

原子分子物理实验中的符合测量技术

刘小井*, 池华敬, 肖志松

北京航空航天大学物理科学与核能工程学院, 北京 100191

*联系人, E-mail: xjliu@buaa.edu.cn

收稿日期: 2016-05-28; 接受日期: 2016-08-09; 网络出版日期: 2017-01-04

国家自然科学基金(编号: 11574020)和青年千人基金资助

摘要 原子分子物理的研究对象是原子或者数个原子组成的小分子。因为研究对象结构简单, 所以要求研究的实验手段能够尽可能全面的从多个角度测量研究对象的新特性, 最好能够实时跟踪这些特性的演化。这种科学需求让我们不停地提升仪器的技术指标和灵活性。本文回顾了常常使用的几种符合测量装置, 它们分别基于: 源区无场电子飞行谱仪、电子能量分析器、磁瓶谱仪、反应谱仪、速度成像谱仪, 它们用于基于超快激光、自由电子激光和同步辐射的原子分子实验。在此我们介绍它们的原理, 比较它们之间的异同, 重点描述最近的科学需求和技术突破点, 并展望未来的发展方向。

关键词 符合测量, 超快激光, 自由电子激光, 同步辐射

PACS: 32.80.-t, 33.80.-b, 33.20.Xx

1 引言

原子分子是化学反应中的最小单元, 通过研究它们在光场下的激发、电离和解离, 人们逐步加深对微观世界中各种反应机理的理解。例如最早期对氢原子和氦原子的光谱研究是量子力学的基石之一^[1]。而半个多世纪以来, 同步辐射光^[2]、激光^[3,4]、自由电子激光^[5-7]等先进光源技术的发展, 为原子分子物理研究提供了更强有力的激发源。实验探测手段包括光吸收谱^[8]、电子能谱^[9]、离子质谱^[10]、电子/离子成像^[11]、以及多粒子符合测量^[12-15]。另外电子碰撞方法是光吸收方法有益的补充^[1]。与其他的学科, 如生物学、凝聚态物理、材料科学等等学科相比, 原子分子物理研

究的对象是单个原子或者多原子分子, 几何结构非常简单。这样简单的对象在历经多年研究后却依然热点不断, 这是因为量子多体问题几乎没有解析求解的方法, 理论模拟计算过程中必然引入各种近似和相应参数, 常常造成理论预言的不确定性。原子分子是极其方便而且纯粹的观测量子多体状态的实验靶材。随着各种实验技术的发展, 我们常常更依赖从实验观测中得到原子分子内部量子多体纠缠和演化过程的细节, 然后完善和发展理论模型, 最终这些理论可以扩展到其他领域。

弱光场对原子分子内场来说是微扰, 而强光场则可以同原子分子内场相比拟, 光与原子分子作用可以分别用微扰理论或含时Schrödinger方程来描述。各种

引用格式: 刘小井, 池华敬, 肖志松. 原子分子物理实验中的符合测量技术. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2017, 47: 033003
Liu X J, Chi H J, Xiao Z S. The coincident measurement in the experimental atomic molecular research (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2017, 47: 033003, doi: [10.1360/SSPMA2016-00269](https://doi.org/10.1360/SSPMA2016-00269)

描述的有效性可用Keldysh参数 γ 来表征^[16]:

$$\gamma = \sqrt{\frac{IP}{2U_p}}, \quad (1)$$

IP 是电离能, $U_p = 9.3I(10^{14} \text{ W cm}^{-2})\lambda^2(\mu\text{m})$ eV是ponderomotive势(自由电子在激光场内能获得的平均动能), I 是光强, λ 是波长. $\gamma \gg 1$ 时发生多光子电离, 而 $\gamma \ll 1$ 发生场致电离. 与光学激光相比, 自由电子激光波长短, 电离过程以多光子电离为主. 而同步辐射的光场极弱, $\gamma = \infty$, 只能够引发单光子过程.

第三代同步辐射能够提供高亮度、能量从红外到硬X射线能区、高度单色化、高度极化(线偏/圆偏/椭偏)的光子束^[17]. 通过设定光子能量可以选择激发或电离在分子内某个元素原子的内壳层轨道电子. 光束的能宽足够窄, 可以选择激发到电子态的某一个振动分支, 甚至可以选择振动分支的红侧或者蓝侧. 由电偶极跃迁选择定则, 光的极化度能够选择激发态或者电离态的对称性.

超快超强激光技术得到很大发展^[3]. 喇叭脉冲放大技术提高了激光脉冲的峰值功率, 喇叭镜色散补偿技术压缩激光脉宽. 目前由相干公司提供的钛宝石激光器产品可以获得强度大于 10^{15} W/cm^2 、脉宽小于 10 fs ($1 \text{ fs}=10^{-15} \text{ s}$)、波长约 800 nm 的激光脉冲, 对应的电场强度已经达到甚至超过了原子的内部库仑势场($\gamma \ll 1$). 强激光脉冲下, 可以产生多光子阈上电离^[18]甚至隧道电离^[19], 而这样短的激光脉宽已经可以与分子成键时间相比或者更快. 飞秒激光脉冲通过与介质的非线性作用, 在高次谐波中可以产生阿秒(10^{-18} s)脉冲^[20]. 通过光学参量放大器产生的光子能量覆盖中红外($3 \mu\text{m}$)到真空紫外(160 nm)范围. 借助飞秒激光及其衍生光脉冲, 我们可以驱动原子分子超快动力学过程^[20]、探测简单分子瞬时结构^[21].

