

C_{60}^+ 的碰撞解离研究

高海滨 方渡飞 陆福全

复旦大学物理二系, 上海 200433

1993 年 2 月 27 日收到

在复旦大学加速器实验室的 30 keV 同位素分离器上, 利用 911A 离子源对 C_{60}^+ 与电子碰撞引起解离进行了研究. 测量了解离碎片的质量分布, 发现碎片以偶数个碳原子形式存在, 同时碎片强度呈指数分布. 实验结果表明, 由电子引起的解离与较高能量 (~ 300 keV) 的原子碰撞解离有相似之处.

PACC: 3640; 3520X; 3480G

一、引 言

Kroto 等人^[1]在 1985 年发现了 C_{60} (Buckminster fullerene) 及其离子, 无论对于研究还是应用, 这一体系都开创了一个全新的领域. C_{60} 对物理、化学、核磁共振、材料科学等领域将产生重大的影响. 目前人们对 C_{60} 体系已开始了不少研究^[2]. C_{60} 体系与原子、分子和光子的碰撞是了解和研究其结构和动力学过程的有效途径. 国际上已有几例碰撞实验报道. O'Brien 等人^[3]研究了光致解离过程; C_{60}^+ 与原子碰撞中在能量为 10 keV 以下的能区内, Young^[4]发现了 C_{60}^+ 的离解是以丢失偶数个中性碳原子的方式进行的. 但 Doyle 和 Ross^[5]发现, C_{60}^+ 与 O_2 碰撞时, 由于 C_{60}^+ 的电子俘获激发——退激发过程, 使 C_{60}^+ 可能有奇数碳原子碎片的离解. Compbell 等人^[6]用 C_{60}^+ 与各种气体碰撞, 他们将 C_{60}^+ 的离解归结于碰撞引起的裂变. Hvelplund 等人^[7]用 50—300 keV 的 C_{60}^+ 与 H_2 和 He 碰撞, 并发现 C_{60}^+ 以下的碎片质量谱呈指数分布, Lindhard 则从理论上给予解释.

在国内, 许多单位均已可成功地制备出 C_{60} 和 C_{70} . 我们利用中国科学院上海原子核研究所提供的 C_{60} 和 C_{70} 混合物样品, 在 30 keV 同位素分离器上, 研究了电子与 C_{60} 碰撞解离过程.

二、实验装置

实验装置由 911A 离子源、90°分析磁铁、真空系统及束流输送管道、束流测量系统组成. 911A 离子源是 DANFYSIK 小型同位素分离器上的改进型中空阴极源, 图 1 是离子源的结构示意图. 离子源由中空阴极、蒸发炉、进气管、激磁线圈和阳极等组成. 加在阳极与阴极之间的电压决定了电子能量. C_{60} 与电子碰撞解离后, 被电子进一步电离 (变成碎片离子) 然后由阴极小孔引出. 离子经静电单透镜聚焦后通过 90°分析磁铁 (半径为 0.75 m)

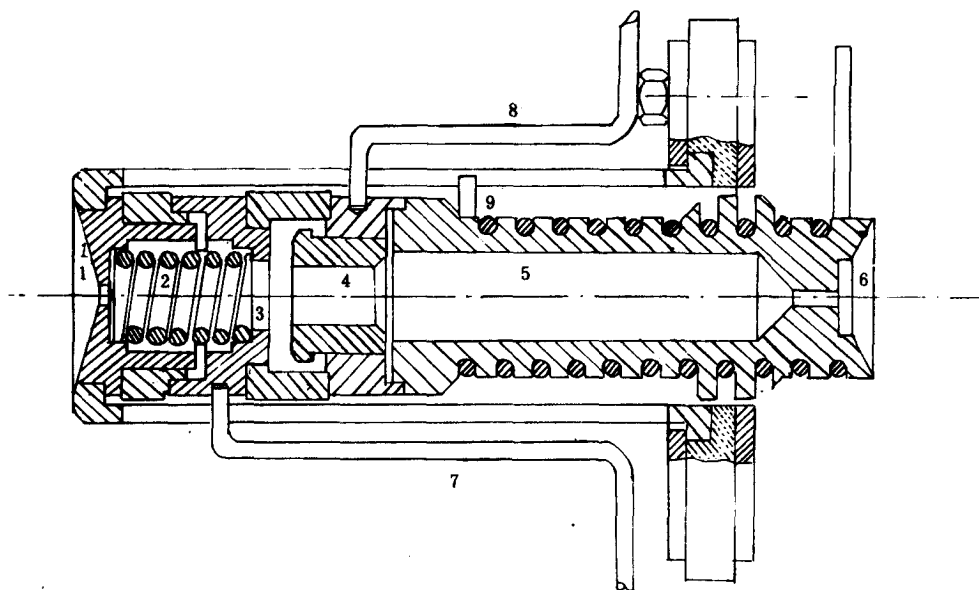


图1 911A 离子源结构示意图 1 为阴极;2 为灯丝;3 为放电室;4 为阳极;5 为蒸发炉;6 为进气管;7 为灯丝电极;8 为阳极电极;9 为蒸发炉电极

分析后进入测量管道. 我们的同位素分离器质能积为 $7.5(\text{MeV} \cdot \text{amu})$, 在此质能数下质量分辨率达到 $1/400$, 足以区分 6 keV 的 C_{60} 和 C_{70} 及其碎片产物. 在分析磁铁出口处有一宽为 4 mm 的狭缝, 狭缝后半米处放置一长度为 5 cm 、内径为 2 cm 的法拉第筒. 与法拉第筒相连接的束流积分仪用来测量引出的离子束流. 磁场采用经仔细校对过的高斯计测量; 分析磁铁以后管道内真空度好于 10^{-7} Torr 量级.

