

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

368 / 83

17/1-83

P7-82-749

Г.М.Арзуманян, Д.Д.Богданов, Ю.А.Быковский,
А.М.Родин, С.М.Сильнов, Г.М.Тер-Акопян

МАСС-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ
АТОМНЫХ И МОЛЕКУЛЯРНЫХ ИОНОВ,
ОБРАЗОВАННЫХ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ
ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ТВЕРДУЮ МИШЕНЬ

Направлено в "International Journal
of Mass-Spectrometry and Ion Physics".

1982

Продолжение работ по поиску сверхтяжелых элементов /СТЭ, $A > 250$ / в природе требует применения высокочувствительных методов, позволяющих идентифицировать природные нуклиды по массовому числу или порядковому номеру.

К настоящему времени можно считать установленным, что среднее содержание СТЭ в веществе Солнечной системы мало и не превышает 10^{-14} г/г. Эксперименты, в которых проводилась регистрация событий множественной эмиссии нейтронов в природных образцах, привели к обнаружению неизвестного долгоживущего спонтанно делящегося нуклида в некоторых метеоритах^{/1/}. Если предположить, что этот нуклид действительно принадлежит к области СТЭ с $Z \geq 110$, то его содержание по порядку величины оказывается близким к указанному пределу. События множественной эмиссии нейтронов были зарегистрированы также для продуктов, полученных при химической переработке геотермальных рассолов п/о Челекен /Юго-Восточный Каспий//^{2/}. Хотя скорость счета этих событий для полученных продуктов переработки была несколько выше, чем в случае метеоритов, концентрация гипотетического СТЭ в исходном рассоле была очень низкой. Поэтому при рассмотрении возможности использования масс-спектрометра для идентификации спонтанно делящегося нуклида следует стремиться к максимально высокой чувствительности, которая в пределе должна достичь 10^{-14} г/г. Для достижения столь высокой концентрационной чувствительности и возможности одновременной идентификации по массовому числу нами был разработан проект ультрачувствительного масс-спектрометра "ЛИДИА"^{/3/}. Наряду с задачей поиска СТЭ масс-спектрометр может также применяться для обнаружения малых примесей в чистых образцах, изучения продуктов ядерных реакций и для других целей в прикладных и фундаментальных исследованиях.

Предусмотренная многоступенчатая система разделения для подавления фона перерассеянных ионов и использование лазерного источника ионов /ЛИИ/, как наиболее перспективного с точки зрения минимального выхода заряженных молекул, позволят, на наш взгляд, обеспечить относительную чувствительность $/10^{-12}-10^{-14}$ ат/ат. в области массовых чисел $A > 250$. Выбор лазерного источника ионов предпочтителен также из-за малого расхода вещества, возможности проведения локального анализа, отсутствия селективности ионизации, свободы от ионных компонент, не связанных с материалом мишени, а также из-за простоты и надежности в эксплуатации.

Масс-спектрометрическому исследованию лазерной плазмы посвящено большое число работ^{/4-7/}. Изучены энергетические, зарядовые и угловые распределения одно- и многозарядных атомных ионов плаз-

