# 高原子质量分辨率的桌面级纳米团簇源

辛 骅1, 杜启帆1, 白 伟1, 韩玉冰2, 王 佳2, 刘红字2, 殷浩华2, 陆大春2\*

<sup>1</sup>陕西科技大学机电工程学院 陕西西安 <sup>2</sup>扩维原子有限公司,广东省深圳市鸿创科技中心 广东深圳

【摘要】本文报告了一种基于磁控溅射、气体冷凝、离子光学和质量选择组合的桌面级纳米团簇制备源, 该源能够精确控制纳米团簇的原子数。磁控溅射技术用于气化靶材,可适用于周期表中的 65 种以上元素, 同时也兼容合金和化合物。纳米团簇在液氮冷却环境下,通过氩气和氦气的冷凝作用形成。该团簇源结合离 子光学系统和改进的横向多振荡飞行时间质谱仪,能够制备出尺寸范围从 2 个原子到不少 10 万个原子的纳 米团簇,且保持恒定的质量分辨率(M/dM>30)。通过优化,离子光学系统和质谱仪的尺寸显著减小,使得团 簇束源从大型综合设备转变为桌面级紧凑装置,大大降低了制造成本。

【关键词】磁控溅射; 气体冷凝; 离子光学; 质量选择

【基金项目】国家自然科学基金(批准号: 1190425, 22102129);陕西省青年拔尖人才支持计划(批 准号 1511000066)

【收稿日期】2024年5月25日 【出刊日期】2024年6月27日 【DOI】10.12208/j.pstr.20240003

## Desktop cluster beam source with high atomic precise mass resolution

Hua Xin<sup>1</sup>, Qifan Du<sup>1</sup>, Wei Bai<sup>1</sup>, Yubing Han<sup>2</sup>, Jia Wang<sup>2</sup>, Hong Liu<sup>2</sup>, Hao Yin<sup>2</sup>, Dachun Lu<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup>College of Mechanical and Electrical Engineering, Shaanxi University of Science and Technology, Xi 'an, Shaanxi <sup>2</sup>Expanded Dimension Atomic Co., LTD., Shenzhen Hongchuang Science and Technology Center, Shenzhen, Guangdong

**[Abstract]** We report on a desktop source for producing atomic number precise nanocluster based on the combination of magnetron sputtering, gas condensation, ion optics and mass filter. The use of magnetron sputtering to vaporize a target is applicable to more than 65 elements in the periodic table, also compatible with alloys and compounds. Nanoclusters are formed by condensation with Ar and He gases in a liquid nitrogen cooling environment. The source, combined with ion optics and a modified lateral multi-oscillating time-of-flight mass filter, can produce nanoclusters in the size range from 2 up to at least 100,000 atoms with a constant mass resolution (M/dM>30). By optimizing the dimensions of the ion optics and mass filter, the cluster beam source has been significantly downsized, transforming it from a large, comprehensive piece of equipment to a compact desktop device, thereby significantly reducing manufacturing costs.

**[Keywords]** Magnetron sputtering; Gas condensation; Ion optics; Quality selection

## 1 引言

纳米团簇是由 2 到数万个原子组成的聚集体, 其尺寸范围从小于 1 纳米到几纳米不等<sup>[1]</sup>。纳米团 簇是一个新兴领域,介于原子、分子和凝聚态物质 之间<sup>[2]</sup>。这个新领域不仅填补了原子、分子、纳米粒 子和体相材料之间的空白,而且紧密连接了物理学、 化学、材料科学、生物学、医学和环境科学<sup>[3]</sup>。纳米 团簇的研究已经发展多年,并在发现新型结构团簇 和探索新奇量子性质方面取得了巨大进展<sup>[4-6]</sup>。特别 是 1996 年诺贝尔奖得主富勒烯(C<sub>60</sub>)的发现,使纳 米团簇研究领域空前繁荣,并成为原子和分子物理 学的重要研究方向之一<sup>[7]</sup>。

