## 03;10;12 Фокусировка ионов вихревой струей при атмосферном давлении

## © Ю.Н. Коломиец, В.В. Первухин

Институт неорганической химии им. А.В. Николаева СО РАН, Новосибирск E-mail: ykolom@niic.nsc.ru

## Поступило в Редакцию 9 декабря 2010 г.

Предложен и исследован метод фокусировки ионов в условиях атмосферного давления с помощью сильно закрученной газовой струи. Показано, что вынужденная сильно закрученная струя позволяет увеличить эффективность дистанционного отбора ионизированной пробы на порядок по сравнению с аспирационным методом. Обсуждается влияние рекомбинационных потерь на эффективность вихревого отбора ионизированной пробы.

Классические методы фокусировки и колимации ионов, использующие электрические и магнитные поля, в значительной мере теряют свою эффективность при повышении окружающего давления. Если при давлении до нескольких Torr с рассеивающим влиянием молекул нейтрального газа удается бороться применением высокочастотных электрических полей [1,2], то при приближении к атмосферному давлению газовые потоки начинают играть существенную роль и их следует учитывать при исследовании процессов переноса и фокусировки ионов. В известных методах использования комбинации газового потока и электрического поля газовый поток выполняет транспортные функции, а электрические поля фокусируют ионы в пределах некоторого объема [3,4]. К их недостаткам следует отнести потери ионизированной пробы на элементах фокусирующей системы.

В этой работе мы предлагаем фокусировать ионы неэлектрическими полями, а специальной конфигурацией закрученных газовых потоков, избавляясь при этом от потерь ионов на стенках и элементах фокусирующих линз. Физической основой метода является структура закрученного потока. У сильно закрученной газовой струи, формирующейся обычно при параметрах крутки  $\theta = M/KR > 0.5$  [5] (где M — момент количества движения струи, K — количество движения струи, R —

42

радиус выходной апертуры), из-за центробежного разлета статическое давление во всем ее объеме ниже атмосферного, а вблизи оси возникает обратное течение, при этом радиальная составляющая скорости потока в области обратного течения направлена к ее оси [6]. По этой причине пары любых примесей, в том числе ионизированных, попадающих в обратное течение, собираются радиальной скоростью потока к оси струи, т.е. происходит газодинамическая фокусировка. В отличие от фокусировки электрическими и магнитными полями газодинамическая фокусировка ионов может работать не только с униполярной плазмой, но и с биполярной, например созданной радиоактивным источником, что значительно расширяет область применения таких устройств. Основным отличием нейтральной пробы от ионизированной является наличие кулоновского отталкивания и рекомбинации ионов в последней. Следовательно, важно понять степень негативного влияния этих процессов на газодинамическую фокусировку ионов. В представляемой работе экспериментально исследована воможность фокусировки ионизированной биполярной пробы сильно закрученной воздушной струей и проведено сравнение с результатами фокусировки нейтральной примеси этим же способом [6].

Схема эксперимента показана на рис. 1. Вихреобразующий воздушный поток  $Q_{vortex}$  с помощью центробежного насоса (на риунке не показан) поступает на неподвижную крыльчатку 1 с углом наклона лопаток  $45^{\circ}$  и формирует веерную вихревую струю, растекающуюся по внутренней поверхности рефлектора 2, диаметром 44 mm. В результате вдоль оси рефлектора в направлении объекта образуется объемный закрученный поток с осевым обратным течением. Границы прямого и обратного потоков показаны на рисунке сплошной 3 и пунктирной 4 линиями.

В качестве объекта использовали металлический экран 5 размером 180 × 250 mm, на котором в центре закрепляли источник ионизирующего излучения (далее источник ионов) <sup>63</sup>Ni ("Изотоп", С.-Петербург, Россия) с активностью 10 mCi 6. Источник ионов представлял собой цилиндр диаметром 10 mm, закрытый со стороны пробоотборника заглушкой с отверстием диаметром 2 mm. Ионизации подвергали лабораторный воздух. Температура воздуха 20–22°С, относительная влажность 40–50%. Состав образуемой при этом плазмы — фоновые ионы-реактанты [7]: положительные ионы  $(H_2O)_nNH_4^+$ ,  $(H_2O)_nNO^+$ ,  $(H_2O)_nH^+$  и отрицательные ионы  $(H_2O)_nO_2^-$ ,  $(H_2O)_n(CO_2)_mO_2^-$ . В экспериментах регистрировали сигнал положительных ионов. Для этого



**Рис. 1.** Схема эксперимента: *1* — неподвижная вихревая крыльчатка, *2* — рефлектор, *3* — внешняя граница струи, *4* — граница обратного потока, *5* — экран, *6* — источник ионов, *7* — аналитический канал, *8* — коллектор, *9* — отклоняющий электрод.