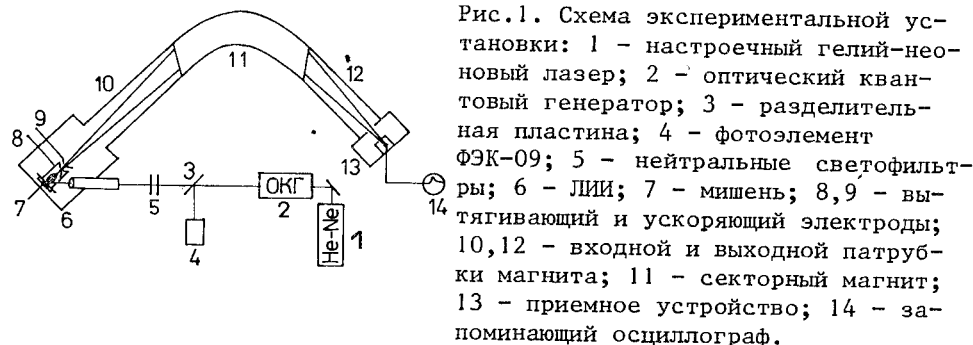


Рис.1. Схема экспериментальной установки: 1 - настроенный гелий-неоновый лазер; 2 - оптический квантовый генератор; 3 - разделительная пластина; 4 - фотоэлемент ФЭК-09; 5 - нейтральные светофильтры; 6 - ЛИИ; 7 - мишень; 8, 9 - вытягивающий и ускоряющий электроды; 10, 12 - входной и выходной патрубки магнита; 11 - секторный магнит; 13 - приемное устройство; 14 - запоминающий осциллограф.

мы. Показано, что в формировании энергетического спектра ионов важную роль играют механизмы ускорения в самосогласованном электрическом поле и гидродинамического разлета плазменного сгустка в вакуум^{/8,9/}. Указанные вопросы рассмотрены, например, в обзорной работе^{/10/}. Однако в литературе имеется мало данных о выходах и энергетических спектрах молекулярных ионов в лазерной плазме, изучению которых посвящена данная работа.

Блок-схема экспериментальной установки приведена на рис.1. Основными ее узлами являются оптический квантовый генератор, лазерный источник ионов, секторный магнит и детектор ионов с выходом на запоминающий осциллограф. Результаты получены с использованием лазера ЛТИ ПЧ-8, генерирующего энергию 60 мДж в импульсе длительностью 12 нс. При фокусировке луча в пятно площадью $7 \cdot 10^{-4}$ см² максимальная плотность мощности излучения равнялась $7 \cdot 10^9$ Вт/см². При необходимости излучение лазера ослаблялось калиброванными нейтральными светофильтрами.

Для формирования и ускорения ионного пучка применялась трехэлектродная щелевая оптика^{/11/}. Образованная на поверхности мишени лазерная плазма расширялась внутри первого электрода /экспандера/, представляющего собой дрейфовую трубку диаметром 35 мм с размерами выходной щели $3 \cdot 10$ мм². В экспериментах использовались трубки с различными длинами: 75, 100 и 150 мм. В данной работе все измеренные величины приведены для экспандера длиной 100 мм. На этот же электрод подавалось высокое напряжение +40 кВ. Второй и третий электроды находились под нулевым потенциалом по отношению к корпусу. Пучок ионов с энергией 40 кэВ анализировался секторным магнитом, угол поворота в котором составлял 60°. Входная апертура позволяла пропускать через магнит ионы, двигавшиеся в диапазоне углов $\pm 5^\circ$ по горизонтали и $\pm 2^\circ$ по вертикали по отношению к центральной траектории. Дисперсия магнитного спектрометра равнялась 18 мм/% V_p , собственное разрешение $\Delta/\Delta A \approx 600$. В качестве регистрирующего устройства использовался либо электронный умножитель ВЭУ-2А, либо цилиндр Фарадея, установленный в фокальной плоскости спектрометра. Сигнал с детектора записывался на экране запоминающего осциллографа, запуск которого осуществлял-

ся с помощью фотоэлемента. Рабочий вакуум в системе поддерживался на уровне $5 \cdot 10^{-6}$ мм рт.ст. Подробное описание методики приведено в работе^{/12/}.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЯ

Использованная методика позволяла изучать зарядовые, энергетические и угловые распределения атомных и молекулярных ионов лазерной плазмы. В качестве мишеней использовались образцы химических элементов от углерода до свинца, окиси металлов и другие соединения. При фиксированной плотности мощности лазерного излучения $4 \cdot 10^9$ Вт/см² число извлеченных ионов менялось в небольших пределах /1-3/ $\cdot 10^{11}$ ион/имп. в зависимости от материала мишени. В предположении изотропного разлета одно- и двухзарядных ионов^{/13/} и с учетом апертуры вытягивающего электрода можно оценить полное число N_i ионов в плазменном сгустке при указанной интенсивности излучения $N_i = 2 \cdot 6 \cdot 10^{14}$ ион/имп. Степень ионизации испаренного вещества определяется отношением $N_i/N_{ат.}$, где $N_{ат.}$ - общее число испаренных атомов. Величина $N_{ат.}$ определялась двумя способами: путем оценки объема образовавшегося кратера и взвешивания распыленного вещества. Измеренные величины $N_{ат.}$ оказались в пределах /0,5-1,5/ $\cdot 10^{15}$ ат./имп. Следовательно, наблюдаемая в наших экспериментах степень ионизации была на уровне десятков процентов, что неплохо согласуется с данными^{/14/}.

Известно, что время жизни молекулярных ионов сильно уменьшается с повышением кратности ионизации и, например, при $q = 3^+$ по порядку величины не превышает 100 нс^{/15/}. Это приводит к сильному уменьшению доли заряженных молекул в анализируемом пучке. Поэтому в проекте "ЛИДИА" для элементного анализа природного образца планируется использование перезаряженных $2^+ \rightarrow 1^+$ или $3^+ \rightarrow 1^+$ компонент ионного пучка. В этой связи становится необходимым выбор оптимального режима воздействия лазерного излучения на вещество, при котором наблюдается значительный выход ионов с кратностью ионизации от $q = 2^+$ до $q = 4^+$. Степень поглощения излучения сгустком и выход многозарядных ионов зависят от интенсивности лазерного излучения и диаметра пятна фокусировки^{/16/}. В наших экспериментах были зарегистрированы ионы с максимальной кратностью ионизации до $q = 6^+$. Представленные в табл.1 данные по зарядовому спектру для ионов различных элементов приведены для диаметра пятна фокусировки 300 мкм и плотности мощности $3 \cdot 10^9$ Вт/см².

Из таблицы видно, что для элементов типа Fe, Ni, Cu максимум зарядового спектра приходится на ионы с $q = 2^+$. В области средних и тяжелых масс в плазменном сгустке начинают доминировать однозарядные ионы, однако выход двух- и трехзарядных компонент остается достаточно высоким и составляет соответственно /15-25%/ и /1-7%/. При переходе к плотностям потока $W = 7 \cdot 10^9$ Вт/см² число двух- и трехзарядных ионов увеличивается в среднем в 1,5 раза.

Таблица 1

Относительный выход ионов из лазерной плазмы при интенсивности излучения $3 \cdot 10^9$ Вт/см²

	AgBr					CsI				
	Fe	Cu	Br	Ag	Mo	In	I	Cs	Ta	Pb
1^+	0,35	0,39	0,81	0,79	0,70	0,80	0,73	0,75	0,68	0,85
2^+	0,53	0,50	0,15	0,16	0,23	0,16	0,22	0,20	0,26	0,13
3^+	0,12	0,11	0,04	0,05	0,07	0,04	0,05	0,05	0,06	0,02

Были проведены специальные исследования по оценке выхода двух- и трехзарядных ионов для некоторых мишеней. В этих экспериментах исследуемый элемент присутствовал в виде 5% атомной добавки в матрице из фосфатного стекла ($P_2O_5 \cdot Al_2O_3 \cdot SiO_2$). Плотность мощности излучения и диаметр пятна фокусировки оставались без изменения. Результаты по выходу ионов с $q = 2^+$, 3^+ по отношению к однозарядным приведены в табл.2.

Таблица 2

Относительный выход двух- и трехзарядных ионов для примесных элементов

Зарядность иона	Fe	Nb	In	La	Ta	Pb
2^+	0,40	0,32	0,25	0,22	0,34	0,32
3^+	0,07	0,05	0,06	0,04	0,085	0,04

Видно, что в широком массовом диапазоне выходы ионов с $q = 2^+$, 3^+ меняются не более чем в 2 раза.

