

## УСКОРИТЕЛЬНЫЙ МАСС-СПЕКТРОМЕТР С СЕЛЕКЦИЕЙ ИОНОВ В ВЫСОКОВОЛЬТНОМ ТЕРМИНАЛЕ

*С. А. Растигеев<sup>a, b, 1</sup>, А. Д. Гончаров<sup>a</sup>, В. Ф. Клюев<sup>a</sup>, Е. С. Константинов<sup>a</sup>,  
Л. А. Кутнякова<sup>c</sup>, В. В. Пархомчук<sup>a, b</sup>, А. В. Петрожицкий<sup>a</sup>, А. Р. Фролов<sup>a</sup>*

<sup>a</sup> Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН, Новосибирск, Россия

<sup>b</sup> Новосибирский государственный университет, Новосибирск, Россия

<sup>c</sup> Институт археологии и этнографии СО РАН, Новосибирск, Россия

Электростатический тандемный ускоритель с поворотом и селекцией ионов в высоковольтном терминале является основой УМС ИЯФ. Мишень на парах магния в качестве обдирочной без ухудшения вакуума и времяпролетный телескоп с тонкими пленками для надежной идентификации ионов — дополнительные особенности УМС ИЯФ. Ускорительный комплекс демонстрирует надежную работу в режиме 1 МВ с 50-Гц скоростью счета радиоуглерода  $^{14}\text{C}^{+3}$  для современных образцов ( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \sim 1,2 \cdot 10^{-12}$ ). Рассмотрено текущее состояние дел на УМС, приводятся результаты экспериментов по измерению концентрации радиоуглерода в тестовых образцах.

The BINP AMS is based on folded type electrostatic tandem accelerator with middle energy separator of ion beams. Other distinguishing features of the BINP AMS are the magnesium vapors target as a stripper for good vacuum conditions and time-of-flight telescope with thin films for accurate ion identification. The accelerator complex has demonstrated sustained performance at 1 MV running, with 50 Hz radiocarbon  $^{14}\text{C}^{+3}$  count rate from modern sample ( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \sim 1.2 \cdot 10^{-12}$ ). Present status of AMS complex and the results of experiments for radiocarbon concentration measurements in test samples are presented.

PACS: 07.75.+h

### ВВЕДЕНИЕ

Ускорительный масс-спектрометр (УМС) является сверхчувствительным методом для обнаружения и количественной оценки с высокой точностью редких долгоживущих изотопов. Чувствительность УМС несоизмеримо выше любых других методов, поскольку при УМС-анализе производится непосредственное извлечение атомов из исследуемого вещества и поштучный подсчет редких изотопов. Высокая чувствительность метода позволяет анализировать образцы миллиграммовых масс.

Методика УМС широко применяется в области археологии и геологии для радиоуглеродного датирования и составления временных шкал природных отложений, а также в других областях науки, таких как биомедицина, экология, астрофизика, материаловедение, криминалистика и др.

---

<sup>1</sup>E-mail: S.A.Rastigeev@inp.nsk.su

### СЕЛЕКЦИЯ ИОНОВ В УМС ИЯФ

При радиоуглеродном анализе на каждый ион радиоуглерода приходится примерно  $10^8$  молекулярных изобар, состоящих из водорода и стабильного изотопа углерода. Основная задача при создании комплекса УМС — выделение интересующего изотопа из сопутствующего ионного фона на уровне  $10^{-12}$ – $10^{-15}$  (ион/ионный фон). Функциональная схема УМС ИЯФ приведена на рис. 1.

