

Paul 阱中基态低能多离化 Fe^{n+} ($n = 1-3$) 离子的 存储及反应特性*

聂宗秀¹⁾ 李交美¹⁾ 蒋玉蓉^{1,2)} 朱燕舞¹⁾ 管 桦¹⁾ 舒华林¹⁾ 邵辉丽¹⁾ 高克林¹⁾

¹⁾ 中国科学院武汉物理与数学研究所波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071)

²⁾ 北京理工大学光电工程系, 北京 100081)

(2003 年 3 月 21 日收到, 2003 年 10 月 23 日收到修改稿)

利用垂直交叉的激光束在 Paul 阱中溅射固体铸铁(FeC)靶, 产生了低能多电荷铁离子 Fe^{n+} ($n = 1-3$), 得到了 Fe^{3+} 离子在本底气压为 3.0×10^{-7} Pa 下的衰减速率(0.96 s^{-1})以及在 1.3×10^{-5} Pa 下和中性气体分子 N_2 的反应产物.

关键词: Paul 阱, 低能多离化离子, 反应特性

PACC: 3400, 8230F, 0775

1. 引 言

多离化离子(multiply charged ions)在原子分子物理、表面科学、等离子体物理、核物理以及天体物理中扮演着重要角色^[1], 多离化离子与中性原子和分子的碰撞过程一直是原子物理研究的重要课题之一^[2]. 铁是地壳中第四个丰度最大的元素, 地球的核心主要是由铁构成的. 铁离子广泛存在于银河系中心、超新星、恒星及太阳的热冕层. 在天体和聚变等离子体中存在大量的多离化铁离子, 近年来已引起人们的注意^[3-13].

人们常用多离化铁离子的跃迁谱线来诊断太阳系不同区域的等离子体温度和密度特性^[3], 通过测量铁离子吸收谱线的等效宽度结合恒星大气模型可以得到四个基本的恒星参数: 有效温度 T_{eff} , 表面引力 g , 微湍速度参数 ξ_t 以及太阳的 H 丰度之比 (Fe/H), 从而有助于恒星大气热动平衡模型的建立和发展^[4]. 通过 x 射线的测量, 已观察到银河系中心的多离化铁离子的 $K\alpha$ 辐射, 这对于理解天体环境中的高能现象和银河系中心的物质组成是非常有用的^[5]. 能量在几千电子伏的多离化离子 Fe^{q+} ($q = 1, 2, 3, 4, 5, 6, 9, 11, 13, 15$) 的电子俘获反应截面已

有报道^[6-10], Kwong 等^[11]用激光溅射氧化铁靶产生了多离化铁离子, 但其相应的反应特性未见报道. 在理论上, 用扭曲波近似计算了铁离子各种价态的单电离截面^[12]. 此外, 铁离子是动物身体组织和血液的极重要成分, 是人体中必需痕量元素中含量最高的一种, 研究它与中性分子的反应特性对医学和生物学研究有重要的临床价值.

离子阱能将离子囚禁在一个较小的空间范围内而不受外界干扰, 具有作用时间长、检测灵敏度高等优点. 在离子阱中多离化离子碰撞过程可以很好地限制在能量低于 1 eV/a.u. 的范围内. 利用离子阱所独有的质量选择囚禁技术加上离子阱的质谱检测能力, 使囚禁离子技术在多离化离子碰撞研究中受到人们的重视. Church 等首先在离子阱中通过电子束轰击和同步辐射光电离方法产生多离化离子, 研究了 $\text{N}^{2+} + \text{N}_2$, O^{2+} , $\text{O}^{3+} + \text{H}, \text{H}_2$, Ne^{z+} ($z = 3-6$) + Ne, Ar^{q+} ($q = 2-5$) + Ar, $\text{Si}^{4+} + \text{D}$ 等体系的电荷转移碰撞过程, 测量了相应的电荷转移速率系数^[14-18]. Kwong 等提出垂直交叉离子束冷却方法, 在离子阱中将激光溅射产生的高温等离子体中的多离化离子进行了有效的冷却和囚禁, 研究了 $\text{N}^{2+} + \text{H}_2, \text{N}_2$, CO , $\text{O}^{2+} + \text{He}, \text{H}_2, \text{N}_2, \text{CO}$, $\text{W}^{2+} + \text{Ar}$, $\text{Mo}^{6+} + \text{Ar}$, $\text{Si}^{4+} + \text{He}$, $\text{He}^+ + \text{N}_2, \text{CH}_4$ 和 $\text{O}^{2+}, \text{O}^{3+} + \text{CO}$ 等元素的多