自由电子激光常常被称为第四代光源. 它与第三代同步辐射相比, 峰值亮度高10个量级, 脉宽短至几个飞秒, 有完全的时空相干性. 与光学激光相比, 光子能量可以调谐到X射线波段, 实现普适的X光衍射等结构测量等重要手段. 这就使得研究手段出现跨越式提高, 从而带动相关科学研究进入全新的阶段.

原子分子物理的研究不仅得益于先进光源的不断发展, 也得益于多粒子符合测量技术的发展. 多粒

子符合测量是观测量子多体运动行为的最直接的方法, 表现为在实验上测量同一个反应事例产生的几个粒子碎片的物理参数. 由于这些粒子碎片来源于同一个母体, 所以它们的参数间存在内禀关联. 这些内禀关联信息可以分为粒子种类之间的关联、粒子能量/动量之间的关联、粒子运动方位角之间的关联等等. 由此人们可以区分不同的反应通道、特定反应通道内各个粒子间的量子纠缠. 在这里我们回顾实验原子分子物理中的多粒子符合测量及其应用, 包括源区无场电子飞行谱仪、电子能量分析器、磁瓶谱仪、反应谱仪、速度成像谱仪. 这些技术的详细综述超出本文能够概括的范围, 在此我们从最新的科学需求和技术突破点来介绍它们下一步发展的可能方向.

2 各种符合实验手段介绍

原子分子与光脉冲作用后, 可以产生多个离子碎片和多个电子. 由不同的粒子的不同物理参数组合, 符合测量可以分为电子-电子、离子-离子、电子-离子等方式. 实验中要控制计数率保证每一个光脉冲下发生多个反应事例的可能性非常小, 由此确保所有的电子或离子来自同一个事例.

2.1 基于源区无场电子飞行谱仪的符合测量装置

源区无场电子飞行谱仪测量光脉冲与电子被探测的时间差, 从而计算出电子初始动能. 1998年, Becker课题组^[22,23]在HASYLAB用多个此类电子飞行谱仪组成电子-电子符合谱仪(见图1(a)), 同时测量了Xe原子4d电子电离后的光电子和Auger电子. 实验观察到当这两个电子的动能相同时, 微分截面出现干涉相消, 证实Auger过程的两步模型在这种情况下失效. 随后Berrah等人^[24]在ALS也建造了类似的装置. 类似的仪器常常用在基于超快激光的实验中, 如测量Streaking效应^[25].

虽然源区无场电子飞行时间谱仪的能量分辨 $\Delta E/E \sim 1\%$, 几何收集角约 $0.1\% \cdot 2\pi$, 但是它的能量窗非常宽, 有助于揭示反应过程中多个电子之间的动能分配, 例如nonsequential double Auger过程中两个Auger电子的动能均可以在 $0\text{--}160 \text{ eV}$ 间连续变化(见图1(b))^[26]. 其中一个飞行时间谱仪可以旋转, 这样可以测出各个电子发射角之间的关联.

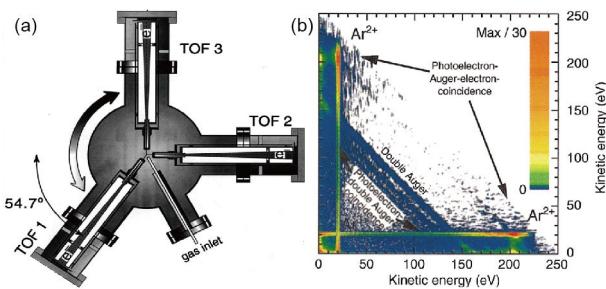


图1 (网络版彩图)由多个飞行时间谱仪组成的电子/电子符合谱仪(a)^[23]及其测量能谱(b)^[26]

Figure 1 (Color online) (a) A e-/e- coincident setup composed of several field-free e-TOF spectrometers [23] and (b) a typical 2D map that indicates the correlation between the kinetic energy [26].

用一组源区无场电子飞行时间谱仪与离子飞行时间谱仪组合在一起, 可以实现电子-离子符合测量^[27], 见图2。Rolle等人^[28]用此装置测量了N₂分子内壳层电子电离的分子坐标光电子角分布, 而且区分了内壳层的g/u分支。在LCLS X射线自由电子激光设施的一个实验站就属这种类型。

2.2 基于电子能量分析器的符合测量装置

通常用基于半球能量分析器的电子谱仪测量高分辨电子能谱, 但对于多重符合测量而言, 测量效率是非常重要的因素。即便VG Scientia公司的最新产品EW4000, 其几何收集角约0.4% 2π, 再考虑到有限的电子动能窗口, 最终单电子测量效率约0.008%。这是电子-电子符合实验中基本不用标准电子谱仪的原因。

尽管基于半球能量分析器的电子谱仪很少见于电子-电子符合测量, 但是由于在测量高动能电子时可得到较好的能量分辨, 常被用于高动能电子-离子符合测量^[29]。由于在符合测量中半球能量分析器探测效率低的缺点一直深深为人诟病, 所以其他类型的电子能量分析器一直在开发中。其中比较常见的是双环面能量分析器(Double Toroidal Analyzer)^[30-33], 它的优点是分析器出口色散面是一个平面圆环, 便于使用位置灵敏探测器提高测量效率。如图3所示, 我们的双环面电子能量分析器能够收集发射极角在(54±3)°范围内的电子, 角度收集效率约4.2%, 比半球能量分析器高10倍以上。缺点是半球能量分析器是自制的, 所以没有商业产品都会配备的电子光学透镜工作表。由于每次测量的实验条件不尽相同, 所以一般需要调试几天。针对这个问题, 最近我们寻找到设计透镜工作表

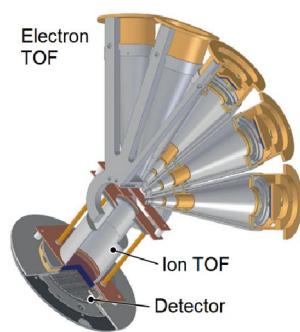


图2 (网络版彩图)多个电子TOF与离子TOF组成的符合测量装置^[27]

Figure 2 (Color online) A e-ion coincident setup consists of several e-TOFs and an i-TOF [27].