использовали схему регистрации с коллектором 8 и дополнительным электродом 9, аналогичную применяемой в высокочувствительных дрейфспектрометрах M02 ("Сибел", Россия), "Пилот" ("Лаванда-Ю", Россия). На дополнительный электрод 9 подавали потенциал +9 V, соответствующий насыщению вольт-амперной характеристики схемы регистрации и обеспечивающий сбор всех положительных ионов, попадающих в аналитический канал. Ток измеряли электрометром У5-11 (Россия) с относительной погрешностью  $\pm 0.3\%$ . Аналитический поток, отбираемый аспирационным пробоотборником для всех экспериментов, составлял  $Q_{an} = 50$  ml/s. Тангенциальную и аксиальную скорости вихревого пробоотборного потока измеряли термоанемометром Disa Elektronik A/S, Denmark с точностью  $\pm 0.02$  m/s.

Как было показано в работе [6], формирование устойчивой вихревой струи для используемого нами устройства начинается с потока  $Q_{vortex} \ge 200$  ml/s, когда линейная скорость струи становится  $\ge 1$  m/s и препятствует конвективному размыванию структуры потока. В качестве рабочего вихревого потока было выбрано значение  $Q_{vortex} = 480$  ml/s, при котором регистрируемый электрометром ток переходит в насыщение [6], а основные газодинамические параметры на срезе рефлектора принимают значения: параметр крутки  $\theta \sim 0.9$ , скорость в обратном потоке  $U_c \sim 2$  m/s, разрежение на оси струи относительно атмосферного давления,  $\Delta P \sim 5$  Pa. Кроме того, в отсутствие источника ионов регистрируемый коллектором фоновый сигнал  $I_{background}$  не превышает шум электрометра и составляет не более  $10^{-14}$  A. При этом отношение минимального сигнала, регистрируемого в экспериментах к фоновому значению, составляло  $I/I_{background} \ge 10^2$ , что подтверждает происхождение регистрируемых ионов из источника ионов.

Для исследования дистанционной эффективности вихревой струи измеряли зависимость регистрируемого сигнала от расстояния L между пробоотборником и источником ионов при  $Q_{vortex} = 0$  и  $Q_{vortex} = 480 \text{ ml/s}$  (рис. 2). Источник ионов располагали на оси пробоотборника. При включении вихревой струи (кривая 2) наблюдается увеличение регистрируемого коллектором сигнала на порядок, свидетельствующее о значительном повышении эффективности дистанционного отбора ионов вихревым потоком по сравнению с аспирационным (кривая 1). Здесь же для сравнения приведены данные для нейтральной пробы (паров диэтиланилина — ДЭА) (кривая 4) [6]. При отборе нейтральной пробы сигнал практически не меняется до расстояний, соответствующих диаметру рефлектора (44 mm). Напротив, для ионизированной пробы (кривая 2) отмечали резкий, примерно на порядок, спад сигнала в этом же диапазоне расстояний. Очевидно, что в ионизированной пробе существуют механизмы потерь ионов, нехарактерные для нейтральной пробы. Прежде всего, это процессы рекомбинации в биполярной плазме, формируемой в атмосфере радиоактивным источником ионов <sup>63</sup>Ni. Оценку рекомбинационных потерь можно провести по теории Томсона, согласно которой скорость спада концентрации *n* ионов при рекомбинации описывается реакцией второго порядка [8]:  $(dn/dt) = -\alpha n^2$ , где  $\alpha$  коэффициент рекомбинации. Полагая  $\alpha = 2.2 \cdot 10^{-6} \, \mathrm{cm}^3/\mathrm{s}$  (коэффициент рекомбинации при давлении 1 bar [8]),  $n_0 = 1.24 \cdot 10^7 \, \mathrm{cm}^{-3}$  (начальная концентрация ионов, соответствующая току 1 · 10<sup>-10</sup> A, измеренному при  $Q_{vortex} = 0, L = 0, Q_{an} = 50 \text{ ml/s})$ , была проведена оценка реком-



**Рис. 2.** Зависимость регистрируемого сигнала, нормированного на максимальный ток, от расстояния *L* между пробоотборником и источником ионизированной пробы:  $I - Q_{vortex} = 0$  ( $I_0$ ),  $2 - Q_{vortex} = 480$  mL/s (I),  $3 - n/n_0$  (рекомбинационные потери пробы), 4 — нейтральная проба (ДЭА).