* 国家自然科学基金(批准号: 19804015)和波谱与原子分子物理国家重点实验室资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: klgao@wipm.ac.cn

离化离子在低能范围内的热碰撞电荷转移过程^[11,19-24],这些说明离子阱是研究多离化粒子特性很好的实验装置.激光溅射原则上可产生任何固体靶样品多离化离子,特别是一些难熔的过渡金属离子.本文报道了采用激光溅射固态铸铁的方法产生 Fe^{n+} ($n = 1-3$) 等多种离子,通过垂直交叉束碰撞使部分离子冷却,在 Paul 阱中有效地囚禁了能量为电子伏特量级的 Fe^{n+} ($n = 1-3$) 等多种离子.利用离子阱的质量选择特性,选择囚禁了 Fe^{3+} 离子,观察了 Fe^{3+} 离子的衰减速率以及 Fe^{3+} 离子与中性气体分子 N_2 的反应产物.

2. 实 验

射频离子阱 (Paul 阱) 实验装置如文献 [13,25-27] 中所述,是由具有旋转双曲面构形的一环电极和上下两帽电极组成,环电极最小半径 $r_0 = 9.9 \text{ mm}$,两帽电极的最小距离 $2z_0 = 14 \text{ mm}$.真空室由一台 JBY-100 溅射离子泵维持其超高真空,本底气压为 $3 \times 10^{-7} \text{ Pa}$. Nd:YAG 激光器二倍频 532 nm 激光溅射铸铁 (FeC , 纯度为 99.9%) 固体靶,激光能量为 5 mJ,脉冲宽度为 7 ns,聚焦在靶面的功率密度为 $1 \times 10^9 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$.由于产生多离化离子所需激光功率密度相对较高,产生的离子速度较大很难用囚禁场直接囚禁.我们采用交叉离子束冷却 (图 1),在以离子阱 z 轴为对称轴成 90° 角交叉于阱中心的真空室两个臂中,分别放置两个相同的固体样品靶.每个靶盘上可安放 4 个直径为 7 mm,厚度为 5 mm 的固体靶片,实验中在 2 个靶盘上分别安放了一对固态铸铁靶片.

Nd:YAG 激光器输出光经过一 50:50 分束片分成两路,组成交点在阱中心的垂直交叉光束,经两个

焦距为 50 cm 会聚透镜 L_1, L_2 聚焦在两个靶面上.控制激光器的输出功率密度,使焦点处的功率密度达到溅射等离子体所需的密度.通过激光功率的调节可实现产生离子的数目和离子态的控制.由于激光束和靶具有对称性,一束激光溅射产生的离子与另一束激光溅射产生的同样离子在阱中心发生非弹性碰撞.碰撞的结果是一部分离子以 $\sqrt{2}$ 倍的速度沿与 x, y 轴成 45° 角方向散射,另一部分失去部分动能成为较低动能的离子而囚禁于阱中.离子阱的囚禁场由在环电极和两端电极之间加上射频电压 V 和直流电压 U 提供,得到最佳 Fe^{3+} 离子的囚禁参数是: $V = 176 \text{ V}$, $f = \Omega/2\pi = 1.1 \text{ MHz}$, 这样阱深为 $D_z (= eV^2/4mz_0^2\Omega^2) = 17 \text{ V}$.此时的离子阱势阱深度 qD_z 决定了离子的平衡动能和囚禁离子数. Fe^{3+} 离子由此产生的势阱深 $qD_z \approx 51 \text{ eV}$,相应的离子动能可用势阱深的 1/10 来估算^[28], Fe^{3+} 离子的动能约为 5.1 eV.在适当条件下激光溅射能产生很多 Fe^{3+} 和其他离子,如 C^{2+} ($m/q = 6$), C^+ ($m/q = 12$), C_2^+ ($m/q = 24$), Fe^{2+} ($m/q = 28$), C_3^+ ($m/q = 36$), C_4^+ ($m/q = 48$), Fe^+ ($m/q = 56$) (图 2 a)).

