

文章编号: 1007-4627(2017)03-0624-06

# 用于兰州彭宁离子阱的多反射飞行时间质量分析器的设计和优化

王永生<sup>1,2,3</sup>, 田玉林<sup>1,2</sup>, 王均英<sup>1</sup>, 周小红<sup>1</sup>, 黄文学<sup>1,†</sup>

- (1. 中国科学院近代物理研究所, 兰州 730000;
2. 中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049;
3. 兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000)

**摘要:** MRTOF-MS 是最近几年发展起来的新型质谱仪, 较传统的飞行时间质谱仪而言, MRTOF-MS 质量分辨本领更高。开发了一种用于 MRTOF-MS 设计的新方法, 该方法由参数设置部分和离子运动计算部分共同组成; 分全局搜索和局部细化两个步骤, 可用于优化 MRTOF-MS 的几何构型、计算不同条件下的最佳电压设置组合。基于这种方法, 设计了一种机械结构与国际上同类设备不同的 MRTOF-MS, 该设备可用于高精度原子核质量测量, 也可用于快速质量选择, 为 LPT 提供纯净的目标核。通过优化, 确定了其几何参数和电压参数, 讨论了不同电极上的电压偏差对质量分辨本领的影响, 定量地分析了电源的精度要求。优化结果表明: MRTOF-MS 的最佳漂移长度约为 400 mm; 在最佳电压设置下, 当  $^{40}\text{Ar}^{1+}$  的总飞行时间为 6.5 ms 时, 其质量分辨本领可达  $1.3 \times 10^5$ ; 要求电源精度好于 50 ppm, 最好达到 20 ppm。

**关键词:** 飞行时间质量分析器; 多反射; 质量测量; 同质异位素在线分离

**中图分类号:** O571.53      **文献标志码:** A      **DOI:** 10.11804/NuclPhysRev.34.03.624

## 1 引言

多反射飞行时间质量分析器 (MRTOF-MS, Multi-Reflection Time-Of-Flight Mass Spectrometer/Separator) 是一种用于质谱测量和质量分析的实验设备<sup>[1]</sup>。这种设备具有灵敏度高、质谱测量范围广、质量分辨本领相对较高、测量过程较简单且不受杂质干扰、机械构造紧凑和造价较便宜等特点。

文献[2, 3]对MRTOF-MS的工作原理进行了阐述。如图1所示, MRTOF-MS的核心部分由入口反射区、出口反射区、单透镜和无场区等部分组成。其中, 单透镜使离子稳定运动, 反射区可以改变离子的运动方向和实现离子的俘获或释放。离子在MRTOF-MS中的运动可分为3个阶段: (1) 俘获阶段, 本阶段入口反射区电极处于地电位, 出口反射区电极处于高电位, 离子穿越入口后进入无场区; (2) 存储阶段, 此时入口反射区和出口反射区的电极都处在高电位, 离子在MRTOF-MS中往返运动; (3) 释放阶段, 该阶段出口反射区电极处于地电位, 入口反射区电极处于高电位, 离子将穿过出口反射区而被释放。离子在MRTOF-MS中的飞行时间与其质荷比的平方根呈线性关系, 描述MRTOF-MS性

能的主要参量为质量分辨本领  $R$ :

$$R = m/\Delta m = TOF/2/\Delta TOF, \quad (1)$$

$$TOF = \alpha(m/q)^{1/2} + \beta, \quad (2)$$

其中:  $TOF$  为飞行时间;  $m/q$  为质荷比;  $\Delta m$  和  $\Delta TOF$  分别为质量和飞行时间的分布宽度; 线性系数  $\alpha$  和  $\beta$  可通过两个质量已知的参考核确定。

在原子核物理研究中, MRTOF-MS 主要有两方面的应用。一方面, 与探测器(如: 微通道板探测器<sup>[4]</sup>)联合使用, 通过测定不同离子的飞行时间而确定质谱<sup>[5]</sup>; 另一方面, 与带电粒子快速偏离装置(如: Bradbury-Nielson-Gate, BNG<sup>[6]</sup>)联合使用, 可实现同重素的在线分离<sup>[7]</sup>, 为后续设备提供纯净的目标核。MRTOF-MS 还在日常生产和生活中有着巨大的实际应用潜能<sup>[8]</sup>, 小型化、便携式的 MRTOF-MS 可用于生化、环境、国防、药检、考古和食品安全等众多领域, 能满足节省资源、高效快速等要求。

