

## ОПЫТ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ УМС ИЯФ ДЛЯ ДАТИРОВАНИЯ ПОЛЬЗОВАТЕЛЬСКИХ ОБРАЗЦОВ

*С. А. Растигеев<sup>1</sup>, А. Д. Гончаров, В. Ф. Ключев, Е. С. Константинов,  
В. В. Пархомчук, А. В. Петрожицкий, А. Р. Фролов*

Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН, Новосибирск, Россия

Представлен опыт эксплуатации УМС ИЯФ по радиоуглеродному анализу пользовательских образцов. Описаны алгоритм анализа образцов и режим работы ускорительного комплекса. Приводятся экспериментальные и статистические данные по анализу образцов.

Operation experience of the BINP Accelerator Mass Spectrometer for radiocarbon analysis of user samples is described. The sample analysis algorithm and the accelerator complex operation mode are presented. The experimental and statistical data are given.

PACS: 07.75.+h

### ВВЕДЕНИЕ

Созданный в ИЯФ ускорительный масс-спектрометр (УМС) — сверхчувствительная установка для радиоуглеродного анализа вещества, применяемого для датирования объектов в археологии, геологии, климатологии и многих других областях науки. Природная распространенность изотопа  $^{13}\text{C}$  составляет примерно 1% от  $^{12}\text{C}$ . Доля космогенного, радиоактивного изотопа  $^{14}\text{C}$  незначительна и находится на уровне  $10^{-12}$  и ниже. Образцы распыляются пучком цезия с образованием ионов из атомов исследуемого объекта. Высокая чувствительность анализа достигается благодаря многоступенчатой фильтрации состава ионного пучка в электрических и магнитных полях, разбиению молекулярного фона при прохождении ионами перезарядной мишени, а также благодаря возможности поштучного подсчета интересующих ионов [1, 2].

Комплекс УМС ИЯФ [3, 4] основан на электростатическом тандемном ускорителе с 1-МВ напряжением терминала [5, 6]. Исследуемые образцы распыляются в ионном источнике (ИИ) с образованием пучка отрицательных ионов. Отрицательные ионы проходят  $90^\circ$ -й магнитный поворот, ускоряются к высоковольтному терминалу ускорителя до энергии примерно 1 МэВ, перезаряжаются в зарядность  $3+$  в мишени на парах магния [7], проходят  $180^\circ$ -й электростатический поворот, ускоряются до энергии примерно 4 МэВ к потенциалу земли, проходят  $90^\circ$ -й магнитный поворот и поштучно регистрируются в оконечном детекторе TOF [8, 9]. При радиоуглеродном

---

<sup>1</sup>E-mail: S.A.Rastigeev@inp.nks.ru

анализе производится измерение концентрации радиоуглерода в 20 образцах барабана ИИ посредством поочередного прохождения через тракт спектрометра УМС ИЯФ изотопов  $^{14}\text{C}$  и  $^{13}\text{C}$  [10, 11].

УМС официально зарегистрирован как уникальная научная установка «УНУ УМС ИЯФ СО РАН» для выполнения совместных с пользователями научно-исследовательских работ. На текущий момент производится УМС-анализ примерно 1000 образцов в год для нескольких десятков научных и образовательных организаций.

## ПОДГОТОВКА ПОЛЬЗОВАТЕЛЬСКИХ ОБРАЗЦОВ ДЛЯ УМС-АНАЛИЗА

Пользовательские образцы проходят процедуру пробоподготовки (графитизации), выполняемую химиками НГУ и ИАЭТ СО РАН [12]. Для этого образцы очищаются и далее сжигаются в вакууме. Углерод из образованного  $\text{CO}_2$  каталитически осаждается на порошке железа. Далее полученный порошок углерод–железо запрессовывается в пистон для установки в барабан ИИ в качестве катодов. Пistoны используются двух типов, с внутренним диаметром 2 мм для измерения образцов с углеродным весом примерно 5 мг и внутренним диаметром 1 мм для измерения образцов, содержащих 1 мг и менее.

