

# 1

## Spectroscopia de masă cu acceleratorul (AMS)

### 1.1 Introducere

În spectroscopia de masă convențională (CMS) atomii sunt ionizați în starea  $1^+$  într-o sursă de ioni, extrași cu ajutorul unui câmp electric, apoi accelerați la tensiuni de ordinul sutelor de kV și în final analizați într-o combinație de câmpuri electrice și magnetice care formează un sistem dispersiv în energie, impuls sau viteză. [1]. Metoda CMS este folosită pentru măsurarea concentrațiilor mici de izotopi stabili și radioactivi în probe, indiferent de formele lor de agregare.

Pentru izotopii radioactivi este utilizată în mod curent și metoda determinării concentrației prin numărarea directă a actelor de dezintegrare.

Aceste metode au fost aplicate în anii '70 în scopul detectării izotopului  $^{14}\text{C}$ . După un deceniu de aplicare, s-a dovedit că ambele prezentau limitări principiale legate de parametrul sensibilitate (concentrația minimă detectabilă) și de timpul de măsurare necesar obținerii unei acurateți rezonabile.

În prezent, așa cum au demonstrat cercetările referitoare la elementele supragrele [38], este posibilă chiar și observarea dezintegrării *unui singur nucleu*. Așadar, principial, nu mai există o limitare a sensibilității metodei de determinare a prezenței ra-

alcătuită din izotopi stabili. Pe măsură ce crește timpul de înjumătățire al izotopului de interes, crește și timpul de măsură necesar pentru obținerea unei statistici bune (la limită, în cazul nucleelor stabile, acest timp tinde la infinit!). Cel mai important exemplu în acest sens, îl reprezintă studiul izotopului  $^{14}\text{C}$ , produs în atmosferă în urma interacției dintre neutronii generați de radiația cosmică și  $^{14}\text{N}$  atmosferic. Izotopul  $^{14}\text{C}$  are timpul de înjumătățire  $5730 \pm 40$  ani și este asimilat în structurile biologice, asemenea izotopului  $^{12}\text{C}$ . O probă tipică de carbon organic din era prenucleară (înaintea anului 1945) cu masa de 1g are un raport  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} = 1.2 \times 10^{-12}$  și conține  $6 \times 10^6$  atomi de  $^{14}\text{C}$  care se dezintegrează cu o rată de aproximativ 14/minut. Presupunând ca acest gram este convertit în gaz (bioxid de carbon, metan sau acetilenă) folosit într-un contor proportional (a cărui eficacitate este considerată 100%), sunt necesare 12 ore pentru acumularea a 10000 de evenimente. În aceste condiții, pentru un laborator care folosește dezintegrarea radioactivă pentru măsurarea urmelor de  $^{14}\text{C}$  (fără o îmbogățire izotopică prealabilă) vârsta maximă care poate fi determinată pentru probe de câteva grame este de 50000 ani. Reducerea masei necesare pentru probe și extinderea intervalului de vârste accesibile se poate face prin folosirea tehnicii CMS.

Detectarea izotopilor stabili sau de viață lungă, în concentrații mai mici de 1 parte în  $10^{12}$ , prin spectroscopia de masă convențională, este limitată principal din următoarele cauze:

- *Interferența izobarică.* În practică trebuie să separăm izobari de tipul  $^{40}\text{Ca}$ - $^{40}\text{Ar}$  sau  $^{14}\text{C}$ - $^{14}\text{N}$  ale căror mase diferă cu aproximativ 1 parte în  $10^5$ . Pentru asemenea cazuri sunt necesare spectrometre de masă cu rezoluția în masă  $M/\Delta M > 10^5$ , ceea ce reduce drastic eficacitatea lor.
- *Interferența moleculară.* Detectia este complicată de prezența unor specii de molecule cu mase foarte apropiate. De exemplu, diferența de mase  $^{12}\text{CH}_2$ - $^{14}\text{C}$  sau  $^{13}\text{CH}$ - $^{14}\text{C}$  este mai mică de 1 parte în  $10^3$ , ceea ce conduce la apariția unui fond mare în domeniul energetic utilizat în spectroscopia de masă convențională.

diferite care pătrund în detector în urma împrăștiilor pe pereții spectrometrului sau pe gazul rezidual din camera de vid.

Creșterea sensibilității spectroscopiei de masă convenționale (CMS), s-a făcut pe baza următoarele idei principale:

1. Utilizarea acceleratoarelor pentru a se imprima ionilor energiei de ordinul MeV/UAM. La aceste energii, schimbul de sarcină face posibilă eliminarea completă a moleculelor contaminante cum sunt cele de masă 14:  ${}^7\text{Li}_2$ ,  ${}^{12}\text{CH}_2$ . Când din asemenea molecule sunt extrași câțiva electroni exteriori (proces foarte probabil la striparea unor ioni cu energii de MeV/UAM) acestea se fragmentează sub acțiunea forțelor coulombiene în componente de masă mai mică, care pot fi ușor discriminate. Trebuie totuși menționat faptul că multiionizarea introduce un alt set de ambiguități prin producerea mai multor stări de sarcină (care au în general o distribuție Gaussiană) și deci implicit a mai multor valori  $E/q$  și  $M/q$ .
2. După accelerare și selecția magnetică și/sau electrică, particulele pătrund într-un sistem de detecție tipic experimentelor de fizică nucleară, care permite măsurarea energiei, a pierderii de energie și a timpului de zbor. Astfel se pot folosi proprietăți care depind mai mult de sarcina nucleară decât de sarcina ionică. Combinând selecția magnetică și/sau electrică atât în partea de energie joasă, cât și de energie înaltă a acceleratorului, cu un sistem de detecție caracteristic fizicii nucleare, este posibilă determinarea lipsită de ambiguități a numărului de masa  $A$  și a numărului atomic  $Z$ .

Pe baza acestor două idei s-a pus la punct o metodă ultrasensibilă de spectroscopie de masă. Deoarece metoda implică utilizarea unui accelerator de particule ea a căpătat numele de Spectrometrie de Masa cu Acceleratorul (Accelerator Mass Spectrometry - AMS). Utilizarea acceleratoarelor de particule ca spectrometre de masă de mare sensibilitate a fost inițiată încă din 1938, când Alvarez și Cornog au utilizat un ciclotron pentru a identifica  ${}^3\text{He}$

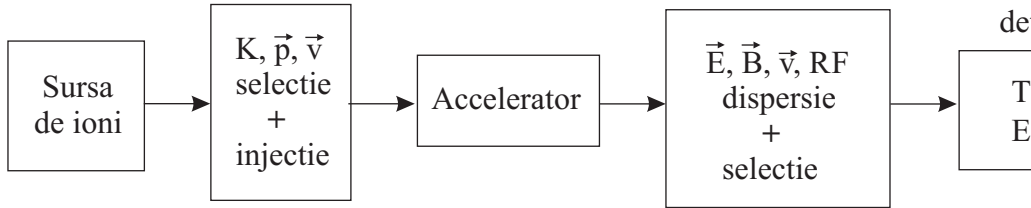


Figure 1.1: Structura generală a unei instalații de Spectrometrie de Masă cu Acceleratorul (AMS)

și tritiul. După aceasta dată metoda n-a mai fost folosită până în anul 1976 când acceleratoarele electrostatice și ciclotrotronele au fost propuse pentru a fi utilizate ca spectrometre de masă [39]. De atunci, acest domeniu este în continuă dezvoltare [12].

## 1.2 Schema dispozitivelor AMS

În continuare vom limita discuția la instalațiile AMS construite în jurul acceleratoarelor electrostatice Van de Graaf de tip Tandem [12]. Această alegere este justificată de faptul că marea majoritate a instalațiilor folosite în lume sunt de acest tip, ele având sensibilitati superioare oricărui alt tip de spectrometru AMS. Structura generală a unui spectrometru de tip AMS este prezentată în Figura ??.

### Acceleratorul (AMS)

Proba de studiu este introdusă în sursa de ioni a unui accelerator. Ionii negativi având sarcina electrică  $1^-$ , produși în ansamblul sursă + canal de adiționare sunt extrași cu tensiuni de ordinul a 100 kV. Prima analiză după masă se face imediat după extracție cu ajutorul magnetului inflector [12]. Urmează apoi focalizarea și injectia ionilor negativi în acceleratorul propriuzis, focalizarea fiind făcută pe canalul de stripare din electrodul central, electrod aflat la tensiuni de ordinul megavolților sau zecilor de megavolți. Ajungând în electrodul central cu energii de

troni exteriori prin interacția cu folii subțiri de carbon (grosimi de ordinul a  $10\mu\text{ g/cm}^2$ ) sau cu grosimi efective echivalente de gaz. În urma stripării din terminalul de înaltă tensiune, fiecare ion de masă  $M$  capătă o distribuție gaussiană a stărilor de sarcină, ionul cu starea de sarcină  $q$  fiind accelerat la energia  $Uq$  în secțiunea de energie înaltă. În total, energia câștigată de ion în cele două secțiuni ale acceleratorului TANDEM este  $(U + 1)q$  în care  $q$  este una din sarcinile electrice obținute prin striparea în electrodul central și  $U$  tensiunea înaltă pe terminalul central. După procesul de accelerare, în mod uzual urmează un ansamblu de lentile având scop de focalizare și unul sau mai multe elemente dispersive având scopul de a selecta o anumită specie ionică cu energia bine definită. Aproape întotdeauna aceste elemente dispersive includ un magnet dipolar analizor la  $90^\circ$  și un magnet dipolar comutator cu scopul selectării diverselor arii experimentale. Elementul final în linia de fascicul este detectorul de ioni grei. Acesta este un detector  $E - \Delta E$  cu gaz sau cu corp solid având ca scop identificarea *momentului* sosirii ionului, *energiei* sale, și a *pierderii de energie* într-un strat de substanță de grosime cunoscută, cu scop de identificare a particulei.

Unul dintre parametrii esențiali ai unui accelerator folosit ca spectrometru *AMS* este *transmisia* definită ca raportul între numărul de ioni care pătrund în unitatea de timp în accelerator și numărul de ioni care în aceeași unitate de timp părăsesc acceleratorul. Acest parametru este determinat pe de o parte de caracteristicile electrostatice ale tuburilor de accelerare iar pe de altă parte de optimizarea focalizării fasciculului pe canalul de stripare. Fasciculele folosite în *AMS* transportă câteva zeci de particule pe secundă fiind numite și fascicule microscopice. Ele au intensitate mult prea redusă pentru a putea fi detectate electric prin colectarea într-o cușcă Faraday și a intra într-o buclă de regla pentru ajustarea fascicolului. Din acest motiv se utilizează fasciculele pilot care sunt fascicule macroscopice provenite din aceeași sursă de ioni, având proprietăți optice asemănătoare cu fascicolul de interes. Spre exemplu  $^{13}\text{C}$  poate fi utilizat ca fascicul pilot în spectrometria de masă a izotopului  $^{14}\text{C}$ ,  $^{10}\text{B}$  fascicul pilot pentru  $^{10}\text{Be}$  iar  $^{36}\text{S}$  este utilizat ca fascicul pilot pentru spectrometria

## 1.3 Configurații dispersive

Câmpurile electrice și magnetice utilizate pentru analiza ionilor de mare energie furnizează numai informații legate de rapoartele  $K/q$  și  $M/q$ , unde  $K$ ,  $M$ , și  $q$  reprezintă energia cinetică, masa și respectiv sarcina ionului. Modul în care acționează cele mai utilizate elemente dispersive pentru selecția anumitor parametrii cinematici ai unui fascicul este următorul:

- **1. Selecția în câmp magnetic.** Un câmp magnetic dipolar face selecția după rigiditatea magnetică ( $B\rho$ ) obținută din relația

$$(B\rho)^2 = 2 \frac{M}{q} \frac{K}{q} \quad (1.1)$$

în care  $B$  este inducția câmpului magnetic,  $\rho$  raza traiectoriei de echilibru,  $M$  masa,  $K$  energia cinetică iar  $q$  sarcina ionică a particulei. Din relația de mai sus se observă faptul că pentru un fascicul de particule având toate aceeași sarcină ionică, dispersia paramerului rigiditate magnetică înseamnă de fapt dispersia în impuls.

- **2. Selecția în câmp electric.** Intr-un camp electrostatic dipolar parametrul cinematic dispersat este *rigiditatea electrică* a particulei ( $E\rho$ ) care se obține din relația

$$E\rho = 2 \frac{K}{q} \quad (1.2)$$

unde  $E$  este intensitatea câmpului electric,  $\rho$  raza de curbură a traiectoriei,  $K$  energia sa cinetică iar  $q$  sarcina ionică a particulei. După cum se poate observa din relația anterioară, dispersia în parametrul rigiditate electrică conduce la dispersia în parametrul energie cinetică pentru un fascicul de particule cu aceeași sarcină ionică.

ansamblu de câmpuri electrice și magnetice încrucișate (filtru Wien), parametrul dispersat fiind viteza, independent de sarcina ionică și masa particulelor.

$$v^2 = 2 \frac{K/q}{M/q} = \left( \frac{E}{B} \right)^2 \quad (1.3)$$

• **Selecția după frecvența rezonanței ciclotronice (f).**

$$1/f = \frac{2\pi}{B} \frac{M}{q}$$

unde  $B$  reprezintă intensitatea câmpului magnetic,  $\rho$  este raza traiectoriei ionului,  $f$  frecvența de rotație ciclotronică iar  $v$  este viteza ionului.

Efectul configurațiilor dispersive anterioare este arătat în Figura ?? unde raportul  $M/q$  este reprezentat în funcție de raportul  $K/q$ . În acest tip de reprezentare, se pot localiza zone, corespunzând diverselor constrângeri impuse particulelor care străbat sistemul dispersiv, prin acțiunea combinată a câmpurilor electrice ( $E$ ), magnetice ( $B$ ) și a câmpului de radiofrecvență a unui ciclotron și radiofrecvenței ciclotronice.

1. O bandă hiperbolică corespunzând unei valori fixate pentru variabila ( $MK/q^2$ ). Un asemenea loc geometric specifică toate combinațiile posibile ale variabilelor *masă*, *energie* și *sarcină electrică* pentru care particulele vor trece prin fantele sistemului dispersiv magnetic.
2. O bandă verticală corespunzând unor valori constante ale variabilei  $K/q$  definește particulele care trec prin fantele unui deflector electrostatic.
3. Particulele cu o anumită viteză sunt caracterizate de un loc geometric care este o dreaptă ce trece prin origine și are panta egală cu viteza  $v = \sqrt{2K/M}$ .

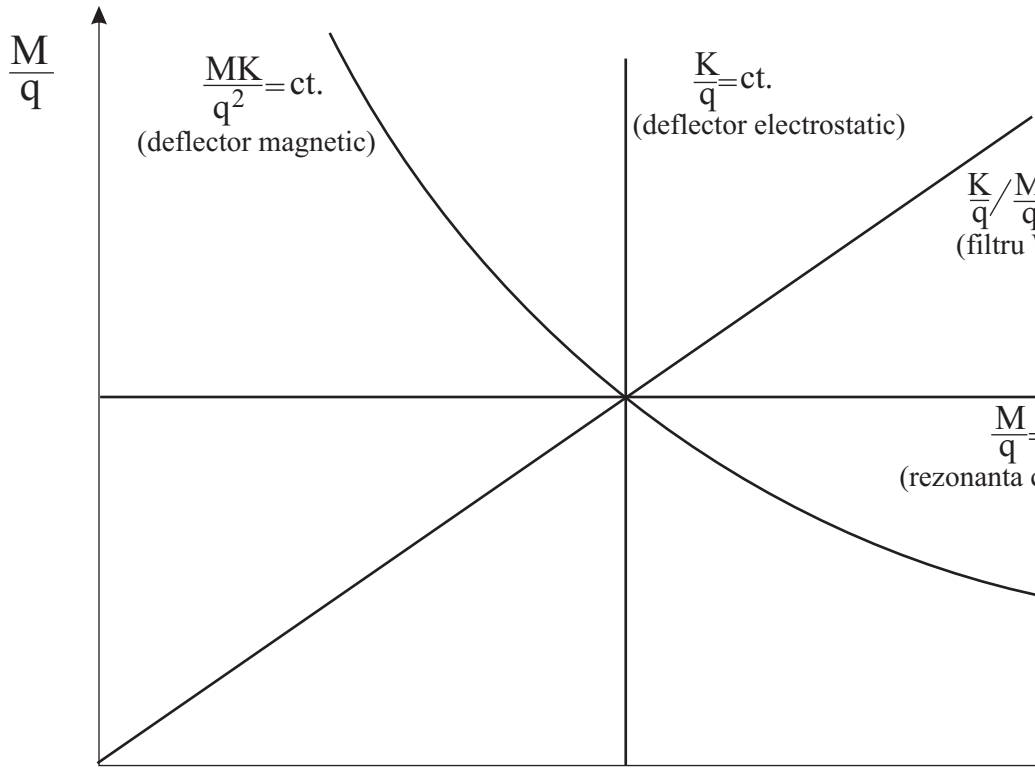


Figure 1.2: Efectul acțiunii dispersive a câmpurilor electrice, magnetice și radiofrecvenței ciclotronice.



de frecvență constantă pentru ca particulele să fie accelerate de către un ciclotron.

Aceste constrângeri cinematice sunt impuse în mod secvențial în traiectoria particulelor, intersecția locurilor geometrice corespunzătoare localizând un anumit punct în diagrama  $M/q-K/q$ , punct care reprezintă particulele care trec prin toate fantele din sistem și ajung în detector.

## 1.4 Surse de fond

În orice sistem AMS peste particulele de interes se suprapune un fond de evenimente care determină în ultimă instanță limitele de detecție. Se pot identifica două surse principale de fond:

(i). **Contaminarea**, care provine din ioni ai izotopului de interes dar care *nu provin* din materialul probei. Contaminarea apare în decursul preparării probelor când se pot include în probă cantități infime din izotopul de interes provenind însă din mediul exterior și alterând compoziția originală a probei. De asemenea, poate să apară o contaminare a sursei de ioni de la probele anterioare, mai ales atunci când elementul studiat are presiune de vapori ridicată iar regiunea de ionizare din sursă nu este suficient de bine vidată. Acest gen de contaminări au fost detectate în spectrometria de masă a izotopului  $^{36}\text{S}$ . Prin contaminare, se restricționează sensibilitatea metodei AMS la nivelul de  $10^{-14}$ .

(ii). **Fondul instrumental**, este datorat altor particule care intrând în detector, produc semnale similare celor produse de către particulele de interes. Aceste particule sunt specii moleculare care rezultă în urma proceselor de extracție și stripare. Spre exemplu, în detectarea  $^{14}\text{C}^-$ , un fond substanțial este produs de către moleculele  $^7\text{Li}^-$ ,  $^{13}\text{CH}^-$  și  $^{12}\text{CH}_2^-$ . Cea mai mare parte din aceste molecule sunt disociate în procesul de stripare și nu pot parcurge traseul selectiv mai departe. Ramâne însă o cantitate infimă care ajunge totuși în detector provocând un fond instrumental. Eliminarea acestui fond instrumental nu se poate face niciodată complet. Reducerea sa substanțială se poate face prin

colimarea repetată și prin construcția unui detector foarte selectiv care poate discrimina între diversele specii nucleare sau stări de ionizare.

## 1.5 AMS cu acceleratorul electrostatic Tandem

În prezent, majoritatea dispozitivelor AMS s-au dezvoltat în jurul acceleratoarelor electrostatice tandem decât în jurul ciclotroanelor, din următoarele motive:

- (i). Tot procesul de accelerare pornește cu ioni negativi.
- (ii). Disociază moleculele la energii de mai mulți MeV.

Un prim argument în favoarea ionilor negativi este faptul că produc un fond mult mai mic decât ionii pozitivi. Cauza acestei diferențe constă în faptul că împrăștierea ionilor negativi pe pereții camerelor vidate și pe gazul rezidual este cu ordine de mărime mai puțin probabilă decât în cazul ionilor pozitivi.

Al doilea argument în favoarea utilizării ionilor negativi este faptul că au o structură atomică simplă. Majoritatea ionilor negativi au o singură stare legată cu o energie de legătură care variază semnificativ de la un element la altul, ceea ce permite o mare putere de selecție la energiile joase la care funcționează majoritatea surselor de ioni.

### 1.5.1 Surse de ioni

Pentru a fi utilizate în metoda experimentală AMS, o sursă de ioni trebuie să producă un curent ridicat iar fascicolul extras să aibă emitanță redusă. În acest fel se asigură condițiile primare pentru a avea o statistică semnificativă la detecție simultan cu o transmisie ridicată prin linia de fascicul. De asemenea, sursa respectivă trebuie să fie operațională cu cantități mici din materialul ce urmează a fi analizat. Cele mai răspândite surse pentru spectrometria AMS la acceleratori de tip tandem sunt sursele *sputtering* (model General Ionex Model 844 Scanning Hiconex) [12]. Într-o astfel de sursă de ioni, se formează un fascicul de

focalizat pe suprafața probei de interes cu ajutorul unor lentile electrostatice. Prin bombardarea probei sunt smulși ionii pozitivi din suprafață (procesul de sputerare), ioni care sunt apoi extrași din sursă cu un potențial electrostatic, apoi sunt trecuți prin canalul de adăugare în care o parte din ei preiau o sarcină negativă de la gazul din jur. Cu astfel de surse se obțin curenți de ioni negativi cu intensități de zeci de mA. Dezvoltările recente în acest domeniu permit deplasarea controlată a fascicolului de Cs pe suprafața probei astfel încât se poate investiga în mod controlat dependența concentrației unui anumit izotop de coordonatele spațiale în volumul probei.

### 1.5.2 Prepararea probei

Spectrometria AMS reclamă dezvoltarea unor metode specifice de preparare prealabilă a probelor. Spre exemplu, detectarea izotopului  $^{14}\text{C}$  prin AMS necesită prepararea unor probe solide de materie primară, probe care să poată fi plasate în vidul înalt dintr-o sursă de ioni. În acest scop se convertește carbonul primar (rezultat prin ardere) în grafit prin încălzirea la  $2500^\circ$  sub presiune. Pentru prepararea probelor care conțin  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{129}\text{I}$ , și  $^{55}\text{Fe}$ , se utilizează proceduri chimice complexe [40].

### 1.5.3 Condiții impuse sistemului de accelerare

Condițiile impuse sistemului de accelerare pentru efectuarea experimentelor AMS sunt foarte restrictive în ceea ce privește transmisia și stabilitatea. Transmisia ionilor printr-un accelerator electrostatic de tip Tandem a fost definită ca raportul între numărul ionilor care în unitatea de timp părăsesc secțiunea de energie mare a tubului de accelerare și numărul celor care intră în secțiunea de joasă energie în aceeași unitate de timp. Această transmisie se poate schimba în timp datorită unor fluctuații mici în valorile câmpurilor definatorii ale opticii ionice sau schimbării de emitanță a fascicolului în urma stripării în canalul din electrodul central. Deși acceleratoarele existente au fost proiectate pentru a avea o transmisie apropiată de 100% prin canalul de stripare, este

colului din zona de energie joasă pe acest canal. Focalizarea și deplasarea laterală (steering) a fascicului sunt operațiuni care se efectuează în pași succesivi prin monitorarea intensității curentului la ieșirea din accelerator. Această procedură este evidentă pentru fasciculele cu intensități mai mari decât 1 nA. Pentru fasciculele AMS care sunt de ordinul a zeci sau sute de particule pe secundă, intensitățile curenților electrici sunt atât de mici încât nu mai pot fi măsurate iar înregistrarea în detector cu o semnificație statistică rezonabilă necesită timpi de achiziție de ordinul minutelor. Pentru această situație se folosesc fie fascicule "pilot" (spre exemplu  $^{36}\text{S}$  este un fascicul pilot pentru  $^{36}\text{Cl}$ ) fie acceleratoare dedicate unui singur tip de experiment AMS atunci când nu există alternativa unui fascicul pilot.

În mod uzual, cu fasciculele macroscopice, stabilitatea tensiunii înalte pe electrodul central se reglează printr-un circuit de feedback care are ca punct de măsură intensitatea fascicului pe fantele de ieșire ale magnetului analizor iar reglajul tensiunii înalte prin intermediul unui sistem corona. Pentru stabilizarea tensiunii înalte, în cazul fasciculelor microscopice se utilizează un Voltmetru Generator (GVM), instrument care este sensibil la valoarea câmpului electric la suprafața interioară a vasului de presiune. Acest GVM este cuplat în circuitul feedback în locul instrumentului care măsoară intensitatea fascicului pe fantele imagine ale magnetului analizor. Cu sistemul GVM se obțin tensiuni înalte cu stabilități de ordinul a 0.01%. Unele instabilități sunt generate de neomogenitățile constructive ale benzii transportoare de sarcină. Ele sunt micșorate în practică prin utilizarea sistemului Pelletron de transport de sarcină (Pelletronul este un lanț de izolatori). Eforturile tehnice de a crește stabilitatea tensiunii înalte peste o anumită limită nu se justifică, datorită faptului că în procesul de stripare a ionilor, fluctuațiile corespunzătoare în pierderea de energie datorată neomogenității foliilor sunt mai mari decât fluctuațiile în energie datorate instabilității tensiunii înalte. Spre exemplu, un fascicul de  $^{14}\text{C}$  cu energia de 2.5 MeV pierde aproximativ 25 keV într-o folie de carbon cu grosimea de  $3\mu\text{g}/\text{cm}^2$ . O neomogenitate de 10% în grosimea acestei folii va produce o variație în energia fascicului suficient de mare

rezoluție energetică ridicată (fantele obiect și imagine sunt foarte mici). Atunci când se folosește stabilizarea tensiunii înalte prin măsurarea curentului pe fantele imagine, are loc automat compensarea pierderii de energie în folia de stripare. Acest mod de stabilizare necesită utilizarea unui fascicul pilot, ceea ce nu este întotdeauna posibil. Din acest motiv, sistemele AMS utilizate la detecția izotopului  $^{14}\text{C}$  (pentru care nu există un fascicul pilot ideal) sunt sisteme "dedicate" având toți parametrii electrici bine controlați și stabiliți pe baza unor probe de referință care au fost impurificate în mod controlat.

## 1.6 Aplicații ale metodei AMS

### 1.6.1 Producerea și utilizarea nucleelor cosmogenice

Izotopii cosmogenici sunt nuclee formate în reacții nucleare induse direct sau indirect, de radiațiile cosmice. Majoritatea nucleelor cosmogenice sunt formate în atmosferă (70%), iar restul în troposferă (30%). Singurii izotopi de viață lungă care se pot forma din componentele de bază ale atmosferei, azotul și oxigenul sunt  $^{14}\text{C}$  și  $^{10}\text{B}$ .

Deși atmosfera reprezintă un scut pentru radiațiile cosmice, nuclee cosmogenice se pot forma cu probabilitate mai mică și la suprafața pământului.

Aplicațiile izotopilor cosmogenici se leagă de studiul atmosferei și litosferei, de datarea radioactivă și de controlul modului în care radioactivitatea artificială produsă de om se distribuie în ecosistemele terestre.

Rata de producere a izotopilor cosmogenici la suprafața pământului variază în funcție de parametrii cum sunt intensitatea radiațiilor cosmice primare, variațiile activității solare și geomagnetice, etc. În ipoteza că sursă acestor variații poate fi identificată, depunerile de izotopi cosmogenici în rezervoarele geologice reprezintă potențiali furnizori de informații despre valorile acestor parametrii în trecut.

Noțiunea de radiație cosmică primară se referă la fluxul de par-

flux este alcătuit din protoni ( $\approx 90\%$ ), particule alfa ( $\approx 1\%$ ) și alți nuclizi mai grei ( $\approx 9\%$ ) care ajung în sistemul solar din spațiul interstelar. Originea acestor particule nu este încă complet cunoscută, dar majoritatea teoriilor le asociază resturilor de supernove. O parte din aceste teorii consideră că fluxul de radiații cosmice care pătrunde în sistemul solar ar trebui să varieze în timp, ceea ce ar fi posibil de detectat prin măsurarea concentrației izotopilor cosmogenici în diverse epoci geologice.

Spectrometria de Masă cu Acceleratorul extinde cu multe ordine de mărime sensibilitatea metodelor de datare radioactivă prezentate în Capitolul 12. Sunt două cerințe esențiale pentru utilizarea izotopilor cosmogenici în tehnicile de datare:

- (i). Cunoașterea concentrației inițiale a izotopilor radioactivi.
- (ii). Sistemul să rămână închis pentru intrarea sau ieșirea de specii radioactive.

Pot fi imaginate trei moduri de datare prin utilizarea de radioizotopi cosmogenici.

1. Cel mai simplu mod se bazează pe compararea concentrațiilor aceluiași izotop în probe diferite. Această metodă nu permite decât o estimare relativă (permite distingerea între materiale mai vechi și mai noi).
2. A doua procedură se bazează pe măsurarea concentrației nuclidului radioactiv în funcție de concentrația izotopului său stabil, presupunând că ambii izotopi au o distribuție omogenă în mediul respectiv. Cât de adevărată este această presupunere depinde foarte mult de tipul izotopului și de natura proceselor fizico-chimice din mediul din care provine proba măsurată.
3. A treia metodă de datare folosește o pereche de izotopi cosmogenici. Ea minimizează efectele variațiilor în rata lor de producere, deoarece este foarte probabil ca ambii izotopi să fi fost afectați în mod identic de aceste variații. Spre exemplu, a fost sugerată utilizarea izotopilor  $^{26}\text{Al}$  și  $^{10}\text{Be}$  pentru datare în mediu marin datorită proceselor chimice similare suferite de cei doi nuclizi [40]. Perechea ideală ar

portului până la rezervorul marin. Se crede că acesta este cazul calotei polare pentru care se poate utiliza perechea  $^{32}\text{Si}/^{10}\text{Be}$  pentru datări corespunzătoare ultimelor secole, și perechea  $^{36}\text{Si}/^{10}\text{Be}$  pentru gheața mai veche de 50000 ani. Perioada intermediară poate fi datată pe baza nuclidului  $^{14}\text{C}$  existent în bulele de gaz din gheață.

O metoda diferită de datare care nu se bazează pe dezintegrarea nucleelor ci pe acumularea ( build-up) care apare la producerea in situ la suprafața Pământului. Aceasta metodă nu a fost aplicată pe scară largă până în prezent, deoarece rata de producere este în general destul mică. Sensibilitatea de măsură oferită de metoda AMS face posibilă pentru prima dată aplicarea acestei tehnici. Ideea este similară celei folosite în studiul meteoriților. Timpul care este datat este cel trecut de la momentul când obiectul respectiv a fost expus fluxului radiațiilor cosmice de la suprafața Pământului.

### 1.6.2 Spectrometria AMS a izotopului $^{55}\text{Fe}$ cu aplicații în medicină

Fierul este un element chimic legat în multe molecule din sistemele biologice. Prezent în cantități extrem de reduse, acest izotop poate fi pus în evidență prin marcarea compușilor administrați biosistemului cu izotopul radioactiv  $^{59}\text{Fe}$ , izotop caracterizat prin perioada de înjumătățire  $T_{1/2}=44.5$  zile. Acest mod de marcarea a fierului introduce prin valoarea perioadei sale de înjumătățire o limitare a duratei proceselor investigate la câteva luni. Depășirea acestei limitări se poate face prin utilizarea izotopului  $^{55}\text{Fe}$  ca element de marcarea în locul izotopului  $^{59}\text{Fe}$ .  $^{55}\text{Fe}$  se dezintegrează prin captură electronică și singura radiație măsurabilă emisă este radiația X cu energia de 59 keV. Perioada sa de înjumătățire este de 2.7 ani. Detecția ei este puternic limitată de auto-absorbție necesitând spectrometre speciale cu ferestre subțiri la intrare. Această limitare poate fi depășită prin utilizarea tehnicii AMS.  $^{55}\text{Fe}$  are un singur izobar stabil,  $^{55}\text{Mn}$  care însă formează mult mai greu ioni negativi, fiind astfel puternic inhibat în spectrometrele

izotopului  $^{55}\text{Fe}$  este faptul că nu provoacă iradierii interne ale sistemului biologic. În mod curent, metoda AMS cu izotopul  $^{55}\text{Fe}$  este utilizată în următoarele aplicații:

**Medicină**- studiul absorbției fierului și corelația sa cu bolile sistemului sanguin prin monitorarea transferului de fier între sânge și măduva osoasă.

**Biologie**- studiului transferului de substanțe între plante și sol cu efect direct asupra procesului de creștere.

### 1.6.3 Detecția impurităților în materiale electronice și metale

În multe aplicații industriale este nevoie să se utilizeze materiale ultrapure în care concentrația impurităților să poată fi situată la nivele mai mici de  $10^{-10}$ . Un exemplu binecunoscut sunt materialele semiconductoare a căror proprietăți electrice sunt influențate drastic de prezența impurităților în cantități infime.

O instalație spectrometrică AMS adaptată pentru detecția impurităților în materialele semiconductoare și metale trebuie să aibă următoarele caracteristici constructive [40]:

- sensibilitate pentru detecția impurităților la nivelul de 1 în  $10^{10}$  atomi ai probei;
- capacitate de a înlătura complet interferențele molecule;
- contaminarea foarte redusă a sursei de ioni;
- capacitatea de a monitora distribuția în adâncime a impurităților prin controlul proceselor de sputerare în sursă;
- posibilitatea controlului prin scanning lateral pe probă a distribuției impurităților de-a lungul suprafeței.



# Bibliography

- [1] I.M. Popescu, *Fizică, vol. I (1982), vol. II (1983)*, Editura Didactică și Pedagogică - București
- [2] A.H. Wapstra, G. Audi and R. Hoekstra, *Atomic and Nuclear Data Tables 39 (1988)* 1988
- [3] K. Heyde, *Basic Ideas and Concepts in Nuclear Physics*, Institute of Physics Publishing, London (1994)
- [4] W. Greiner, J.A. Maruhn, *Nuclear Models*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1996
- [5] G. Vlăducă, *Elemente de Fizică Nucleară*, partea I (1988), partea a II-a (1990), Tipografia Universității București
- [6] J. Kantele, *Handbook of Nuclear Spectrometry*, Academic Press Limited 1995
- [7] E. Segree, *Nuclei and Particles*, W.A. Benjamin, Inc., Reading, Massachusetts 1977
- [8] C.M. Lederer, V.S. Shirley (eds), *Table of Isotopes*, John Wiley & Sons, New York 1987
- [9] A. Messiah, *Mecanică Cuantică*, Editura Științifică, București 1974
- [10] G. Deconninck, *Introduction to Radioanalytical Physics*, Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam 1978
- [11] A. Berinde, G. Vlăducă, *Reacții Nucleare Neutronice în Reactor*, Editura Tehnică, București 1978

- ciples*, Romanian Reports in Physics, vol.46, no.4, p.259-281 (1994)
- [13] S. Râpeanu, I. Pădureanu, I. Cristian, V. Cuculeanu, Gh. Rotărescu, M. Avrigeanu, *Tehnici și Măsuări la Reactorii Nucleari*, Editura Academiei, București 1983
- [14] G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley & Sons Inc., New York 1989
- [15] R.D. Evans, *The Atomic Nucleus*, Krieger, New York 1982
- [16] P. Marmier, E. Sheldon, *Physics of Nuclei and Particles*, Academic Press Inc. New York and London, 1971
- [17] J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics, 2nd Ed.*, John Wiley & Sons, New York 1975
- [18] W.R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg 1987, 1994
- [19] N. Tsoufanidis, *Measurement and Detection of Radiation*, Taylor & Francis, 1984
- [20] H.A. Bethe, J. Ashkin, *Passage of Radiations through Matter*, in *Experimental Nuclear Physics*, Vol.1, ed. by E.Segree, John Wiley & Sons, New York, N.Y. 1953
- [21] S.P. Ahlen, Rev. Mod. Phys. 52, 121 (1980)
- [22] F. Fano, *Penetration of Protons, Alpha Particles and Mesons*, Annual Review of Nuclear Science, v.13, p.1-66 (1963)
- [23] E.M. Abramovitz, I. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions*, Dover Publ. Inc. New York (1965)
- [24] L.C. Northcliffe and R.F. Schiling, Nuclear Data Tables A7,233(1970)

- tons and mesons: *Tabulations of Vavilov Distribution*", in National Academy of Sciences Publication 1133, Nuclear Science Series Report No.39 (1964)
- [26] W. Heitler, *The Quantum Theory of Radiation*, 3rd ed., Oxford Univ. Press (Clarendon), London and New York 1954
- [27] J.F. Ziegler and W.K. Chu, "*Stopping Cross Sections and Backscattering Factors for  $^4\text{He}$  Ions in Matter*", Atomic Data and Nuclear Data Tables v.13, p.463 (1974)
- [28] P.A.M. Dirac, Proc. Royal Soc. v.126,p.361 (1930)
- [29] A.T. Steward, L.O. Roelling, *Positron Annihilation*, Academic Press, New York (1967)
- [30] P. Hantojarvi, A. Vehanen, *Applications of positron annihilation*, AIEA Conference (1978)
- [31] G.L. Brownell, C.A. Burnham, in *Instrumentation in Nuclear Medicine*, Vol.2, p.135, Academic Press, New York (1974)
- [32] M. Alonso, E. Finn, *Physics*, Addison - Wesley Publishing Company, 1992
- [33] A. Septier (ed.) *Focusing of Charged Particles*, Academic Press, New York 1967
- [34] E. Rodean, *Aparate și metode de măsură, analiză și control cu radiații*, Editura Academiei, București, 1986
- [35] E. Ligeon, M. Bruel, A.Bonetemps, "*Analyse du Phosphore dans le Silicium par Reactions Nucleaires*", Journal of Radioanalytical Chemistry v.16,p.537 (1973)
- [36] J. H. Fremlin, *Applications of Nuclear Physics*, The English Universities Press Limited, London (1964)
- [37] P. Theodorsson, *Measurement of Weak radioactivity*, World Scientific Co.,1996

John Wiley & Sons, New York, 1990

- [39] R. Muller, *Science*, v.196, p.489 (1977)
- [40] M. Ivascu et al. *Accelerator Mass Spectrometry - Applications*  
Romanian Reports in Physics, vol.46, no.4, p.283 (1994)
- [41] R.P. Gardner, R.L. Ely, *Radioisotope Measurement - Applications in Engineering*, Reinhold Publishing Co. New York 1967