

**СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА**

P13-86-199

Х.-И. Дитце*, С. Беккер*, К. Ветцель*, А. М. Родин,
Д. Д. Богданов, Г. М. Тер-Акопьян

**МАСС-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ СЛЕДОВ
В ТВЕРДЫХ ВЕЩЕСТВАХ С ПОМОЩЬЮ
ВЫСОКОЧАСТОТНОГО ЛАЗЕРА ЛТИ501**

* Центральный институт изотопных
и радиационных исследований АН ГДР,
Лейпциг

Главным направлением методического развития масс-спектрометрии последних лет является увеличение чувствительности анализов. При этом были усовершенствованы новые системы разделения ионов /например, МС-МС-системы/, а также методы получения и регистрации ионных пучков. Большое значение для развития ультрачувствительной масс-спектрометрии имеют лазерные источники ионов, с помощью которых можно получать высокую степень ионизации $\alpha \approx 1$ /всех химических элементов в образце. Для применения этих ионных источников в ультрачувствительной масс-спектрометрии необходимы исследования по оптимизации ионно-оптических систем создания и разделения ионных пучков, а также изучение процессов образования атомных и молекулярных ионов в плазме высокой температуры /лазерная и искровая плазма/. Таким исследованиям посвящен ряд работ, выполненных в результате сотрудничества между Центральным институтом изотопных и радиационных исследований АН ГДР и Лабораторией ядерных реакций ОИЯИ по созданию ультрачувствительного масс-спектрометра ЛИДИА/1-8/.

Целью данной работы является создание оптимальной масс-спектрометрической ионно-оптической системы с лазерным источником ионов и изучение лазерной ионизации химических элементов и неорганических молекул.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ АППАРАТУРА

В 1983 году в ЦИИРИ была создана лазерная масс-спектрометрическая установка, состоящая из масс-спектрометра с двойной фокусировкой МХ3301 и ионного источника на основе высокочастотного лазера ЛТИ501. Схема лазерного источника ионов изображена на рис.1. Источник состоит из лазерно-оптической и ионно-оптической частей. В установке используется три типа лазеров: 1 - основной, Nd-YAG - лазер ЛТИ501 для ионизации вещества пробы; 2 - рубиновый, или Nd-стеклянный лазер /LMAI или LMAIO/ также для ионизации анализируемой пробы, но в режиме одиночных импульсов излучения; 3 - He-Ne лазер для юстировки луча основного лазера.

Излучение лазеров 1 или 2 фокусируется с помощью зеркал и линз на поверхность мишени 4. С помощью LMA-микроскопа 5 можно наблюдать за поверхностью мишени. Часть лазерного луча используется для измерения мощности излучения. Манипулятор 6, связанный с мишенью, позволяет вручную или автоматически перемещать анализируемый образец по трем координатам, и тем самым сканиро-

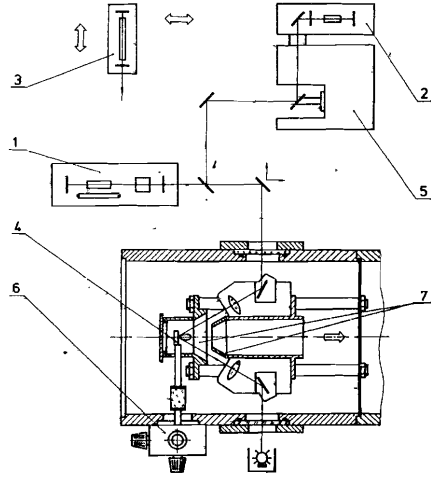


Рис.1. Схема лазерного источника ионов.

вать поверхность образца лазерным лучом. Атомные и молекулярные ионы, возникающие в лазерной плазме, проходят через ионно-оптическую систему 7 с ускоряющим напряжением 18 кВ, а затем электростатический и магнитный анализаторы масс-спектрометра. Регистрация ионов в фокальной плоскости масс-спектрометра производится с помощью ионночувствительной фотопластинки, что позволяет одновременно измерять массовый спектр всех химических элементов периодической системы Менделеева.