Процедура подготовки ИИ и находящихся в нем образцов к началу УМС-анализа необходима для стабильной работы комплекса. После установки образцов в барабан и ампул с цезием в цезиевую печь рабочий вакуум достигается примерно за 30 мин. Однако требуется обезгаживание компонентов ИИ посредством нагрева ионизатора и цезиевой печи (с нераздавленными ампулами цезия) до температур, примерно на 10% превышающих рабочий режим. Данный процесс занимает примерно 1,5 ч. Следует отметить, что хотя ампулы с цезием не разрушаются при нагреве печи, тем не менее при нагреве ионизатора на короткое время формируется цезиевый пучок из-за остатков цезия на внутренней поверхности ИИ. Во избежание преждевременного и неконтролируемого распыления цезиевый пучок не должен направляться на пользовательские образцы. После обезгаживания производится раздавливание ампул цезия и формирование рабочего пучка цезия для распыления образцов с образованием ионов из исследуемых образцов. Далее производится медленное вращение барабана с образцами под пучком цезия. Типичная зависимость углеродного тока с образцов от времени при вращении барабана с образцами приведена на рис. 1. Из рис. 1 видно,

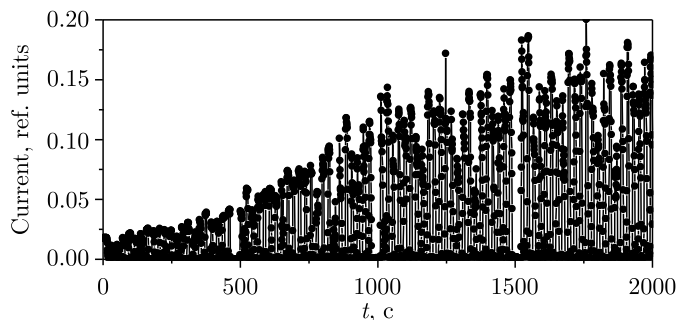


Рис. 1. Нарастание углеродного тока с образцов при первичном распылении пучком цезия

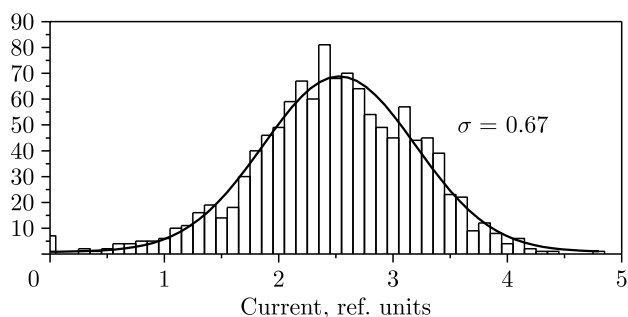


Рис. 2. Распределение по интегралу углеродного тока с образцов

что ток с образцов постепенно нарастает, что во многом определяется накоплением цезия на поверхности образцов, необходимого для эффективного образования отрицательных ионов углерода. После того как токи с образцов выходят в насыщение, в дальнейшем отсутствуют быстрые изменения углеродных токов под пучком цезия, что важно при УМС-анализе, основанном на поочередном измерении изотопов углерода. Кроме того, важность обработки образцов цезиевым пучком до начала измерения определяется необходимостью очистки поверхности образцов от возможных загрязнений «сторонним» углеродом.

Из-за неидентичности состава образцов ток углерода с образцов несколько отличается для разных образцов. Также токи для разных образцов медленно и несинхронно изменяются за время УМС-анализа. На рис. 2 приводится распределение по интегралам углеродного тока с пользовательских образцов, измеренных за последний год. Из рис. 2 видно, что распределение по токам хорошо аппроксимируется кривой Гаусса с шириной на полувысоте, примерно равной половине среднего тока.