Образцы распыляются пучком цезия в ионном источнике [1, 2]. Выбиваемые с образца ионы вытягиваются положительным потенциалом электрического поля, таким образом, на выходе ионного источника образуется пучок отрицательных ионов с энергией 25 кэВ, состоящий из атомов и молекул исследуемого образца. Образованные ионы проходят систему селекций в дипольном магнитном поле. Основное назначение данной стадии селекций — существенное подавление масс, отличающихся от выбранной на 1 а.е.м. После низкоэнергетичной стадии селекций отрицательные ионы с редким изотопом ускоряются до энергии 1 МэВ к высоковольтному терминалу тандемного ускорителя. Кроме того, ускоряется пучок изобарных ионов, превосходящий по интенсивности исследуемый на много порядков, и фоновый поток ионов различных масс, преодолевший первую стадию селекций. При прохождении пучка ионов через перезарядную мишень достаточно большой толщины в результате процессов захвата и отрыва электронов образуется пучок ионов всех зарядностей вне зависимости от исходного значения заряда ионов в пучке. В комплексе УМС ИЯФ в качестве перезарядной мишени используется мишень на парах магния [3]. Такая мишень не ухудшает вакуум за пределами нагреваемого объема. Ухудшение вакуумных условий, особенно в ускорительных трубках, вызывает увеличение количества прошедших фоновых частиц [4, 5]. Одним из важнейших результатов на данном этапе анализа является возможность развала молекулярных ионов, особенно изобарных, близких по массе к выделяемым ионам и, как следствие, трудно отделяемых в электромагнитных полях. В отличие от атомарных ионов максимальное зарядовое состояние, достижимое молекулярными ионами, равно +2, при отрыве дополнительного электрона молекулы разваливаются. Таким образом, на выходе перезарядной мишени будут изначальные атомарные ионы, ионы атомарных осколков молекул в различных зарядовых состояниях, изначальные молекулы и молекулярные осколки изначальных молекул в зарядовом состоянии, не превышающем +2. Максимальная кинетическая энергия будет у ионов, долетевших до терминала в зарядовом состоянии –1, часть ионов при ускорении

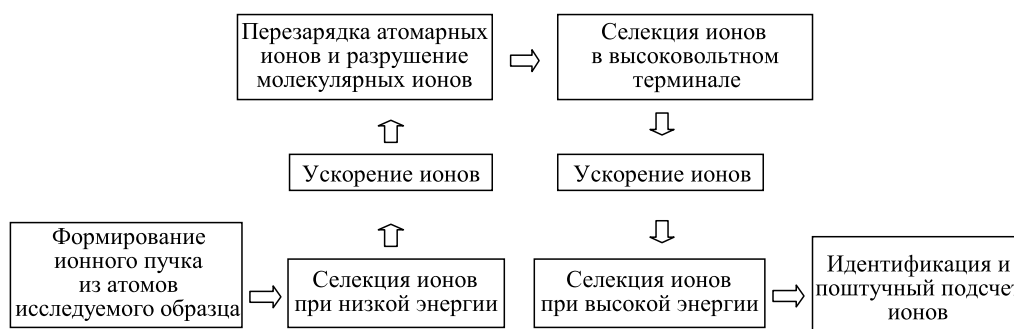


Рис. 1. Функциональная схема УМС ИЯФ

перезарядится в зарядовое состояние 0 и будет обладать меньшей кинетической энергией в области высоковольтного терминала. Кинетическая энергия осколков молекул будет также меньше кинетической энергии молекул, пропорционально доле общей массы. Наличие системы селекции ионов в области высоковольтного терминала является одной из отличительных особенностей УМС ИЯФ. В обычной системе весь поток ионов после перезарядной мишени переходит на вторую стадию ускорения. Поскольку ионы на входе во вторую ускорительную трубку будут находиться в различных зарядовых состояниях, набираемая энергия будет у ионов разной, пропорционально заряду. Кроме того, перезарядка иона на остаточном газе приводит к тому, что ионы будут находиться в широком диапазоне кинетических энергий, а не только с энергиями, определяемыми начальным зарядом иона. На выходе второй ускорительной трубки энергия осколков молекулярных ионов может быть больше, меньше или даже равна энергии самого молекулярного иона (а на входе всегда меньше), что ухудшает селекцию. В УМС ИЯФ в высоковольтном терминале располагается электростатический поворот, что позволяет выделять ионы в зарядовом состоянии  $3+$  и отсеивать осколки молекулярных ионов. После второй стадии ускорения ионы проходят систему селекции в дипольном магнитном поле, предназначенную для отделения фоновых ионов, отличающихся по массе на 1 а. е. м., прошедших предыдущую стадию селекции. На последнем этапе УМС-анализа производится идентификация ионов во времяпролетном детекторе с поштучным подсчетом ионов [6, 7]. Производится регистрация не только времен пролета ионов, но и момента прилета каждого отдельного иона, что позволяет отсеивать кратковременный ионный фон, вызванный электростатическими пробоями. На рис. 2 приводится масс-спектр времяпролетного детектора для углеродной нити (концентрация радиоуглерода на уровне естественной в живых организмах) и графита МПГ.