近年来, MRTOF-MS 在世界各大实验室得到了蓬勃发展, 欧洲的 ISOLTRAP/CERN<sup>[9]</sup>、MATS/FAIR<sup>[3]</sup>、JYFLTRAP/IGISOL<sup>[10]</sup> 和 PILGRIM/GANIL<sup>[11]</sup>, 北美洲的 TITAN/TRIUMF<sup>[12]</sup>、CPT/ANL<sup>[13]</sup>、

收稿日期: 2016-11-10; 修改日期: 2017-05-19

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11605268, 11405243, 11675224); 国家重点基础研究发展计划项目(973计划)(2013CB834400)

作者简介: 王永生(1987-), 男, 河南信阳人, 助理研究员, 硕士, 从事粒子物理与原子核物理研究; E-mail: yswang629@impcas.ac.cn

† 通信作者: 黄文学, E-mail: huangwx@impcas.ac.cn.

UNISOR<sup>[14]</sup>和Notre Dame大学<sup>[15]</sup>，亚洲的RIKEN<sup>[16]</sup>和RAON<sup>[17]</sup>都已经建成或者正在建设各自的MRTOF-MS。在中国科学院近代物理研究所，我们正在兰州彭宁离子阱(Lanzhou Penning Trap, LPT)<sup>[18]</sup>上配套建设MRTOF-MS<sup>[19]</sup>。一方面，用于短寿命核的高精度质量测量；另一方面，作为同质异位素素在线分离装置快速分离杂质，为LPT提供纯净的目标核。

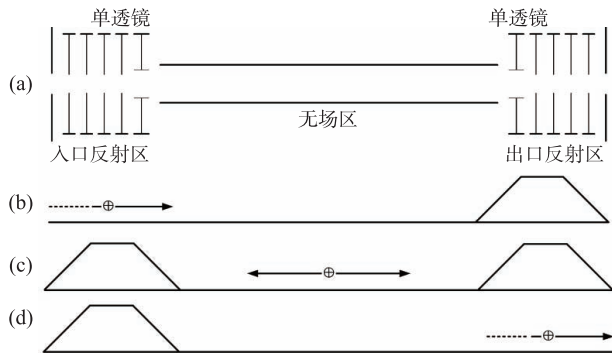


图 1 MRTOF-MS原理示意图

(a)平面示意图；(b)俘获阶段；(c)存储阶段；(d)释放阶段。

MRTOF-MS的电场分布和离子束条件都比较复杂，优化其几何结构和电压设置对理解离子在MRTOF-MS中的运动过程、MRTOF-MS的设计以及设备调试和运行中初始值的设定等都有非常重要的指导意义。为此，我们开发了一套用于MRTOF-MS设计和优化的软件，并用该软件完成了对用于LPT上的MRTOF-MS的优化设计。

## 2 设计与优化

### 2.1 LPT上的MRTOF-MS

用于LPT的MRTOF-MS的结构设计如图2所示，束线可以分为参考离子源、调能腔、束流传输部分、核心部分和探测器等部分。其中，参考离子源可在调试和运行中提供参考核；核心部分如上所述，由入口/出口反射电极、入口/出口透镜和无场区漂移管组成；束流传输部分由传输透镜构成，用来聚焦和传输束流；调能腔用来调整离子的能量，并使束流脉冲化；在时间焦平面上放置微通道板(MCP)探测器或BNG离子门，分别用作飞行时间测量或同重素在线分离。除了束线，MRTOF-MS还包括真空系统、冷却系统、控制与数据获取系统等。

LPT上MRTOF-MS的核心部分的结构如下：对称分布的入口反射区和出口反射区，由编号为M1, M2, M3和M4的4对(8个)反射电极组成。反射电极

的内径为60 mm，长度分别为20, 16, 26和26 mm；长度为46 mm、内径为60 mm的透镜电极(编号为L)；长度为400 mm(详见第3.2节)、内径为60 mm的漂移管(编号D)。为屏蔽漂移管外部的电场、摒弃远离稳定轨道的离子，我们在离漂移管出口和入口30 mm的位置设置了内径为30 mm的“屏蔽孔”。

