

10;12

## Исследование ионного фона в ускорительном масс-спектрометре СО РАН

© В.В. Пархомчук, С.А. Растигеев

Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН,  
630090 Новосибирск, Россия  
e-mail: S.A.Rastigeev@inp.nsk.su

(Поступило в Редакцию 30 июля 2008 г.)

Проведено исследование механизмов прохождения ионного фона в ускорительном масс-спектрометре. Показано, что уровень фона определяется процессами взаимодействия ионов с атомами остаточного газа. Предложен эффективный способ подавления ионного фона.

PACS: 07.75.+h

### Введение

В Институте ядерной физики (ИЯФ) СО РАН создается ускорительный масс-спектрометр (УМС) [1], предназначенный для изотопного анализа углерода. Содержание радиоактивного изотопа углерода массы 14 u в современном образце находится на уровне  $10^{-12}$  относительно основного изотопа. Чувствительность УМС ограничена фоном „посторонних“ ионов, преодолевших все степени селекции анализатора [2]. Ионы азота  $^{14}\text{N}$  и молекулярные ионы близких масс  $^{13}\text{CH}_2$  или  $^{13}\text{CH}$  составляют основу фонового потока. Используя электромагнитные поля, разделяющие ионные траектории, трудно добиться их разделения при малой разности масс  $\Delta m/m < 10^{-4}$ . Кроме отличия масс важно использовать различия свойств взаимодействия атомов с веществом, различия в способности атомов и молекул создавать устойчивые ионы выбранного зарядового состояния. Процессы рассеяния, ионизации, захвата электрона, потери энергии при взаимодействии с остаточным газом вакуумного канала уменьшают возможности селекции.

Каждый элемент селекции выполняет свою функцию. Общую картину выделения изотопа углерода 14 u можно описать следующим образом. Электрические и магнитные фильтры предназначены для отделения ионов с отличием в массе 1 u и более. В ионном источнике генерируются отрицательные ионы углерода, а отрицательные ионы азота нестабильны. Первый спектрометр направляет в ускоряющую колонну все ионы с массой 14 u, молекулярные ионы разрушаются в перезарядной мишени. Начальное количество молекулярных ионов массы 14 u определяется оставшимся водородом после процесса графитизации образца, и обычно не превышает  $10^{-3}$  в сравнении с  $^{12}\text{C}$ .

Все, что не удастся отфильтровать вышеперечисленными способами, анализируется ядерным детектором. Применение детекторов ядерной физики становится возможным, так как ионы ускоряются до энергии в несколько мегаэлектрон-вольт. При этом можно использовать торможение ионов в газе или пленках для дополнительного разделения. Наибольшее распространение получили УМС на основе электростатического ускорителя

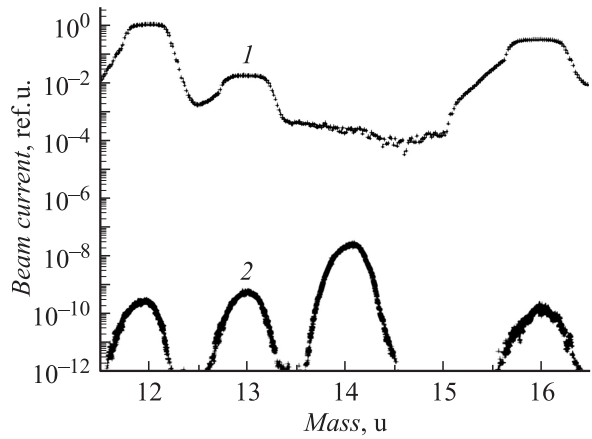
тандемного типа. Образец в таких системах находится под низким потенциалом, что необходимо для рутинной ежедневной смены анализируемых образцов.

В существующих УМС системах не предусмотрена селекция ионов в высоковольтном терминале ускорителя. Создаваемый в ИЯФ комплекс обеспечивает фильтрацию „осколков“ молекулярных ионов электростатическим поворотом непосредственно в месте их образования. Движение ионов в таком УМС может быть описано следующим образом. Отрицательные ионы горизонтально ускоряются в ионном источнике до энергии инъекции, далее поворачиваются на  $90^\circ$  в магнитном поле и ускоряются вертикально вверх в первой ускорительной трубке к положительному потенциалу высоковольтного терминала. Ионы, „обдираются“ до положительного заряда в мишени на парах магния, поворачиваются на  $180^\circ$  в электронном поле, далее ускоряются вниз во второй ускорительной трубке к потенциалу земли. Ускоренные ионы поворачиваются на  $90^\circ$  в магнитном поле и горизонтально поступают в детектор частиц.