В табл.1 приведены параметры используемых в установке лазеров и масс-спектрометра.

Исследования в этой работе проводились с помощью твердотельного /алюмоиттриевый гранат/ оптического квантового генератора ЛТИ501 с длиной волны 1064 нм. Лазер работает в режиме акустооптической модуляции добротности с частотой управляющих импульсов от 5 до 50 кГц при их длительности 100 нс. Высокая разрешающая способность масс-спектрометра / ≈ 10000 / позволяет легко идентифицировать различные элементы по линиям изотопов.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

В данной работе проведены следующие исследования: произведена оптимизация ионно-оптической системы извлечения и формирования пучка ионов, что позволило повысить коэффициент использования вещества анализируемой пробы и увеличить разрешение масс-спектрометра; с использованием в источнике ионов высокочастотного лазера проведены анализы циркониевого и геологического /базальт/ ZGI-VM-стандартов и определены коэффициенты относительной чувствительности для широкого набора элементов; исследовано образование в лазерном источнике молекулярных ионов.

На рис.2 изображен участок фотопластинки с массовым спектром изотопов циркония /90, 91, 92, 94, 96/, а на рис.3 - часть спектра в области массовых чисел от 45 до 63, где хорошо видны линии двухзарядных атомных ионов циркония. Высокое качество представленных массовых спектров можно объяснить особенностями использованной ионно-оптической системы лазерного источника.

В результате проведенных исследований было найдено, что ионные источники, использующие для формирования пучка обычную сфе-

Таблица 1

Рабочие характеристики лазерного масс-спектрометра

Параметры лазеров				Масс-спектрометр	
Тип	Мощность имп., Вт	Частота, Гц	Длит.имп., с	Дл.волны, нм	Ускоряющее напряжение
Рубиновый (LMA I)	$3 \cdot 10^6$	$8 \cdot 10^{-2}$	$7 \cdot 10^{-6}$	694	- 18 кВ
Неодим.стекл. (LMA I)	$6 \cdot 10^3$	$6 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-4}$	694	Ширина предметной щели - 10 мкм
Nd-YAG ЛТИ501	$3 \cdot 10^3$	$6 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-4}$	1060	Электростатический анализатор: радиус поворота - 500 мм угол поворота - $31,8^\circ$
	8^*	$(5-50) \cdot 10^3$	$1 \cdot 10^{-7}$	1060	Магнитный анализатор: радиус - 66-600 мм угловой раcтвор - 90°
					Детектор ионов: фотопластинки или Вакуум: ILLFORD Q2 ORWO UV2
					источник ионов анализатор $10^{-4}-10^{-5}$ Па
					Массовое разрешение 10000
					Область экспозиций $10^{-14}-5 \cdot 10^{-8}$ Кл.
					Обработка фотопластинок - полуавтоматическая
					Относительная чувствительность- 10^6 ppb

* Средняя энергия излучения, измеренная при частоте 30 кГц.

Рис.2. Фотография массового спектра изотопов циркония /A = 90, 91, 92, 94, 96/.

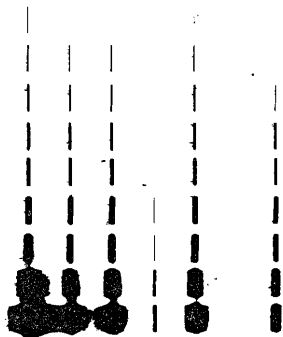
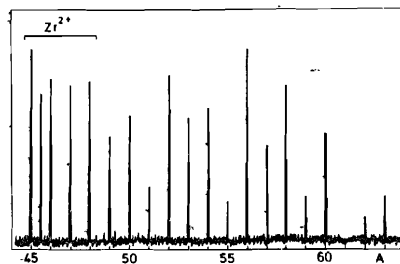


Рис.3. Массовый спектр с линиями двухзарядных изотопов циркония. ▶



рическую или иммерсионную линзу, работают неэффективно из-за накопления положительного заряда на внутренних стенках ионизатора. Это приводит к уменьшению ионного тока, извлекаемого из источника. Например, при работе лазера с частотой 10 кГц ионный ток падал в 100 раз через 0,5-2,0 часа для различных мишеней.