бинационных потерь (кривая 3 на рис. 2). Как видно из рисунка, рассчитанная зависимость  $n/n_0(L)$  оказывается более пологой, чем экспериментальная кривая 2 и не объясняет наблюдаемого спада сигнала. Видимо, кроме рекомбинации существуют другие механизмы потерь ионов, например кулоновское отталкивание, существенно влияющее на регистрируемый сигнал. Если взять отношение сигналов  $I/I_0$  (I — при  $Q_{vortex} = 480$  ml/s,  $I_0$  — при  $Q_{vortex} = 0$ ), то практически до расстояний, соответствующих диаметру рефлектора, значение  $I/I_0 \ge 10$ , т. е. сохраняется высокая эффективность вихревого отбора ионов относительно аспирационного (см. вставку, рис. 2). С увеличением расстояния эта эффективность растет.

На рис. З показана зависимость регистрируемого сигнала от смещения X источника ионов относительно оси при  $Q_{vortex} = 0$  (кривая I) и  $Q_{vortex} = 480$  ml/s (кривая 2), демонстрирующая эффективность собирания ионов в радиальном направлении. Расстояние от источника ионов



**Рис. 3.** Зависимость регистрируемого сигнала от радиального смещения источника ионизации относительно оси струи:  $I - Q_{vortex} = 0, 2 - Q_{vortex} = 480 \text{ mL/s}, 3$  — нейтральная проба (ДЭА).

до рефлектора пробоотборника составляло 15 mm. Смещение источника ионов осуществляли перпендикулярно оси пробоотборника. Как видно из рисунка, зависимости 1 и 2 в измеряемом интервале смещений Х резко отличаются. В отсутствие вихря в диапазоне изменений Х от -10 до +10 mm регистрируемый сигнал изменется в 1.5 раза. Присутствие вихревой струи в этом же диапазоне Х характеризуется изменением сигнала в 9.5 раз. Подобное отличие в поведении сигналов говорит о появлении при включении вихревой струи нового качества дистанционного отбора ионов, характеризующееся значительным увеличением эффективности собирания ионов, которое можно назвать "газодинамической" фокусировкой ионизированной пробы. Следует отметить заметное отличие в поведении заряженной пробы от нейтральной (кривая 3 на рис. 3) [6]. Для нейтральной пробы зависимость сигнала от радиального смещения имеет почти "прямоугольную" форму, с шириной, близкой к диаметру рефлектора (равномерное собирание пробы из всего объема закрученной струи). Аналогичная кривая для ионов значительно уже и имеет форму, близкую к гауссовой, что

связано, по всей видимости, с влиянием процессов рекомбинации и кулоновского отталкивания. Полуширина пика для нейтральной пробы составляет 25 mm, а для ионизированной — 9 mm. Таким образом, наличие ион-ионного взаимодействия сужает зону эффективного сбора ионов почти в 3 раза.

На основании представленных результатов можно утверждать, что, несмотря на сильное влияние процессов ион-ионного взаимодействия, использование сильно закрученной вихревой струи позволяет проводить дистанционный отбор биполярной ионизированной пробы с высокой эффективностью. Это может быть применено в физико-химических методах, использующих ионизацию при атмосферном давлении для анализа химических соединений (масс-спектрометрия, спектрометрия подвижности иона). С другой стороны, фокусировка ионов вихревой струей дает прекрасные перспективы в решении задач обнаружения радиоактивных источников  $\alpha$ - и  $\beta$ -излучения, путем регистрации рождаемых ими ионов. Как известно, обнаружение таких источников существующими средствами контроля крайне затруднено.

Работа выполнена при финансовой поддержке президиума РАН, программа 8, проект 5.

## Список литературы

- [1] Belov M.E. et al. // J. Am. Soc. Mass. Spectrom. 2004. V. 15. P. 212-232.
- [2] Colburn A.W., Giannakopulos A.E., Derrick P.J. // Eur. J. Mass Spectrum. 2004.
  V. 10. P. 149–154.
- [3] Tan P.V., Laiko V.V., Doroshenko V.M. // Anal. Chem. 2004. V. 76. P. 2462-2469.
- [4] Kremer E.P., Evans G.J., Jervis R.E. // J. Phys. D: Appl. Phys. 2006. V. 39.
  P. 5008–5015.
- [5] Ахмедов Р.Б., Балагула Т.Б., Рашидов Ф.К., Сакаев А.Ю. Аэродинамика закрученной струи / Под ред. Р.Б. Ахмедова. М.: Энергия, 1977. С. 18.
- [6] Kolomiets Y.N., Pervukhin V.V. // Talanta. 2010. V. 81. N 1–2. P. 294–300.
- [7] Hill H.H., jr., Siems W.F., Louis R.H. St., McMinn D.G. // Anal. Chem. 1990.
  V. 62. P. 1201A-1209A.
- [8] Месси Г. Отрицательные ионы. М.: Мир, 1979. С. 674.