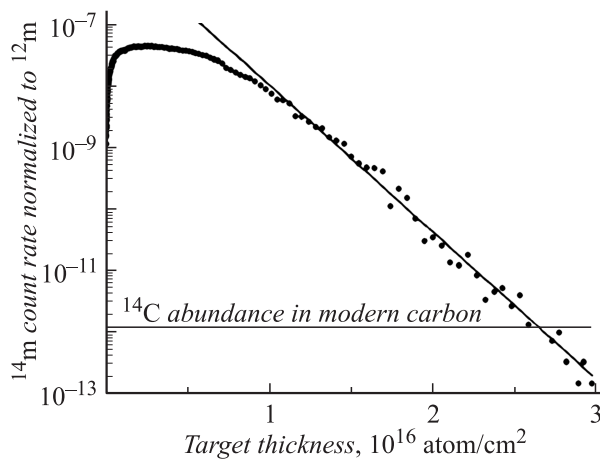
Ускоритель на данный момент не имеет радиационной защиты, поэтому изучение фона ионов проводилось на 250 kV напряжении высоковольтного терминала. При энергии инъекции, равной 10 keV, энергия пучка на выходе УМС составляет 760 и 1010 keV для ионов с зарядом 2+ и 3+ соответственно. После прохождения перезарядной мишени на парах магния доля ионов с зарядом 2+ составляет 3%, с зарядом 3+ — 0.05%. Планируется подъем терминального напряжения до 2 MV для увеличения доли ионов с зарядом 3+ до 50%.

### Исследование ионного фона

Типичный масс-спектр ионов графитового образца представлен на рис. 1. Спектр отрицательных ионов (кривая 1) снимался цилиндром Фарадея на выходе инъекционного магнита. Видно, что кроме ионов углерода присутствует большое количество ионов кислорода. Природное содержание изотопа углерода массы 13 u составляет примерно 1.1% от содержания основного



**Рис. 1.** Масс-спектр инжектированного (1) и ускоренного (2) пучков.



**Рис. 2.** Разрушение молекулярных ионов при прохождении мишени на парах магния. По оси ординат — число событий массы 14 у, нормированное на число событий массы 12 у. По оси абсцисс — толщина мишени. На рисунке отмечен уровень содержания изотопа углерода массы 14 у в современном, „живом“ образце.

изотопа. Однако измеренное значение содержания массы 13 у составляет примерно 2%. Это объясняется тем, что атомы  $^{13}\text{C}$  и молекулы  $^{12}\text{C}^{13}\text{N}$  практически не разделяются инжекционным магнитом. Нижний спектр на рис. 1 соответствует ионам с зарядом 2+, снятый полупроводниковым детектором на выходе УМС. При этом инжекционный магнит настроен на прохождение массы 14 у электростатический поворот на заряд 2+, сканирование производится магнитом на выходе ускорителя. Величины токовых пиков примерно одного порядка, но фон масс 12, 13, 16 у подавлен на 7–9 порядков. Пик массы 14 у в спектре не является изотопом углерода массы 14 у, так как содержание  $^{14}\text{C}$  в промышленном графите на несколько порядков меньше по сравнению с уровнем  $10^{-12}$  современных образцов. Видимый в спектре пик массы 14 у — молекулярный фон. Известно, что молекулярные ионы разрушаются при взаимодействии с

веществом [3]. Для большего разрушения молекул с зарядом 2+ толщину мишени необходимо увеличивать.

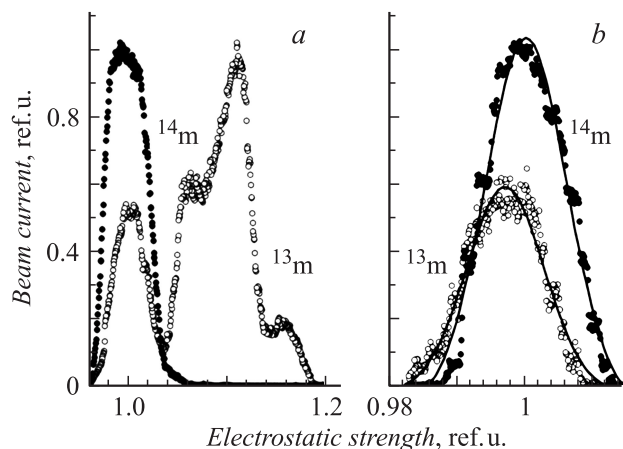
На рис. 2 приведена зависимость числа молекулярных ионов массы 14 у от толщины мишени на парах магния. Толщина мишени пересчитывалась из табличных значений температура–давление при эффективной длине 30 см [4]. Количество молекулярных ионов уменьшается экспоненциально с толщиной мишени.