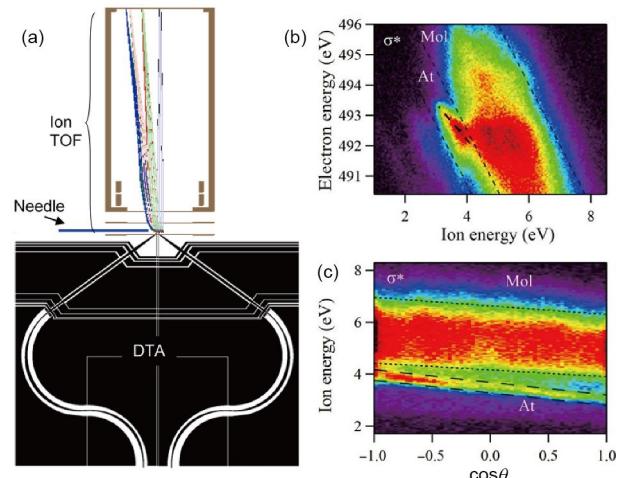


图3 (网络版彩图) (a) EPICEA电子离子符合测量装置; (b) O₂分子共振Auger过程中的电子离子动能关联和(c)离子能量随电子离子夹角的色散

Figure 3 (Color online) (a) The EPICEA electron-ion coincident setup; (b) the correlation between the electron energy and the ion energy, and (c) the dispersion of the ion energy as function of the angle between the electron and the ion.

的方案^[31], 调试时间下降到3 h左右。再加上制作新的三维聚焦的离子飞行时间谱仪, 我们升级了SOLEIL同步辐射上的电子-离子符合测量装置EPICEAA, 结构如图3(a)所示。它的工作原理简介如下: 气体样品经由一根内径0.2 mm的空心针送入真空腔, 与来自同步辐射的软X射线光作用后, 产生的电子经由双曲面能量分析器被探测, 得到电子的动能和方位角。电子的探测信号触发一个电压脉冲推动离子碎片在飞行质谱仪中运动并最终到达离子探测器。由离子的飞行时间和位置计算出离子的初始三维动量。与反应谱仪

类似, 可以组合各个物理参量得到新的复合参量, 并研究它们之间的关联. EPICEA全部收集动能不大于15 eV的离子, 动能分辨 $\Delta E/E$ 约3%. 电子的角度收集效率为4.2%, 在动能减速比10倍时能量分辨 $\Delta E/E$ 可达到0.1%. 这些参数构成目前其他仪器达不到的实验条件.

利用升级后的装置, 我们研究了O₂分子共振Auger过程, 如图3(b)和(c)所示. O₂分子的1 s电子被激发到反键轨道后, Auger退激发和分子解离同时发生, 互相竞争. 换言之, Auger电子发射可以在分子核间距很短时发生, 也可以在分子解离后发生. 这影响电子反冲动量在两个O之间的分配. 发现反冲动能平均分配时, 分子坐标下的光电子角分布呈现双缝干涉, 而反冲动能局域于单个O原子时, 干涉条纹消失. 这是90年前爱因斯坦和波尔的反冲双缝实验的第一次完整实现^[34].

EPICEA谱仪性能上还有改善的空间. 第一是加大DTA电子能量分析器出口的动能宽度. 虽然在电子能谱测量中, 扫描获得宽能量区间是常见的行为, 但是由于符合测量中单能量点需要的时间很长, 扫描经常是不可取的. 第二, 后续的电子光学模拟发现电子和离子的能量分辨还可以进一步改善.

2.3 基于磁瓶谱仪(Magnetic Bottle Spectrometer)的符合测量装置

磁瓶谱仪最早由Kruit和Read^[35]的设计, 被Eland等人^[12]于2003年改进后推向原子分子物理学界. 如图4(a)所示, 作用区的左面有一个磁铁提供强磁场, 右面有螺线管形成的弱磁场. 它的工作原理是这样的: 在非均匀磁场中存在约束电子飞行的磁瓶效应, 使源区(强磁场)产生的不同发射方向的带电粒子(如电子)经由强弱磁场间的过渡区被准直, 然后被弱磁场引到MCP

探测器上. 由电子飞行时间计算出电子动能. 磁瓶谱仪能几乎100%‘4π立体角地收集动能高达500 eV的电子, 能量分辨 $\Delta E/E=1\% \sim 2\%$, 目前是大动能动态范围内高分辨测量多电子能量关联的最有效手段. 如图4(b)所示, 在2011年Lablanquie等人^[36]测量了N₂, CO, CO₂, O₂等分子的内壳层双电离过程, 验证了内壳层双电离的化学位移比内壳层单电离的大. 2016年Feifel等人^[37]验证了CH₃F分子存在三电子Auger退激发过程. 因为仅由飞行时间就能确定电子能量, 所以磁瓶谱仪比较能忍受高计数率, 非常适用于在自由电子激光等重复频率低但峰值强度高的光源上的实验. 例如2013年Frasinski等人^[38]测量了Ne原子被LCLS自由电子激光脉冲照射后各个动能的电子间的相关度, 从而澄清了Ne原子的退激发路径. 2014年McFarland等人^[39]通过测量碱基胸腺嘧啶(Nucleobase Thymine)的Auger电子能谱随激发光脉冲与LCLS自由电子激光脉冲间延时的依赖关系, 研究了这一重要生物分子的激发态构型随时间的变化.

