

РОЗРОБКА ПІДХОДУ ДО АЛЬФА-СПЕКТРОМЕТРІЇ З ВИКОРИСТАННЯМ ТВЕРДОТІЛЬНИХ ТРЕКОВИХ ДЕТЕКТОРІВ

С.Юрченко, Ю.Оніщук, С.Горбачов

Київський національний університет імені Тараса Шевченка,
вул. Володимирська 64, Київ 01033
e-mail: yurchenko@univ.kiev.ua

Розглянуто підхід до спектрометрії α -частинок з використанням твердотільних трекових детекторів (ТТД) типу CR-39 в енергетичному діапазоні 4–6 МеВ. Описано етапи отримання експериментальної інформації від опромінення ТТД до його травлення з подальшим аналізом окремих треків. Для автоматичної прецизійної обробки зображень розроблено спеціальний алгоритм та створено відповідне програмне забезпечення. Представлено результати вимірювань для зразків, що містять ізотопи плутонію. Проаналізовано можливу енергетичну роздільну здатність методики. Обговорюється можливість наближення цих експериментальних результатів до фізичної межі підходу (страгглінгу пробігу).

Вступ

Твердотільні трекові детектори (ТТД) мають суттєві переваги перед багатьма ядерними детекторами активного типу (такими, що використовують електронне обладнання): точне визначення координат частинок, що реєструються, можливість селекції за типом заряджених частинок, абсолютна нечутливість до супутнього γ -випромінювання, малий власний фон, можливість проведення довготривалих вимірів, відсутність необхідності використання електроніки під час експонування дослідних зразків. Такі детектори дешеві, легкі (кілька грамів), мають довготривалу стабільність, негігроскопічні та належать до типу пристроїв пасивного нагромадження. До недоліків потрібно віднести складність оптичної обробки зображень на поверхні ТТД.

В останні роки спостерігається значний прогрес у технології збирання інформації від ТТД з використанням оптичних автоматизованих комплексів, які включають оптичний мікроскоп, скануючу платформу, відеокамеру і комп'ютер [1, 2]. При ручній обробці дуже важко ви-

значати характеристики тисяч, іноді й десятків тисяч треків ядерних частинок. Тому для автоматизованої обробки інформації з ТТД необхідним є використання зображень структури поверхні протравлених детекторів, оцифрованих із мікроскопа. Зображення треків, отримані при скануванні мікроскопом, з відеокамери оцифровуються і пересилаються до комп'ютера. Подальший комп'ютерний аналіз дозволяє визначити параметри зображень кожного треку. Така комп'ютеризація створює передумови для якісно нових застосувань ТТД [3].

При довгочасних вимірюваннях ТТД може розглядатися як детектор "паралельного" типу – реєстрація (фіксація) подій радіоактивного розпаду відокремлена від їхнього подальшого аналізу. При пакетній обробці декількох десятків детекторів типовий час обробки одного детектора становить 60–120 хвилин, тоді як час експонування може становити декілька місяців. Ця особливість дозволяє організовувати довгочасні вимірювання одночасно для десятків-сотень детекторів з використанням лише однієї системи обробки детекторів.

Використання ТТД для реєстрації α -частинок дає можливість визначення їхньої енергії та пробігу за допомогою аналізу форми окремих протравлених треків. Незважаючи на значний доробок у цьому напрямку, досі залишаються відкритими питання про коректну оцінку флюенсу випромінювання, енергетичну роздільну здатність методу і вплив на неї систем збору та обробки інформації. У даній роботі представлено результати таких досліджень, що ґрунтувалися на розробці спеціальної методики обробки зображень.

Опис підходу до спектрометрії з використанням ТТД

Хімічне травлення – найбільш розповсюджений метод “фіксації” і подальшого збільшення зон первинних дефектів в ТТД. Таке травлення здійснюється шляхом більш швидкого розчинення (руйнування) речовини детектора в пошкоджених ділянках відносно інших областей.

Лінійна швидкість хімічної реакції вздовж зони первинних дефектів у детекторі визначається як швидкість травлення треку V_t . Травлення оточуючої непошкодженої речовини – як швидкість травлення поверхні V_b . Швидкість травлення поверхні є величиною постійною для даної речовини і даного розчину, який застосовується для травлення в заданих умовах. Швидкість травлення треку змінюється. Вона залежить від рівня радіаційного пошкодження в зоні треку (від властивостей трекоутворюючої частинки).

