

10;12

## Ускорительный масс-спектрометр СО РАН

© Н.И. Алиновский, А.Д. Гончаров, В.Ф. Ключев, С.Г. Константинов, Е.С. Константинов, А.М. Крючков, В.В. Пархомчук, М.В. Петриченко, С.А. Растигеев, В.Б. Рева

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.)

Предложена концепция ускорительного масс-спектрометра, создаваемого для Сибирского отделения РАН. Проведены предварительные испытания. Произведена регистрация изотопа углерода массы 14 а.е.м. в образце из древесного угля.

PACS: 07.75.+h

### Введение

Ускорительный масс-спектрометр (УМС) предназначен для сверхчувствительного анализа изотопного состава вещества [1]. При этом концентрация радиоактивного изотопа может составлять  $10^{-12}$ – $10^{-14}$  в сравнении с основным изотопом. При столь низких концентрациях измерение содержания радиоактивного изотопа производится в счетном режиме, т.е. считается каждый отдельный ион.

Первые УМС в мире начали создаваться примерно 30 лет назад и сразу получили широкое практическое применение, в первую очередь в области радиоуглеродного анализа по концентрации  $^{14}\text{C}$  изотопа. Это необходимо для качественной датировки объектов, мониторинга состояния окружающей среды, биомедицинского мониторинга организма по распространению очень малого привнесенного количества радиоактивного углерода и целого спектра других назначений. В ИЯФ СО РАН создается первый в России УМС [2]. Несмотря на достаточно продолжительную историю создания УМС в мире в представляемой установке заложены новые дополнительные возможности по уменьшению изобарного фона, ограничивающего чувствительность анализатора.

Чувствительность масс-спектрометрии ограничена фоном изобар и молекул с близкими к измеряемому изотопу массами. Фоновые частицы могут преодолевать фильтры за счет процессов взаимодействия частиц с остаточным газом и стенками окружающего оборудования. К таким процессам можно отнести рассеяние, перезарядку, потерю энергии, разрушение молекул. Ускорение частиц до значений порядка 1 MeV позволяет не только существенно уменьшить сечения процессов взаимодействия частиц с остаточным газом, но также дает возможность применения дополнительных методов селекции, таких как определение заряда ядра атомов, полное разбиение молекул при переходе в зарядовое состояние  $3^+$ .

### Особенности создаваемого УМС

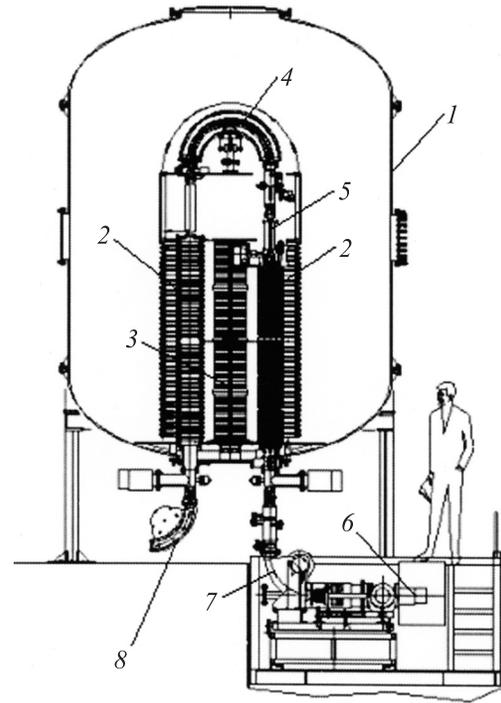
Электростатические ускорители тандемного типа являются основой большинства существующих УМС. В таком случае исследуемый образец находится под низким потенциалом вне бака ускорителя, что позволяет четко менять образцы. Кроме того, использование отрицательных ионов на первой стадии селекции позволяет в ряде случаев существенно уменьшить изобарный фон. Например, известно, что отрицательные ионы азота  $^{14}\text{N}$  нестабильны [1]. Наиболее простую реализацию тандемного ускорителя можно представить в виде двух ускорительных трубок, расположенных последовательно, пучок пролетает ускоритель по прямой.