Поскольку скорость процесса рекомбинации ионов зависит от плотности и температуры плазменного сгустка, можно ожидать изменения в зарядовом и энергетическом спектрах для данного элемента в зависимости от состава матрицы образца. Действительно, проведенные эксперименты с мишенями из фосфатного стекла показали, что относительный выход тяжелых ионов с $q = 2^+$, 3^+ увеличивается в 1,5-2 раза по сравнению с выходом этих же ионов для чистого образца того же элемента. Происходит своеобразная "закалка" многозарядных ионов тяжелой примеси в плазменном сгустке легкой матрицы. Такую "закалку" мы объясняем быстрым прекращением процесса рекомбинации высокозарядных ионов. Причиной этого является падение плотности плазмы при ее разлете в вакуум. Интервал времени, в течение которого происходит рекомбинация высокозарядных тяжелых ионов, оказывается в легкой матрице мень-

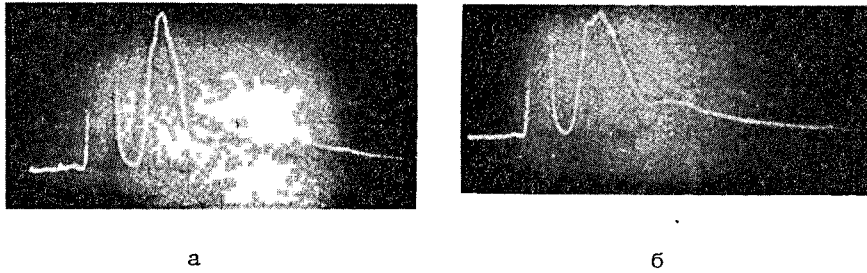


Рис.2. Осциллограмма импульса тока для однозарядных ионов серебра / $A = 107$ /: а/ ширина щели 1,5 мм; б/ ширина щели 15 мм.

ше по сравнению с временем рекомбинации таких же ионов в плазменном сгустке чистого образца.

Максимум энергетического спектра однозарядных ионов свинца, образованных в результате взаимодействия лазерного излучения с мишенью из металлического свинца, соответствовал энергии $E = 90$ эВ. Максимум того же спектра в случае мишени из фосфатного стекла с примесной добавкой свинца находился при энергии $E = 220$ эВ. Аналогичное смещение наблюдалось также для ионов свинца с $q > 1^+$ и для ионов других тяжелых элементов. Такое смещение максимума свидетельствует об участии примесных тяжелых ионов в коллективных эффектах ускорения в лазерно-плазменном сгустке легкой матрицы.

Наблюдаемая "закалка" существенна при поисках СТЭ в природе, так как основные типы пород земной коры содержат главным образом элементы с $A \leq 60$, то есть имеют легкую матрицу, благоприятную для многократной ионизации редких тяжелых элементов.

Использованная в данной работе схема изучения лазерной плазмы /см. рис.1/ позволяла наблюдать некоторые интересные особенности энергетических спектров ионов. Это достигалось благодаря возможности измерения времени движения ионов на короткой базе от плоскости мишени до выходной щели экспандера, последующего их ускорения и анализа по массе. В результате было обнаружено, что временное распределение импульса тока однозарядных ионов имеет сложную структуру, в которой можно выделить три группы ионов /см. рис.2/. Для примера на рис. 2 показаны осциллограммы токовых импульсов однозарядных ионов серебра с $A = 107$, снятые при двух размерах входной щели цилиндра Фарадея. При измерениях с узкой щелью удается четко выделить трехпиковую структуру токового импульса.