为了选择单一 Fe^{3+} 离子,通常利用离子运动的第一稳定区的上尖角,即稳定区的 $\beta_r = 0$ 和 $\beta_z = 1$ ($V_{AC} = 176 \text{ V}$, $V_{DC} = 16.9 \text{ V}$) 的交点,对应的坐标为 $a_z = -2a_r = -\frac{8eU}{mr_0^2\Omega^2} = 0.15$, $q_z = -2q_r = -\frac{4eV}{mr_0^2\Omega^2} = 0.78$ (图 3).囚禁离子的稳定区与囚禁离子的荷质比有关,与其他边界交点相比,第一稳定区的上尖角离 $a_z = 0$ 的 q_z 轴最近.因此选择囚禁所需的工作电压比较低而易于实现.通过调节囚禁电压,使被选择离子的工作点刚好处于稳定区内,此时对 Fe^{3+} 离子而言是稳定的,其它离子因为其运动轨迹在稳定

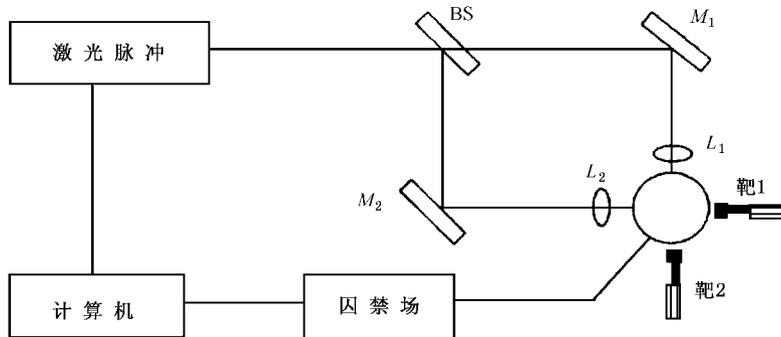


图 1 交叉束冷却原理图 BS 为半反半透分束片, M_1, M_2 为全反镜, L_1, L_2 为焦距为 50 cm 的透镜

区外而被排出阱外. 选择 Fe^{3+} 离子后, 通过调节直流电压 U 到零可以对被选择的 Fe^{3+} 离子进行更稳定的存储(图 2(b)). 囚禁离子信号碰撞反应及其特性分析采用连续质量不稳定抛出法, 即通过沿 $a_z = 0$ 平滑递增扫描射频电压, 使阱中的离子按质量由小到大的顺序到达 $\beta_z = 1$ 的边界线, 即工作点 $a_z = 0, q_z = 0.908$. 此时, 离子的轴向运动变得不稳定, 但径向运动仍然是稳定的, 故离子沿轴向穿过端电极开孔被抛出阱外, 而其他较重的离子则仍然保持稳定囚禁状态. 继续增加射频幅度, 后续的离子会依次逃逸出来, 这样就完成了整个范围离子的抛出. 抛出后的离子由一个通道电子倍增器(CEM)收集, CEM 信号由一窄带放大器放大后经 AD 转换送到计算机储存并进行分析处理.