由于磁瓶谱仪中在作用区左面有距离很近的强磁铁, 难于实现电子-离子符合测量. Boguslavskiy等人^[40]在2012年尝试在磁铁上开孔($\phi 1$ cm), 施加脉冲电场后离子经过这个孔被测量. 对电子测量来说, 孔直径太大导致磁场过度减弱, 不利于测量动能大的电子, 且动能分辨下降. 而对离子测量来说, 孔直径偏小, 不利于测量动能较大的离子碎片. Matsuda等人^[41]于2011年和Eland等人^[42]于2012年均尝试了在磁铁和螺线管间施加一个脉冲电场将离子推向探测器, 从而使用同一个探测器测量电子和离子. 由于探测器离作用区距离约2 m多, 所以只能测量动能非常小的离子(如热动能), 其中Eland获得的离子质量分辨仅约40. 2015年

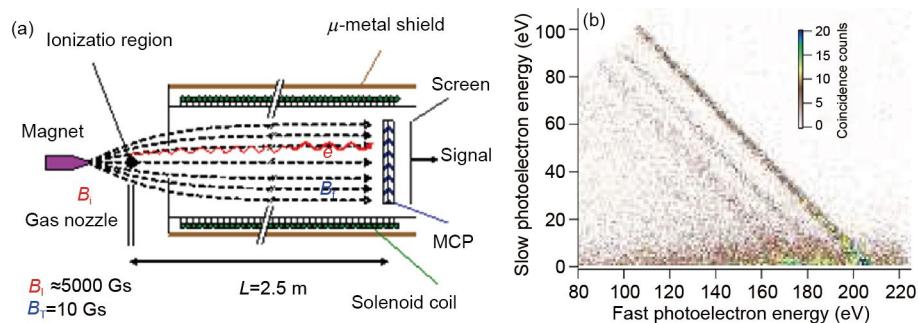


图4 (网络版彩图) (a) 磁瓶电子能谱仪和(b) 典型的电子-电子符合能谱^[36]

Figure 4 (Color online) (a) The magnetic bottle electron energy spectrometer and (b) a typical e-e coincidence 2D map [36].

Eland等人^[43]在垂直方向施加脉冲电场将离子推向离子探测器, 这带来的好处是离子质量分辨得到改善(约120), 坏处是磁铁与作用区距离被拉长, 使得电子动能分辨下降。利用此装置, Eland阐明了Xe原子内壳层电离后的级联Auger衰变路径。迄今为止将离子动量或者动能测量与磁瓶谱仪结合的尝试没有成功。这一结合能够解答一个基本问题: 分子多级Auger过程中多个电子和多个离子碎片之间的电荷、动能是怎样分配的。由于自由电子激光很强, 所以这个问题在自由电子激光脉冲与物质相互作用中更为重要。另外一个技术上的探索方向是: 能否找到一种方法从电子的飞行时间和位置得到电子的全部或者部分动量信息。两年前与法国的Labalanquie和瑞典的Feifel两位教授讨论过这个问题, 他们的科学需求很强烈但是还没有找到有效的技术解决方法。

2.4 反应显微谱仪(Reaction Microscope)

反应显微谱仪由德国法兰克福大学课题组^[14,15]的Schmidt-Bocking, Dorner和Ullrich等人研制, 它的结构如图5(a), 工作原理是这样的, 用超声气体束准备的气体靶与光脉冲作用后, 产生的电子和离子在均匀电场和磁场作用下, 飞向位于谱仪两端的大面积位置灵敏探测器。记录离子和电子到达探测器的时间和位置, 计算出它们的三维动量。更进一步可以组合各个物理参量得到新的参量, 并研究各个物理参量之间的关联。反应谱仪能够100% 4π全立体角收集所有动能不大于50 eV的电子和离子, 这个动态范围涵盖一般超快激光与原子分子作用的物理过程, 并且电子和离子的最佳动能分辨 $\Delta E/E$ 分别约5%和2%。这使得它成为揭示各个离子碎片和电子间量子关联的强有力工具而在国际流行起来^[44–51], 是FLASH固定实验站CAMP和LCLS的固定实验站LAMP的主要组成部分。近八年来国内很多实验组(如北京大学、中国科学院武汉物理与数学研究所、华东师范大学、吉林大学、兰州近代物理研究所、中国科学院上海光学精密机械研究所、华中科技大学、复旦大学、国防科技大学等)陆续引进了这一先进技术, 取得很多物理结果^[52–56]。

2008年在日本工作期间, 开发了用于处理分子坐标下电子角分布的投影分析法^[57], 在此基础上用反应谱仪研究了CO₂分子的C1s内壳层光电离过程^[58]。它的主要反应过程分为三步: 光电离、Auger电子发射、分