\*通讯作者:陆大春

从理论上讲,每种元素都能形成具有不同原子 数以及多种同分异构体的数百种纳米团簇<sup>[8]</sup>。对纳 米团簇的广泛研究与探索意味着无限新物质与材料 的可能性<sup>[9-12]</sup>。例如,理论计算预测 Al<sub>66</sub> 团簇的超导 转变温度可达到 170 K<sup>[13]</sup>。实验发现,Al<sub>4</sub> 团簇的超导 转变温度可达到 170 K<sup>[13]</sup>。实验发现,Al<sub>4</sub> 团簇能吸 附 13 个氢原子,且燃烧过程中释放的能量高达 TNT 当量的 5 倍<sup>[14]</sup>。金团簇是非线性光学材料,理论上 预测其非线性光学系数将增加 1000 倍<sup>[15]</sup>。在解决了 尺寸和功率损伤限制后,它们可用于激光防护、激 光诱导聚变等领域<sup>[16,17]</sup>。研发团簇束设备和降低设 备与纳米团簇材料的制造成本一直是纳米团簇研究 领域的重要方面,催生出一系列在光学、催化和传 感领域具有优异性能的新材料和器件<sup>[18-20]</sup>。

关于纳米团簇的生成和集群束源的优化一直是 该领域科学家的梦想之一。20世纪以来,各国科学 家不断对簇束技术进行优化,以提高簇束强度和质 量选择能力[21-25]。在纳米团簇生成方面,日本 Yamada 团队优化了磁控溅射气体冷凝系统中团簇 生成的条件[26]。通过冷凝条件调节超声膨胀率,成 功地将纳米团簇的电离率提高到接近 60%。而在光 束流优化方面,美国 Vajda 团队通过对传统的四级 杆质量选择器进行改进,开发了锥角八阶杆离子光 学聚焦系统。与传统的圆柱形离子透镜相比,它提 高了光束聚焦和通量能力[27]。在质量选择方面,英 国 Palmer 团队开发了一种基于脉冲电场的横向飞行 时间质量滤波器,将质量选择的通过率提高到70%, 并且不受尺寸限制<sup>[28-30]</sup>。然而,这些仍然不能满足 纳米团簇研究的需要,团簇光束源的普及程度仍然 很低。迄今为止,还没有一种低成本、高光束强度和 高质量分辨率的闭簇源。下列章节详细地介绍了基 于磁控溅射、气体冷凝、离子光学和质量选择器的 桌面式团簇离子束源的设计和性能,如图1所示。

## 2 团簇源

## 2.1 概述

桌面级纳米团簇制备源原理图如图 2 所示结构 组成: (a) 溅射阴极、(b) 冷凝室、(c) 喷嘴、 (d) 撇油器、(e) 前端离子光学、(f) 质量选择 器、(g)后端离子光学、(h)样品支架,整体尺寸 为1570mm(长)×1200mm(宽)×2200mm(高)。 该束流源由两个独立的泵区组成: 闭簇形成部分(I) 和包括沉积部件在内的束流传输部分(II)。采用2 英寸磁控溅射阴极(a)通过氩离子轰击靶材产生原 子蒸气。在液氮冷却室中,原子蒸汽与 Ar 和 He 气 体碰撞形成团簇(b)。聚束流是由束流和从喷嘴(c) 喷出的冷凝气体一起形成的,该喷嘴的大小是可调 节的,允许在冷凝室内独立于气体流速控制压力。 喷嘴后面安装平角撇油器(d),用于过滤多余的冷 凝气体和单原子,由于其重量轻,发散角较大。然 后, 束流由一组聚焦在静电场中的激光离子光学透 镜(e)引导。团簇束流的质量选择是通过一个改进 的横向多振荡飞行时间质量选择器(f)来实现的, 其中脉冲电信号可以分离不同质量的团束。通过施 加多个脉冲来实现高质量分辨率,与传统 TOF 质量 选择器横向飞行时间质谱仪相比,通过应用多个脉 冲(通常为3次)实现了高质量分辨率。在质量选 择器之后,采用另一组离子光学透镜(g)来引导光 束沉积到样品支架(h)上,样品支架通过装载锁具 水平插入,以便快速交换样品。该团簇源的关键技 术是横向多振荡飞行时间质量选择器,该选择器在 小尺寸下可实现了高质量分辨率。垂直向下的闭簇 束流的优点是,垂直方向的样品支架与粉末兼容, 而不使用离子弯曲,这减少了团簇束流的电流损失。