## УМС-АНАЛИЗ ПОЛЬЗОВАТЕЛЬСКИХ ОБРАЗЦОВ

При УМС-анализе образцов производится измерение концентрации радиоуглерода в образцах, определяемое отношением количества посчитанных ионов радиоуглерода к интегральному току стабильного изотопа углерода. Для всех образцов на каждом обороте барабана ИИ реализуются по четыре переключения между изотопами, каждый раз за 10 с регистрируются ионы радиоуглерода и по два раза измеряется ток стабильного изотопа. Далее аналогичным образом производится измерение образцов на следующем обороте барабана и т. д. Для средних токов углерода с образцов статистическая точность регистрации радиоуглерода достигает 1% за время измерения примерно 5 ч, что соответствует 20 оборотам барабана с образцами. На рис. 3 приводится типичный результат измерения концентрации радиоуглерода в образцах. Величина 100 рМС соответствует естественной концентрации радиоуглерода в биосфере (в растениях, в животных и т. д.) и находится на уровне  $10^{-12}$  в сравнении с основным изотопом углерода. С целью увеличения достоверности УМС-анализа для каждого объекта пользователя независимым образом изготавливается и анализируется по два образца. Такие дубли образцов обведены овалами на рис. 3. При статистическом совпадении результатов анализа пар образцов считается, что концентрация

радиоуглерода в пробоподготовленных образцах достоверно отражает концентрацию радиоуглерода в исходных археологических объектах. Степень загрязнения пробоподготовленных образцов оценивается по содержанию углерода в графите, прошедшем процедуру сжигания и графитизации (в графите до данной процедуры содержание радиоуглерода незначительно). На рис. 3 такие образцы расположены в 22-й и 23-й позициях барабана. Обычно величина загрязнения (концентрация радиоуглерода) составляет примерно 1 рМС, что соответствует радиоуглеродному возрасту примерно 40 000 лет. Однако иногда величина загрязнения в графитах, прошедших процедуру пробоподготовки и графитизации, может достигать 10 рМС. В таких случаях считается, что концентрация радиоуглерода во всей партии, загруженной в барабан ИИ,

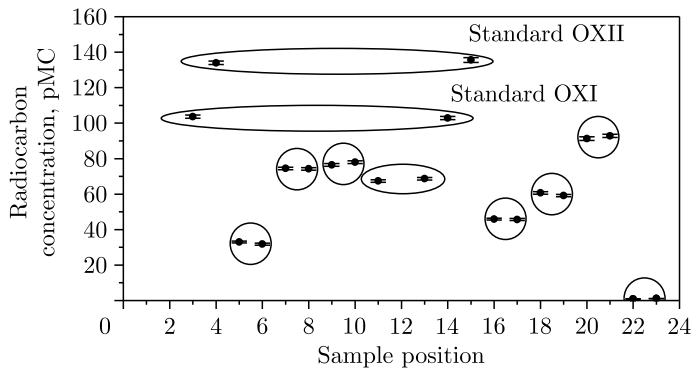


Рис. 3. Пример результата УМС-анализа барабана ИИ с 20 образцами

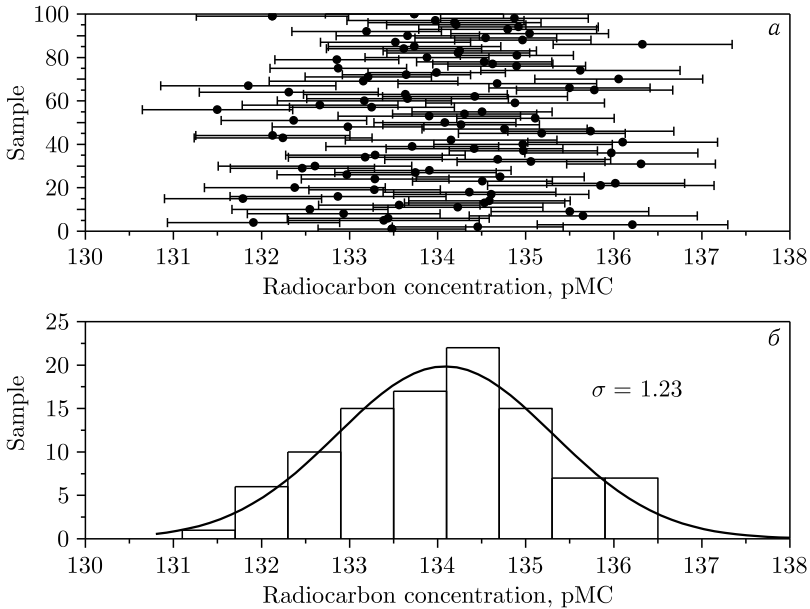


Рис. 4. Концентрация радиоуглерода в каждом из пробоподготовленных образцов стандарта OXII (а) и распределение по концентрации для данных образцов (б)

не отображает концентрацию радиоуглерода в исходных объектах. После прочистки оборудования пробоподготовки и графитизации формируются новые образцы, процесс анализа образцов возобновляется. Образцы OXI (SRM 4990 B) и OXII (SRM 4990 C) являются коммерчески доступными стандартами с известной концентрацией радиоуглерода. Нормирование на стандарты позволяет определять абсолютную концентрацию радиоуглерода в образцах и, соответственно, вычислять радиоуглеродный возраст пользовательских объектов.

На рис. 4, *a* приводятся значения концентрации радиоуглерода в 100 образцах стандарта OXII после пробоподготовки и графитизации. Данные образцы измерялись по два в 50 барабанах с пользовательскими образцами. Из рис. 4, *a* видно, что статистическая ошибка каждого измерения примерно равна 1 рМС. На рис. 4, *б* приводится распределение по концентрации радиоуглерода в образцах из рис. 4, *a*. Данное распределение хорошо аппроксимируется кривой Гаусса с  $\sigma = 1,23$  рМС.

На рис. 5 представлено распределение по концентрации радиоуглерода для пользовательских образцов, измеренных за последний год. В основном это кости, уголь, донные отложения и т. д. Из рис. 5 видны пики в области 100 рМС, что соответствует современным образцам, и 0 рМС, что соответствует древним образцам. В распределении наблюдается пик в области 65 рМС, что соответствует образцам с радиоуглеродным возрастом 3,5 тыс. лет.

В качестве наглядного примера радиоуглеродного анализа пользовательских образцов на рис. 6 приводится радиоуглеродный возраст донных отложений оз. Байкал

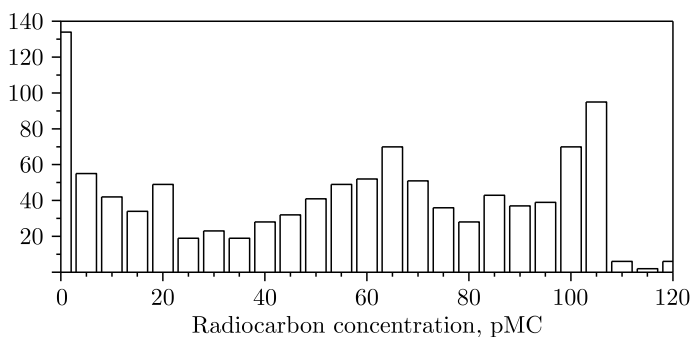


Рис. 5. Распределение по концентрации радиоуглерода в измеренных образцах пользователей УМС ИЯФ

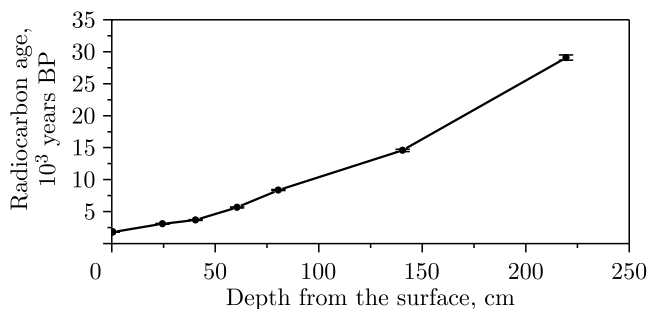


Рис. 6. Зависимость возраста донных отложений оз. Байкал от глубины залегания

в зависимости от глубины залегания от поверхности дна. Видно, что чем глубже залегание, тем больше возраст донных отложений.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

УМС ИЯФ демонстрирует стабильную работу, надежное выделение и поштучный подсчет ионов радиоуглерода в образцах. За последний год проведен УМС-анализ примерно 1000 пользовательских образцов. Наблюдаемое загрязнение образцов при пробоподготовке находится на уровне 1 рМС. Статистическая ошибка измерения современных образцов составляет примерно 1%.

**Благодарности.** Работа выполнена с использованием УНУ «УМС ИЯФ СО РАН» и частично поддержана в рамках Комплексной программы фундаментальных исследований СО РАН «Междисциплинарные интеграционные исследования на 2018–2020 г.».

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Parkhomchuk V. V., Rastigeev S. A.* // *Techn. Phys.* 2009. V. 54, No. 10. P. 1529–1533; doi: 10.1134/S1063784209100181.
2. *Parkhomchuk V. V., Rastigeev S. A.* // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2012. V. 9, No. 4–5. P. 406–409; doi: 10.1134/S1547477112040279.
3. *Parkhomchuk V. V., Rastigeev S. A.* // *J. Surface Investigation.* 2011. V. 5, No. 6. P. 1068–1072; doi: 10.1134/S1027451011110140.
4. *Alinovsky N. I., Goncharov A. D., Klyuev V. F., Konstantinov S. G., Konstantinov E. S., Kryuchkov A. M., Parkhomchuk V. V., Petrichenkov M. V., Rastigeev S. A., Reva V. B.* // *Techn. Phys.* 2009. V. 54, No. 9. P. 1350–1354; doi: 10.1134/S1063784209090151.
5. *Rastigeev S. A., Frolov A. R., Goncharov A. D., Klyuev V. F., Konstantinov E. S., Kutnyakova L. A., Parkhomchuk V. V., Petrozhitskii A. V.* // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2014. V. 11, No. 5. P. 642–646; doi: 10.1134/S1547477114050240.
6. *Rastigeev S. A., Parkhomchuk V. V., Klyuev V. F.* // *Instrum. Exp. Techn.* 2018. V. 61, No. 1. P. 79–84; doi: 10.1134/S0020441218010098.
7. *Klyuev V. F., Parkhomchuk V. V., Rastigeev S. A.* // *Instrum. Exp. Techn.* 2009. V. 52, No. 2. P. 245–248; doi: 10.1134/S0020441209020225.
8. *Alinovskii N. I., Konstantinov E. S., Parkhomchuk V. V., Petrozhitskii A. V., Rastigeev S. A., Reva V. B.* // *Instrum. Exp. Techn.* 2009. V. 52, No. 2. P. 234–237; doi: 10.1134/S0020441209020195.
9. *Parkhomchuk V. V., Petrozhitskii A. V., Rastigeev S. A.* // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2012. V. 9, No. 4–5. P. 448–451; doi: 10.1134/S1547477112040267.
10. *Rastigeev S. A., Goncharov A. D., Klyuev V. F., Konstantinov E. S., Kutnyakova L. A., Parkhomchuk V. V., Petrozhitskii A. V., Frolov A. R.* // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2016. V. 13, No. 7. P. 923–926; doi: 10.1134/S1547477116070438.
11. *Rastigeev S. A., Goncharov A. D., Klyuev V. F., Konstantinov E. S., Kutnyakova L. A., Parkhomchuk V. V., Petrozhitskii A. V., Frolov A. R.* // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2018. V. 15, No. 7. P. 986–989; doi: 10.1134/S1547477118070609.
12. *Sashkina K. A., Okunev A. G., Parkhomchuk E. V., Rastigeev S. A., Parkhomchuk V. V., Kuleshov D. V., Vorobyeva E. E., Dralyuk R. I.* // *Intern. J. Mass Spectrometry.* 2018. V. 433. P. 11–18; doi: 10.1016/j.ijms.2018.08.003.