В данной работе была использована ионно-оптическая система с широким эмиссионным отверстием 40 мм /см.рис.1/. В этом случае эффект накопления заряда на стенках ионизатора мал, так как поле ускоряющего напряжения проникает в плазму, что позволяет получить максимальную интенсивность ионного тока. Кроме того, наблюдалось улучшение формы линий и разрешающей способности до 10000, что в два раза превышает эту характеристику для масс-спектрометра МХ3301 с искровым источником ионов.

Оптимизация ионно-оптической системы была проведена и для искрового источника ионов. Как было показано ранее /4,7/, образование молекулярных ионов в искровой и лазерной плазме подобно. На рис.4 представлены выходы молекулярных ионов графита в искровой плазме с малым эмиссионным отверстием в ионизаторе /а/ и с большим - /б/. Из рисунка видно, что выход молекулярных ионов из ионизатора с малым отверстием почти на два порядка больше, чем с большим. Этот эффект может возникнуть вследствие того, что в первом случае ускоряющее поле не проникает в плазму, и электроны, движущиеся в направлении эмиссионного отверстия, производят ударную ионизацию нейтральных молекул и атомов. Дополнительным подтверждением этому служит наблюдение спектров остаточных газов и органических соединений образца. Для широкого эмиссионного отверстия /б/ наблюдались слабые интенсивности молекулярных ионов и линий органических соединений такого же образца графита.

Таблица 2

Концентрация примесей в тантале

Элемент	Концентрация (ppm)
Na	270
Mg	3,5
Al	225
Si	12
P	0,3
S	0,7
K	366
Ca	60
Ti	12
V	0,9
Cr	11
Fe	48
Mn	0,7
Co	0,1
Ni	2,0
Cu	2,1
Zn	1,2
Rb	0,4
Sr	0,2
Zr	58
Nb	1120
Mo	4880
W	996

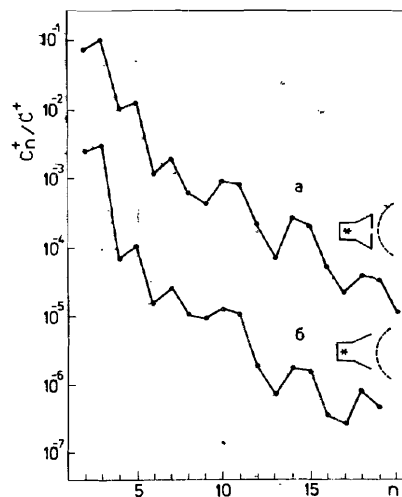


Рис.4. Выходы молекулярных ионов графита в искровой плазме: а/ узкое эмиссионное отверстие ионизатора; б/ широкое эмиссионное отверстие ионизатора.

В табл.2 в качестве иллюстрации чувствительности установки представлены данные лазерного масс-спектрометрического анализа образца тантала. Полная экспозиция на фотопластинке составила ≈ 30 нкл. При этом, как видно из таблицы, можно регистрировать примеси с концентрациями до 100 ppb.

В табл.3 представлены данные лазерного масс-спектрометрического анализа NBS-стандарта циркония. Для большинства элементов /Si, P, Fe, Co, Ni, Mo, Nb и Sn/ найдено хорошее согласие с данными национального бюро стандартов. Высокие концентрации натрия, алюминия и калия, в сравнении с результатами на искровом источнике, указывают на наличие в лазерном источнике механизма термической ионизации, так как эти элементы имеют низкие потенциалы ионизации.