Для травлення пластиків застосовують водні розчини NaOH або KOH з концентраціями від 1 до 12 М. Зазвичай розчини застосовуються при температурі від 40 до 75°C. У цій роботі детектори травилися в 6.25 М водному розчині NaOH при температурі 70°C. При таких умовах досягаються найбільші значення співвідношення V_t/V_b ($V_t/V_b = 2 \div 7$ для пластику CR-39).

При довготривалому травленні профіль треку проходить три стадії: конічну, перехідну і сферичну (рис. 1). Конічна

стадія триває доти, поки розчин для травлення не досягне кінця треку. У цей час профіль треку має майже конічний вигляд з еліптичним виходом на поверхню. Коли розчин досягає кінця треку, починається перехідна стадія. Вона характеризується тим, що кінець конуса травлення треку стає все більш заокругленим, оскільки тепер травлення відбувається з однаковою швидкістю у всіх напрямках. Проекція треку на поверхню все ще має еліптичну форму. В останній стадії трек стає повністю сферичним, а його проекція на поверхню має форму кола. При подальшому травленні ця картина не змінюється.

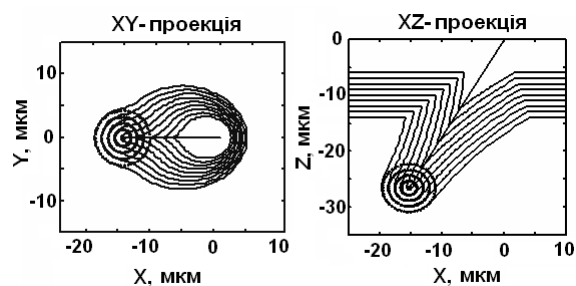


Рис. 1. Моделювання зміни форми лунки треку для альфа-частинки з енергією 5.15 MeV.

З метою спектрометрії даний підхід використовується для аналізу нахилених треків у перехідній стадії. Коли трек протравлено до кінця, повний час травлення T_{etch} можна представити двома складовими. Це час травлення латентного треку T_t з середньою швидкістю \bar{V}_t та час травлення непошкодженої речовини детектора T_b (від моменту досягнення розчином для травлення кінця треку і до закінчення процесу травлення) зі швидкістю V_b :

$$T_{etch} = T_t + T_b = \frac{R}{\bar{V}_t} + \frac{d}{2V_b}. \quad (1)$$

З формули (1) можна вивести просте лінійне співвідношення, пов'язавши пробіг частинки R з діаметром заокруглення кінця треку d :

$$R = \bar{V}_t T_{etch} - \frac{\bar{V}_t}{2V_b} d. \quad (2)$$

Таким чином, при заданому часі травлення T_{etch} довжину пробігу R (i , відповідно, енергію частинки E) можна визначити тільки для треків, які перебувають у перехідній стадії травлення, тобто коли параметр d можна визначити. Час травлення бажано обирати такий, щоб треки виходили з кінчної та перебували на початку перехідної стадії.

Експериментальна процедура

У даній роботі поверхня опромінених і протравлених детекторів оброблялася (сканувалася) за допомогою оптичної скануючої системи на базі мікроскопа Olympus VX-60 та рухомої платформи High Prior. Типовий розмір треку 5–20 мкм, тому для зняття якісного зображення застосовувався об'єктив 20X. При цьому розмір фрейму (області, яка знімається оптично приєднаною відеокамерою) становить приблизно 400×320 мкм² (рис. 2). Оскільки область опромінення значно більша за площу фрейму, виникає необхідність у застосуванні процедури послідовного обходу (сканування) всієї поверхні опромінення за допомогою моторизованої платформи. При цьому періодично необхідно здійснювати автофокусування таким чином, щоб фокальна площина постійно збігалася з поверхнею детектора.