Поскольку время пролета в масс-спектрометре одинаково для всех трех компонент, разброс во времени задержки связан с разбросом времени дрейфа в экспандере. Основная часть однозарядных ионов

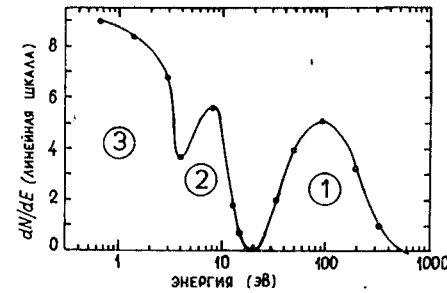


Рис.3. Энергетический спектр однозарядных ионов серебра / $A = 107$ /.

относится к первой группе /левый пик на рис.2, максимум пика выходит за рамки экрана осциллографа/ и распределена в энергетическом интервале /30-600/ эВ. Такое энергетическое распределение типично для ускоренных ионов лазерной плазмы^{/8/}. Пороговые значения интенсивности лазерного излучения для образования данной ионной компоненты составляют /2-6/ $\cdot 10^8$ Вт/см² для всех исследованных мишеней.

В области энергий $E < 30$ эВ наблюдается достаточно высокий выход однозарядных ионов /до 20% от количества однозарядных ионов лазерной плазмы/. Характерным для этой энергетической области является наличие двух максимумов с энергиями около 10 и 2 эВ /второй и третий пики на рис.2/. Выход ионов с энергиями 2 эВ составлял до 5% от выхода ускоренных ионов лазерной плазмы и зависел от материала мишени. Зная массу иона и длину дрейфовой трубки, а также имея временную картину импульса тока, можно построить кривую энергетического распределения. На рис.3 представлен энергетический спектр однозарядных ионов серебра.

Видно, что в энергетическом спектре наблюдается плавный рост выхода ионов третьей группы до энергий 0,5 эВ. Дальнейшее продвижение в область меньших энергий и определение точного положения низкоэнергетического максимума ограничено чувствительностью методики. Пороговые значения интенсивности лазерного излучения для образования третьей и первой групп ионов совпадают. Это совпадение указывает на прямую связь между рождением лазерно-плазменного сгустка и ионов третьей группы. Низкое значение энергии /~0,5 эВ/ позволяет предположить, что образование ионов этой группы вызвано вторичным взаимодействием плазменного сгустка с поверхностью мишени. На возможность образования таких ионов указывалось в^{/17/}. Однако ионы с таким механизмом образования экспериментально ранее не изучались.

При исследовании зависимости выхода ионов второй группы /~10 эВ/ от плотности мощности излучения установлено, что для этой группы ионов характерны низкие пороговые значения интенсивности лазерного луча ~ 10^7 Вт/см². На рис.4 приведена зависимость выхода однозарядных ионов свинца от интенсивности лазерного излучения для всех трех энергетических групп. Каждая точка представляет собой результат усреднения по 10 лазерным импульсам, ошибка определяется разбросом значений при различных "выстрелах"¹¹. Из рисунка видно, что начиная с плотностей потока ~ $5 \cdot 10^8$ Вт/см² и выше выход ионов второй группы практически не зависит от интенсивности излучения и остается постоянным.

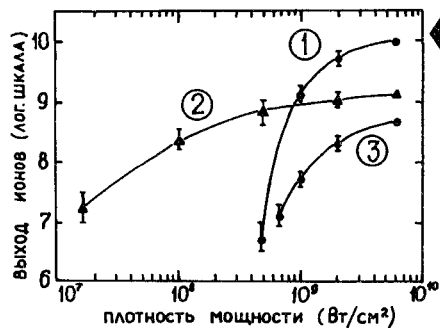


Рис.5. Зависимость выхода однозарядных ионов низкоэнергетической части спектра от потенциала ионизации.