Таблица 3
Значения концентраций элементов в NBS-стандарте циркония /SRM 1235/

Элемент	Концентрация (ppm)		КОЧ ²⁾
	Лазерный анализ	NBS - концентрация ¹⁾	
Na	520	-	-
Mg	8,5	-	-
Al	810	105	7,71
Si	96	95	1,01
P	42	44	0,95
S	46	-	-
K	1000	-	-
Ti	230	90	2,55
V	17	10	1,70
Cr	340	60	5,66
Mn	26	25	1,04
Fe	930	850	1,09
Co	20	20	1,00
Ni	70	65	1,08
Cu	44	80	0,55
Nb	210	200	1,05
Mo	41	-	-
Sn	25	25	1,00
Hf	52	95	0,54
Ta	70	280	0,25
W	14	50	0,28

1) Концентрации элементов /кроме гафния/ не удостоверены национальным бюро стандартов Вашингтона.

2) Коэффициент относительной чувствительности.

В табл. 4 приведены результаты определения основных компонентов и следов в геологическом стандарте /ZGI-ВМ-стандарт/. Так как ионизация геологического образца затруднена, то в анализируемую пробу добавлялся графит /50% от веса/. Из таблицы видно, что результаты искровой и лазерного масс-спектрометрического анализов находятся в удовлетворительном соответствии. Только для ванадия лазерный коэффициент относительной чувствительности /КОЧ/ составляет 14, а искровой - 2,4.

Таблица 4
Значения концентраций элементов в ZGI-ВМ-стандарте

Элемент	Искровой источник	КОЧ	Лазерный источник	КОЧ	
Na	3,44%	5,27%	1,53	5,70%	1,65
Mg	4,50%	6,12%	1,36	5,60%	1,24
Al	8,59%	6,61%	0,80	10,50%	1,22
Si	23,15%	24%	1,03	19,60%	0,85
P	-	1600	-	2000	-
S	-	3200	-	3300	-
Cl	(100)	350	(3,5)	544	(5,4)
K	0,17%	0,34%	2,01	0,21%	1,24
Ca	4,62%	3,00%	0,64	2,40%	0,52
Sc	34	142	4,20	-	-
Ti	6840	14820	2,20	6875	1,00
V	190	420	2,40	2655	14,00
Cr	121	475	3,80	1200	9,90
Fe	6,78%	4,49%	0,66	5,52%	0,81
Co	36	145	4,00	270	7,10
Ni	57	245	4,30	405	7,10
Cu	43	-	-	265	6,10
Zn	120	202	4,50	304	2,50
Ga	16	130	8,10	104	6,50
Ge	(1,5)	(16,6)	(11)	3,8	2,90
Br	-	-	-	55,6	-
Sr	230	369	1,60	970	4,20
Ba	250	380	1,52	710	2,84
Zr	100	-	-	250	2,50
La	9	11	1,22	11	1,22
Ce	2,2	27	1,22	32	1,45

Из полученных результатов можно сделать вывод о том, что в лазерном источнике присутствуют несколько механизмов образования ионов.

Во-первых, ионы элементов с низкими ионизационными потенциалами /< 6,5 эВ/ образуются в результате термической ионизации.

Во-вторых, значительные выходы элементов с высокими потенциалами ионизации /W, Ta/ указывают на образование в источнике ионов высокотемпературной лазерной плазмы /9/.

Интересные результаты были получены при анализе железного стандарта NBS SRM 461. Для большинства химических элементов КОЧ находятся в интервале от 0,2 до 5,0, и только для ванадия коэффициент относительной чувствительности аномально велик и равен 100. Результат устойчиво воспроизводился в различных сериях опытов. Это позволяет сделать предположение о возможном наличии в лазерном источнике механизма селективной многофотонной ионизации. Причем необходимо отметить, что КОЧ для ванадия зависит от его концентрации в образце и повышается с ее ростом.