图 1 桌面级纳米团簇制备源设计图(a) 总图(b) 剖面图



#### 图 2 桌面级纳米团簇制备源原理图

## 2.2 磁控溅射

源中使用的磁控溅射阴极是来自真科 (GENCOA)的2英寸阴极,具有不平衡的磁铁排 列。该阴极由ADL的500W直流电源供电,AE的 500W脉冲直流电源供电,或BDISCOM的1000W 射频电源供电。溅射气体通过阴极靶表面的圆形通 道进入。

2.3 气体冷凝

气体冷凝室为双层圆柱形室,有锥形出口,可 用液氮冷却。温度由 LAKESHORE 的温度传感器监 测。内部净长度超过 250 mm,允许溅射阴极从出口 移动的距离超过 150 mm。冷凝气体的入口位于阴极 后方,气体流量由七星华创的质量流量计控制。

2.4 喷嘴和撇油器

喷嘴安装在冷凝室出口处,直径 1.2 mm ~ 22 mm 可调。该喷嘴与冷凝室绝缘,以便施加电压可以提取更多的团簇。撇油器由孔径为 5 mm 的平板制成,位于喷嘴下方 8 mm 处,喷嘴也带有数百伏的偏压。撇油器将真空区分为两部分,上部(溅射阴极和气体冷凝)通常在 10<sup>-2</sup> Pa,下部(离子光学和质量选择器)保持在 10<sup>-5</sup> Pa 以下。两个部分均由中科科仪的涡轮泵和宝思的机械泵进行抽气。

2.5 离子光学

离子光学系统由六个透镜组成,内径均为 27 mm。前四个透镜的长度分别为 50 mm、25 mm、18 mm 和 25 mm。第五个透镜为 XY 偏转镜头,长度 为 25 mm。施加在这些透镜上的电压都为负,最高 可达-3000 V。最后的透镜是一个长度为 50 mm 的光 束位透镜,其电压与质量选择器相同。离子光学系 统的电源是来自 HARDROCK 的高压直流电源。

2.6 质量选择器

团簇源中使用的质量选择器是基础 Palmer 等人 发明的传统横向 TOF 质量选择器重新设计的<sup>[28-30]</sup>,

其基本原理类似, 束流被垂直于飞行方向的脉冲电 信号抬起, 在自由飞行区后被相反的电信号撞下, 以保持水平向前传输。

通过调节脉冲宽度、周期和延迟时间,可以精 确选择特定质量的团簇。这里所做的主要改变是将 只有一次的垂直加速和减速改为多次,例如3次, 此外,通过其他优化,以保持电场均匀性和光束聚 焦。借助多振荡,在相同尺寸的硬件条件下,质量分 辨率的理论极限可提高2倍以上。

2.7 样品支架和束流检测器

样品支架和束流检测器分别安装在两根不同高度、彼此相距 90 度的磁性移动杆上。用皮安计 (Keithley 6485)测量光束电流。样品夹通过装载锁 具水平插入,以便快速取换样品。

#### 3 仿真模拟

采用 SIMION 软件和电子光学模拟器,模拟了 束流在团簇源中的运动轨迹。如图 3 (a)所示,灰 色方块表示离子光学和质量选择器的电极,红色线 条表示光束的轨迹。从喷嘴喷出的初始束设置为: 半发散角为 10 度(填充模式),动能为 80~100 EV。 模拟了原子序数为 1、10、100、1000 和 10000 的铜 团簇束实例。

质量选择器的结构和施加的电脉冲信号如图 3 (b)所示。脉冲宽度为 $\tau_p$ ,两个脉冲的时间间隔为  $\tau_w$ ,两个脉冲的延迟时间为 $\tau_d$ 。通过改变电脉冲信号 的参数来实现簇束的质量选择。对于不同原子序数 的 Cu 纳米簇,脉冲信号参数如表 1 所示。

图 3 所示 (a) 在 SIMION 软件和电子光学模拟 器上模拟了团簇束流在集群源中的运动轨迹。(b) 质量选择器的结构和施加电脉冲信号的示意图说明。 根据仿真结果,簇束束流在光源不同位置的透射比 如表 2 所示,无论纳米团簇地大小,总透射比都在 32%以上。

团簇(a.m.u.)	脉冲宽度 τ <sub>p</sub> (μs)	时间间隔 tw (µs)	延迟时间 td(µs)				
Cu (64)	0.52	0.6	5.02				
Cu <sub>10</sub> (640)	1.65	1.91	15				
Cu <sub>100</sub> (6,400)	5.22	6.02	50				
$Cu_{1000}$ (64,000)	16.54	19.06	163				
Cu <sub>10000</sub> (640,000)	52.17	60.27	510				