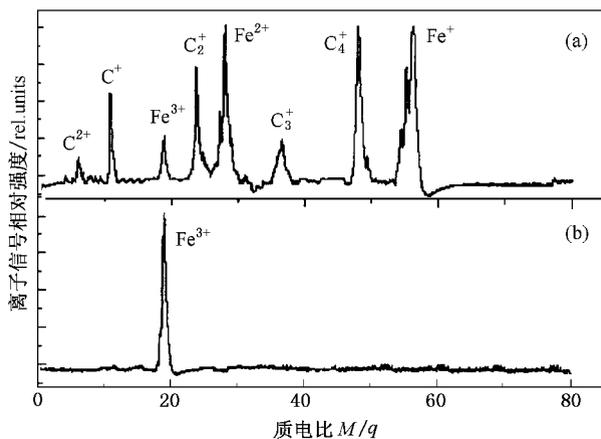


图 2 激光溅射铸铁(FeC)靶产物离子质谱图 (a)为全谱 (b)为离子选择囚禁. 两图的离子信号未按同一标度

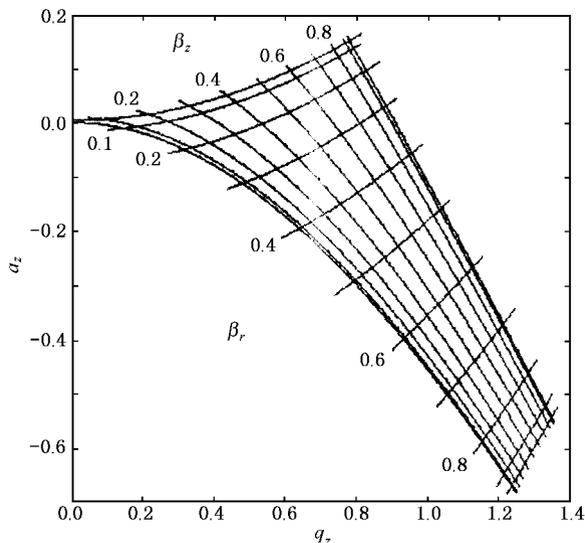


图 3 囚禁离子的第一稳定区 a, q 为囚禁参数

通过向阱中充入一定气压的中性原子或分子气体, 可以研究多离化离子与这些中性气体的低能碰撞电荷转移和反应活性. 我们在阱中充入了 1.3×10^{-5} Pa 的 N_2 气体, 纯度为 99.999%. 通过激光溅射产生并经交叉离子束冷却得到的低能 Fe^{3+} 离子, 完成选择囚禁后, 再经过一段时间的延迟适时抛出, 检测到了 Fe^{3+} 离子与 N_2 气体的碰撞电荷转移反应产物的离子质谱图.

3. 结果与讨论

在一定 N_2 气压下, 通过改变抛出时间, 可以得到选择囚禁后的 Fe^{3+} 离子信号强度随时间的衰减曲线(图 4). 可以看出, 低能多离化离子在阱中有较长的稳定囚禁时间. 由于离子与本底气体的碰撞电荷转移等机制引起的离子损失使离子信号强度随时间呈指数衰减, 衰减速率与离子的电荷态及其活性有关, 也与阱中的本底气压有关. 在 N_2 为 4.3×10^{-6} Pa 的实验条件下, 测得 Fe^{3+} 离子的衰减速率为 $v = 0.96 \text{ s}^{-1}$.