С помощью лазерной масс-спектрометрии были проведены также исследования процессов образования атомных и молекулярных ионов в горячей плазме. Многообразие процессов ионообразования обуславливает сложную картину массовых спектров, регистрируемых с помощью фотографической пластинки. В табл.5 приведены данные по выходам молекулярных ионов при анализе NBS-стандарта циркония. Наиболее высокую и в то же время непостоянную интенсивность имеют ионы ZrO^+ . Они, по-видимому, образуются из адсорбированных на поверхности мишени слоев. При уменьшении плотности мощности лазерного излучения наблюдается увеличение выхода молекулярных ионов и снижение интенсивности многозарядных атомных ионов. Эти результаты согласуются с исследованиями плазмы более высокой температуры^{/4/}.

Таблица 5
Интенсивность молекулярных ионов циркония в лазерном масс-спектре

M^+/Zr^+	Интенсивность ионов
ZrO^+	$9,6 \cdot 10^{-1}$
ZrO_2^+	$1,5 \cdot 10^{-5}$
Zr_2^+	$7,4 \cdot 10^{-5}$
Zr_2O^+	$3,3 \cdot 10^{-5}$
$Zr_2O_2^+$	$2,7 \cdot 10^{-5}$
$Zr_2O_3^+$	$2,4 \cdot 10^{-4}$

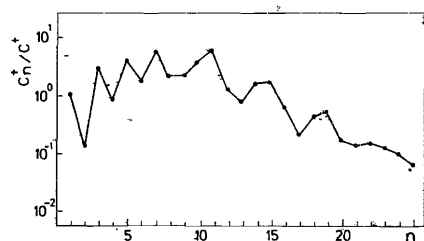


Рис.5. Относительное содержание кластерных ионов в массовом спектре графита.

Содержание молекулярных ионов в массовом спектре графита представлено на рис.5. В отличие от более ранних исследований в лазерной и искровой плазме /см.рис.4 и работы^{/4,7/}, в этих экспериментах зарегистрировано иное распределение молекулярных ионов углерода. Здесь максимальную интенсивность имеют ионы, со-

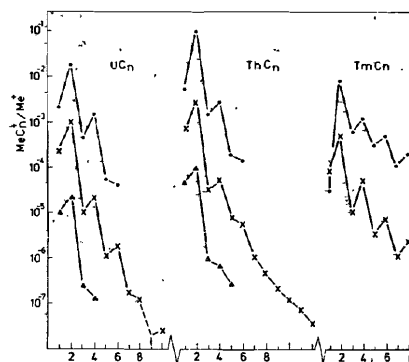


Рис.6. Относительное содержание молекулярных ионов урана, тория и тулия в лазерной и искровой плазме.

стоящие из 11 атомов углерода. Но это распределение находится в соответствии с результатами, опубликованными другими авторами^{/10/}. Возможная причина такого расхождения состоит в низкой мощности лазера, применявшегося в данной работе.

Нами были проведены лазерные масс-спектрометрические исследования урана, тория и лантанидов с 50% добавками графита от веса образцов. Данные были сопоставлены с результатами искровой масс-спектрометрии. На рис.6 представлено распределение карбидов урана в лазерном и искровом массовых спектрах. Выходы ионов UC_n^+ / $n = 1 \div 6$ / с максимумами для $n = 2$ и $n = 4$ в лазерном источнике находятся в соответствии с ранее полученными результатами^{/3,7/}. Двухзарядные молекулярные ионы в лазерных спектрах обнаружены не были.

Аналогичные распределения получены для системы тория с графитом /рис.6/. В спектре были зарегистрированы карбиды тория с максимальным атомным числом углерода 6. Как и в предыдущем случае, однозарядные молекулярные ионы из лазерного источника имеют более высокий выход, чем из искрового. Эти результаты согласуются с данными теплообразования карбидов тория, полученными при исследованиях на источнике с ионизацией электронным ударом^{/11/}.