Формально молекулярный фон может быть подавлен на много порядков. Однако при увеличении толщины мишени происходят потери частиц за счет рассеивания. Максимальная толщина мишени на рис. 2 на порядок превышает толщину, необходимую для перезарядки ионов в зарядовое состояние 2+. При такой толщине мишени количество атомарных ионов уменьшилось в два раза. Следует отметить, что при использовании ионов в зарядовом состоянии 2+ существует проблема фона лития. Молекулярные ионы лития с массой 14 у проходят впускной канал и ускоряются к высоковольтному терминалу. В перезарядной мишени молекулы разрушаются. На каждый атомарный ион лития приходится половина энергии, и при перезарядке в 1+ дальнейшее движение в УМС эквивалентно движению ионов углерода массы 14 у в зарядовом состоянии 2+. Такие фоновые ионы лития на выходе УМС имеют в два раза меньшую энергию, чем ионы углерода, однако они могут приходить парами, после развала молекул. Такой фон нельзя отделить измерением энергии частиц, можно отделить лишь по разным потерям энергии атомов лития и углерода в веществе. Концентрация атомов лития в анализируемом образце зависит от образца и степени его очистки от примесей. При использовании зарядовых состояний иона углерода 1+ и 3+ подобного механизма прохождения ионов лития не существует. Молекулярные ионы в зарядовом состоянии 1+ разрушаются хуже, и требуется еще большее увеличение толщины мишени.

Рассмотрим механизм прохождения фоновых ионов массы 13 у, пик которых виден при сканировании магнитным фильтром на выходе УМС. Для этого на выходе инжекционного магнита был добавлен фильтр Вина, проводящий селекцию по скорости ионов.

На рис. 3,а представлена зависимость прошедшего ускоритель ионного фона массы 13 и 14 у в зависимости от силы электростатической составляющей фильтра Вина. При этом инжекционный магнит настроен на массу 14 у, а магнит на выходе УМС настроен на измеряемую массу фоновых ионов. Видно, что часть ионов массы 13 у имеет на выходе инжекционного магнита ту же скорость, что и ионы массы 14 у. Анализ энергии пучка в высоковольтном терминале показывает (рис. 3,б), что ионы массы 13 у имеют энергию на 790 эВ меньше, чем ионы массы 14 у. Это примерно соответствует 1/14 энергии инъекции.

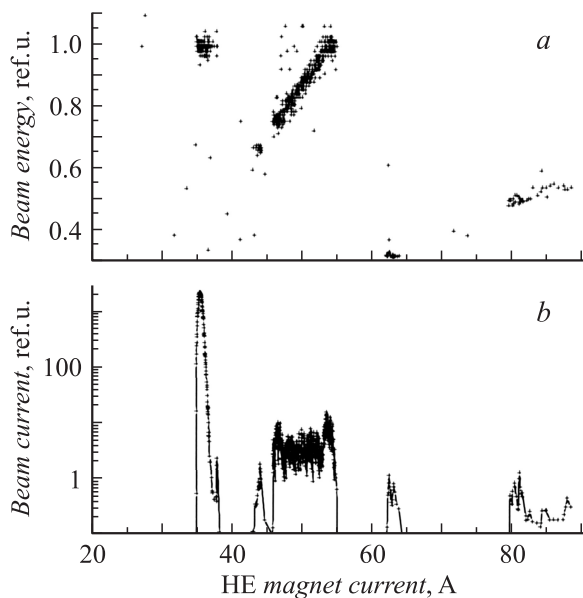
Таким образом, молекулярные ионы  $^{13}\text{C}^{13}\text{N}$  проходят инжекционный магнит, после чего разрушаются и далее ускоряются. Поскольку разрушение молекул происходит на энергии инъекции, а не в высоковольтном терминале,



**Рис. 3.** Прохождение ионного фона массы 13 u: *a* — сканирование пучка электростатической составляющей фильтра Вина на выходе инжекционного магнита, *b* — сканирование пучка электростатическим поворотом высоковольтного терминала. По оси ординат — ток пучка.

фрагмент иона массы 13 u имеет близкую энергию и не отфильтровывается электростатическим поворотом, что видно из рис. 3, *b*.