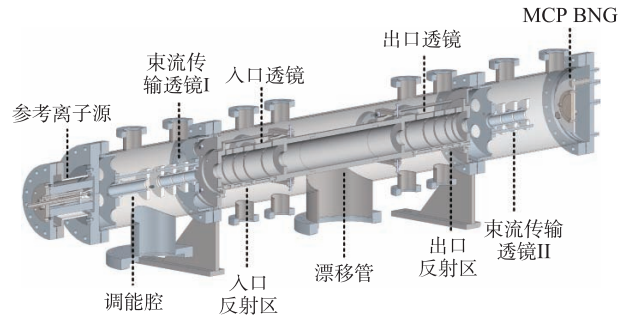


图 2 (在线彩图) LPT上MRTOF-MS的机械总图

### 2.2 MRTOF-MS优化方法

MRTOF-MS的参数优化软件的程序框图如图3所示，大致可以分为两部分：(1)参数设定部分。该部分一方面通过下山单纯形算法确定参数，另一方面将参数输入到离子运动计算部分；(2)离子运动计算部分。这部分在SIMION代码<sup>[20]</sup>中进行，SIMION根据参数设定部分输入的参数，计算一定飞行圈数下离子在MRTOF-MS中的运动轨迹、飞行时间等，并返回

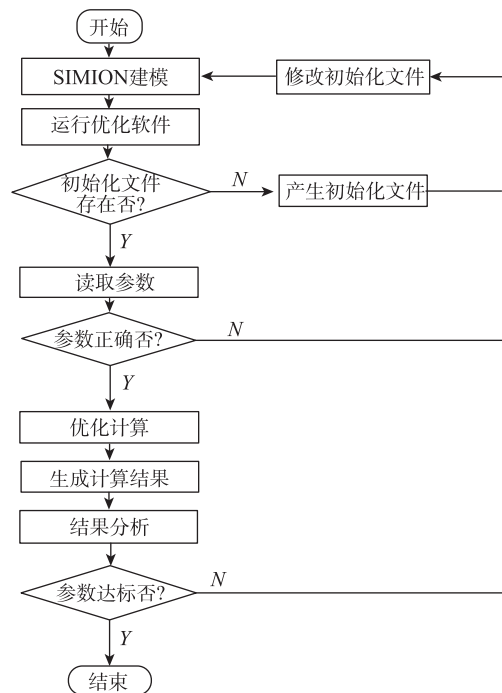


图 3 MRTOF-MS优化程序框图

飞行时间分布宽度值  $\Delta TOF$  到参数设定部分。该软件具有两方面的特点：(1) 搜寻能力强，能在全局范围内寻找出最佳参数设置组合；(2) 不受几何模型的限制，具有很强的硬件扩充潜力。

确定几何模型和束流条件后，分两步完成优化计算：(1) 全局搜索。根据束流光学知识，确定各电极的电压值的大概范围，并在这个范围内选取若干组电压设置组合作为初始值，在全局参数范围内计算不同参数设置组合下的飞行时间和飞行时间分布宽度，并输出全部参数设置组合和时间计算结果；(2) 局部细化。在全局搜索结果中筛选出几组飞行时间分布宽度较小的电压设置组合，并在各组合 1% 范围内随机选取几组初始值，在较小范围内进一步优化计算并输出结果，我们从众多组合中选取飞行时间分布宽度最小的一组作为最佳电压设置。全局搜索和局部细化都用上述优化软件进行，二者的不同之处在于初始条件不同，细化后得到的飞行时间分布宽度更小，质量分辨本领更高。