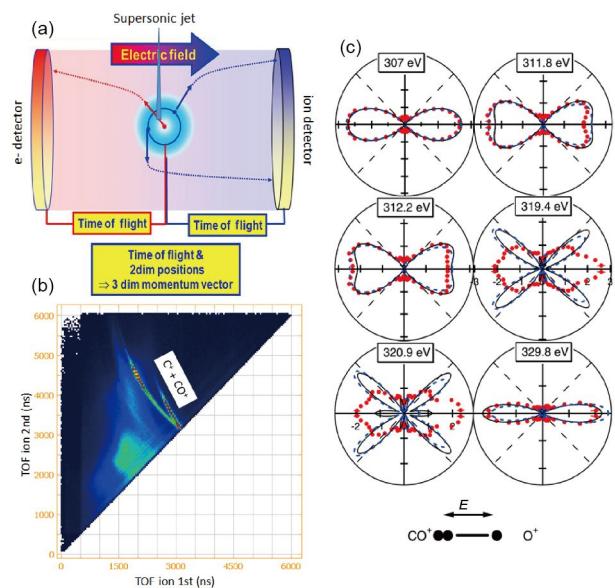
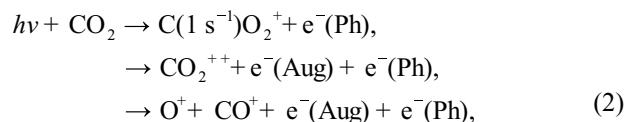


图5 (网络版彩图)(a) 反应谱仪工作原理: 从粒子飞行时间和位置计算出它的三维动量; (b) 从离子飞行时间关联确定反应通道; (c) 对应特定反应通道的分子坐标光电子角分布
Figure 5 (Color online) (a) The working principle of a reaction microscope: Obtain the 3-D momentum of a particle from its time of flight and position; (b) identifying a reaction channel from photoion-photoion coincidence map; (c) the molecular fame photoelectron angular distribution of a specific channel.

子库仑爆炸解离:



从图5(b)所示的离子-离子符合(PIPICO)可知, 除O⁺/CO⁺离子对外, 还有其他的离子碎片通道。通过离子对间的动量守恒, 可以把O⁺/CO⁺通道选出来。由分子轴反冲近似, O⁺/CO⁺碎解时的方向代表了光电离发生时的分子轴取向。抽选分子轴取向与光极化方向相同的反应事例, 可以得到微分截面随光电子发射与分子轴之间夹角的变化, 即分子坐标下的光电子角分布(Molecular Frame Photoelectron Angular Distribution, MFPAD), 如图5(c)所示。虽然基态CO₂是对称线性的, 电离后C(1s⁻¹)O₂⁺也是对称线性的, 但是C1s光电离的MFPAD却可以是非对称的。随后Sturm等人^[59]的独立实验证实了我们的测量, Miyabe等人^[60]的计算表明这种非对称性来源于CO₂分子基态的非对称振动被分子解离冻结。而最近Tsuru等人^[61]认为这种非对称性来源

于CO₂分子的弯曲振动模式.

为了测量高动能电子, Weber等人^[62]曾经对电子施加减速电场, 从而在测量CO分子的C1s Auger电子时电子动能分辨 $\Delta E/E$ 约1 eV/250 eV=0.4%, 代价是电子的接受立体角下降到0.3% $'4\pi$. 近年来, 出现研究分子坐标下电子衍射的物理需求, 技术上需要测量高动能电子, 例如Pullen等人^[63]用反应谱仪研究C₂H₂分子在中红外激光下的激光诱导电子衍射, 最大电子动能高达340 eV, 施加的电场和磁场分别高达51 V/cm和39 Gs, 导致电子动量分辨约15%, 能量分辨约30%. 在基于自由电子激光的光电子衍射实验中也需要测量高动能电子^[64]. 如何有效扩大电子动能的动态范围已经成为急需解决的问题.

2.5 速度成像谱仪

另外一种利用成像方法测量带电粒子动量的手段是速度成像谱仪(Velocity-Map Imaging Spectrometer), 它的工作原理是这样的: 1997年Eppink等人^[11]设计出一种电子光学透镜, 在这种透镜中电子打在探测器上的位置依赖于电子初始动量的横向分量, 而与初始位置几乎无关(称为源区聚焦). 如果反应产生的所有电子都被收集, 并且物理对称轴与探测器平行, 那么从累积电子得到的图像能够计算出它的初始三维动量分布. 这样极大地降低了对带电粒子初始位置的依赖, 极大地改善了能/动量分辨, 能量分辨可达1%. 这个简单而又高效的方法迅速地在化学反应动力学领域流行起来^[65,66].

2002年Lebech等人^[67]尝试了源区位置三维聚焦, 以此从飞行时间和位置计算每个粒子的动量, 如图6所示, 改善了谱仪的能量分辨. 并且他还用面对面的两个探测器测量电子和离子, 并实现了它们的同时三维聚焦. 这样测量到的物理信息与反应谱仪相同. 遵循相似的思路, 十年后Laksman等人^[68]利用两级电场聚焦改进了聚焦透镜系统, 分辨率进一步提高. 二维位置聚焦VMI谱仪的源区拉出电场一般比较强, 这有利于降低初始动能对像斑大小的贡献. 但是电场越强飞行时间散布越小, 导致平行于仪器轴的动量分量分辨率下降. 所以三维聚焦VMI需要均衡考虑这两点.

目前虽然双VMI符合谱仪的能量分辨比反应谱仪稍好一点, 但是后者无疑要成功得多. 这是由于一

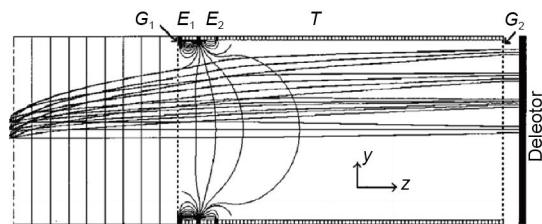


图6 三维源区聚焦速度成像谱仪模拟^[67]

Figure 6 3D focusing in a VMI spectrometer [67].