В представленном проекте акцентируется внимание на том, что поток фоновых частиц можно существенно снизить, используя фильтр по энергии в высоковольтном терминале. В существующих комплексах УМС фильтр по энергии располагается либо на входе в ускоритель, либо на выходе из ускорителя, либо и там и там. Однако по эффекту фильтрации эти варианты неравноценны. Причина заключается в следующем: несмотря на то что отрицательные ионы азота нестабильны, атомы азота могут попадать в ускоритель в виде молекулярных соединений азота, из которых образуются отрицательные ионы. Если молекулярные ионы образованы в ионном источнике, то установка во впускном канале дополнительного фильтра по энергии заметно понизит данный фон. Однако молекулярные ионы, образованные из остаточного газа в первой ускорительной трубке, могут втягиваться в режим ускорения [3]. Такие ионы после прохождения первой ускорительной трубки будут иметь меньшую энергию, чем анализируемые ионы, что вызвано отсутствием у них энергии инжекции и процессом развала молекул в перезарядной мишени, а также тем фактом, что зарядовое состояние  $-1$  обеспечивает самый большой прирост энергии частиц в первой ускорительной трубке.

Поскольку энергия фоновых частиц в высоковольтном терминале всегда меньше, чем энергия измеряемых частиц, то и фильтрация их по энергии очень эффективна.

Ситуация кардинально изменяется, если азот из молекулярных осколков беспрепятственно попадает во вторую ускорительную трубку, так как там ионы могут компенсировать недостаток энергии, пролетев часть трубки в более высоком зарядовом состоянии, чем измеряемые частицы. Поскольку на выходе прямолинейного ускорителя энергии измеряемых и фоновых частиц могут сравняться, фильтрация по энергии становится менее эффективной и последующее разделение возможно лишь ядерным детектором по разнице потерь энергии при прохождении частиц через вещество.

Другой особенностью представленного проекта является использование мишени на парах магния в качестве перезарядной. Такая мишень не ухудшает условий вакуума за пределами нагреваемого объема. Ухудшение вакуумных условий, особенно в ускорительных трубках, вызывает увеличение количества прошедших фоновых частиц. При значениях энергии ионов порядка 1 MeV перезарядные фольги не применяются по причине их быстрого разрушения. В существующих УМС используются газовые мишени. Системы рециркуляции газа используются для ослабления потока газа в ускорительные трубки. Но такие системы требуют дорогостоящих турбомолекулярных насосов, работающих в высоковольтном терминале.



**Рис. 1.** Ускорительный масс-спектрометр: 1 — бак для SF<sub>6</sub>, 2 — ускорительная трубка, 3 — электростатический фильтр, 5 — мишень из паров магния, 6 — ионный источник, 7 и 8 — фильтры магнитным полем.

### Описание УМС

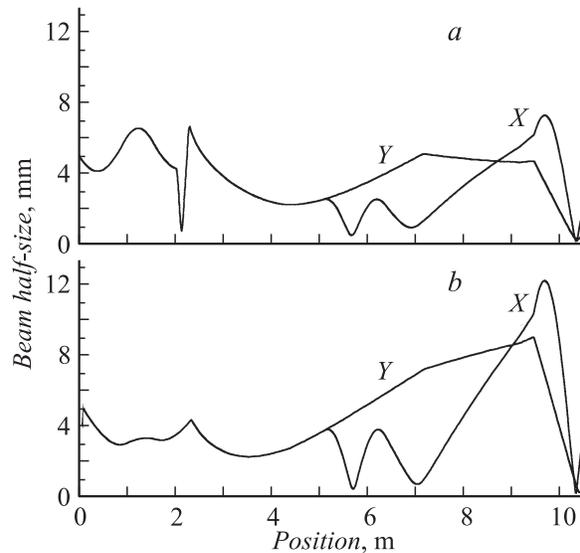
Комплекс УМС схематично показан на рис. 1. Отрицательные ионы горизонтально ускоряются в ионном источнике до энергии инжекции, далее поворачиваются в магнитном поле на 90°С и ускоряются вертикально вверх в первой ускорительной трубке к положительному потенциалу высоковольтного терминала. Ионы обдираются до положительного зарядового состояния в мишени на парах магния, затем поворачиваются на 180°С и ускоряются вниз во второй ускорительной трубке к потенциалу земли. Далее ионы поворачиваются на 90°С в магнитном поле и попадают в детектор частиц.