### 3 结果与讨论

利用上述软件，我们对 LPT 上的 MRTOF-MS 进行了优化计算，优化的对象为其核心部分，不包括束流脉冲化和束流传输部分。与实际结合，我们在计算中选用了能量  $E_K = 1.5$  keV、能量宽度  $\delta E_K = 8.5$  eV 的  $^{40}\text{Ar}^{1+}$  离子，每个束团中的离子数为 100 个，束团的脉冲宽度为 20 ns；离子的起始位置为核心部分的几何中心， $x = y = 0$ ，位置分布宽度  $\delta x = \delta y = 1$  mm；离子在  $x$ 、 $y$  方向上的出射角度  $\alpha = \beta = 0$  mrad，角度分布宽度  $\delta\alpha = \delta\beta = 1.5$  mrad；离子飞行的终止位置为时间焦平面，LPT 上 MRTOF-MS 的时间焦平面离出口端平面的距离为 255 mm。

离子存储阶段，对称的每两个电极具有相同的电压设置，因此，在优化计算中，可将其合并为一个电极，共 5 个参量；实际运行中，漂移管始终处于地电位，在优化过程中可固定漂移管的电压。综上所述，在对核心部分优化计算的过程中，一共有 5 个变量。根据束流光学知识，我们在一定范围内对 M1, M2, M3, M4 和 L 电极上的电压分别给出 6, 6, 5, 6, 6 个电压估计值，以此为基础，组合成  $6 \times 6 \times 5 \times 6 \times 6 = 6480$  组电压设置，并以这些组合为初始电压设置进行优化计算。

#### 3.1 电压参数组合优化

MRTOF-MS 为“电阱”，各电极上的电压设置直接影响到其分辨本领。计算发现，离子的动能与电荷态的比值  $E_K/q$ 、漂移管的长度、离子在 MRTOF-MS 核

心部分的飞行圈数等因素都会影响到电压设置组合的优化，可以说，每一种不同的初始条件都对应着各自的最佳电压参数设置组合。如在 LPT 上 MRTOF-MS 的调试中， $^{40}\text{Ar}^{1+}$  离子的飞行圈数为 350 圈，对应的最佳电压设置组合的计算值如下： $V_{M1} = 2502.5$  V， $V_{M2} = 2002.2$  V， $V_{M3} = 1420.9$  V， $V_{M4} = 817.1$  V， $V_L = -4473.1$  V。

#### 3.2 漂移管长度优化

在固定 MRTOF-MS 核心部分的反射电极和透镜电极几何尺寸的情况下，我们计算了不同漂移管长度的最佳分辨本领。

如图 4 所示，漂移管的长度不同，所对应的最佳分辨本领的计算值也不相同。当漂移管的长度在 398 与 402 mm 之间时，最佳分辨本领更高。LPT 上 MRTOF-MS 核心部分的漂移管长度取值为 400 mm。

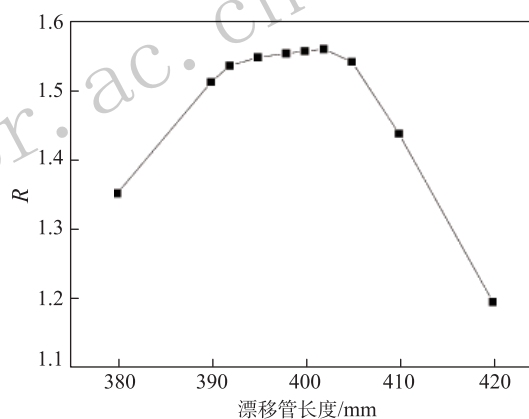


图 4 最佳分辨本领  $R$  随漂移管长度变化的曲线

#### 3.3 时间因素影响计算

从公式 (1) 可以看出，影响 MRTOF-MS 质量分辨本领的直接因素有两方面：飞行时间  $TOF$  和飞行时间分布宽度  $\Delta TOF$ 。在优化计算中，我们可以通过控制离子在 MRTOF-MS 中的飞行圈数来大概控制其飞行时间。

根据图 5 给出的数据，我们可以得到以下两方面的结论：(1) 质量分辨本领随着飞行圈数的增加而增加；(2) 与公式 (1) 所描述的关系略有不同，该曲线并非非线性增加。其原因是飞行圈数不一样，电压设置不同，电场分布也会随之发生变化，离子在 MRTOF-MS 中的飞行轨迹和飞行时间均不完全相同，从而导致了这种“非线性”现象。

