
- [9] Афросимов В.В., Басалаев А.А., Панов М.Н. // ЖТФ. 1994. Т. 64. С. 22–31.
- [10] Афросимов В.В., Басалаев А.А., Панов М.Н. // ЖТФ. 1996. Т. 66. С. 10–20.