Процессы ионизации и захвата электрона ионами в ускорительной трубке вносят широкий энергетический разброс фоновых ионов. Энергия, набираемая ионом в ускорительной трубке, пропорциональна заряду иона. Если ион перезарядается в ускорительной трубке, то изменяется энергия ускоренного иона. На примере ионов углерода масс 12 u на рис. 4 представлена степень влияния данных процессов. Здесь приводятся энергия и интенсивность ионов на выходе УМС в зависимости от тока выходного магнита. Энергия измерялась время-



**Рис. 4.** Зависимость энергии (*a*) и интенсивности (*b*) ускоренных ионов от тока магнита на выходе УМС.

пролетным детектором. УМС настроен на прохождение ионов массы 12 u, заряд 3+, напряжение терминала — 250 kV, энергия инжекции — 10 keV. Энергия „правильных“ ионов на выходе УМС составляет 1010 keV. Из них 250 keV набирается в первой ускорительной трубке, при ускорении отрицательных ионов.

После перезарядки в магниевой мишени ионы с зарядом 3+ и энергией 260 keV оптимально проходят электростатический поворот, и далее набирают 750 keV энергии во второй ускорительной трубке. Такие ионы проходят выпускной магнит при токе магнита примерно равном 37 А (рис. 4). Однако при большем токе магнита видно много „неправильных“ ионов различных энергий. При токе магнита 54 А ионы имеют ту же энергию, что и основной пучок. Это ионы, захватившие электрон при взаимодействии с остаточным газом на выходе второй ускорительной трубки. Току магнита 47 А соответствуют ионы захватившие электрон на входе во вторую ускорительную трубку, энергия таких ионов равна 760 keV. Току магнитна в диапазоне 47–54 А соответствуют ионы, захватившие электрон во второй ускорительной трубке. Соответственно энергия таких ионов находится в диапазоне 760–1010 keV в зависимости от места взаимодействия с остаточным газом. Подобные процессы происходят и в первой ускорительной трубке, но не все перезарядившиеся ионы могут пройти электростатический поворот. Так, току 44 А соответствуют ионы, потерявшие электрон в первой ускорительной трубке, когда их энергия примерно равнялась 173 keV. Ионы с такой энергией перезарядившись в 2+ в магниевой мишени проходят электростатический поворот высоковольтного терминала, настроенный на ионы с зарядом 3+ и энергией 260 keV. Далее ионы в зарядовом состоянии 2+ ускоряются во второй ускорительной трубке и имеют энергию на выходе УМС, равную 673 keV. Аналогичным образом проходят ионы при токе магнита 63 А, только в зарядовом состоянии 1+, энергия ионов — 337 keV. При токах магнита, больших 80 А, проходят ионы, прошедшие поворот высоковольтного терминала с зарядом 3+, далее захватившие два электрона во второй ускорительной трубке. Минимальная энергия таких ионов равна 510 keV.

Молекулярные ионы в зарядовом состоянии 3+ нестабильны, таким образом, все молекулы массы 14 u распадаются. Фрагменты молекул имеют отличие в массе 1 u и более, и могут легко отсеиваться фильтрами с магнитным и электрическим полем. Каждый добавочный фильтр будет подавлять такой фон на несколько порядков. Иначе обстоит дело с азотом. Как уже отмечалось, отрицательные ионы азота нестабильны. Тем не менее азот попадает в систему в виде фрагмента молекул. Естественно, молекулы имеют массу не 14 u, а как минимум 15 u. Если такие ионы образованы в ионном источнике, то они могут быть отфильтрованы еще во впускном канале. Однако отрицательные молекулярные ионы азота могут образовываться из молекул азота остаточного газа вакуумной системы. Захваченные в режим ускорения первой ускорительной трубки ионы азота

могут пройти всю систему. И что уж совсем важно, ионы атомарного азота на выходе УМС могут иметь ту же энергию, что и измеряемый изотоп углерода массы 14 u. Фильтры с электрическим и магнитным полем, расположенные на выходе УМС, становятся неэффективными. Наличие фона азота, затянутого в режим ускорения, отмечается в экспериментах [5]. Авторы данной работы отмечают, что уровень фона зависит от интенсивности пучка, т.е. пучок провоцирует образование молекулярных отрицательных ионов азота. Предложенная нами схема УМС обладает высокой степенью подавления фона азота, в первую очередь, за счет фильтра по энергии, расположенного в высоковольтном терминале.

Существующие УМС не обладают фильтром после первой ускорительной трубки, что делает их уязвимыми к прохождению азота. Рассмотрим наиболее вероятный механизм прохождения ионов азота, при котором энергия ионов азота и ионов углерода массы 14 u равны на выходе УМС. Ионы азота, затянутые в режим ускорения, на выходе первой ускорительной трубки будут иметь энергию, меньшую чем у ионов углерода. Поскольку ионы азота после развала молекул обладают только частью энергии молекулы, они не имели энергии инжекции, они могли быть образованы не в самом начале ускорительной трубки. Максимальное ускорение в первой ускорительной трубке обеспечивается при заряде иона  $-1$ , ионы углерода уже обладают таким зарядом, поэтому у ионов азота нет механизмов компенсации нехватки энергии на первой стадии ускорения.