不同于计算，在实验中，我们无法准确地控制离子在 MRTOF-MS 核心部分的飞行圈数，而是通过控制离

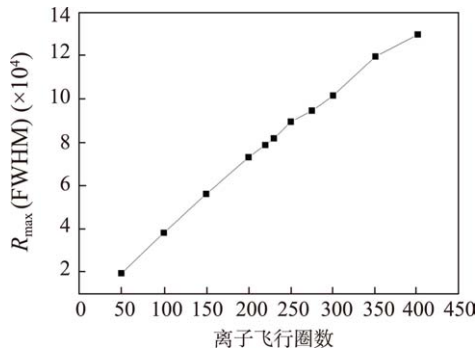


图 5 不同飞行圈数下MRTOF-MS的最佳分辨本领

子的俘获时间和释放时间，估计离子的飞行圈数。而在一次测量中，只能设定一组电压设置参数，因此，有必要分析相同电压设置组合条件下，不同飞行圈数或飞行时间对质量分辨本领的影响。我们利用  $^{40}\text{Ar}^{1+}$  飞行 350 圈的最佳电压设置组合，计算了不同圈数的飞行时间  $TOF$ 、飞行时间分布宽度  $\Delta TOF$  和质量分辨本领  $R$  (图 6)。

由图 6(a) 可见，当电压设置固定时，飞行时间随着飞行圈数的增加而线性增加。这是由于当电压设置和电场分布固定时，离子的运动轨迹稳定，每一圈的飞行时

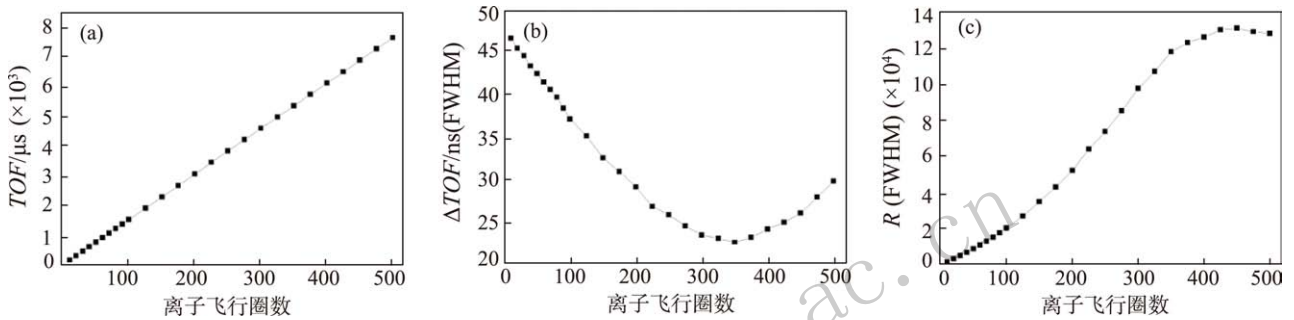


图 6 固定参数条件下不同飞行圈数对应的飞行时间  $TOF$  (a)、飞行时间分布宽度  $\Delta TOF$  (b) 和质量分辨本领  $R$  (c)

间基本相同，总的飞行时间与飞行圈数成正比。如图 6(b) 所示，当飞行圈数为 350 圈时，离子的飞行时间分布宽度  $\Delta TOF$  最小，越是远离 350 圈， $\Delta TOF$  越大，事实上，我们在计算中的判断依据正是离子束团飞行到时间焦平面上的时间分布宽度，最佳电压设置组合所对应的飞行时间分布宽度最小。由图 6(c) 可知，质量分辨本领在 350 圈时为  $1.1 \times 10^5$ ，在 430 圈时达到极大值，为  $1.3 \times 10^5$ ，分析认为，出现极值的原因是 430 圈以后，飞行时间分布宽度随飞行圈数变化的斜率较飞行时间的大。