Из рис. 2 видно, что ионы радиоуглерода надежно идентифицируются времяпролетным детектором. При УМС-анализе природных образцов осуществляется процедура пробоподготовки образцов. Образцы очищаются от внешних примесей, «сжигаются» в вакууме с добавлением кислорода, далее углерод из образованного углекислого газа каталитически осаждается на порошке железа. Полученный порошок железо-углерод прессуется в пистоны для установки в ионный источник УМС. Процедура пробоподготовки позволяет получать токи отрицательных ионов углерода с любых природных образцов, соизмеримые с токами, получаемыми с графита за счет улучшения теплопроводности и увеличения

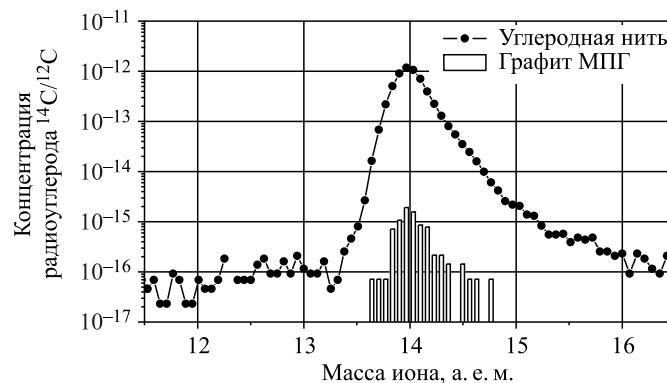


Рис. 2. Масс-спектр на выходе УМС

концентрации углерода. Однако при процедуре пробоподготовки происходит загрязнение образцов «сторонним» углеродом. На данное время минимальный уровень концентрации радиоуглерода в пробоподготовленных образцах составляет  $5 \cdot 10^{-3}$  в сравнении с концентрацией в живых организмах, т. е. примерно в 2,5 раза выше, чем в графите МПГ. Такой уровень загрязнения (концентрации радиоуглерода) соответствует радиоуглеродному возрасту примерно 43 тыс. лет.

### АНАЛИЗ ПОЛЬЗОВАТЕЛЬСКИХ ОБРАЗЦОВ НА УМС ИЯФ

Распылительный источник УМС ИЯФ оснащен барабаном на 23 образца. Дистанционная смена образцов осуществляется шаговым двигателем, позволяющим прокручивать образцы с дискретностью 1/51200 оборота колеса. Обычно в барабан ионного источника устанавливаются 20 графитизированных образцов для измерения концентрации радиоуглерода. Кроме того, в барабан ионного источника устанавливаются два образца из углеродной нити и один образец из графита МПГ с известной концентрацией радиоуглерода для контроля и нормирования процесса измерения образцов. Следует отметить, что контрольные образцы не требуют процедуры пробоподготовки и устанавливаются в барабан ионного источника в естественном виде.