表 1 不同原子序数铜纳米团簇的脉冲信号参数



### 图 3 仿真模拟中团簇束流的运动轨迹图

#### 表 2 团簇束在集群源内不同位置的透射比

团簇 (a.m.u.)	离子光学出口	质量选择器入口	样品架
Cu (64)	92.57%	77.68%	32.54%
Cu <sub>10</sub> (640)	93.13%	77.44%	33.66%
Cu <sub>100</sub> (6,400)	92.99%	78.24%	34.48%
Cu <sub>1000</sub> (64,000)	93.06%	77.52%	33.66%
Cu <sub>10000</sub> (640,000)	92.73%	78.32%	33.82%
	表 3 不同类型测	射靶的典型工作条件	
材料	Au	Fe	В
电源类型	直流电流 DC	脉冲直流电流 Pulse DC	射频电流 RF
	250, 250	200, 200	150 250

443 47	114	10	Ъ	
电源类型	直流电流 DC	脉冲直流电流 Pulse DC	射频电流 RF	
溅射功率(W)	250-350	200-300	150-250	
氩气流量(sccm)	120-150	110-130	90-110	
流量(sccm)	180-200	140-160	150-180	
冷凝室压力 (Pa)	30-40	20-30	30-40	
冷凝室温度(K)	77 K	77 K	77 K	
凝结的长度(mm)	130-140	130-140	130-140	
喷嘴直径 (mm)	3 mm	3 mm	2 mm	
最大纳米检测(atoms)	~70,000	~50,000	~9,000	

## 4 团簇源性能

在桌面团簇束流源中,纳米团簇的尺寸范围由 磁控溅射和气体冷凝过程决定。实验关键参数包括 磁控溅射功率、氩气和氦气流量、冷凝室压力和温 度、冷凝长度、喷嘴直径等。

这些参数的不当选择可能导致纳米团簇的缺失, 而优化这些参数则可为团簇源提供生成多种尺寸的 灵活性,根据目标材料的不同,可以产生从几个原 子到几千个原子的尺寸范围。表 3 给出了目前测试 过的 Au、Fe、B 三种不同目标材料的操作条件和检测到的团簇尺寸。

4.1 质谱

图 4 ((a)-(c))显示了桌面团簇束流源产生 小型(最多 30 个原子)的电离 Au、Fe 和 B 纳米团 簇的典型质谱。用于生成 Au、Fe 和 B 纳米簇的电 源分别为直流电流 DC、脉冲直流电流 Pulse DC 和 射频电流 RF,功率分别为 85 W、65 W 和 60 W。氩 气流量设置为 45 sccm, 40 sccm 和 38 sccm。气体流 量设置为 20 sccm, 25 sccm 和 15 sccm。

冷凝长度设置为 100 mm, 冷却温度设置为 77 K; 冷凝室压力分别为 15 Pa、12 Pa 和 11 Pa; 喷嘴 直径设置为 3 mm。从质谱图中可以看出,含有 1~30 个原子的 Au、Fe 和 B 纳米团簇呈现出独立的峰值, 这表明在桌面簇束源中配置的质量滤波器具有优于 30 的质量分辨率(M/dM)。这些纳米团簇束电流的 峰值接近 1 nA, 平均束电流在 300 pA 左右,可以很 好地满足材料制备地科学研究和工业演示。

图 4 ((d)-(f))显示了桌面团簇束源产生的 大型(多达 1500 个原子)电离 Au、Fe 和 B 纳米簇 的典型质谱。溅射功率提高到 220 W、210W 和 165 W。氩气流量设置为 95sccm, 90 sccm 和 75 sccm。 氦气流量设置为 120 sccm, 80 sccm 和 90 sccm。冷 凝长度增加到 140 mm,有利于大尺寸纳米团簇的形 成。

冷凝室温度冷却至 77 K。冷凝室压力分别为 30 Pa、26 Pa 和 27 Pa。喷嘴直径设置为 2 mm。从质谱 图中可以看出,含有 50~1500 个原子的 Au、Fe 和 B 纳米团簇的平均束电流在 60 pA 左右,表明桌面 团簇束源可以产生较大的纳米团簇,并且产生速率 满足进表面沉积需求。