Расчетная вариация поперечных размеров пучка при таком движении представлена на рис. 2. Расчет проводился с использованием программы MAD [4]. Пучок перестает быть круглым при повороте в высоковольтном терминале, в котором радиальная и горизонтальная фокусировки разные, так как пластины электростатического поворота имеют цилиндрическую форму.

Оптика установки одинакова в диапазоне напряжений высоковольтного терминала от 1 до 2 MV, при этом энергию инжекции необходимо изменять с 15 до 30 keV. Диаметр канала перезарядной мишени определяет расчетный максимальный эмиттанс пучка в диапазоне 3.7–5.2 mm·mrad·MeV<sup>1/2</sup> для энергий инжекции 15–30 keV. Для напряжения ускорителя 250 kV и энергии инжекции пучка 15 keV применяется режим без фокусировки пучка на входе в ускорительную трубку.

Соответствующий максимальный расчетный эмиттанс — 1.8 mm·mrad·MeV<sup>1/2</sup>.

Анализируемые ионы образуются в результате бомбардировки образца ионами цезия. Для этих целей был создан распылительный источник отрицательных ионов.



**Рис. 2.** Расчетные поперечные размеры пучка вдоль УМС: *a* — энергия инжекции 30 keV, ускоряющее напряжение 2 MV, заряд иона 3<sup>+</sup>, *b* — энергия инжекции 15 keV, ускоряющее напряжение 250 kV, заряд иона 1<sup>+</sup>.

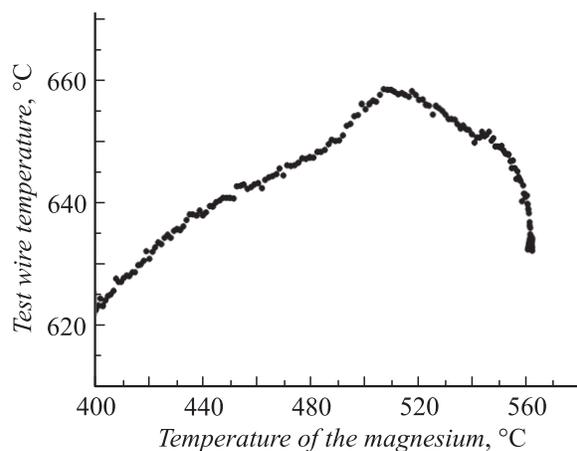
Пары цезия формируются нагревом таблеток  $\text{CsCr}_2$  до температуры примерно  $600^\circ\text{C}$ . Пары цезия через трубку достигают танталового ионизатора, нагретого примерно до  $1000^\circ\text{C}$ . На поверхности горячего ионизатора образуются положительные ионы цезия, которые ускоряются и фокусируются на катоде с исследуемым образцом, так как ионизатор имеет форму полусферы. Напряжение между ионизатором и катодом составляет  $8\text{ kV}$ . Выбитые с образца отрицательные ионы ускоряются к ионизатору тем же потенциалом и, пройдя отверстие в ионизаторе диаметром  $8\text{ mm}$ , ускоряются к потенциалу земли до энергии инжекции.