Поскольку в высоковольтном терминале ионы азота всегда имеют энергию меньше, чем ионы углерода, селекция фильтром по энергии очень эффективна. В УМС на второй стадии ускорения анализируются не полностью „ободранные“ положительные ионы, так как при напряжениях терминала в несколько мегавольт доля ионов с зарядом равным заряду ядра крайне мала. Обычно используются ионы углерода в зарядовом состоянии  $3+$ , доля которых в распределении по зарядам максимальна на энергии примерно 2 MeV и примерно равна 50%. Ионы с зарядом, большим  $3+$ , ускоряются сильнее, а значит, могут компенсировать недобор энергии первой стадии ускорения за счет ускорения во второй ускорительной трубке. Так, если ионы азота „обдираются“ в мишени до  $4+$ , далее ускоряются во второй ускорительной трубке, а когда их энергия сравнивается с ионами углерода, захватывают электрон из остаточного газа, то на выходе УМС значения энергии ионов азота и углерода равны.

Для характерных величин процесса, равных: сечение захвата электрона —  $10^{-15} \text{ cm}^2$  (1 MeV  $^{14}\text{N}^{4+}$  на  $\text{H}_2$  [6]), вакуум —  $10^{-4}$  Pa, длина участка перезарядки 1 cm, получим вероятность захвата электрона —  $3 \cdot 10^{-5}$ . Таким образом, необходим лишь однократный процесс захвата электрона на остаточном газе, что делает прохождение ионов азота „правильной“ энергией достаточно вероятным. Такой механизм прохождения азота заблокирован в предлагаемой нами системе УМС. Ионы азота могут

пройти электростатический поворот высоковольтного терминала лишь с меньшим зарядом и после перезарядки в первой ускорительной трубке, подобно ионам при токе 44 A на рис. 4.

Для достижения энергии ионов углерода ионы азота должны еще несколько раз поменять заряд при взаимодействии с остаточным газом второй ускорительной трубки. Необходимо перезарядиться из зарядового состояния  $2+$  в  $4+$ , а затем снова в  $3+$ , что обеспечит на выходе УМС равенство энергии и зарядового состояния ионов азота и углерода. Таким образом, для прохождения фона азота, неустраняемого электромагнитными полями, необходим четырехкратный процесс перезарядки ионов на остаточном газе, а не однократный, как в системах УМС без фильтрации ионов в высоковольтном терминале.

Другой особенностью данного проекта является использование мишени на парах магния, а не газовой мишени в качестве перезарядной. Такая мишень не ухудшает вакуум за пределами нагнетаемого объема. При энергиях ионов порядка 1 MeV перезарядные фольги не применяются по причине их быстрого разрушения. Ухудшение вакуумных условий увеличивает вероятность взаимодействия ионов с остаточным газом и, как следствие — вероятность прохождения фоновых ионов.

## Заключение

Проведенное исследование прохождения ионного фона демонстрирует сильное влияние процессов взаимодействия ионов с остаточным газом. Предложен эффективный способ подавления изобарного фона ионов азота посредством фильтра по энергии после первой стадии ускорения ионов и перезарядной мишени на парах магния, что улучшает вакуумные условия. Эффективность определяется тем, что после первой стадии ускорения энергия ионов азота всегда меньше, чем энергия измеряемого изотопа углерода массы 14 u.

Авторы выражают благодарность А.С. Попову за создание полупроводникового детектора, В.Б. Реве за написание драйверов и наладку регистрации.

## Список литературы

- [1] *Alinovsky N.I., Klyuev V.F., Konstantinov E.S.* et al. // Proc. of EPAC. Lucerne, Switzerland, 2004. P. 2389.
- [2] *Tuniz C., Bird J.R., Fink D.* et al. // Accelerator mass spectrometry: ultrasensitive analysis for global science. CRC, 1998. P. 3.
- [3] *Jacob S.A.W., Suter M., Synal H.A.* // Nucl. Instr. Meth. 2000. Vol. B172. P. 235.
- [4] *Григорьев И.С., Меилухов Е.З.* Физические величины. М.: Энергатоиздат, 1991. С. 257.
- [5] *Southon J., Santson G., Druffel-Rodriguez K.* et al. // Radiocarbon. 2004. Vol. 46. N 2.
- [6] *Phaneuf R.A., Meyer F.W., McKnight R.H.* // Phys. Rev. A. 1978. Vol. 17. N 2. P. 534.