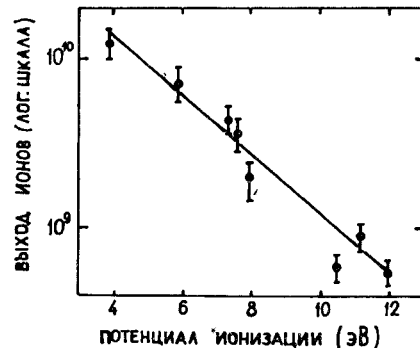
Установлена корреляция между выходом ионов низкоэнергетической части спектра и потенциалом ионизации исследуемого элемента. Так, например, при исследовании мишеней AgBr и CsI количество однозарядных ионов с энергиями ~ 100 эВ одинаково для обеих компонент /см. табл.1/. Выход ионов с $E < 30$ эВ для йода и брома оказался по меньшей мере на порядок ниже, чем для цезия и серебра. На рис.5 показана зависимость выхода однозарядных ионов низкоэнергетической части спектра от первого потенциала ионизации исследуемого элемента.

Низкие пороговые значения интенсивности лазерного излучения и зависимость выхода от потенциала ионизации говорят в пользу того, что возможным механизмом образования ионов второй группы является термоионизация.

При исследовании мишеней из окислов Fe, Jn, La, Nb, Ta, Pb и других металлов наблюдались молекулярные ионы типа MeO^+ . В табл.3 даны значения относительного выхода ионизованных молекул для различных мишеней. Энергетическое распределение и временная структура импульса тока заряженных молекул повторяли картину для однозарядных атомных ионов третьей группы. Это свидетельствует о том, что механизм образования молекулярных ионов также обусловлен вторичными процессами взаимодействия лазерной плазмы с поверхностью мишени.

Отметим, что мы не наблюдали заряженных молекул с энергиями /30-600/ эВ, по крайней мере на уровне чувствительности $5 \cdot 10^{-6}$ от полного ионного тока. Мы не наблюдали заряженных молекул с кратностью ионизации $q \geq 2^+$ во всем энергетическом диапазоне.

Рис.4. Зависимость выхода однозарядных ионов с различными энергиями от интенсивности лазерного излучения: 1 - ионы с энергией 100 эВ; 2 - с энергией 10 эВ; 3 - с энергией 2 эВ.



Относительный выход ионизованных молекул для различных мишеней

Мишень	Cu ₂ O	Nb ₂ O ₅	In ₂ O ₃	La ₂ O ₃	Ta ₂ O ₅	PbO ₂
Наблюдаемая молекула	CuO ⁺	NbO ⁺	InO ⁺	LaO ⁺	TaO ⁺	PbO ⁺
Отн. выход, $\times 10^{-3}$	1,6	2,2	1,2	2,9	3,3	2,7

Таблица 3

Относительный выход молекулярных ионов и трехзарядной компоненты для различных углов вылета

Угол /градусы/	Ta ³⁺	TaO ⁺	Pb ³⁺	PbO ⁺
0	1,0	1,0	1,0	1,0
30	0,7	1,0	0,64	1,0
50	0,2	0,93	0,25	0,95

Таблица 4

В предположении вторичного механизма образования молекулярных ионов следует ожидать, что их угловое распределение будет изотропным. С целью проверки этого предположения было проведено изучение углового спектра ионизованных молекул в диапазоне углов от 0° до 50°. Для этого была изготовлена специальная конструкция чашки-держателя и мишени, которая позволяет направлять в анализирующую систему ионы, вылетающие под различными углами относительно нормали к поверхности мишени. Экспериментальные данные для трех различных углов приведены в табл.4.

Из таблицы видно, что угловое распределение ионизованных молекул TaO⁺ и PbO⁺ близко к изотропному. Аналогичные угловые спектры были получены и для других исследованных мишеней.

Изотропное угловое распределение и низкие значения энергий молекулярных ионов подтверждают сделанное предположение о вторичной природе их образования.