图 4 电离 Au、Fe 和 B 纳米团簇的典型质谱图

4.2 纳米团簇沉积

为了获取尺寸选定的纳米团簇,需向质量选择 器施加不同频率的电脉冲信号。质量选择器的准确 性已通过氩离子峰的位置(即 40 μm)进行校准,并 且已经校准了单原子与二聚体峰之间的距离。在沉 积前,通过束流监测器对选择的纳米团簇束流进行 监测和校准,通过调整离子光学参数获得更高的束 流,从而提高束流聚焦的质量选择精度。

然后,在桌面团簇束源中生成的尺寸特定的纳 米团簇软着陆在超薄碳膜透射电子显微镜(TEM) 网格上。使用中国深圳大学电子显微镜中心的 FEI Themis 系列具备球面像差校准的扫描透射电子显微 镜(STEM)对纳米团簇的形态和尺寸进行表征。制 备了4种不同尺寸的金纳米团簇(Au55,Au147,Au309, Au923),验证了该团簇源的质量选择能力和准确性。

图 5(a)显示了 Au<sub>923</sub>纳米团簇的低倍率(2 Mx) 下高角度环形暗场扫描透射电镜的(HAADF-STEM) 图像,显示出非常均匀的尺寸分布。图 5((b)-(e)) 显示了 Au<sub>55</sub>, Au<sub>147</sub>, Au<sub>309</sub>, Au<sub>923</sub> 纳米团簇的高倍 (15 Mx 和 20 Mx)下的 HAADF-STEM 图像,原子 结构清晰。Au<sub>55</sub>, Au<sub>147</sub>, Au<sub>309</sub>, Au<sub>923</sub> 的直流电源功 率分别为 80 W、95 W、105 W、110 W。

氩气流量设置为 50 sccm, 65 sccm, 72 sccm 和
98 sccm。氦气流量设置为 25 sccm, 40 sccm, 90 sccm 和 110 sccm。

凝结长度保持在 140 mm。冷凝室温度冷却至 77 K。冷凝室压力分别为 11 Pa、23 Pa、38 Pa 和 46 Pa。 喷嘴直径对于 Au<sub>55</sub> 设置为 3 mm,对于其它设置为 2 mm。

根据 Plant 等人的研究报道<sup>[31-32]</sup>, 与体相材料不同, Au<sub>923</sub> 纳米团簇展现出包括二十面体(Ih)、十面体(Dh)和面心立方(fcc)在内的各种高对称轴的原子结构。现有研究表明, 相较于二十面体, 十面体和面心立方的同分异构体更接近基态。在磁控溅射气体凝聚团源中, 根据实验参数(如溅射功率、冷凝长度和压力)可以控制不同异构体的比例。

图 6((a)-(c))为具有不同原子结构二十面体(a)、十面体(b)和面心立方(c)特征的 Au<sub>923</sub>纳米团簇 HAADF-STEM 示例图像,与先前的研究结果一致,证明桌面团簇束源可以生成具有不同原子结构的纳米团簇用于科学研究使用。



图 5 不同尺寸金纳米团簇在不同倍率下的图像



图 6 不同结构 Aug23 纳米团簇 HAADF-STEM 图

5 结论

综上所述,我们通过优化,大大减小了离子光 学元件和质量滤光器的尺寸,使集群光束源从大型 综合设备转变为台式紧凑型设备,设计出一种低成 本、高光束强度和高质量分辨率的团簇源设备,大 大降低了制造成本。通过案例论证利用该团簇源进 行纳米团簇沉积实验的可行性。表明桌面团簇束源 可以产生较大的纳米团簇,并且产生速率足以满足 表面沉积的需求。证明桌面团簇束源可以生成具有 不同原子结构的纳米团簇以用于科学研究使用。可 以很好地满足科学研究和工业演示的材料制备需求。

### 6 致谢

感谢对本"高风险"项目的资助单位:国家自然 科学基金(批准号:1190425,22102129)。陕西省 青年拔尖人才支持计划(批准号1511000066)。北 京中关村科学城建设控股有限公司、北京中天宁投 资有限公司天使投资。