### 3.4 电源精度要求计算

电源精度将直接影响到各电极上电压的设定，从而影响到质量分辨本领。图 7 给出了电压偏离对 MRTOF-MS 的飞行时间和质量分辨本领的影响。从图中可以看出，当电压设定值偏离最佳优化设定值时，飞行时间会发生变化，M1, M2, M3 和 L 电极具有相同的变化趋势，分析易得：当反射区的电场较弱时，离子将会因为穿越深度更深而用较多的时间，相反则会用较少的时间。当实际设定的电压值偏离最佳优化值时，MRTOF-MS 的质量分辨本领会相应降低，M4 和 L 电极受电源精度的影响相对较小，电源精度对 M1 和 M2 的影响较大，M3 电极对电压设置最为敏感。经分析发现，该电

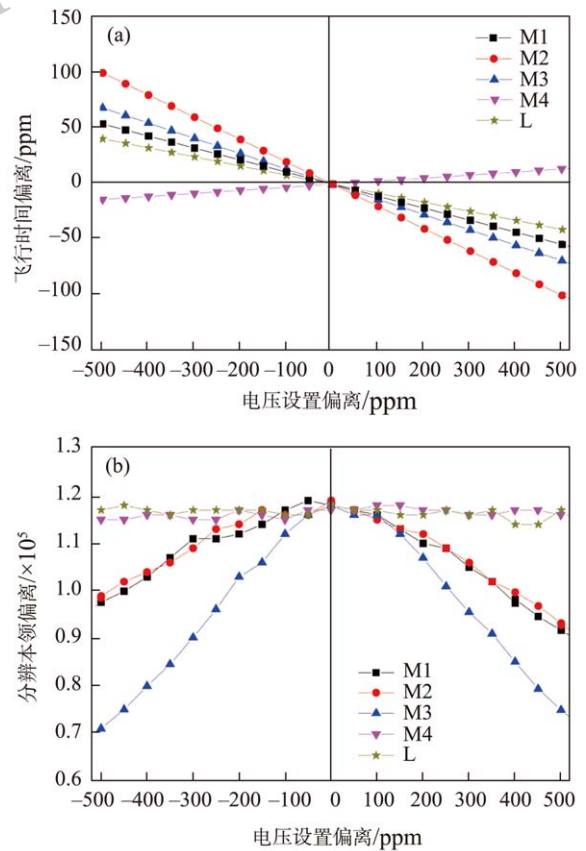


图 7 (在线彩图) 电压偏离对  $^{40}\text{Ar}^{1+}$  离子飞行时间 (a) 和分辨本领 (b) 的影响

极所处的位置是离子运动的折返点,也就是说,离子在这个区域对电源的精度和稳定性要求最高。为保证 MRTOF-MS 质量分辨本领,我们要求 L, M4, M1 和 M2 的电源的精度达到 50 ppm, M3 上的电源精度最好能达到 20 ppm。

#### 4 总结

我们开发了一种新的 MRTOF-MS 设计和优化的新方法,这种方法分为全局搜索和局部细化两步,可以实现对 MRTOF-MS 的几何参数和电压设置组合的优化,具有搜寻能力强和受硬件限制少等方面的特点。

利用该方法,我们完成了对 LPT 上 MRTOF-MS 的设计和优化,优化结果表明:此设备的最佳漂移长度约为 400 mm;在最佳电压设置下,当  $^{40}\text{Ar}^{1+}$  的总飞行时间为 6.5 ms 时,其质量分辨本领可达  $1.3 \times 10^5$ ;要求电源精度好于 50 ppm,最好达到 20 ppm。