方面开发反应谱仪的德国Dorner组和Ullrich组做出非常好的物理工作, 他们科学上的成功使得反应谱仪流行起来, 这一市场足以成立Roentdek公司, 反过来又为反应谱仪提供了在技术和设备提供完善的专业支持.

一般在光化学反应动力学研究中, 涉及的电子/离子动能不超过40 eV, 这是以往的VMI谱仪考虑的动态范围. 最近十年来, 测量追踪物质动态几何结构这一基本科学需求变得急迫起来, 相应的物理实验有基于自由电子激光的光电子衍射和激光诱导电子衍射, 这需要高效测量高动能电子. 但是2014年Rolle在LCLS的FEL光电子衍射实验中电子动能低于35 eV, 而2012年Blaga的激光诱导电子衍射实验中用电子飞行时间谱仪测量动能高达900 eV的电子, 测量效率约0.02%. 在这个背景下, Kling等人^[69]研制了可以测量300 eV动能电子的VMI谱仪, 但是这台谱仪在设计中没有考虑非垂直方向发射的电子, 因而存在缺陷. 将VMI谱仪可测动能提高到1000 eV, 而且保证良好的聚焦性能以获得高分辨, 并且电子的德布罗意波长足够短, 成为当前亟待解决的一个目标. 这个技术目标很难在反应谱仪上实现.

3 总结和展望

随着各种实验技术和理论模型的发展, 特别是超快激光和自由电子激光, 原子分子物理研究正面临新的挑战和机遇. 近十年来, 国内不少的实验组借鉴国外先进技术, 更新实验设备, 实验条件与欧美国家的很多实验室可以相比. 由于原子分子结构简单的特点, 国际上最著名的研究所都在研发仪器或者准备研发仪器, 而度过后发优势之后的我们必然也会走在相似的路上. 本文介绍了目前国际上常用的几种符合测量装置及其可能发展的方向, 希望能够对国内的研究组有借鉴作用.

致谢 文中部分内容得益于日本东北大学Ueda教授和欧洲ELI NP的Miron教授的讨论,在此向他们表示感谢.

参考文献

- 1 Xu K Z, Chen X J, Chen H F. Modern Physics (in Chinese). Hefei: Press of University of Science and Technology of China, 2015 [徐克尊, 陈向军, 陈宏芳. 近代物理学. 合肥: 中国科学技术大学出版社, 2015]
- 2 Mai Z H. Synchrotron Light Source and Its Applications (in Chinese). Beijing: Science Press, 2013 [麦振洪. 同步辐射光源及其应用. 北京: 科学出版社, 2013]
- 3 Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics. *Rev Mod Phys*, 2009, 81: 163–234
- 4 Chang Z, Corkum P. Attosecond photon sources: The first decade and beyond [Invited]. *J Opt Soc Am B*, 2010, 27: B9
- 5 Allaria E, Appio R, Badano L, et al. Highly coherent and stable pulses from the FERMI seeded free-electron laser in the extreme ultraviolet. *Nat Photon*, 2012, 6: 699–704
- 6 Emma P, Akre R, Arthur J, et al. First lasing and operation of an ångstrom-wavelength free-electron laser. *Nat Photon*, 2010, 4: 641–647
- 7 Ishikawa T, Aoyagi H, Asaka T, et al. A compact X-ray free-electron laser emitting in the sub-ångström region. *Nat Photon*, 2012, 6: 540–544
- 8 Ueda K. High-resolution inner-shell spectroscopies of free atoms and molecules using soft-X-ray beamlines at the third-generation synchrotron radiation sources. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2003, 36: R1–R47
- 9 Piancastelli M N, Céolin D, Travnikova O, et al. A high-resolution study of resonant Auger decay processes in N₂O after core electron excitation from terminal nitrogen, central nitrogen and oxygen atoms to the 3π LUMO. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2007, 40: 3357–3365
- 10 Wiley W C, McLaren I H. Time-of-flight mass spectrometer with improved resolution. *Rev Sci Instrum*, 1955, 26: 1150–1157
- 11 Eppink A T J B, Parker D H. Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses: Application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen. *Rev Sci Instrum*, 1997, 68: 3477–3484
- 12 Eland J H D, Vieuxmaire O, Kinugawa T, et al. Complete two-electron spectra in double photoionization: The rare gases Ar, Kr, and Xe. *Phys Rev Lett*, 2003, 90: 053003
- 13 Yagishita A. Photoelectron angular distributions from single oriented molecules: Past, present and future. *J Electron Spectrosc Relat Phenom*, 2015, 200: 247–256
- 14 Dorner R, Weber T, Weckenbrock M, et al. Multiple ionization in strong laser fields. *Adv At Mol Opt Phys*, 2002, 48: 1–34
- 15 Ullrich J, Moshammer R, Dorn A, et al. Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: Reaction-microscopes. *Rep Prog Phys*, 2003, 66: 1463–1545
- 16 Keldysh L V. Ionization in field of a strong electromagnetic wave. *Sov Phys Jetp-Ussr*, 1965, 20: 1307
- 17 Watanabe M, Sato S. Introduction to Synchrotron Radiation Research (in Chinese). Shanghai: Shanghai Jiaotong University Press, 2010 [渡边诚, 佐藤繁. 同步辐射科学基础. 上海: 上海交通大学出版社, 2010]
- 18 Bucksbaum P H, Bashkansky M, Freeman R R, et al. Suppression of multiphoton ionization with circularly polarized coherent light. *Phys Rev Lett*, 1986, 56: 2590–2593
- 19 Corkum P B. Recollision physics. *Phys Today*, 2011, 64: 36
- 20 Krausz F, Stockman M I. Attosecond metrology: From electron capture to future signal processing. *Nat Photon*, 2014, 8: 205–213
- 21 Lépine F, Ivanov M Y, Vrakking M J J. Attosecond molecular dynamics: Fact or fiction? *Nat Photon*, 2014, 8: 195–204
- 22 Viefhaus J, Snell G, Hentges R, et al. Interference effects between Auger and photoelectron studied by subnatural linewidth Auger-photoelectron coincidence spectroscopy. *Phys Rev Lett*, 1998, 80: 1618–1621
- 23 Becker U. Angle-resolved electron-electron and electron-ion coincidence spectroscopy: New tools for photoionization studies. *J Electron Spectrosc Relat Phenom*, 2000, 112: 47–65
- 24 Berrah N, Langer B, Wills A A, et al. High-resolution angle-resolved measurements in atoms and molecules using advanced photoelectron spectroscopy at the ALS. *J Electron Spectrosc Relat Phenom*, 1999, 101-103: 1–11
- 25 Cavalieri A L, Müller N, Uphues T, et al. Attosecond spectroscopy in condensed matter. *Nature*, 2007, 449: 1029–1032
- 26 Viefhaus J, Cvejanović S, Langer B, et al. Energy and Angular distributions of electrons emitted by direct double Auger decay. *Phys Rev Lett*, 2004, 92: 083001
- 27 Becker U, Langer B. Correlation and coherence phenomena studied by photoelectron spectroscopy. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect A-Accel Spectrom Dect Assoc Equip*, 2009, 601: 78–87
- 28 Rolles D, Braune M, Cvejanović S, et al. Isotope-induced partial localization of core electrons in the homonuclear molecule N₂. *Nature*, 2005,