#### 参考文献

- [1] T. P. Martin, Phys. Rep. 273, 199 (1996).
- [2] R. L. Johnston, Atomic and molecular clusters, CRC Press (2002).
- [3] W. A. De Heer, Rev. Mod. Phys. 65, 611 (1993).
- [4] J. Wang, G. Wang and J. Zhao, Phys. Rev. B. 66, 035418 (2002).
- [5] F. Baletto and R. Ferrando, Rev. Mod. Phys. 77, 371 (2005).
- [6] A. Y. Tsivadze, G. Ionova, V. Mikhalko, I. Ionova and G. Gerasimova, Prot. Met. Phys. Chem. Surf. 49, 166 (2013).
- [7] H. W. Kroto, J. R. Heath, S. C. O'Brien, R. F. Curl and R. E. Smalley, Nature 318, 162 (1985).
- [8] H. Hakkinen, M. Moseler and U. Landman, Phys. Rev. Lett. 89, 033401 (2002)
- [9] S. Bulusu, X. Li, L.-S. Wang and X. C. Zeng, Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A. 103, 8326 (2006).
- [10] J. Li, X. Li, H. J. Zhai and L. S. Wang, Science 299, 864 (2003).
- [11] C. L. Cleveland, U. Landman, T. G. Schaaff, M. N. Shafigullin, P. W. Stephens, and R. L. Whetten, Phys. Rev. Lett. 79, 1873 (1997).

- [12] N. Shao, W. Huang, Y. Gao, L. M. Wang, X. Li, L. S. Wang, and X. C. Zeng, J. Am. Chem. Soc. 132, 6596 (2010).
- [13] A. Halder, A. Liang, and V. V. Kresin, Nano Lett. 15, 1410 (2015).
- [14] P. J. Roach, A. C. Reber, W. H. Woodward, S. N. Khanna and A. W. Castleman, Jr. PNAS 104, 14565 (2007).
- [15] S. Hei Yau, O. Varnavski, and T. Goodson III, Acc. Chem. Res. 46, 1506 (2013).
- [16] G. Ramakrishna, O. Varnavski, J. Kim and D. Lee, Theodore Goodson Linear and Nonlinear Optics of Organic Materials VIII 70490L (2008).
- [17] S. Knoppe, H. Häkkinen, and T. Verbiest, J. Phys. Chem. C 119, 6221 (2015).
- [18] A. Bongiorno and U. Landman, Phys. Rev. Lett. 95, 106102 (2005).
- [19] R. F. Haglund, L. Yang, R. H. Magruder, J. E. Wittig, K. Becker, and R. A. Zuhr, Opt. Lett. 18, 373 (1993).
- [20] C. O. Baker, B. Shedd, R. J. Tseng, A. A. Martinez-Morales, C. S. Ozkan, M. Ozkan, Y. Yang and Richard B. Kaner, ACS Nano 5, 3469 (2011).
- [21] H. Haberland, M. Karrais and M. Mall, Z Phys D Atoms, Molecules and Clusters 20, 413 (1991).
- [22] J.A. Northby, T. Jiang, G.H. Takaoka , I. Yamada , W. L. Brown and M. Sosnowski, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 74, 336 (1993).

- [23] N. Toyoda, J. Matsuo and I. Yamada, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 79, 223 (1993).
- [24] I. Yamada, J. Matsuo, N. Toyoda and A. Materials Science and Engineering: R: Reports 34, 231 (2001).
- [25] C. Yin, E. Tyo; K. Kuchta, B. V. Issendorff and S. Vajda, J. Chem. Phys. 140, 174201 (2014).
- [26] N. Toyoda, S. Houzumi and I. Yamada, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 242, 466 (2006).
- [27] S. Vajda and Michael G. White, ACS Catal. 5, 7152 (2015).
- [28] I. M. Goldby, B. V. Issendorff, L. Kuipers and R. E. Palmer, Rev. Sci. Instrum. 68, 3327 (1997).
- [29] B. V. Issendorff and R. Palmer, Rev. Sci. Instrum. 70, 4497 (1999).
- [30] S. Pratontep, S. Carroll, C. Xirouchaki, M. Streun and R. Palmer, Rev. Sci. Instrum. 76, 45103 (2005).
- [31] Z. W. Wang and R. E. Palmer, Phys. Rev. Lett. 108, 245502 (2012).
- [32] S. R. Plant, L. Cao, and R. E. Palmer, J. Am. Chem. Soc. 136, 7559 (2014).

**版权声明:** ©2024 作者与开放获取期刊研究中心(OAJRC)所 有。本文章按照知识共享署名许可条款发表。 http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/