Ускоритель расположен в баке из нержавеющей стали высотой  $4.6\text{ m}$ , диаметром  $3.2\text{ m}$ , рассчитанном на давление  $1.7\text{ atm}$ . Две ускорительные трубки и каскадный генератор расположены внутри охранной колонны высотой  $2\text{ m}$  и внешним диаметром  $1.4\text{ m}$ . Ускорительная трубка состоит из пяти секций с межэлектродным шагом  $21\text{ mm}$ . Электроды разделены керамическими кольцами с внутренним диаметром  $18\text{ cm}$ . Диаметр апертуры канала ускорительной трубки составляет  $10\text{ cm}$ . Для получения напряжения на высоковольтном терминале применяется симметричная схема каскадного генератора, работающего на частоте  $20\text{ kHz}$ .

Все оборудование в высоковольтном терминале питается от турбогенератора мощностью примерно  $500\text{ W}$ , работающего от сжатого воздуха. Сжатый воздух перекачивается с потенциала земли по шлангам с высоким электрическим сопротивлением. Ускоритель на данный момент расположен на наладочной площадке, без радиационной защиты, поэтому испытания проводились не на предельных напряжениях высоковольтного терминала, без наполнения бака газом с большей электрической прочностью —  $\text{SF}_6$ . Значение напряжения  $500\text{ kV}$  было получено на воздухе, без предварительного осушения. Эксперименты с пучком проводились при напряжении  $250\text{ kV}$ . В высоковольтном терминале внутри бака были установлены радиационные датчики. При напряжении  $250\text{ kV}$  и токе пучка  $1\text{ }\mu\text{A}$  радиационный фон внутри бака составлял около  $1\text{ mR/h}$ . Снаружи бака влияние пучка на фон не обнаруживалось из-за поглощения в стенке бака.

Обдирочный канал мишени имеет внутренний диаметр  $6\text{ mm}$  и длину  $30\text{ cm}$ . По краям мишени расположены отсеки, находящиеся при комнатной температуре, которые предназначены для оседания паров магния. Снаружи канала, тоже под вакуумом, располагается контейнер с твердым магнием. При нагреве контейнера пары магния проникают в обдирочный канал через маленькие отверстия. Тестирование мишени проводилось вольфрамовой нитью, натянутой по обдирочному каналу.

Измеряемая электрическая проводимость нити зависит от ее температуры. На рис. 3 представлена зависимость температуры нити, пересчитанной из сопротивления нити, от температуры контейнера с магнием. Видно, что на начальном этапе температура нити растет, что объясняется тепловым излучением нагревающегося



**Рис. 3.** Тест мишени из паров магния. Зависимость температуры нити, натянутой в обдирочном канале, от температуры контейнера с магнием.

обдирочного канала. Однако при дальнейшем нагреве сильно возрастает давление паров магния. Нить начинает охлаждаться за счет теплопроводности паров магния, так как окружающий обдирочный канал имеет меньшую температуру. К настоящему моменту магниевая мишень отработала уже несколько часов в составе УМС.

Для проводки пучка ионов предусмотрена корректировка его положения и углов на выходе ионного источника посредством четырех пар электростатических диполей. Аналогичные системы корректировки установлены в высоковольтном терминале, до и после  $180^\circ$  поворота. Изначальная проводка пучка осуществлялась на энергии инжекции, без напряжения на высоковольтном терминале, с открытым баком ускорителя. Такой способ дает возможность юстировать положение элементов ускорителя непосредственно по сигналам датчиков пучка. Положение пучка измерялось по сигналам с пластин электростатических диполей.

Регистрация ионов в счетном режиме производилась времяпролетным детектором. Детектор состоит из двух датчиков, регистрирующих момент пролета иона. В датчике расположена тонкая пленка, пролетая через которую, ионы вызывают эмиссию электронов. Выбитые электроны вытягиваются из пленки напряжением  $1.5\text{ kV}$ , после чего электростатическим полем отражаются на микроканальные пластины, где размножаются до уровня, приемлемого для работы дискриминатора. Далее измеряется время пролета между датчиками, дискретность канала измерения времени пролета составляла  $0.5\text{ ns}$ .