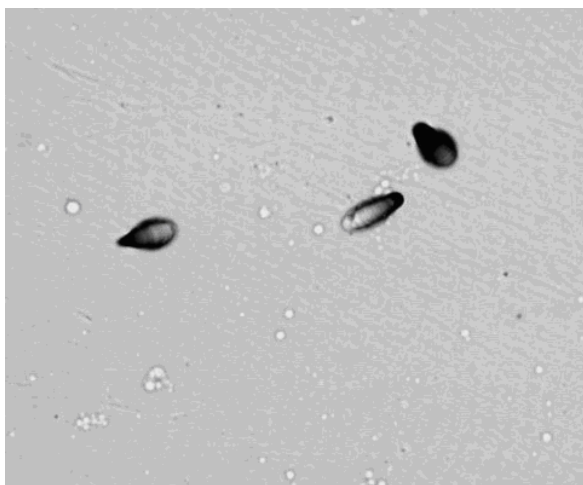


Рис. 2. Фрейм із зображеннями треків, утворених α -частинками на поверхні пластика CR-39. Збільшення 200 (об'єктив 20X). Режим "на просвітлення".

Мікроскоп Olympus VX-60 дозволяє організовувати зчитування зображень окремих треків у двох режимах – у променях світла, що проходить крізь зразок, ("на просвітлення") та у променях відбитого світла. У відбитому світлі можна дуже точно визначити параметри малої m та великої M осей треку, але при знаходженні діаметра закруглення кінця треку d виникають неточності. У режимі "на просвітлення" чітко знімаються параметри малої вісі m і діаметра d , але неможливо отримати значення параметра великої вісі M (рис. 3).

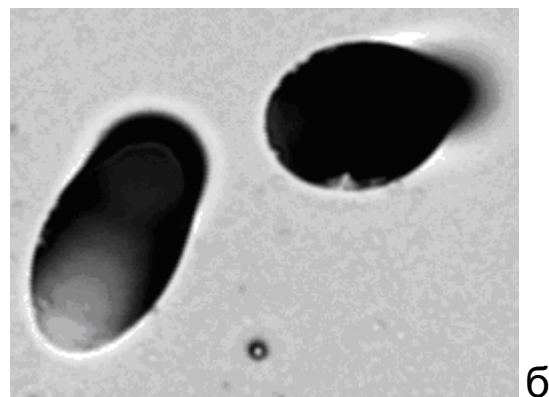
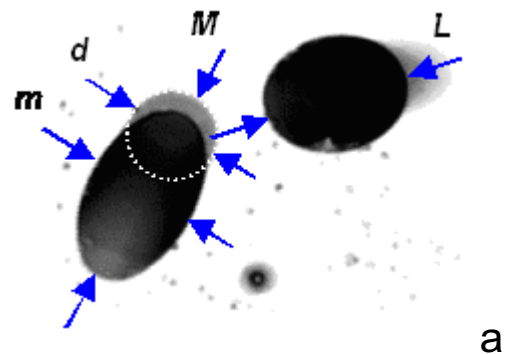


Рис. 3. Зображення протравлених треків для двох режимів роботи мікроскопа: а) "на відбивання"; б) "на просвітлення".

Можливості оптичної системи для отримання зображень треків окремих частинок продемонстровано на рис. 2. На цьому рисунку представлено треки, утворені α -частинками на поверхні пластика Intercast (типу CR-39). Зразок після опромінення джерелом з ізотопами ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{242}Pu ($E_{\alpha} \approx 5$ MeV) було протравлено у водному розчині 6.25 M NaOH протягом

12 годин при температурі 70°C. Після ви-сушування детектора було проведено сканування площі близько 3 см² (50×60 фреймів).

Обробка й аналіз результатів

Математична обробка зображень тре-ків здійснювалася з використанням мате-матичного пакету програм, написаного на мові програмування MATLAB6. На ос-нові параметрів (m , d) було побудовано двовимірний розподіл, на якому кожному треку відповідає певна точка (рис. 4). Ок-ремі події групуються вздовж певних го-ризонтальних локусів, кожний з яких відповідає певній енергії α -випроміню-вання. Більше значення параметра d при фіксованій малій вісі m відповідає меншій енергії α -випромінювання. Скупчення в області $d \sim 7-9$ мкм та $m \sim 15-17$ мкм відпо-відає круглим перетравленим трекам фону.