В заключение отметим, что значительное различие энергий атомной и молекулярной ионных компонент позволяет осуществить эффективную очистку ионного пучка от ионизованных молекул. Наиболее простым нам представляется способ предварительной энергетической селекции ионов лазерной плазмы замедляющим электростатическим

полем. Проведенные на масс-спектрометре измерения показали, что при замедляющем потенциале 20 В заряженные молекулы в ионном пучке при работе с мишенями из окислов не наблюдались на уровне чувствительности $5 \cdot 10^{-6}$ от полного ионного тока, в то время как при нулевом замедляющем потенциале их доля составляла $1-3/4 \cdot 10^{-3}$. Таким образом, за счет простой энергетической селекции удастся уменьшить выход заряженных молекул из источника по крайней мере на три порядка.

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

ЛИТЕРАТУРА

1. Флеров Г.Н. и др. ЯФ, 1977, 26, с.449.
2. Flerov G.N. et al. Z.Phys., 1979, A292, p.43.
3. Flerov G.N., Ter-Akopian G.M. Pure and Appl.Chem., 1981, 53, p.909.
4. Linlor W.J. Phys.Rev.Lett., 1964, 12, p.382.
5. Lunger P. et al. IEEE, 1966, QE-2, p.499.
6. Sasaki T. et al. Jap.J.Appl.Phys., 1969, 8, p.1037.
7. Быковский Ю.А. и др. ЖЭТФ, 1971, 60, с.1306.
8. Быковский Ю.А. и др. Письма в ЖЭТФ, 1972, 15, с.308.
9. Ковалев И.Д., Ларин Н.В., Максимов Г.А. Письма в ЖЭТФ, 1975, 1, с.798.
10. Conzemius R.J., Capellen J.M. Int.J.of Mass Spectr. and Ion Phys., 1980, 34, p.197.
11. Freeman J.H., Bell W.A. Nucl.Instr. and Meth., 1963, 22, p.317.
12. Арзуманян Г.М. и др. ОИЯИ, P7-81-744, Дубна, 1981.
13. Быковский Ю.А. и др. ЖТФ, 1968, 38, с.1194.
14. Fenner N.C., Daly N.R. Rev.Sci.Instr., 1966, 37, p.1068.
15. Purser K.H., Lutherland A.E., Gole H.E. Nucl.Instr. and Meth., 1979, 162, p.637.
16. Быковский Ю.А. и др. Физика плазмы, 1976, 2, с.248.
17. Рэди Дж. Действие мощного лазерного излучения. "Мир", М., 1974.

Рукопись поступила
22 октября

Арзуманян Г.М. и др.

P7-82-749

Масс-спектрометрическое исследование атомных и молекулярных ионов, образованных при воздействии лазерного излучения на твердую мишень

Масс-спектрометрическим методом исследованы энергетические, зарядовые и угловые распределения атомных и молекулярных ионов, образующихся при воздействии лазерного излучения наносекундной длительности на твердую мишень. Показано, что в однозарядной ионной компоненте значительную долю составляют ионы, образующиеся в результате термического испарения и вторичного взаимодействия лазерно-плазменного сгустка с поверхностью мишени. Установлено, что молекулярные ионы практически полностью образуются в результате вторичного взаимодействия лазерно-плазменного сгустка с поверхностью мишени.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1982

Arzumanian G.M. et al.

P7-82-749

Mass-Spectrometric Investigation of Atomic and Molecular Ions Produced Under Action of Laser Radiation on a Solid Target

Energy, charge and angular distributions of atomic and molecular ions produced under action of the nanosecond nuclear radiation on a solid target are investigated by the mass-spectrometric method. It is shown that a considerable part of singly charged ion component is formed by the ions produced as a result of thermal evaporation and secondary interaction of laser-plasma bunch with a target surface. It is established that molecular ions are practically completely formed due to secondary interaction of laser-plasma bunch with a target surface.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1982

Перевод О.С.Виноградовой.