Система управления и контроля комплекса полностью автоматизирована, использованы блоки в стандартах CAMAC и ADAM. Программное обеспечение выполнено на основе LabVIEW. В процессе работы записываются около  $100$  параметров работы электроники и данные с диагностирующих пучков датчиков.

## Результаты экспериментов с ионным пучком

Типичный масс-спектр ионов графитового образца на выходе инжекционного магнита представлен на рис. 4. Ток углерода массы 12 а.е.м. составляет  $3 \mu\text{A}$ , энергия —  $10 \text{ keV}$ . Видно, что кроме ионов углерода образуются кластерные ионы и ионы меди. Катод изготовлен из меди, в отверстие диаметром  $2 \text{ mm}$  устанавливается исследуемый образец. На начальном этапе распыления в спектре присутствует соизмеримое с углеродом содержание кислорода. Если используется не графит, а прессованный уголь, то содержание кислорода остается примерно постоянным на всей толщине образца. В спектре присутствуют молекулы содержащие водород. Количество молекул массы 14 а.е.м. примерно  $3 \cdot 10^{-4}$  от содержания углерода массы 12 а.е.м.

Если пучок отрицательных ионов проходит через обдирочную мишень, то на выходе образуются ионы разных зарядов. Равновесное распределение по зарядам зависит от энергии пучка. Для оптимальной перезарядки в  $3^+$  необходима энергия примерно  $2 \text{ MeV}$  [1]. При напряжении терминала  $250 \text{ kV}$  примерно половина ионов обдирается до заряда  $+1$  и еще столько же до заряда  $0$ , доля ионов с другими зарядами незначительна. Так, при токе инжектированного пучка отрицательных ионов углерода  $1 \mu\text{A}$  распределение по зарядовым состояниям ионов на выходе УМС следующее:  $\text{C}^{1+}$  —  $0.25$ ,  $\text{C}^{2+}$  —  $0.015$ ,  $\text{C}^{3+}$  —  $0.0003 \mu\text{A}$ . Измерения производились цилиндрами Фарадея на выходе инжекционного магнита и на выходе УМС. Отметим, что для измерения разных зарядовых состояний на выходе УМС измерялись поле выходного магнита и электростатические элементы в высоковольтном терминале. При этом при перестройке выходного магнита учитывалось, что энергия, выбираемая во второй ускорительной трубке пропорциональна заряду иона.

С целью изучения прохождения частиц по каналу УМС производилось измерение заряда, попадающего

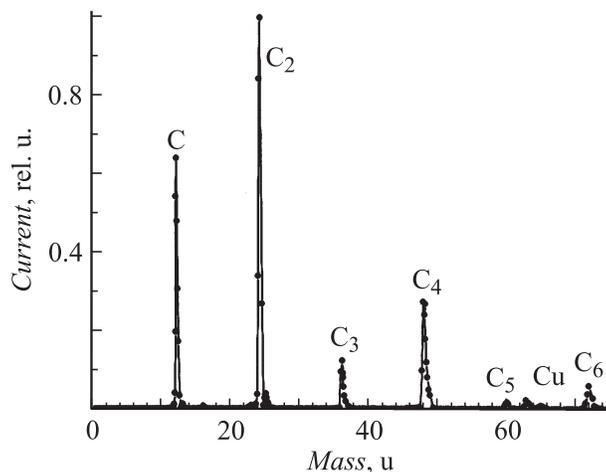


Рис. 4. Масс-спектр отрицательных ионов из распылительного источника с графитовым образцом.