- 437: 711–715
- 29 Prümper G, Liu X J, Ueda K, et al. Comparison of the nuclear motion in the ultrafast fragmentation of SF₆, CF₄ and CH₃F. *Radiat Phys Chem*, 2006, 75: 2019–2023
- 30 Miron C, Simon M, Leclercq N, et al. New high luminosity “double toroidal” electron spectrometer. *Rev Sci Instrum*, 1997, 68: 3728–3737
- 31 Liu X J, Nicolas C, Miron C. Design of a lens table for a double toroidal electron spectrometer. *Rev Sci Instrum*, 2013, 84: 033105
- 32 Lower J, Panajotović R, Bellm S, et al. Invited article: An improved double-toroidal spectrometer for gas phase (e,e) studies. *Rev Sci Instrum*, 2007, 78: 111301
- 33 Xu C K, Zhang P K, Li M, et al. A double toroidal analyzer for scanning probe electron energy spectrometer. *Chin Phys B*, 2014, 23: 073402
- 34 Liu X J, Miao Q, Gel'mukhanov F, et al. Einstein-Bohr recoiling double-slit gedanken experiment performed at the molecular level. *Nat Photon*, 2015, 9: 120–125
- 35 Kruit P, Read F H. Magnetic field paralleliser for 2π electron-spectrometer and electron-image magnifier. *J Phys E-Sci Instrum*, 1983, 16: 313–324
- 36 Lablanquie P, Penent F, Palaudoux J, et al. Properties of hollow molecules probed by single-photon double ionization. *Phys Rev Lett*, 2011, 106: 063003
- 37 Feifel R, Eland J H D, Squibb R J, et al. Ultrafast molecular three-electron auger decay. *Phys Rev Lett*, 2016, 116: 073001
- 38 Frasinski L J, Zhaunerchyk V, Mucke M, et al. Dynamics of hollow atom formation in intense X-ray pulses probed by partial covariance mapping. *Phys Rev Lett*, 2013, 111: 073002
- 39 McFarland B K, Farrell J P, Miyabe S, et al. Ultrafast X-ray Auger probing of photoexcited molecular dynamics. *Nat Commun*, 2014, 5: 4235
- 40 Boguslavskiy A E, Mikosch J, Gijsbertsen A, et al. The multielectron ionization dynamics underlying attosecond strong-field spectroscopies. *Science*, 2012, 335: 1336–1340
- 41 Matsuda A, Fushitani M, Tseng C M, et al. A magnetic-bottle multi-electron-ion coincidence spectrometer. *Rev Sci Instrum*, 2011, 82: 103105
- 42 Eland J H D, Linusson P, Mucke M, et al. Homonuclear site-specific photochemistry by an ion-electron multi-coincidence spectroscopy technique. *Chem Phys Lett*, 2012, 548: 90–94
- 43 Eland J H D, Slater C, Zagorodskikh S, et al. Ion charge-resolved branching in decay of inner shell holes in Xe up to 1200 eV. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2015, 48: 205001
- 44 Eckle P, Pfeiffer A N, Cirelli C, et al. Attosecond ionization and tunneling delay time measurements in helium. *Science*, 2008, 322: 1525–1529
- 45 Erk B, Boll R, Trippel S, et al. Imaging charge transfer in iodomethane upon X-ray photoabsorption. *Science*, 2014, 345: 288–291
- 46 Kunitski M, Zeller S, Voigtsberger J, et al. Observation of the Efimov state of the helium trimer. *Science*, 2015, 348: 551–555. arXiv: 1512.02036
- 47 Meckel M, Comtois D, Zeidler D, et al. Laser-induced electron tunneling and diffraction. *Science*, 2008, 320: 1478–1482
- 48 Pitzer M, Kunitski M, Johnson A S, et al. Direct determination of absolute molecular stereochemistry in gas phase by coulomb explosion imaging. *Science*, 2013, 341: 1096–1100
- 49 Sansone G, Kelkensberg F, Pérez-Torres J F, et al. Electron localization following attosecond molecular photoionization. *Nature*, 2010, 465: 763–766
- 50 Weber T, Czasch A O, Jagutzki O, et al. Complete photo-fragmentation of the deuterium molecule. *Nature*, 2004, 431: 437–440
- 51 Dörner R, Weber T, Giessen H, et al. Correlated electron emission in multiphoton double ionization. *Nature*, 2000, 405: 658–661
- 52 Li M, Liu Y, Liu H, et al. Subcycle dynamics of coulomb asymmetry in strong elliptical laser fields. *Phys Rev Lett*, 2013, 111: 023006
- 53 Wu C, Wu C Y, Song D, et al. Nonsequential and sequential Fragmentation of CO₂³⁺ in intense laser fields. *Phys Rev Lett*, 2013, 110: 103601
- 54 Gong X, Kunitski M, Schmidt L P H, et al. Simultaneous probing of geometry and electronic orbital of ArCO by Coulomb-explosion imaging and angle-dependent tunneling rates. *Phys Rev A*, 2013, 88: 013422
- 55 Hu Z L, Lai X Y, Liu X J, et al. Above-threshold ionization of diatomic molecules in an intense laser field: Molecular alignment effects. *Phys Rev A*, 2014, 89: 043401
- 56 Zhang S F, Fischer D, Schulz M, et al. Two-center interferences in dielectronic transitions in H₂⁺ + He collisions. *Phys Rev Lett*, 2014, 112: 023201
- 57 Liu X J, Lucchese R R, Grum-Grzhimailo A N, et al. Molecular-frame photoelectron and electron-frame photoion angular distributions and their interrelation. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2007, 40: 485–496
- 58 Liu X J, Fukuzawa H, Teranishi T, et al. Breakdown of the two-step model in K -Shell photoemission and subsequent decay probed by the molecular-frame photoelectron angular distributions of CO₂. *Phys Rev Lett*, 2008, 101: 083001
- 59 Sturm F P, Schöffler M, Lee S, et al. Photoelectron and Auger-electron angular distributions of fixed-in-space CO₂. *Phys Rev A*, 2009, 80: 032506
- 60 Miyabe S, McCurdy C W, Orel A E, et al. Theoretical study of asymmetric molecular-frame photoelectron angular distributions for C 1s photoejection from CO₂. *Phys Rev A*, 2009, 79: 053401