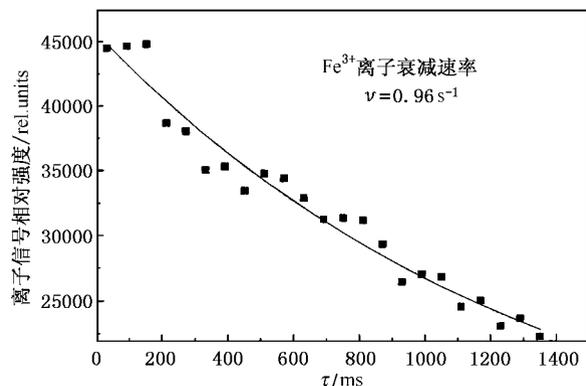


图 4 Fe^{3+} 离子信号强度随时间的衰减曲线

Fe^{3+} 离子电子构型为 $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^5$, 基态的电子组态为 $3d^5(^6S_{5/2})$, 较其中性基态原子能量高 30.64 eV. 激光溅射产生的 Fe^{3+} 离子会处于各种不同的激发态, 这些激发态离子通过允许跃迁以及和等离子体电子碰撞去激发很快衰减到基态或比较低的亚稳态 $3d^5(^4G), 3d^5(^4P), 3d^5(^4D)$. 这些谱项的能量高于基态谱项分别为 4 eV 以上, 同我们以前有关 $\text{Ti}^{4+}, \text{Co}^{3+}, \text{Se}^{3+}$ 离子的电荷转移实验^[24-26]一样, 没有发现有亚稳态离子的出现. 亚稳态离子的缺少主要是因为激光诱导等离子体在真空室内迅速冷却的结果, 而且一阶指数拟合的数据处理结果(图 4)证

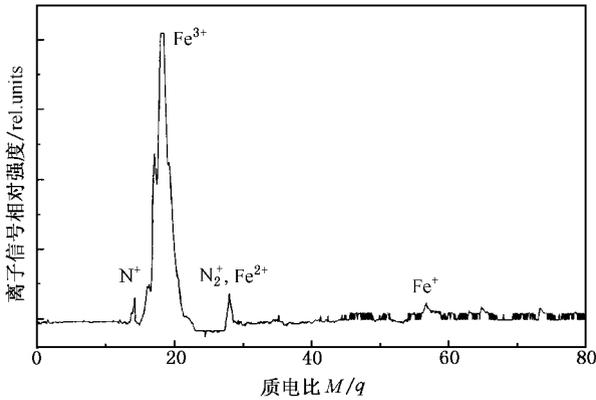
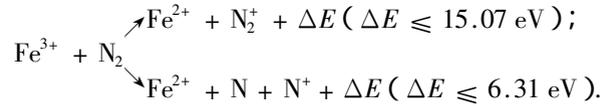


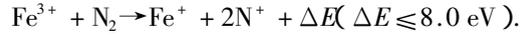
图 5 Fe^{3+} 离子与 N_2 的电荷转移产物质谱图

明没有亚稳态 Fe^{3+} 离子的出现, 激光溅射产生和存储在阱内的 Fe^{3+} 离子在基态. 图 5 为在阱中充入 1.3×10^{-5} Pa 的 N_2 气体后, 得到的 Fe^{3+} 离子与 N_2 气体的碰撞电荷转移反应的结果. 可以看到, 有 N^+ , Fe^{2+} , N_2^+ 离子生成, 由于 Fe^+ 和 Fe^{2+} 的电离能分别为 7.87 和 16.18 eV, N_2 分子的电离能为 15.6 eV, N 原子的电离能为 14.53 eV. 因此在 Fe^{3+} 离子与 N_2 气体的碰撞电荷转移过程中以强放热的单

电子转移过程为主,



而对以下弱放热的双电子转移过程, 有



从反应产物谱(图 5)中, 可以看到明显的单电子转移过程的反应产物 Fe^{2+} , N_2^+ , N^+ , 同时存在少数双电子转移过程的反应产物 Fe^+ .

4. 结 论

本文报道了在离子阱实验装置上实现了稳定囚禁能量为电子伏特量级的基态 Fe^{3+} 离子信号, 同时测量了它的衰减速率, 得到了 Fe^{3+} 离子与中性气体 N_2 分子的反应产物. 有关 Fe^{3+} 离子和中性气体 N_2 分子的电荷转移速率系数实验结果见文献 [13].

感谢朱熙文、吴礼金研究员、曾浩生、李朝红、彭新华博士的有益讨论, 感谢贾汉春工程师对激光技术的指导, 感谢李勇同学在真空系统方面的帮助.

[1] Janev R 1995 *Atomic and Molecular Processes in Fusion Edge Plasma* (New York: Plenum); Burke P, Eissner W, Hummer D et al 1983 *Atoms in Astrophysics* (London: Plenum)

[2] Brühwiler P, Karis O, Mrtensson N 2002 *Rev. Mod. Phys.* **74** 703

[3] Niimura M, Cadez I, Smith S et al 2002 *Phys. Rev. Lett.* **11** 103201

[4] Gonzalez G 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 101

[5] Wang Q, Gotthelf E, Lang C 2002 *Nature* **415** 148; Wang W, Zhang J 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 590 (in Chinese); [王 薇、张 杰 2002 物理学报 **51** 590]

[6] Pindzola M, Griffm D, Younger S et al 1987 *Fusion* **1** (Suppl) 21

[7] Fang Z, Kwong V 1995 *Phys. Rev. A* **51** 1321

[8] Stenke M, Aichele K, Hartenfeller U et al 1999 *J. Phys. B* **32** 3627; Stenke M, Artenfeller U, Aichele K et al 1999 *J. Phys. B* **32** 3641

[9] Mueller D, Morgan T, Dunn G 1985 *Phys. Rev. A* **31** 2905

[10] Gregory D, Meyer F, Muller A et al 1986 *Phys. Rev. A* **34** 3657

[11] Gregory D, Wang L, Meyer F et al 1987 *Phys. Rev. A* **35** 3256

[12] Linkemann J, Nuller A, Kennntner J et al 1995 *Phys. Rev. Lett.*

22 4173

[13] Gao K, Nie Z, Jiang Y et al 2003 *Phys. Rev. A* **67** 22702

[14] Church D, Holzsheiter H 1980 *Chem. Phys. Lett.* **76** 109

[15] Church D, Holzsheiter H 1982 *Phys. Rev. Lett.* **49** 643; Church D, Holzsheiter H 1989 *Phys. Rev. A* **40** 54

[16] Church D et al 1983 *Phys. Rev. Lett.* **51** 1636

[17] Church D et al 1987 *Phys. Rev. A* **36** 2487

[18] Pieksma M et al 1996 *Phys. Rev. A* **54** 13

[19] Fang Z, Kwong V 1997 *Phys. Rev. A* **55** 440

[20] Kwong V et al 1990 *Rev. Sci. Instrum.* **61** 1931

[21] Kwong V, Fang Z, Jiang Y et al 1992 *Phys. Rev. A* **46** 201

[22] Fang Z, Kwong V 1999 *Phys. Rev. A* **62** 342

[23] Fang Z, Chen D, Kwong V 2000 *Phys. Rev. A* **62** 42709

[24] Gao H, Fang Z, Kwong V 2001 *Phys. Rev. A* **63** 32704

[25] Yan M, Feng M, Gao K et al 1998 *Chem. Phys. Lett.* **289** 298

[26] Gao K, Yan M, Feng M et al 2002 *J. Phys. B* **35** 233

[27] Jiang Y, Nie Z, Li J et al 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 528

[28] Church D, Holzsheiter H 1980 *J. Appl. Phys.* **40** 3421

Character of store and reaction of ground state multiply charged Fe^{n+} ($n = 1-3$) ions in a Paul trap^{*}

Nie Zong-Xiu¹⁾ Li Jiao-Mei¹⁾ Jiang Yu-Rong^{1,2)} Zhu Yan-Wu¹⁾
Guan Hua¹⁾ Shu Hua-Lin¹⁾ Shao Hui-Li¹⁾ Gao Ke-Lin¹⁾

¹⁾ *State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Chinese Academy of Sciences, Wuhan 430071, China*

²⁾ *Department of Optical Engineering, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China*

(Received 21 March 2003; revised manuscript received 23 October 2003)

Abstract

Ground state multiply charged Fe^{n+} ($n = 1-3$) ions have been produced by means of two separated crossed laser beams incident upon solid cast ion targets in a Paul ion trap. The decay rate of Fe^{3+} is measured to be 0.96 s^{-1} at the ground pressure $3.0 \times 10^{-7} \text{ Pa}$ and the reactive product between Fe^{3+} and N_2 is also obtained under the pressure $1.3 \times 10^{-5} \text{ Pa}$.

Keywords : Paul trap, multiple-charged ions, reaction character

PACC : 3400, 8230F, 0775

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19804015) and the State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, China.