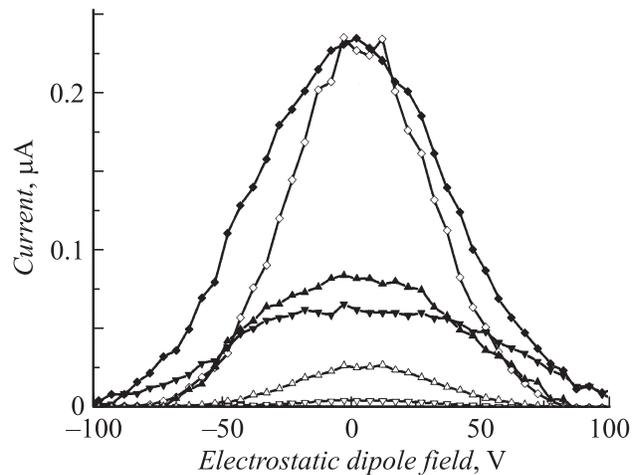
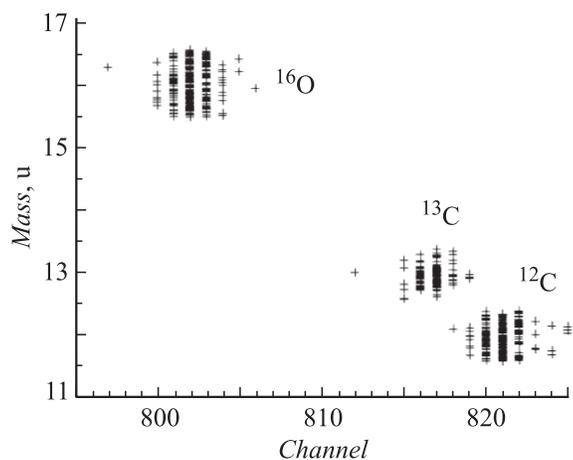


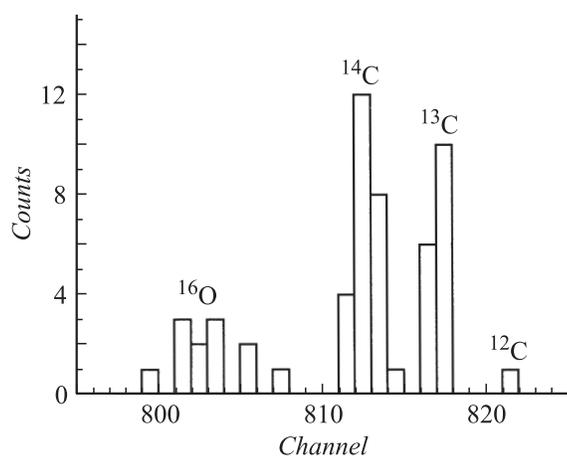
Рис. 5. Зависимость тока пучка на выходе УМС при четверти тока снимаемого с корпуса обдирочной мишени (светлые точки), при отклонении пучка в поперечном направлении (черные точки), для различных значений температуры мишени, характеризующих коэффициент прохождения пучка ( $\diamond$  —  $500$ ,  $\triangle$  —  $400$ ,  $\nabla$  —  $350^\circ\text{C}$ ).

на корпус магниевой мишени. Соответствующие данные приведены на рис. 5. Пучок сканируется электростатическим диполем, при нулевом напряжении диполя пучок оптимальным образом проходит через обдирочный канал. Ток инжектированного пучка составляет  $1 \mu\text{A}$ . При малой температуре мишени, когда давление паров магния мало, ток пучка на выходе УМС практически отсутствует. Однако с магниевой мишени снимается ток примерно  $0.25 \mu\text{A}$ , что соответствует непосредственному попаданию инжектированных отрицательных ионов на корпус мишени. При дальнейшем подъеме температуры мишени происходит обдирка электронов с ионов углерода. Ободранные электроны попадают на корпус мишени, а ионы углерода с зарядом  $1^+$  достигают выхода УМС.