При УМС-анализе образцов необходимо определять концентрацию радиоуглерода, поэтому кроме надежного выделения и подсчета ионов радиоуглерода производится измерение тока ионов стабильного изотопа углерода и нормирование на образцы с известной концентрацией радиоуглерода. На УМС ИЯФ для прохождения разными изотопами дипольного магнита низкоэнергетичной части УМС производится изменение энергии ионов, образованных в ионном источнике, так, чтобы импульс ионов не зависел от массы. Изменение магнитного поля нецелесообразно, так как это существенно более долгий процесс, к тому же характеризующийся гистерезисными эффектами остаточного поля. Одновременно производится согласующее изменение фокусировки и коррекции пучка до входа в ускорительную трубку и напряжения на электростатическом повороте. Радиальная апертура дипольного магнита на выходе УМС позволяет проводить изотопные ионы без каких-либо перестроек. Редкий изотоп подсчитывается детектором частиц, а ток стабильного изотопа измеряется на цилиндре Фарадея с радиальным смещением. На данное время при УМС-анализе углеродных образцов 80 % времени отводится на набор статистики радиоуглерода, 15 % на переключения на стабильный изотоп и обратно, а также на измерение тока стабильного изотопа. Оставшиеся 5 % времени затрачиваются на вращение барабана для смены образца.

После отгаживания образцов и настройки УМС производится измерение концентрации радиоуглерода в образцах. После того как нужный образец поставлен под пучок цезия, производится поочередное измерение тока стабильного изотопа и подсчет числа ионов редкого изотопа. Всего производится четыре переключения между изотопами. Каждый раз по 10 с набирается редкий изотоп и 2 раза измеряется ток стабильного изотопа. Для контрольных образцов углеродных нитей такая процедура повторяется дважды, для остальных — один раз. После чего производится прокручивание барабана на новый образец, а затем измерение нового образца. По окончании измерения всех образцов в барабане аналогичным образом производится измерение образцов на следующем обороте барабана и т. д. На рис. 3 представлены зависимость числа ионов радиоуглерода  $^{14}\text{C}^{3+}$ ,

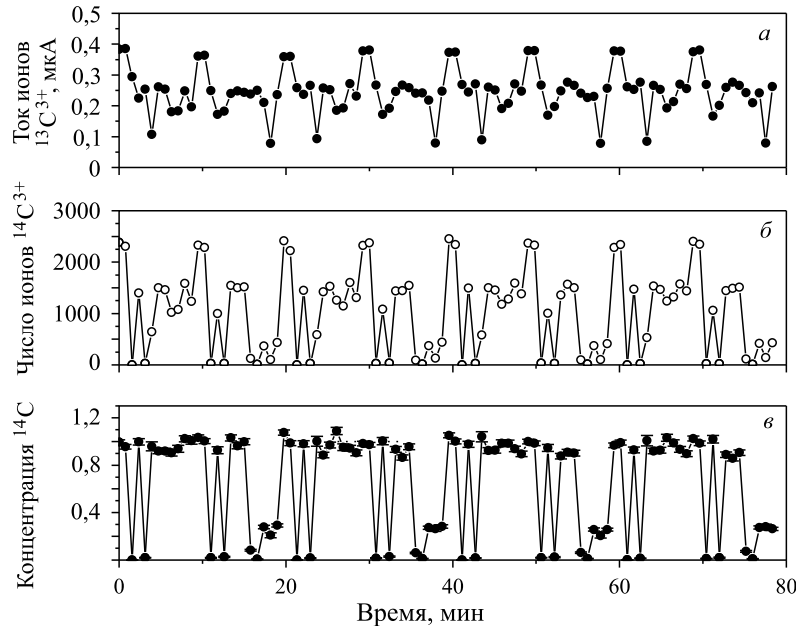


Рис. 3. Зависимость тока ионов  $^{13}\text{C}^{3+}$  (а), числа ионов радиоуглерода (б) и концентрации радиоуглерода (в) от времени при УМС-анализе образцов