三、结 果

实验时采用氩气作为工作气体, 受热蒸发的 C_{60} 气体由氩气带入电离室. 阳极电压为 50 V , 离子加速电压为 6 kV . 在大质量数区间内, 束流中最大一个分支的流强为 1.2 nA , 从磁场/质量数刻度曲线可以得知这是分子量 720 的离子, 即为 C_{60}^+ 离子. 随着分析磁场的改变, 在 Ar^+ 与 C_{60}^+ 之间发现有极为丰富的离子种类. 图2给出所测得的质量数大于 40 的所有离子, 横坐标是质量数, 纵坐标是离子束流强度. 从图2可以看出, 所测到的 C_{60} 附近各离子种类中所包含的碳原子数均为偶数, 奇数峰强度在 10^{-12} A 以下, 而且在 $C_{40}^+ - C_{60}^+$

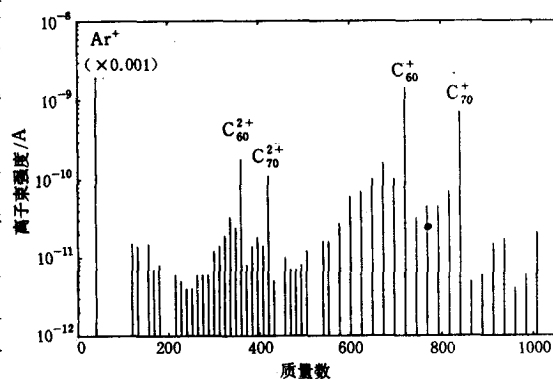


图2 C_{60}/C_{70} 及其碎片离子质谱

之间,离子束流强度近似为指数分布(C_{58}^+ 例外).此外,还观察到 C_{60}^{2+} 离子及其碎片离子. C_{50}^{2+} 至 C_{60}^{2+} 的分布与 C_{50}^+ 至 C_{60}^+ 的分布几乎一致,也近似为指数分布(C_{58}^{2+} 除外).在 C_{60}^+ 以上,还观察到 C_{62}^+ 至 C_{70}^+ 及 C_{72}^+ , C_{78}^+ , 最高达到 C_{84}^+ . 相应地, C_{60}^{2+} — C_{70}^{2+} 也被我们观察到. 在 Ar^+ 附近及以上有密集的离子分布,它们可能是相应的 C_4^+ , C_6^+ , ..., C_{20}^+ 等碎片离子. 过于密集在图 2 中没有全部画出.

四、结论与讨论

我们将测得的单、双电荷碎片强度相对于丢失的碳原子对数 m 分布画在图 3 中. 测

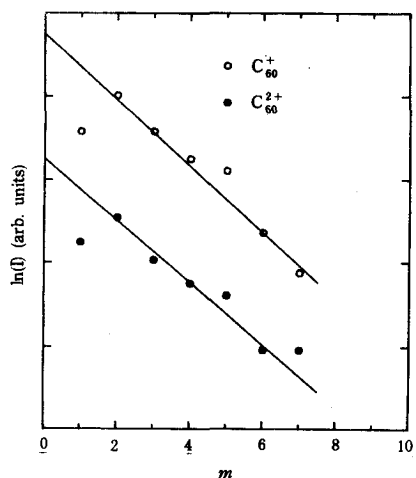


图 3 C_{60} 碎片离子束流强度与“丢失”碳原子对数 m 的关系

得的离子束强度在 C_{40}^+ 到 C_{60}^+ 之间束流强度大致遵循指数分布. 这与文献[7]所报道的强度分布有相似之处. 他们的实验是观测 C_{60}^+ 离子与 H_2 , He 气体碰撞. 我们知道, 离子源中离子的产生过程其实就是电子碰撞电离过程. 在离子源中可能还有原子-分子碰撞发生, 但是由于工作气体的气压较低 (10^{-3} Torr) 且与 C_{60} 的相互作用能量小, 因此这一过程可以忽略. 图 2 中的分布说明 C_{60} 的离解或是连续地以级联方式丢失 2 个碳原子, 或是一次碰撞中丢失 m 对碳原子 (m 为整数). 放电室中电子的能量约为 50 eV, 由于 C_{60} 质量远大于电子, 此能量也即质心系能量. 从能量守恒来看, 不可能发生连续离解过程. 在离子源引出到分析磁铁的飞行距离中, 虽然离子能量有 6 keV, 但由于此区间真空度好于 1×10^{-5} Torr, 等效靶厚度小因而碰撞次数少, 再者与残余气体碰撞时