При исследовании образования молекулярных ионов редкоземельных элементов были получены аналогичные результаты. На рис.6 для примера представлено распределение карбидов тулия. И здесь получены более высокие интенсивности кластеров для лазерного источника, чем для искрового с максимумами для четных атомных чисел углерода. Необходимо отметить, что для всех исследованных систем выход карбидов падает с увеличением числа атомов углерода.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Для плотности мощности лазерного излучения $1 \cdot 10^8 \div 2 \cdot 10^9$ Вт/см² при диаметре пятна на поверхности мишени $15 \div 25$ мкм данные лазерной и искровой масс-спектрометрии хорошо согласуются. В лазерной плазме также образуются молекулярные ионы с высоким выходом. Интенсивность молекулярных ионов в лазерных массовых спектрах сильно зависит от мощности лазерного

излучения и падает с ее увеличением. Но при работе с более высокой мощностью излучения должно возникать широкое распределение этой мощности вследствие дефокусировки излучения при работе лазера на высокой частоте. Это означает, что процессы образования молекулярных ионов должны сохраняться и при более высокой плотности мощности лазерного излучения. Кроме того, молекулярные ионы, по-видимому, возникают и при расширении лазерной плазмы за счет ионизации нейтральных атомов и молекул испаренного вещества и остаточных газов. Этот эффект должен усиливаться при работе лазера на высокой частоте, так как при этом повышается концентрация пара вещества мишени в объеме ионизатора.

Выход многозарядных атомных ионов в нашем случае был очень мал. Так, интенсивность двухзарядных ионов составляла единицы процентов, а трехзарядные ионы обнаружены не были. Для увеличения выхода двух- и трехзарядных ионов необходимо увеличение плотности мощности лазерного излучения до величин $\geq 5 \cdot 10^9$ Вт/см² с одновременным увеличением диаметра пятна фокусировки до 100 ± 300 мкм/12/.

Фокусировка излучения лазера, работающего в режиме модулированной добротности с высокой частотой импульсов, затруднена. Это приводит к тому, что плотность мощности излучения в эксперименте может сильно меняться. Для устранения этого эффекта необходимо быстро перемещать мишень или укорачивать импульсы лазерного излучения, что приведет к уменьшению глубины кратера. Кроме того, результатом работы лазера на высокой частоте является сильный разогрев мишени.

Применение ионной оптики с широким эмиссионным отверстием в ионизаторе позволило увеличить коэффициент использования вещества мишени. При работе с новой оптикой было зарегистрировано уменьшение времени набора экспозиции на фотопластинке примерно в 30 раз. Это означает, что во столько же раз увеличился коэффициент использования анализируемой пробы. Для новой ионной оптики также следует ожидать снижения выхода молекулярных ионов, аналогично тому, как это получено для искровой плазмы /см.рис.4/.

Авторы благодарны академику Г.Н.Флерову за постоянный интерес к работе и полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Dietze H.-J., Becker S. ZFI-Mitteilung, 1982, 57.
2. Ter-Akopian G.M. et al. JINR, T13-82-639, Dubna, 1982.
3. Богданов Д.Д. и др. ОИЯИ, 13-83-840, Дубна, 1982.
4. Dietze H.-J. et al. ZFI-Mitteilung, 1981, 48.
5. Becker S., Dietze H.-J. Int.Mass Spectrom. Ion Phys., 1983, 51, p.325.
6. Becker S., Dietze H.-J. Int.J.Mass Spectrom.Ion Phys., 1983, 54, p.337.