ток ионов  $^{13}\text{C}^{3+}$  и концентрация радиоуглерода от времени при УМС-анализе образцов по описанному алгоритму. Приведенные значения числа ионов радиоуглерода соответствуют суммарному значению за 4 измерения, т. е. 40 с. Рис. 3 соответствует измерению четырех оборотов барабана с образцами, время измерения одного оборота — чуть менее 20 мин. Скорость счета ионов радиоуглерода с углеродных нитей примерно равна 60 Гц, что соответствует значению 2400 на рис. 3, б. При такой скорости счета статистическая точность 1 % достигается за время измерения примерно четырех оборотов барабана с образцами. Однако, как видно из рис. 3, а, ток ионов для пробоподготовленных образцов может быть в разы ниже, чем ток с углеродных нитей, поэтому обычно полное время анализа образцов на УМС ИЯФ составляет 4 ч, что соответствует 12 оборотам барабана с образцами. Удвоенное измерение углеродной нити применяется для увеличения набора статистики на данных опорных образцах и, соответственно, уменьшения общей статистической ошибки УМС-анализа, так как на образцы нитей производится нормирование. Кроме того, совпадение результатов измерения дублей углеродной нити (со статистической точностью) свидетельствует об отсутствии переходных процессов при измерении, так как первое измерение осуществляется непосредственно после установки образца под пучок цезия, а второе — после первого измерения, т. е. примерно через 1 мин после установки образца под пучок цезия. В барабан с образцами устанавливаются два образца углеродной нити. Совпадение результатов измерений для данных образцов демонстрирует, что процесс УМС-анализа прошел успешно. По окончании УМС-анализа рассчитывается радиоуглеродный возраст образцов по нормированию на среднюю концентрацию радиоуглерода в углеродных нитях. В качестве примера на рис. 4 приводится радиоуглеродный

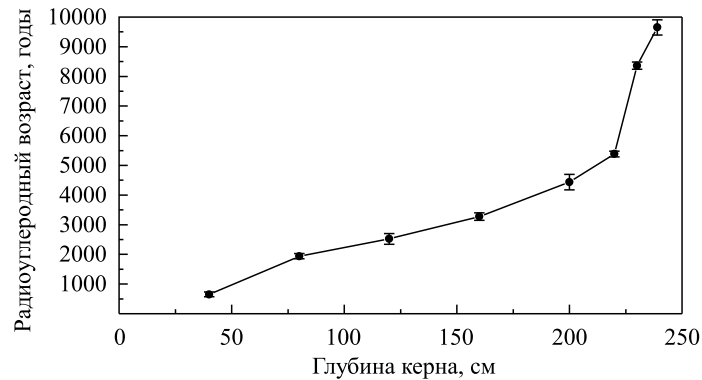


Рис. 4. Радиоуглеродный возраст донных осадков в зависимости от глубины керна

возраст донных осадков озера Ложка (Венгеровский район Новосибирской области) в зависимости от глубины керна по результатам датирования на УМС ИЯФ по описанному алгоритму. За последний год проведен анализ более 700 пользовательских образцов для исследований в различных областях науки.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

НА УМС ИЯФ производится рутинный анализ углеродных образцов. При надежной идентификации ионов радиоуглерода скорость набора статистики для современных образцов составляет примерно 50 событий в секунду.

Работа выполнена при поддержке гранта РНФ (проект № 14-50-00080).

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Алиновский Н. И. и др. Ускорительный масс-спектрометр СО РАН // ЖТФ. 2009. Т. 79, вып. 9. С. 107.
2. Растигеев С. А. и др. Развитие комплекса УМС ИЯФ в ЦКП СО РАН // ВАНТ. 2012. № 3(79).
3. Клюев В. Ф., Пархомчук В. В., Растигеев С. А. Перезарядная мишень на парах магния для ускорительного масс-спектрометра // ПТЭ. 2009. № 2. С. 101.
4. Пархомчук В. В., Растигеев С. А. Исследование ионного фона в ускорительном масс-спектрометре СО РАН // ЖТФ. 2009. Т. 79, вып. 10. С. 129.
5. Пархомчук В. В., Растигеев С. А. Селекция ионов в ускорительном масс-спектрометре ИЯФ СО РАН // Письма в ЭЧАЯ. 2012. Т. 9, № 4–5(174–175). С. 666–671.
6. Алиновский Н. И. и др. Времяпролетный детектор ионов малой энергии для ускорительного масс-спектрометра // ПТЭ. 2009. № 2. С. 90.
7. Пархомчук В. В., Петрожицкий А. В., Растигеев С. А. Тонкопленочный детектор для регистрации ионов на ускорительном масс-спектрометре // Письма в ЭЧАЯ. 2012. Т. 9, № 4–5(174–175). С. 729–734.