#### 参考文献:

- [1] WOLLNIK H. *Int J Mass Spectrom*, 2013, **349-350**: 38.
- [2] WOLLNIK H and PRZEWLOKA M. *Int J Mass Spectrom*, 1990, **96**(3): 267.
- [3] PLASS W R, DICKEL T, SCHEIDENBERGER C. *Int J Mass Spectrom*, 2013, **349 - 350**: 134.
- [4] WOLF R, ERITT M, MARX G, *et al.* *Hyperfine Interact*, 2011, **199**(1-3): 115.
- [5] WIENHOLTZ F, BECK D, BLAUM K, *et al.* *Nature*, 2013, **498**(7454): 346.
- [6] BRUNNER T, MUELLER A R, O' SULLIVAN K, *et al.* *Int J Mass Spectrom*, 2012, **309**: 97.
- [7] WOLF R N, BECK D, BLAUM K, *et al.* *Phys Rev Lett*, 2013, **110**: 041101.
- [8] DICKEL T, PLASS W R, LANG J, *et al.* *Nucl Instr Meth B*, 2013, **317**(Part B): 779.
- [9] WOLF R N, WIENHOLTZ F, ATANASOV D, *et al.* *Int J Mass Spectrom*, 2013, **349-350**: 123.
- [10] MOORE I D, ERONEN T, GORELOV D, *et al.* *Nucl Instr Meth B*, 2013, **317**(Part B): 208.
- [11] CHAUVEAU P, DELAHAYE P, DE FRANCE G, *et al.* *Nucl Instr Meth B*, 2016, **376**: 211.
- [12] KWIATKOWSKI A A, MACDONALD T D, ANDREIOIU C, *et al.* *Nucl Instr Meth B*, 2013, **317**(Part B): 517.
- [13] HIRSH T Y, PAUL N, BURKEY M, *et al.* *Nucl Instr Meth B*, 2016, **376**: 229.
- [14] PIECHACZEK A, SHCHEPUNOV V, CARTER H K, *et al.* *Nucl Instr Meth B*, 2008, **266**(19 - 20): 4510.
- [15] SCHULTZ B E, KELLY J M, NICOLOFF C, *et al.* *Nucl Instr Meth B*, 2016, **376**: 251.
- [16] SCHURY P, WADA M, ITO Y, *et al.* *Nucl Instr Meth B*, 2014, **335**: 39.
- [17] YOON J W, PARK Y H, IM K B, *et al.* *JPS Conf Proc*, 2015, **6**: 030120-1.
- [18] HUANG W X, TIAN Y L, WANG J Y, *et al.* *Nucl Instr Meth B*, 2013, **317**(Part B): 528.
- [19] TIAN Y L, WANG Y S, WANG J Y, *et al.* *Int J Mass Spectrom*, 2016, **408**: 28.
- [20] MANURA D J, DAHL D A. SIMION 8. 0 User Manual. Scientific Instrument Services, Inc., Idaho National Laboratory, 2006.

## Design and Optimization of A Multi-reflection Time-of-flight Mass Spectrometer for LPT

WANG Yongsheng<sup>1,2,3,1)</sup>, TIAN Yulin<sup>1,2</sup>, WANG Junying<sup>1</sup>, ZHOU Xiaohong<sup>1</sup>, HUANG Wenxue<sup>1,†</sup>

(1. *Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;*

2. *School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;*

3. *School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China)*

**Abstract:** Multi-reflection time-of-flight mass spectrometer (MRTOF-MS) has been developed as a new device which has a higher mass resolving power than traditional mass spectrometers in recent years. A new method including two sub-procedures, global search and local refinement, has been developed and applied to design a MRTOF-MS. It consists of two components, parameter configuration and ion motion simulation, and can be used to optimize the geometries of the spectrometer and the potentials applied on the electrodes to achieve the optimum in different conditions. By using this method, a different type of MRTOF mass analyzer has been designed for mass measurements and isobaric separation for Lanzhou Penning Trap (LPT). The geometry of this analyzer and potentials at different electrodes have been optimized, and the relations between resolving power and potentials and the power accuracy requirements have been analyzed and discussed quantitatively. The simulation shows that the optimal length of the drift-tube is about 400 mm; the maximal resolving power of  $1.3 \times 10^5$  has been achieved with a total time-of-flight of 6.5 ms under the optimal potentials for an ion species of  $^{40}\text{Ar}^{1+}$ ; and the inaccuracy of the potentials applied to the mirror electrodes must be less than 50 ppm or preferably 20 ppm.

**Key words:** time-of-flight mass spectrometer; multiple-reflection; mass measurement; isobaric separation

<http://www.npl.ac.cn>

---

**Received date:** 10 Nov. 2016; **Revised date:** 19 May 2017

**Foundation item:** National Natural Science Foundation of China (11605268, 11405243, 11675224); National Basic Research Program of China(973 Program)(2013CB834400)

† **Corresponding author:** E-mail: [huangwx@impcas.ac.cn](mailto:huangwx@impcas.ac.cn).