7. Dietze H.-J. et al. Mikrochimica Acta, Wien, 1983, 111, p.263.
8. Becker S., Dietze H.-J. Isotopenpraxis, 1983, 19, p.105.
9. Быковский Ю.А. и др. ЖАХ, 1976, т.31, № 11, с.2092.
10. Furstenau N., Hillenkamp F. Int.J.Mass Spectrom, Ion Phys., 1981, 37, p.135.
11. Gupta S.K., Gingerich K. Chem.Phys., 1980, 72, p.2795.
12. Ковалев И.Д., Ларин Н.В., Максимов Г.А. Письма в ЖТФ, 1975, 1, p.793.

Рукопись поступила в издательский отдел
3-го апреля 1986 года.

НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги, если они не были заказаны ранее.

D17-81-758	Труды II Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1981.	5 р. 40 к.
P18-82-117	Труды IV совещания по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач. Дубна, 1981.	3 р. 80 к.
D2-82-568	Труды совещания по исследованиям в области релятивистской ядерной физики. Дубна, 1982.	1 р. 75 к.
D9-82-664	Труды совещания по коллективным методам ускорения. Дубна, 1982.	3 р. 30 к.
D3,4-82-704	Труды IV Международной школы по нейтронной физике. Дубна, 1982.	5 р. 00 к.
D11-83-511	Труды совещания по системам и методам, аналитических вычислений на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1982.	2 р. 50 к.
D7-83-644	Труды Международной школы-семинара по физике тяжелых ионов. Алушта, 1983.	6 р. 55 к.
D2,13-83-689	Труды рабочего совещания по проблемам излучения и детектирования гравитационных волн. Дубна, 1983.	2 р. 00 к.
D13-84-63	Труды XI Международного симпозиума по ядерной электронике. Братислава, Чехословакия, 1983.	4 р. 50 к.
D2-84-366	Труды 7 Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1984.	4 р. 30 к.
D1,2-84-599	Труды VII Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1984.	5 р. 50 к.
D17-84-850	Труды III Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1984. /2 тома/	7 р. 75 к.
D10,11-84-818	Труды V Международного совещания по проблемам математического моделирования, программированию и математическим методам решения физических задач. Дубна, 1983	3 р. 50 к.
	Труды IX Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1984 /2 тома/	13 р. 50 к.
D4-85-851	Труды Международной школы по структуре ядра, Алушта, 1985.	3 р. 75 к.

Заказы на упомянутые книги могут быть направлены по адресу:
101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79
Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований

Дитце Х.-И. и др.

P13-86-199

Масс-спектрометрический анализ следов в твердых веществах с помощью высокочастотного лазера ЛТИ501

Исследовалась возможность использования лазерного источника ионов на основе высокочастотного лазера ЛТИ501 для ультрачувствительной масс-спектрометрии. Была выбрана оптимальная ионно-оптическая система извлечения и формирования пучка, позволившая в 30 раз повысить коэффициент использования вещества пробы и увеличить разрешение масс-спектрометра до 10000. Произведен анализ масс-спектрометрических стандартов и определены коэффициенты относительной чувствительности для широкого набора химических элементов. Изучено образование молекулярных ионов в лазерном источнике. Сделаны выводы о возможности применения данного источника ионов в ультрачувствительной масс-спектрометрии.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1986

Перевод О.С.Виноградовой

Dietze H.-I. et al

P13-86-199

Mass-Spectrometric Analysis of Trace Elements in Solid Materials by Means of LTI 501 High Frequency Laser

A possibility of using a laser source on the base of LTI 501 high frequency laser for ultrasensitive mass-spectrometry was investigated. Optimum ion-optical system of beam extraction and forming has been chosen. It permitted to enrich by a factor of 30 the coefficient of sample matter use and to increase the mass-spectrometer resolution upto 10000. Mass-spectrometric standards have been analysed, and relative sensitive coefficients have been determined for a wide set of chemical elements. The formation of molecular ions in the laser source was studied. The conclusions about the possibility of application of the ion source in ultrasensitive mass-spectrometry are drawn.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1986