Максимальный ток  $^{12}\text{C}^{+1}$  примерно равен  $0.25 \mu\text{A}$ , что из распределения по зарядовым состояниям ионов соответствует  $0.5 \mu\text{A}$  тока углеродного пучка, вылетевшего из мишени. Поскольку с каждого вылетевшего иона обдирается примерно 1.5 электрона, то ток, снимаемый с корпуса мишени, должен составлять  $0.75 \mu\text{A}$ , что (см. рис. 5) соответствует сигналу, регистрируемому с мишени. Таким образом, пучок вышедший из мишени далее проходит без потерь до выхода УМС. Потери пучка происходят в области магниевой мишени, четверть тока — на корпус мишени и четверть тока — на диафрагме  $7 \text{ mm}$ , расположенной непосредственно перед мишенью. Следует отметить, что режим работы с напряжением высоковольтного терминала  $250 \text{ kV}$  не является проектным, и, как следует из вышеприведенных расчетов, при подъеме напряжения ускорителя эмиттанс пучка, распускаемый системой, увеличивается примерно в 3 раза, что позволит проводить пучок без потерь.



**Рис. 6.** Масс-спектр на выходе ускорителя, при сканировании выпускным магнитом. По оси абсцисс — время пролета ионов в каналах времяпролетного датчика.



**Рис. 7.** Регистрация углерода массы 14 а.м.у. с древесного образца. По оси ординат — число событий, по оси абсцисс — то же, что на рис. 6.

Типичный результат детектирования ионов времяпролетным датчиком представлен на рис. 6. Через фильтр высоковольтного терминала пропускаются ионы с зарядом  $3^+$ , на выходе УМС они имеют энергию чуть более 1 MeV. Приведенный спектр соответствует сканированию полем магнита на выходе УМС. В спектре не видно массы 14 а.м.у., так как ее содержание очень мало. Для регистрации изотопа углерода массы 14 а.м.у. производился счет в стационарном режиме, когда система настроена на прохождение массы 14 а.м.у. с зарядом  $3^+$ . Результат набора представлен на рис. 7.

В качестве образца использовался спрессованный древесный уголь. При напряжении ускорителя 250 kV доля ионов с зарядом  $3^+$  мала, поэтому сложно набрать достаточную статистику для измерения радиоактивного углерода. На данном этапе можно констатировать лишь факт регистрации ионов  $^{14}\text{C}^{3+}$ .

В настоящее время создается здание специализированного центра УМС с бункером для установки ускорителя, что позволит повысить напряжение ускорителя в радиационно-безопасных условиях для оптимальной перезарядки в  $3^+$ .

## Заключение

В ИЯФ СО РАН спроектирован и собран для предварительных тестов УМС, в концепцию которого заложена дополнительная фильтрация изобарного фона. Проведены испытания УМС при пониженном напряжении ускорителя — равном 250 kV. Прохождение пучка через систему УМС соответствует проектным расчетам. Проведена регистрация радиоактивного изотопа углерода массы 14 а.м.у., концентрация которого в современных образцах находится на уровне  $10^{-12}$  в сравнении с углеродом массы 12 а.м.у.

Авторы выражают благодарность В.И. Исаченко за помощь в подготовке экспериментов.

Данная работа поддержана Фондом содействия развитию малых форм предприятий в научно-технической сфере ([www.fasie.ru](http://www.fasie.ru)) и СО РАН — Интеграционный проект № 7.

## Список литературы

- [1] Tuniz C., Bird J.R., Fink D. et al. // Accelerator mass spectrometry: ultrasensitive analysis for global science. CRC, 1998. P. 3.
- [2] Alinovsky N.I., Klyuev, V.F. Konstantinov E.S. et al. // Proc. of EPAC. Lucerne, Switzerland, 2004. P. 2389.
- [3] Southon J., Santson G., Druffel-Rodriguez K et al. // Radiocarbon. 2004. Vol. 46. N 2.
- [4] Grote H., Iselin F.C. // The MAD program. CERN/SL/90-13 (AP). 1996.