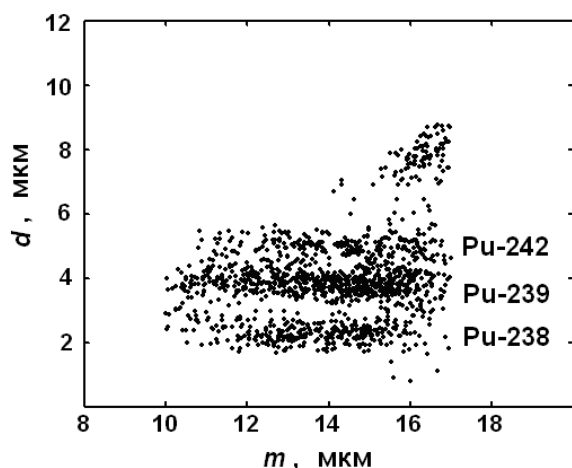


Рис. 4. Двовимірний графік розподілу треків залежно від діаметра закруглення кінця трека d та малої вісі m для альфа-джерела, що містить ізопаи ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{242}Pu .

На рис. 5 представлено результат перетворення двовимірного спектру (m, d) у розподіл-гістограму за параметром d . Експериментальне значення енергетичної роздільної здатності (FWHM) становило 100–120 кеВ.

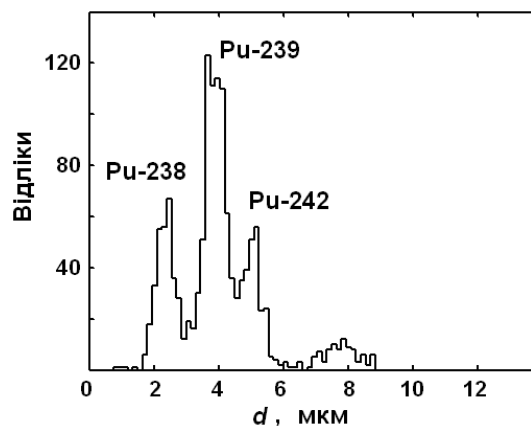


Рис. 5. Розподіл оброблених треків за діаметром закруглення кінця трека d . Збільшення – 200. Автоматизована обробка треків.

При оптимальних умовах травлення (постійності температури середовища травлення, концентрації розчину, структури пластику тощо) та мінімальних похибках, які вносяться обробкою зображення за допомогою оптичної системи, енергетична роздільна здатність методу буде залежати від точності визначення діаметра d . Фізичною межею, яка обмежує енергетичну роздільну здатність запропонованого методу альфа-спектрометрії за довжиною пробігу, є страгглінг пробігів σ_R/R . З формули (2) для оптимальної енергетичної роздільної здатності можна отримати:

$$\frac{\sigma_E}{E} = \frac{\sigma_R}{R} \frac{R}{E} \left| \frac{dE}{dR} \right| \cong \frac{\sigma_d}{d} \frac{R}{E} \left| \frac{dE}{dR} \right|. \quad (3)$$

Для енергій, які перевищують 5 МеВ, розрахунки методом Монте Карло дають значення відносного страгглінгу 0.5-0.55 %, що приблизно відповідає $\text{FWHM} = 2.35 \cdot \sigma_E = 60-70$ кеВ в інтервалі енергій 5-6 МеВ, що досить добре узгоджується з оцінкою 70 кеВ, яку одержано раніше [4], де використовувалась напівавтоматизована обробка треків.

Висновки

У роботі описано спектрометричний пристрій, який завдяки саме своїм особливостям може знайти практичне застосу-

вання там, де традиційні методи альфа-спектрометрії неможливо або недоцільно використовувати. Нижче наводяться головні характеристики альфа-спектрометрії з використанням ТТД, які забезпечують її ефективне застосування, зокрема, при вимірюванні наднизьких активностей:

– Найкраща енергетична роздільна здатність, отримана на цей час, при використанні ТТД спектрометрії становить 2–2.5 %. Це дає можливість вимірювання суміші різних альфа-випромінюючих ізотопів. Також це обумовлює істотне зниження фону за рахунок звуження енергетичного діапазону без втрати ефективності реєстрації.

– Дуже низький фон.
– Можливість організувати довгочасні вимірювання одночасно для десятків-сотень детекторів з використанням лише однієї системи обробки детекторів.

Задовільна енергетична роздільна здатність даного методу спектрометрії у поєднанні з іншими його характеристиками забезпечує можливість ефективного застосування методу для вимірювань наднизьких активностей, наприклад, вмісту плутонію у організмі людини, при дослідженні зразків біопроб, при вимірюванні різних надчистих конструкційних матеріалів тощо.

Література

1. A.P. Fews, Nucl. Instr. