

10;12

Метод определения концентрации трития с использованием эффектов диссоциации молекулярных пучков ионов изотопов водорода на тонких углеродных пленках

© Н.У. Алдияров,¹ Е.А. Гриднева,² Н.Н. Коборов,² В.А. Курнаев,² А.Г. Мить,¹
Л.М. Назаренко,¹ Е.М. Якушев¹

¹ Институт ядерной физики НЯЦ Республики Казахстан,
050032 Алматы, Казахстан

² Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“,
115409 Москва, Россия
e-mail: kurnaev@plasma.mephi.ru

(Поступило в Редакцию 16 февраля 2010 г. В окончательной редакции 28 февраля 2011 г.)

Даны физические основы нового метода масс-спектрометрического определения концентрации трития в водородосодержащих средах, опирающегося на использование эффекта диссоциации молекулярных ионов изотопов водорода при прохождении тонких углеродных пленок. Проведен анализ явлений, сопровождающих взаимодействие частиц с твердым телом: угловое рассеяние, изменение зарядового состояния, потери энергии протонов, дейтронов и тритонов. Полученные теоретические и экспериментальные данные свидетельствуют о том, что практическая реализация предлагаемой технологии возможна при сравнительно низкой энергии частиц ~ 10 keV/nucleon.

Введение

Одним из нежелательных последствий производства атомной энергии является выброс трития в окружающую среду. Несмотря на то что увеличение дозовой нагрузки ионизирующего излучения из-за нарабатываемого трития в среднем по всему миру невелико, выброс трития в окружающую среду имеет большое значение ввиду особой роли воды и водорода в жизни человека. Поэтому разработка новых, достаточно простых методов измерения малых концентраций трития в водородосодержащих средах является актуальной как с точки зрения мониторинга радиоактивного загрязнения территорий, примыкающих к объектам атомной энергетики, так и с точки зрения развития тритиевых технологий в научных исследованиях, например при анализе продуктов реакции в реакторе термоядерного синтеза. Масс-спектрометрический метод является одним из наиболее чувствительных, что подтверждается рядом теоретических и экспериментальных работ (см., например, [1]). Однако для детектирования сверхмалых концентраций трития необходимо обеспечить очень хорошее разделение с другими ионами, которые могут образовываться при ионизации анализируемой среды и имеют близкое отношение массы к заряду, например HT^+ , D_2^+ , H_2D^+ и ${}^4\text{He}^+$ ($M/Z \approx 4$). В работах [1–6] предложены методы и устройства для надежного разделения различных ионов водорода с использованием сверхтонких пленок/фольг для диссоциации молекулярных ионов, с последующей регистрацией энергетического спектра фрагментов. Однако использование эффектов диссоциации и перезарядки молекулярных ионов водорода требует дополнительного анализа при использовании и оп-

тимизации устройства для детектирования сверхмалых концентраций трития, основанного на данном методе.

Основная цель настоящей работы заключается в анализе комплекса теоретических и экспериментальных данных, необходимых для обоснования нового метода определения трития в водородосодержащих средах.

Физические основы метода

Ионно-оптическая система. Суть метода состоит в двойном спектрометрическом анализе с дополнительной промежуточной диссоциацией молекулярных ионов и ионизацией на сверхтонкой пленке. Ниже приведено краткое описание прибора с одной из возможных ионно-оптических систем для реализации метода. Функциональная схема представлена на рис. 1.

Прибор реализует двойной масс-спектрометрический анализ с преобразованием пучка ионов на сверхтонких пленках. Выделенный с помощью первого масс-сепаратора пучок ионов с примерно одинаковым значением $M/Z \approx 4$ молекулярных ионов изотопов водорода D_2^+ , HT^+ , H_2D^+ и гелия ${}^4\text{He}$ (на рис. показана только часть из них) направляется на конвертер, состоящий из двух тонких углеродных пленок. После прохождения конвертера молекулярные ионы разлагаются на атомарные фрагменты изоскоростных частиц (движущихся с одинаковой скоростью), которые затем сепарируются по импульсу или по энергии в дефлекторе с соответствующим полем. Каждый из фрагментов попадает на свой детектор, причем для увеличения отношения сигнал-шум ионы T^+ и H^+ регистрируются одновременно с использованием схемы протон-тритонных совпадений.

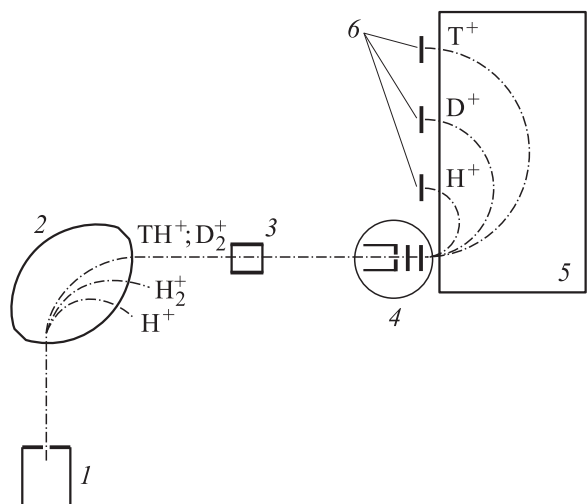


Рис. 1. Принципиальная схема метода выделения ионов трития: 1 — источник ионов, 2 — наконечники первого магнитного масс-спектрометра, 3 — фокусирующая ионная линза, 4 — пленочный конвертер пучка (узел диссоциации и перезарядки с ускоряющим промежутком), 5 — магнитный или электростатический дефлектор, 6 — микроканальные детекторы.

В приборе реализуется пять взаимосвязанных процедур:

- ионизация исследуемого вещества в ионизационной камере источника ионов и формирование пучка положительных ионов,
- первичное фракционирование ионного пучка в масс-сепараторе и выделение пучка молекулярных ионов тяжелого водорода с массовым числом 4,
- преобразование пучка молекулярных ионов в пучок ускоренных изоскоростных частиц (протонов, дейтронов и тритонов) в узле диссоциации и дополнительной ионизации (пленочном конвертере),
- повторное фракционирование пучка изоскоростных частиц в магнитном или электростатическом энергоанализаторе на пучки протонов, дейтронов и тритонов,
- регистрация совпадений попадания протонов и тритонов на отдельные детекторы.

В качестве источника ионов *I* в приборе может быть использован плазменный источник типа дуоплазматрон, обеспечивающий генерацию высокоинтенсивного потока положительных ионов рабочего газа [8,9] с максимальной среди ионных источников газовой эффективностью. Первый масс-сепаратор *2* играет роль фильтра масс. Он выделяет для последующего анализа пучок ионов изотопов водорода с массовым числом $M = 4$. Пучки с другим отношением массы к заряду разводятся на достаточно большие углы так, чтобы фон в окрестности анализируемого пучка ионов с массовым числом 4 от соседних линий был минимальным. Для фокусировки ионного пучка на пленочный конвертер используется промежуточная ионная линза *3*.

В узле диссоциации и конвертации пучка описываемого прибора применены две алмазоподобные пленки толщиной по 50 Å каждая. Такие пленки/фольги давно и успешно применяются в корпускулярной диагностике термоядерной плазмы в установках с магнитным удержанием [10]. Первая пленка (по ходу пучка) находится под потенциалом дополнительного ускоряющего напряжения, а вторая пленка — под потенциалом Земли. В случае применения магнитного анализатора Демпстера вторая пленка и микроканальные детекторы *6* расположены на границе магнитных полюсов, совпадающей с плоскостью фокусировки анализатора *5*. Перед поступлением на первую пленку ионный пучок ускоряется до энергии $\sim 10 \text{ keV/nucl}$. После прохождения первой пленки пучок ускоренных заряженных и нейтральных частиц попадает в электростатическое поле между первой и второй пленками. При этом заряженная компонента выводится из пучка тормозящим полем и выбывает из процесса дальнейшего анализа. Дополнительной ионизации на второй пленке подвергается нейтральная компонента, состоящая из ускоренных атомов, прошедших через первую пленку. Такая конструкция узла дополнительной ионизации позволяет, в частности, устранить негативное влияние возможных дефектов пленок (микроотверстий). Вероятность того, что микроотверстия в двух пленках окажутся друг напротив друга, практически равна нулю.

Для реализации второго масс-спектрометра *5* может быть использована ионнооптическая система Демпстера. Достоинством этой системы является то, что в ней применяется однородное магнитное поле, обеспечивающее разделение ионного пучка по массам и пространственную фокусировку ионов каждой массы при их отклонении на угол 180° . При этом положения источника и изображений всех линий масс-спектра располагаются в одной плоскости, а шкала масс строго линейна, что дает возможность производить одновременную регистрацию нескольких линий (многолучевые измерения). Может быть применен более простой и легкий плоский анализатор с тормозящим электрическим полем.

Применение подобной схемы измерения трития обладает двумя благоприятными особенностями. Во-первых, она не требует применения прецизионных и дорогих масс-спектрометрических установок, поскольку изотопы водорода существенно отличаются друг от друга по массам. Поэтому разрешающая способность обоих анализаторов может быть не более 10. Во-вторых, использование схемы совпадений позволяет понизить фон регистрирующего устройства.

Чувствительность данного метода детектирования трития в основном определяется конвертационными свойствами тонких пленок при прохождении через них анализируемых ионов и атомов. Рассмотрим коротко факторы, которые определяют в конечном счете аппаратную функцию пленок, используемых в качестве конвертера пучка.

Угловое рассеяние. Угловое распределение частиц после прохождения ими твердотельных мишеней изучалось в ряде работ [10–15]. В работе [12] приведены результаты измерений углов рассеяния ионов, образовавшихся при прохождении моноэнергетических пучков атомов водорода, дейтерия и гелия через углеродную пленку толщиной $2.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ в диапазоне энергий 5–230 keV для водорода, 5–25 keV для дейтерия и 5–230 keV для гелия. Экспериментальные результаты сравниваются с расчетами, полученными путем численного моделирования. На рис. 2 представлены типичные экспериментальные угловые распределения ионов, образовавшихся при прохождении моноэнергетического пучка атомов водорода с энергией 5 и 25 keV через углеродную пленку толщиной $2.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ (около 100 \AA). Показано, что изотопный эффект для углового разброса пучка ионов при рассеянии водорода на пленках в рассматриваемом диапазоне энергий практически отсутствует.

На рис. 3 представлена экспериментальная зависимость среднеквадратичного углового рассеяния ионов водорода, дейтерия и гелия от начальной энергии частиц и соответствующая расчетная зависимость для ионов водорода и гелия. Из рисунка следует, что ширина на половине высоты распределения при $E = 25 \text{ keV}$ составляет величину $\sim 3^\circ$, при $E = 10 \text{ keV}$ — 7° , при $E = 5 \text{ keV}$ — 10° . Видно, что угловое рассеяние частиц практически не зависит от массы изотопов водорода.

Как следует из рис. 2, 3, угловой разброс уменьшается с увеличением начальной энергии. Результаты расчета хорошо согласуются с результатами работы [12]. В част-

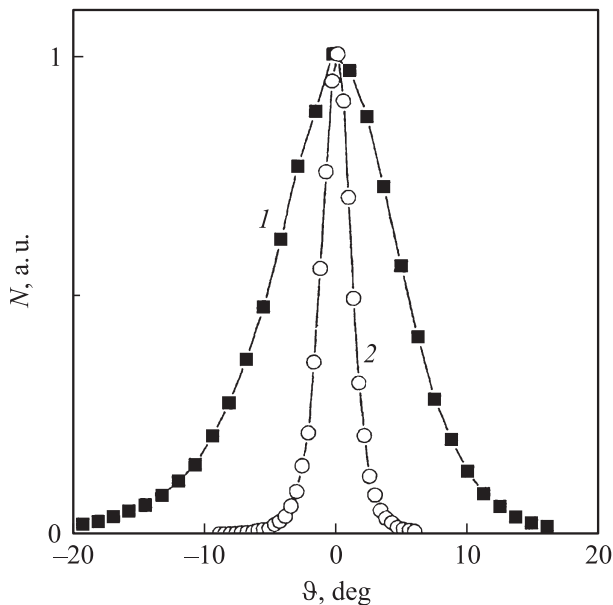


Рис. 2. Угловые распределения ионов, образовавшихся при прохождении моноэнергетического пучка атомов водорода через углеродную пленку толщиной $2.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$: 1 — пучок атомов водорода с начальной энергией 5 keV, 2 — пучок атомов водорода с начальной энергией 25 keV.

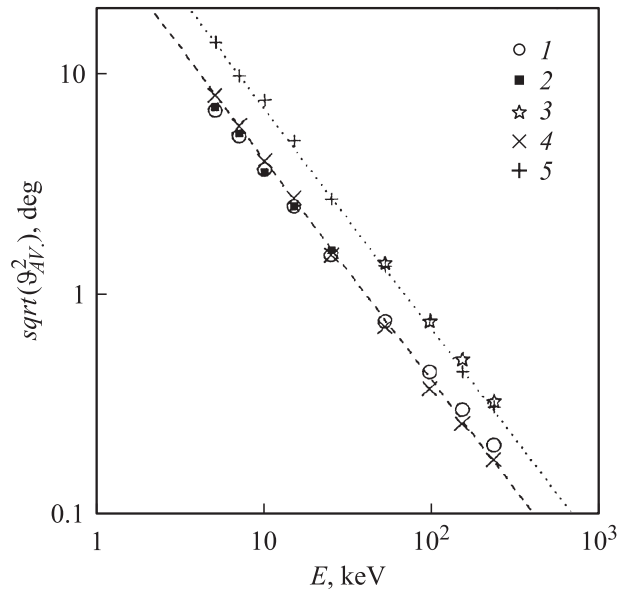


Рис. 3. Угловой разброс пучка ионов в зависимости от начальной энергии частиц. Экспериментальные данные: 1 — водород, 2 — дейтерий, 3 — гелий. Результаты расчета: 4 — водород, 5 — гелий.

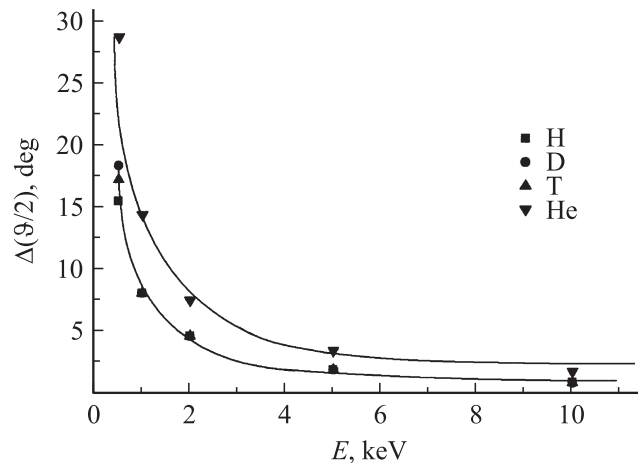


Рис. 4. Полуширины углового распределения изотопов водорода и гелия в области энергий ниже 10 keV, найденные путем вычислений с помощью кода статистического моделирования SCATTER.

ности, подтверждена независимость углового рассеяния изотопов водорода от их массы.

На рис. 4 представлены результаты расчета с помощью кода SCATTER [16] зависимости полуширины углового распределения при прохождении ионами углеродной пленки толщиной $L = 50 \text{ \AA}$ в области энергий ниже 10 keV. Видно, что для подобной пленки полуширина углового распределения рассеянных частиц изотопов водорода существенно меньше 5° .

Доля частиц, попадающих после прохождения пленки в анализатор с угловой апертурой θ_0 , согласно [11],

определяется выражением

$$\eta_{sc} = 0.5 [1 + \exp(-p)] \times \left\{ 1 - \left[1 + \frac{4 \exp(-p)}{[1 - \exp(-p)]^2} \sin^2 \left(\frac{\theta_0}{2} \right) \right]^{-1/2} \right\}, \quad (1)$$

где $p = 4.33 \cdot 10^{-4} LA / \langle E \rangle$, L — толщина пленки в \AA , A — масса ионов, выраженная в атомных единицах масс, $\langle E \rangle = 0.5(E + E_{out})$ — средняя энергия частиц, выраженная в keV. Согласно (1), для тонких пленок при малой апертуре анализатора полуширина углового распределения практически линейно зависит от толщины пленки и от массы изотопа.

Учитывая линейную зависимость среднеквадратичного углового разброса $\sqrt{\langle \vartheta \rangle^2}$ от толщины пленки и результаты, представленные на рис. 3, 4, можно оценить угловой разброс при начальной энергии налетающей частицы $E_0 = 10 \text{ keV}$ и толщине мишени $L = 100 \text{ \AA}$ ($2.2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$). Полуширина этого разброса не превышает величины $\sim 5^\circ$. С таким угловым разбросом пучок попадает в энергоанализатор, который фокусирует его на детекторе.

Изменение зарядового состояния. Известно [17], что соотношение ионов и нейтральных атомов водорода, прошедших через пленку, практически не зависит от ее материала. Измерения в области энергий 0.5–40 keV [18], проведенные на углеродных пленках (рис. 5), показывают, что зарядовые фракции определяются только скоростью вылетевших частиц и не зависят от того угла, под которым частицы покидают поверхность конвертера.

Из рис. 5 видно, что с увеличением энергии нейтральная фракция уменьшается примерно линейно, фракция отрицательных ионов водорода имеет максимум при

энергиях 2–3 keV, а фракция положительных ионов быстро возрастает с энергией. Существует множество аппроксимаций зависимости от энергии вышедших из пленки ионов положительной зарядовой фракции $\eta^+(E)$, определяемой как отношение числа положительных ионов к общему числу вылетевших из пленки частиц. В [11] фракция положительных ионов водорода определяется как

$$\eta^+ = \frac{0.03 E_{out}}{1 + 0.03 E_{out}}, \quad (2)$$

где E_{out} выражается в keV; при $E_{out} = 10 \text{ keV}$ эта формула дает $\eta^+ = 0.23$.

Другая аппроксимация в виде степенной функции, позволяющая более просто оценить общую чувствительность регистрации ионов в случае применения пленочного конвертера, имеет вид [19]

$$\eta^+ = 0.08 \sqrt{E_{out}}. \quad (3)$$

Из этой аппроксимации следует, что при энергии частиц $E_{out} = 10 \text{ keV}$ величина $\eta^+ \approx 0.25$. Таким образом, при прохождении углеродной пленки молекулами водорода ожидаемая доля ионизованных частиц будет составлять около 25%.

К такому же значению положительной ионной фракции приводит аппроксимация экспериментальных данных [20] в виде полуэмпирической формулы

$$\eta^+ = 1 - \exp \left[-0.982 \left(\frac{v}{v_m} \right)^{1.44} \right], \quad (4)$$

где v_m — максимальная скорость свободных электронов в материале мишени, определяемая по обычной формуле статистики Ферми, v — скорость налетающей на мишень частицы ($v \leq v_m$). Для углерода $v_m = 3.127 \cdot 10^6 \text{ m/s}$. При энергии 10 keV скорость протона $v = 1.38 \cdot 10^6 \text{ m/s}$. Откуда следует, что

$$\eta^+ = 1 - \exp \left[-0.982 \left(\frac{1.38}{3.127} \right)^{1.44} \right] \approx 0.25. \quad (5)$$

Таким образом, данные различных авторов дают очень близкие значения фракции протонов после пленки. Что касается других изотопов водорода, то, как было показано ранее [21], зарядовые фракции различных изотопов одинаковы при равной скорости частиц. Поэтому для приведенной на рис. 1 схемы прибора после сепарации в магните ионов с массой 4 их скорость одинакова и одинаково увеличивается после доускорения в поле перед первой пленкой. Эксперименты показали [21], что в данном диапазоне энергий ионов водорода из-за большого сечения перезарядки первоначальное зарядовое состояние не влияет на зарядовый состав пучка после пленки. Хорошее согласие между экспериментальными результатами и расчетами дает основание полагать, что после прохождения атомами водорода с энергией 10 keV/nucleon двух углеродных пленок

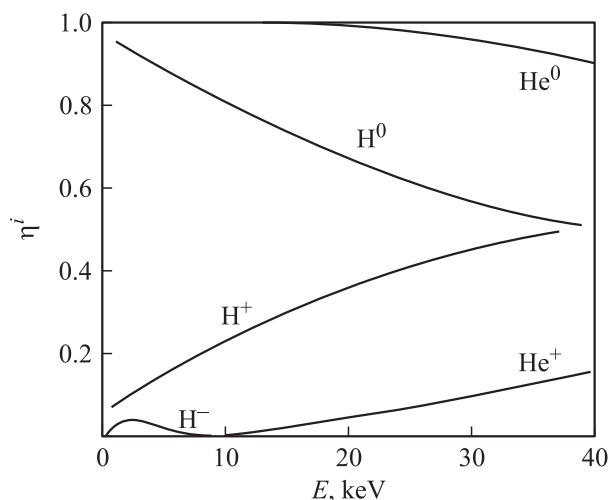


Рис. 5. Зарядовые фракции для водорода и гелия при прохождении через углеродную пленку в зависимости от энергии вылетевших из нее частиц.

конвертера доля ионизованных частиц — протонов, дейтронов и тритонов будет составлять около $\sim 25\%$ от общего количества прошедших через конвертер частиц.

Потери энергии. При прохождении моноэнергетического пучка частиц через мишень частицы теряют энергию в упругих (с атомами среды) и неупругих (с электронами среды) столкновениях. Тормозная способность вещества для легких ионов в интересующем нас диапазоне энергий была весьма тщательно и подробно исследована в многочисленных работах [10,19,22]. Показано, что в диапазоне порядка десяти килоэлектронвольт торможение определяется неупругими процессами, а вклад упругих соударений пренебрежимо мал. Еще в классических работах Ферми и Теллера (см. [17]) и Линдхарда [23] было показано, что тормозная способность протонов, проходящих через электронный газ, линейно зависит от скорости. Многочисленные измерения прохождения легких ионов через тонкие слои вещества, впервые обобщенные в [10], подтвердили эту зависимость экспериментально для углерода вплоть до энергий — 20 keV. Таким образом, общепринято считать, что в данном диапазоне энергий энергетическая зависимость удельных потерь энергии от энергии частиц выражается формулой

$$-\frac{dE}{dx} = k\sqrt{E}, \quad (6)$$

причем удельные потери энергии различными изотопами водорода одинаковы при равной их скорости, что хорошо соответствует результатам экспериментов (см. рис. 6).

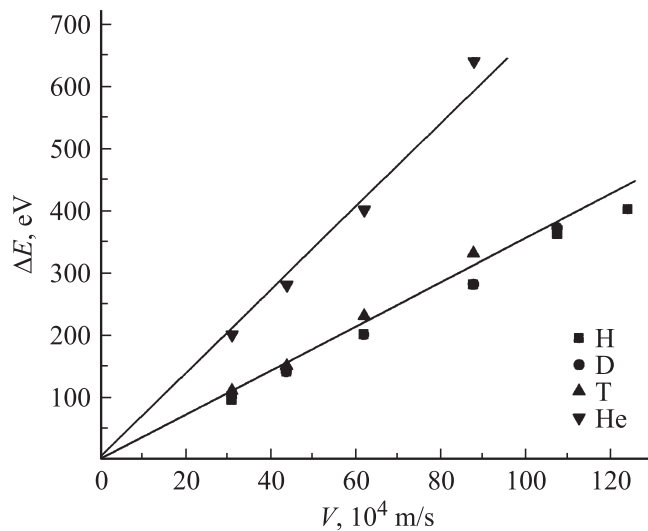


Рис. 6. Зависимости потери энергии от скорости ионов гелия и изотопов водорода при прохождении углеродной пленки толщиной $L = 50 \text{ \AA}$, определенные с помощью программы SCATTER и согласованные с экспериментальными данными при $V = 68 \cdot 10^4 \text{ м/с}$.

Для энергий протонов до 25 keV, исходя из указанного закона торможения ионов водорода в углероде, характерная энергия частиц, прошедших через пленку толщиной L , может быть определена по формуле

$$E_{\text{out}} = \left(\sqrt{E} - \frac{1.6 \cdot 10^{-3} L}{\sqrt{A}} \right)^2, \quad (7)$$

где энергия выражена в keV, толщина мишени в \AA , A — масса ионов, выраженная в атомных единицах масс.

Учет оболочечного эффекта при торможении ионов разных размеров в веществе и учет неупругих потерь энергии в элементарных столкновениях атомов привели к созданию хорошо апробированных расчетных кодов типа TRIM [24], которые качественно описывают особенности взаимодействия различных ионов с мишенями из разных материалов в диапазоне килоэлектронвольтных энергий. Однако расчетные коды и известные теории торможения не позволяют описать наблюдаемого экспериментально энергетического распределения частиц после прохождения пленки. В [21] выведена формула для полуширины энергетического спектра, которая с учетом статистического характера формирования толщины углеродных пленок в процессе напыления хорошо описала экспериментально наблюдаемые изменения разрешающей способности пленок и их зависимость от вида легких ионов. Позже авторами работы [25] были проведены подробные теоретические расчеты и экспериментальные измерения энергетических спектров протонов, прошедших через тонкие пленки с начальной энергией 10–25 keV, в зависимости от угла падения пучка на мишень.

В общем виде выражение для полуширины энергетического спектра частиц, прошедших под прямым углом пленку толщиной L , имеет вид

$$\frac{\Delta E_{1/2}}{\sqrt{E_0}} \approx 2\sqrt{2 \ln 2} k L \left\{ \left(\frac{\Delta L}{L} \right)^2 + \frac{\bar{\varepsilon}^2(E_0)}{(\bar{\varepsilon}(E_0))^2} \frac{1}{L} \right\}^{1/2}, \quad (8)$$

где $\bar{\varepsilon}(E_0)$ — удельная потеря энергии $\left(\frac{dE}{dx} \right)$, а $\bar{\varepsilon}^2(E_0)$ — среднеквадратичные потери энергии $\left(\frac{dE^2}{dx} \right)$; ΔL — флуктуация толщины мишени.

Хорошее совпадение расчетных и экспериментальных данных о положении максимума спектра и его зависимость от толщины пленки и начальной энергии позволяют верифицировать компьютерное моделирование прохождения частиц через тонкие пленки с использованием кодов TRIM [24] или SCATTER [16] и вычислить с их помощью флуктуации потерь энергии частиц в упругих и неупругих соударениях, соответствующих второму члену в соотношении (8). Для данного случая сверхтонких алмазоподобных пленок вклад от этого члена оказывается малым, и основной причиной уширения спектра оказывается неоднородность пленки по толщине. Таким образом, оказывается возможным для каждой конкретной пленки найти значение флуктуации ее толщины $\Delta L/L$.

Диссоциация молекулярных ионов водорода при прохождении через тонкие пленки ранее предполагалась полной из-за малой энергии диссоциации молекул по сравнению с характерными потерями энергий частиц при соударении с атомами среды. Однако в области энергий порядка 100 keV и выше было установлено [26], что часть молекулярных ионов выживает из-за эффекта близости, когда фрагменты молекулы не успевают после прохождения пленки разойтись на такое расстояние, когда удержание общего электрона оказывается возможным. Кроме того, при попадании в конденсированную среду внезапная потеря электрона приводит к тому, что составляющие, например, двухатомную молекулу протоны влияют друг на друга, приводя к сообщению дополнительной энергии протону, движущемуся вперед, и тормозя протон, движущийся сзади. Это приводит к уширению энергетического спектра в пучке молекулярных ионов по сравнению с пучком атомарных ионов. Подробные измерения прохождения через сверхтонкие алмазоподобные пленки молекулярных ионов водорода обнаружили четко выраженные эффекты уширения спектров в зависимости от скорости и состава первичного молекулярного иона [27] с энергиями в единицы keV. Из рис. 7 видно, что по мере перехода от одноатомных к двухатомным и к трехатомным ионам ширина спектра увеличивается.

Простой учет дополнительной энергии, получаемой одним из фрагментов молекулы, за счет сообщения фрагментам молекулы дополнительной энергии связи I , определяемой как энергия кулоновского расталкивания протонов, находящихся на характерном для разных молекул межмолекулярном расстоянии, приводит к зависимости максимально возможного уширения спектра $\Delta E_{1/2}$

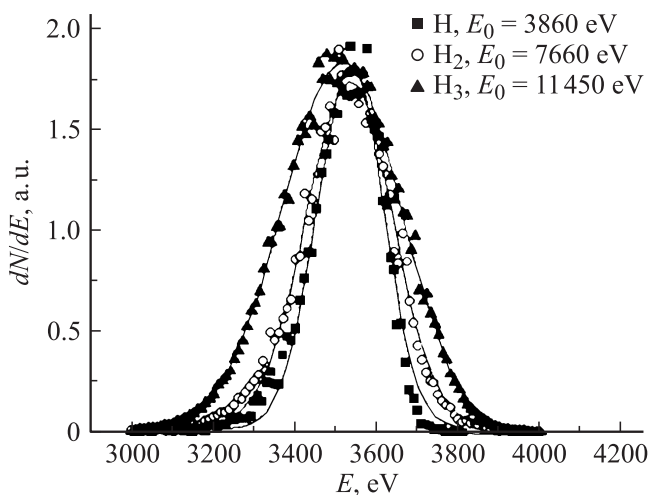


Рис. 7. Энергетические спектры различных молекулярных ионов водорода после прохождения алмазоподобной пленки толщиной $L = 50 \text{ \AA}$ при одинаковой скорости частиц.

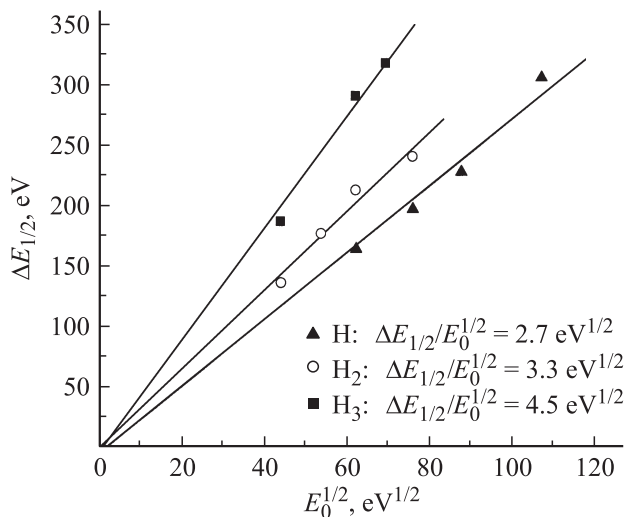


Рис. 8. Полуширины энергетических спектров для алмазоподобной пленки толщиной $L = 25 \text{ \AA}$ в зависимости от начальной скорости падающих частиц (в расчете на нуклон). На рисунке указаны значения $\Delta E_{1/2}/\sqrt{E}$.

от энергии E частиц и величины энергии связи I [28]:

$$\frac{\Delta E_{1/2}}{E} = 4\sqrt{\frac{Im_2}{E_n m_1 (m_1 + m_2)}}, \quad (9)$$

где E_n — начальная энергия на нуклон, m_1 — масса исследуемого фрагмента, m_2 — масса второго фрагмента. Для ионов типа H_2^+ или D_2^+ эта формула приводит к постоянному значению отношения $\Delta E_{1/2}/\sqrt{E}$ для каждого сорта ионов, что хорошо подтверждается в эксперименте (см. рис. 8).

Таким образом, по мере увеличения энергии частиц в диапазоне до $\sim 10 \text{ keV/nucl}$ относительный вклад молекулярного эффекта в ширину спектра уменьшается. В сочетании с формулой (8), в которой это отношение определяется флуктуациями толщины пленки и статистикой неупругого торможения, можно учесть суммарный вклад молекулярного эффекта в уширение спектра

$$\Delta E_{1/2} \approx \sqrt{E_0} \{ \Delta E_{\text{at}}^2 + \Delta E_{\text{mol}}^2 \}^{1/2},$$

где ΔE_{at} — вклад в полуширину энергетического спектра прошедших через пленку протонов, ΔE_{mol} — вклад за счет молекулярного эффекта. Таким образом, окончательное выражение для зависимости полуширины спектра частиц, прошедших через тонкую пленку толщиной L , можно записать в виде

$$\frac{\Delta E_{1/2}}{\sqrt{E_0}} \approx 2\sqrt{2 \ln 2} kL \left\{ \left(\frac{\Delta L}{L} \right)^2 + \frac{\bar{\varepsilon}^2(E_0)}{(\bar{\varepsilon}(E_0))^2} \frac{1}{L} + \Delta E_{\text{mol}}^2 \right\}^{1/2}. \quad (10)$$

Следует иметь в виду, что есть малая, но конечная вероятность выживания молекулярного иона после прохождения тонкой пленки. Она зависит от скорости

частиц и толщины пленки. Оценки показывают, что при толщине углеродной пленки $\sim 50 \text{ \AA}$ вероятность выживания двухатомных молекулярных ионов составляет порядка 10^{-4} . После прохождения второй пленки вероятность снизится еще на 4 порядка.

Из приведенных выше данных следует, что при применении пучка молекулярных ионов водорода, ускоренных до энергии $\sim 10 \text{ keV/nuc1}$ и толщины углеродной пленки $\sim 100 \text{ \AA}$, полуширина углового распределения составляет $\sim 5^\circ$, потери энергии для всех компонентов оказываются одинаковыми и составляют $\sim 0.6 \text{ keV}$ или $\sim 6\%$ от энергии 10 keV , а полуширина спектра для фрагментов от двухатомных молекулярных ионов составляет 380 eV или $\sim 0.4\% E_0$.

Таким образом, совокупность полученных теоретических и экспериментальных данных свидетельствует о том, что эффекты диссоциации молекулярных ионов водорода при прохождении через тонкие углеродные пленки с успехом могут быть использованы в новом методе высокочувствительного определения трития при разработке и создании узла дополнительной ионизации (конвертера) молекулярных ионов тяжелого водорода. Причем доля положительных ионов для всех водородных компонентов будет ~ 0.25 для каждой анализируемой составляющей пучка D_2^+ и HT^+ .

Оценка чувствительности метода. Связь между концентрацией трития в пробе σ , количеством зарегистрированных импульсов протон-тритонных совпадений N , временем экспозиции t и силой тока i_0 , выходящего из источника ионов, можно выразить формулой [7]

$$\sigma = \frac{e(N \pm \sqrt{N})}{2Kti_0}, \quad (11)$$

где e — заряд электрона, а K — безразмерный коэффициент, равный отношению числа зарегистрированных импульсов протон-тритонных совпадений к числу вылетевших из источника ионов трития. В основном этот коэффициент зависит от трансмиссии ионно-оптического тракта прибора, вероятности преобразования падающего на пленку иона HT^+ в ионы H^+ и T^+ , вероятности регистрации протон-тритонных совпадений. Что же касается пропускания пучка ионов трития всей ионно-оптической системой прибора, то он может быть сделан достаточно большим, так как низкие требования к разрешающей способности спектрометра позволяют делать входные щели достаточно широкими, обеспечивая тем самым высокую светосилу. Применение в качестве масс-спектрометра секторного магнита с двойной по направлениям фокусировкой позволяет до минимума снизить потери пучка при его прохождении. Основные потери при этом оказываются в пленочном конвертере. Применение сеток, на которые нанесены сверхтонкие пленки с высокой прозрачностью — $60\text{--}80^\circ$, и доускорение пучка примерно до 10 keV/nuc1 снижает угловой разброс частиц и повышает фракцию положительно заряженных

ионов до 25%. Для метода совпадений необходимо образование одновременно двух заряженных частиц из молекулярного иона, что снижает долю таких ионов до 6%. Это позволяет оценить максимальные потери ионного тока на конвертере на уровне 95–98%. Таким образом, значение коэффициента K может составить 0.02–0.05. На практике коэффициент K должен быть определен экспериментально путем эталонирования установки. Из приведенной формулы (11) следует, что в описанной масс-спектрометрической установке при времени измерения 2–3 h (10^4 s) может быть достигнут рекордно высокий предел обнаружения ультрамалых концентраций трития — $\sigma \approx 10^{-18}$ при параметрах установки $i_0 = 1 \text{ mA}$ и $K = 0.01$. Однако при реализации метода следует учитывать наличие фона, вызванного различными причинами, в том числе вероятность выживания молекулярного иона после прохождения тонкой пленки, что может привести к увеличению уровня фона при регистрации протон-тритонных совпадений за счет ионов H^+ и HD^+ , а также к снижению предела обнаружения как минимум на 2 порядка. Также следует отметить, что увеличение предела обнаружения за счет увеличения i_0 имеет свои ограничения. Тонкие пленки имеют предел по энерговыделению проходящих через них частиц, а также могут распыляться падающими ионами. Указанные выше алмазоподобные пленки долговременно выдерживают плотности токов не более $10 \mu\text{A/cm}^2$, поэтому суммарный ток ионов с массой 4 не должен превышать $\sim 1\text{--}10 \mu\text{A}$, что ограничивает содержание в исходном пучке ионов дейтерия и гелия. Для смесей с природным соотношением изотопов дейтерия и протия при ограничении тока массы 4 в $1 \mu\text{A}$ суммарный извлекаемый из ионного источника ток может быть увеличен примерно до 20 mA . Для ионов водорода с низким коэффициентом распыления ($\sim 10^{-3}$) при энергии 50 keV срок службы оказывается достаточно большим и зависит от суммарного тока ионов с массой 4. Оценки показывают, что срок службы пленки составляет не менее 150 h. Для окончательного определения чувствительности требуется проведение детальных экспериментальных исследований на макете по реализации предложенного метода.

Заключение

Обсуждены физические основы нового метода масс-спектрометрического определения малых концентраций трития в водородосодержащих средах, опирающегося на использование эффекта диссоциации молекулярных ионов изотопов водорода при прохождении тонких углеродных пленок. Проведен краткий обзор данных по процессам взаимодействия молекулярных ионов водорода с тонкими слоями вещества (пленочной фольговой мишенью) при сравнительно низкой энергии частиц $\sim 10 \text{ keV/nuc1}$ и обсуждены факторы, влияющие на чувствительность предлагаемого метода.

Результаты работ предоставляют данные для определения ионно-оптических систем формирования ионных потоков и систем управления этими потоками. Кроме того, они необходимы при создании узла конвертации с диссоциацией молекулярных ионов и для расчета и конструирования блока детектирующего устройства.

С целью оценки возможностей использования ультратонкой углеродной пленки в качестве мишени, на которой происходят диссоциация и ионизация пучка молекулярных ионов водорода, учитывались потери энергии, угловое распределение и зарядовые состояния частиц в зависимости от толщины углеродной пленки, ее неоднородности по толщине и начальной энергии частиц.

Из приведенных данных следует, что при суммарной толщине углеродных пленок конвертера $\sim 100 \text{ \AA}$ полуширина углового распределения составляет $\sim 5^\circ$, потери энергии составляют $\sim 6\%$ для изотопов водорода, доля положительных ионов в пучке на выходе из мишени составляет около 25%.

Приведенные в настоящей работе теоретические и экспериментальные данные свидетельствуют о том, что практическая реализация предлагаемого метода измерения рекордно малых концентраций трития в водородосодержащих средах возможна при использовании ионных пучков сравнительно малой энергии, характерной для изотопной масс-спектрометрии.

Список литературы

- [1] *Mass Spectrometry: A Foundation Course*, K. Downard, Royal Society of Chemistry, UK, 2004.
- [2] Курнаев В.А. Малогабаритный прибор для массового анализа пучков легких ионов. Сб. Методы диагностики и рекуперации энергии пучков заряженных частиц. М.: Энергоатомиздат, 1987. С. 51–59.
- [3] Якушев Е.М., Назаренко Л.М. Способ масс-спектрального определения содержания трития в водороде и устройство для его осуществления. Патент Республики Казахстан № 8046 от 12.03.1999.
- [4] Курнаев В.А., Тритолий В.Э. Устройство для анализа молекулярных пучков. Патент RU 2001464 С1.
- [5] Курнаев В.А., Тритолий В.Э. // Физика плазмы. 1992. Т. 2. С. 4.
- [6] Гриднева Е.А., Курнаев В.А. Устройство для анализа газовой смеси. Патент № 2272334, с приоритетом 15.06.2004.
- [7] Aldiyarov N.U., Zhdanov V.S., Mit A.G., Nazarenko L.M., Yakushev E.M. Abstracts. 6th International Conf. „Nuclear and Radiation physics“. Almaty, 2007. P. 455.
- [8] Жуков М.Ф., Смоляков В.Я. Электродуговые нагреватели газплазмотроны. М., 1973.
- [9] Форрестер А.Т. Интенсивные ионные пучки. Пер. с англ. / Под ред. Н.Н. Семашко. М.: Мир. 1992. 358 с.
- [10] Готт Ю.В. Взаимодействие частиц с веществом в плазменных исследованиях. М.: Атомиздат, 1978.
- [11] Готт Ю.В., Курнаев В.А., Вайсберг О.Л. Корпускулярная диагностика лабораторной и космической плазмы / Под ред. В.А. Курнаева. М.: МИФИ, 2008. 144 с.

- [12] Бабенко П.Ю., Козловский С.С., Афанасьев В.И., Мионов М.И., Петров С.Я., Худолеев А.В., Чернышев Ф.В. // Письма в ЖТФ. 2001. Т. 27. Вып. 19. С. 44–48.
- [13] Ведьманов Г.Д., Лазаров Ю.Г., Радченко В.И. // ЖТФ, 2000. Т. 70. Вып. 2. С. 81–86.
- [14] Golovehenko J., Laegsgaerd E. // Phys. Rev. A. 1974. Vol. 9. N 3. P. 1215–1219.
- [15] Donald S. Gemmell // Nucl. Instr. Meth. 1976. N 132. P. 61–67.
- [16] Koborov N.N., Kuzovlev A.I. Kurnaev V.F., Remizovich V.S., Trifonov N.N. // Nucl. Instr. Meth. B. 1997. Vol. 129. P. 5.
- [17] Экспериментальная ядерная физика / Под ред. Серге. М.: Изд-во ИЛ, 1955. С. 143–172.
- [18] Жабров Г.И., Курнаев В.А., Тельковский В.Г. Тр. II Всес. конф. по взаимодействию ионов с поверхностью. М.: Изд-во ИХФ, 1972. Т. 1.
- [19] Курнаев В.А. Взаимодействие плазмы с поверхностью. М.: МИФИ, 2002. 112 с.
- [20] Таблица физических величин. М.: Атомиздат, 1976. С. 954.
- [21] Курнаев В.А. // ЖТФ. 1981. Т. 51. С. 2148.
- [22] Аброян И.А., Андронов А.Н., Тутов А.И. Физические основы электронной и ионной технологии. М.: Высш. шк., 1984. 320 с.
- [23] Lindhard J. Mat-fys. wedd.Kgl.danske vid.selskab. 1954. Vol. 28. P. 8.
- [24] Эжитайн В. Компьютерное моделирование взаимодействия частиц с поверхностью твердого тела. М.: Мир, 1995. 320 с.
- [25] Коборов Н.Н., Кузовлев А.И., Курнаев В.А., Ремизович В.С. // ЖТФ. 1997. Т. 67. Вып. 5. С. 81–93.
- [26] Arista N.R. et al. // Phys. Rev. A. 2000. Vol. 62. P. 1261.
- [27] Гриднева Е.А., Курнаев В.А., Трифонов Н.Н., Жданов С.К. // Письма в ЖЭТФ. 2003. Т. 77. Вып. 1. С. 15–17.
- [28] Мошкунов К.А., Курнаев В.А., Синельников Д.Н., Смирнов С.В. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2008. № 3. С. 3–6.