- 61 Tsuru S, Kazama M, Fujikawa T, et al. Geometrical effect on the issue of asymmetric C 1s photoelectron angular distributions detected in coincidence with the fragment ion pairs of $\text{CO}^+ - \text{O}^+$ for CO_2 molecules. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2014, 47: 071002
- 62 Weber T, Weckenbrock M, Balser M, et al. Auger electron emission from fixed-in-space CO. *Phys Rev Lett*, 2003, 90: 153003
- 63 Pullen M G, Wolter B, Le A T, et al. Imaging an aligned polyatomic molecule with laser-induced electron diffraction. *Nat Commun*, 2015, 6: 7262. arXiv: [1503.03294](#)
- 64 Rolles D, Boll R, Adolph M, et al. Femtosecond X-ray photoelectron diffraction on gas-phase dibromobenzene molecules. *J Phys B-At Mol Opt Phys*, 2014, 47: 124035
- 65 Chichinin A I, Gericke K H, Kauczok S, et al. Imaging chemical reactions-3D velocity mapping. *Int Rev Phys Chem*, 2009, 28: 607–680
- 66 O’Keeffe P, Feyer V, Bolognesi P, et al. A velocity map imaging apparatus for gas phase studies at FERMI@Elettra. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater Atoms*, 2012, 284: 69–73
- 67 Lebech M, Houwer J C, Dowek D. Ion-electron velocity vector correlations in dissociative photoionization of simple molecules using electrostatic lenses. *Rev Sci Instrum*, 2002, 73: 1866–1874
- 68 Laksman J, Céolin D, Måansson E P, et al. Development and characterization of a multiple-coincidence ion-momentum imaging spectrometer. *Rev Sci Instrum*, 2013, 84: 123113
- 69 Kling N G, Paul D, Gura A, et al. Thick-lens velocity-map imaging spectrometer with high resolution for high-energy charged particles. *J Inst*, 2014, 9: P05005

The coincident measurement in the experimental atomic molecular research

LIU XiaoJing*, CHI HuaJing & XIAO ZhiSong

School of Physics and Nuclear Engineer, Beihang University, Beijing 100191, China

The targets of atomic molecular physics are atoms or molecules consist of a few atoms. Due to their simple geometrical structure, in order to obtain unrevealed properties, the advanced experimental techniques are often required to view the target from multi view-points and follow the history of the relevant states if possible. This scientific desire drives us to promote the technical specification and flexibility of instruments. Here, we reviewed several coincident setup, they are based on: field free electron time of flight spectrometer, electron energy-dispersive analyzer, magnetic bottle spectrometer, reaction microscope and velocity map imaging spectrometer. They are widely used in the experiments based on ultrafast laser, free electron laser and synchrotron radiation. We give not only the description of the working principles and the technical differences among them, but also put emphasize on the recent scientific desires and possible breakthroughs.

coincident measurement, ultrafast laser, free electron laser, synchrotron radiation

PACS: 32.80.-t, 33.80.-b, 33.20.Xx

doi: [10.1360/SSPMA2016-00269](https://doi.org/10.1360/SSPMA2016-00269)