

激光作用氮化铝产生的铝原子簇正负离子

黄荣彬 刘朝阳 张 鹏 赵剑虹 郑兰荪*

(厦门大学化学系, 厦门 361005)

关键词: 铝原子簇 激光蒸发 胶冻球模型

为了继续关于IVA与VA族元素二元原子簇的研究^[1], 我们最近选取了AlN为样品, 在自制的装置上记录了其激光等离子体中正负离子的质谱。该装置的原理与构造已有另文介绍^[2]。实验时的激光波长是532nm, 作用在样品上的激光功率密度有 $10^7 \text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。仪器可以同时记录正负离子的飞行时间质谱。图1所示的正负离子的质谱由连续200次采集的数据叠加而成。

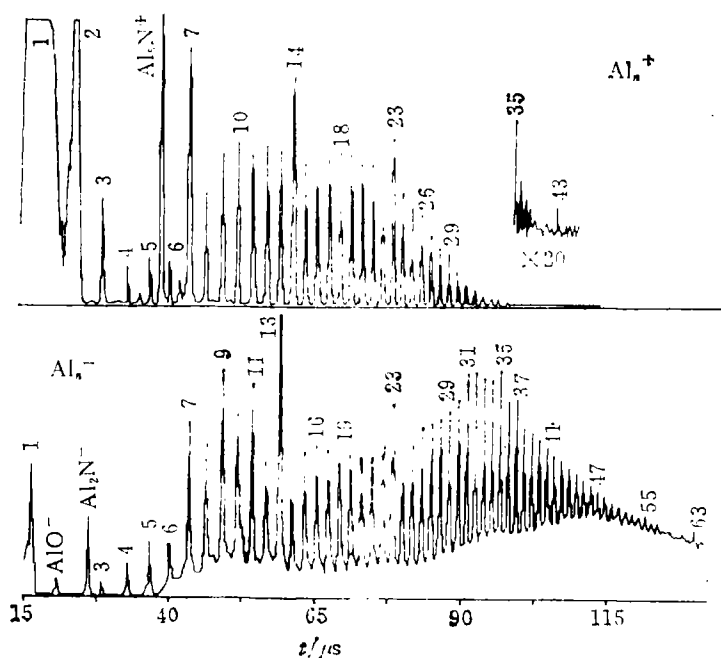


图1 Al_n^\pm 的飞行时间质谱

Fig.1 Time-of-flight mass spectrum of Al_n^\pm

尽管实验的样品是AlN, 但是在图1众多的正负离子的谱峰中, 除了 Al_5N^+ 、 Al_2N^- 以

外,几乎全是清一色的裸铝原子簇正负离子。类似的情形在 Placa 等对 BN 的研究中也同样出现^[3]。这大概是由于氮分子的键能太强,因此样品中的氮易为激光气化。同样出乎意料的是,尽管铝原子簇的产生与研究工作已有一些报导^[4],但均采用激光蒸发结合超声膨胀或者离子束溅射的方式,而且产生的主要是正离子。而我们的实验完全在 10^{-4} Pa 的高真空中进行,没有引入气源,所以这些 Al_n^+ 只能产生于激光等离子体中的离子-分子反应。尽管我们及其他研究组也曾以这一方式产生过多种原子簇离子,但在它的组成中至少有一种非金属元素^[1,5]。铝却是典型的金属元素,实验观察到的簇负离子的成簇原子数甚至超过了正离子,可达 70 个之多。可能由于 AlN 具有一定的共价键成分,因此在激光的作用下部分 Al 能以新生态原子的形式存在,进一步结合成原子簇离子。

图 1 中各信号强度较为突出的簇离子的价电子总数大都与 Jellium 模型的满壳层电子数^[6]一致。如 Al_7^+ 共有 20 个价电子,相应于全满的 2s 壳层, Al_{13}^+ 、 Al_{23}^+ 和 Al_{23}^- 分别有 40、68 和 70 个价电子,各相应于 2p、2d 和 3s 满壳层,甚至质量很高的 Al_{63}^- 也不例外(190e, 2h)。正离子中另 2 个信号强度较突出的 Al_{14}^+ 和 Al_5N^+ 的价电子总数也都只与满壳层所需的电子数相差 1 个。其余根据 Jellium 模型具有满壳层电子数的簇离子的信号强度也大都较高。尽管 Jellium 模型已成功地与多种金属原子簇质谱中的“奇幻数”(magic number) 关联^[7], 但如图 1 所示的那样与正负簇离子的结果都关联得这样好,还是比较少见的。

Jellium 模型仅考虑了原子簇的电子结构的稳定性,而原子簇几何构型对称性对结构的稳定性也应有一定的贡献。如 Al_{13} 刚好是一个体心的正二十面体, Al_7 则是体心的正八面体, Al_{33} 的构型有可能是正二十面体外接一个正十二面体。这些簇离子的信号强度都较高,其中如 Al_7^+ 的价电子数是 22 个,不如 Al_6^+ 的价电子数与 Jellium 模型的满壳层电子数(1d—18个, 2s—20个)相近,但其信号强度远高于 Al_6^+ ,说明 Jellium 模型还应与原子簇的几何结构等因素一起考虑,才能更好地反映出金属原子簇结构的稳定性。

参 考 文 献

- 1 张鹏等。物理化学学报, 1991, 7(4): 315
- 2 郑兰荪等。分析仪器, 1991(3): 37
- 3 Placa S L, Roland P A, Wynne J J. *Chem. Phys. Lett.*, 1992, 190(3): 163
- 4 Jarrold M F, Bower J E, Krause J S. *J. Chem. Phys.*, 1986, 86(7): 3876
- 5 黄荣彬等。物理化学学报, 1992, 8(1): 1
- 6 Knight W D, et al. *Phys. Rev. Lett.*, 1984, 52(12): 2147
- 7 Mingos D M, Slee T, Lin Z. *Chem. Rev.*, 1990, 90(2): 383

Al_n^\pm GENERATED BY LASER ABLATION OF AlN

Huang Rongbin Liu Zhaoyang Zhang Peng

Zhao Jianhong Zheng Lansun*

(Department of Chemistry, Xiamen University, Xiamen 361005)

ABSTRACT

Both positive and negative aluminum cluster ions were generated by laser ablation of AlN sample. Their mass distributions were analyzed using a time-of-flight mass spectrometer. The magic numbers are 7, 14 and 23 for cluster cations, and 13, 23, 63 for anions. They all agree very well with spherical jellium model.

Keywords: Aluminum cluster, Laser ablation, Spherical jellium model