质心系能量 (以 N_2 为例) 也仅为 200 eV 左右, 因此至少可以推断在离子飞行过程中连续离解不是主要的. 我们认为 C_{60} 的离解和电离是分步进行的. 由于离子源中 C_{60} 蒸气的速度很低, 首先 C_{60} 在电子碰撞下裂解, 中性的 C_{60} 及其碎片在电离室滞留约 10^{-4} s, 远大于碰撞时间 ($\sim 10^{-15}$ s), 电离室的电子密度比较大, 进而使 C_{60} 及其碎片电离. 另一方面, 因 C_{60} 及其碎片中原子数目多, 同一团簇中不同原子被电离的概率相对而言较大, 因此在实验上比较容易观察到 C_{60}^{2+} 和更高电荷态^[8]. 因此从图 3 所示的 C_{60}^{2+} 和 C_{60}^+ 及其碎片的分布规律大致相同来看, 有理由认为碎片是先产生而后电离的.

文献[7]中 Lindhard 对几百 keV 的 C_{60}^+ 碰撞离解过程提出了一个动力学模型, 在此模型中球状 C_{60}^+ 在 H_2 (He) 碰撞下发生“裂缝”, 随即又“愈合”, 在发生裂缝后, 有偶数碳原子的“碎片”蒸发出来. m 对碳原子在 $(0, t)$ 之间蒸发出来的概率为

$$P_t(m) = \frac{1}{m!} \left(\frac{t}{t_1} \right)^m e^{-t/t_1},$$

其中 t_1 为蒸发的平均寿命, 如果碰撞后剩余的离子在 $(t, t + \delta t)$ 时间内以 $e^{-t/t_2} \delta t / t_2$ 的概率愈合, 其中 t_2 为裂缝的平均寿命. 假定蒸发过程与裂缝的产生是相互独立的, 则蒸发出 m

对碳原子的总概率为

$$P(m) = \frac{t_1}{t_2} \left(\frac{t_2}{t_1 + t_2} \right)^{m+1}.$$

这个模型对他们的实验结果能做出比较满意的解释. 在他们的实验中 t_1 和 t_2 均在 10^{-15} 和 10^{-6} s 之间. 这个模型中假定由于碰撞能量大而碎片的蒸发是独立的. 在本文的离子源实验中电子的能量仅 50 eV. 上述条件不一定能满足. 但从我们的结果来看, 如果他们所提出的模型是合理的, 则 C_{60} 的裂缝的产生不一定需要很高能量. 值得注意的是, 在我们的实验结果中 C_{58}^+ 和 C_{50}^+ 都偏离了指数规律. 有趣的是在文献[7]中也观察到这样的偏离. 由于离子源内部电子碰撞解离-电离的过程十分复杂, 如何确定 t_1 和 t_2 以及解释 C_{50}^+ 和 C_{58}^+ 强度的偏离有待进一步实验分析.

我们在 911A 离子源上用 C_{60} 和 C_{70} 混合物产生和引出了流强为 1.2 nA 的 C_{60}^+ 离子束, 可用来与激光以及强流电子束相互作用, 以研究光致解离及电子、离子碰撞解离过程.

本工作在杨福家教授关心和指导下完成; 李郁芬教授和作者进行了有益的讨论; 林森浩教授提供了 C_{60}/C_{70} 样品. 作者在此一并致谢.

- [1] H. W. Kroto, J. R. Heath, S. C. O'Brien, R. F. Curl and R. E. Smalley, *Nature(London)*, **318**(1985), 162.
- [2] A. V. Eletsii and B. M. Smirnov, *Sov. Phys. Usp.*, **34**(1991), 616.
- [3] S. C. O'Brien, J. R. Heath, R. F. Curl and R. E. Smalley, *J. Chem. Phys.*, **88**(1988), 1.
- [4] A. B. Young, L. M. Cousins and A. G. Harrison, *Rapid Commun. Mass Spectrom.*, **5**(1991), 226.
- [5] R. J. Doyle and M. M. Ross, *J. Phys. Chem.*, **95**(1991), 4954.
- [6] E. E. B. Compbell, A. Hielscher, R. Elich and I. V. Hertel, (private communication).
- [7] P. Hvelplund, L. H. Andersen, H. K. Haugen and J. Lindhard, *Phys. Rev. Lett.*, **69**(1992), 1915.
- [8] C. W. Watter *et al.*, *Chem. Phys. Lett.*, **195**(1992), 543.

A STUDY OF C_{60}^+ COLLISIONAL FRAGMENTATION

GAO HAI-BIN FANG DU-FEI LU FU-QUAN

Department of Physics II, Fudan University, Shanghai 200433

(Received 27 February 1993)

ABSTRACT

The C_{60}^+ fragmentation caused by electron collision has been studied with a 911A ion source of a mini-separator at the Accelerator Laboratory of Fudan University. The mass spectrum of the fragments has been measured. We found that the fragments contain even number of carbon atoms and the strength of the beam current shows an exponential distribution. Our results show that the fragmentation caused by electron collision has some similarities to that of atomic collision at the energy about 300 keV.

PACC: 3640; 3520X; 3480G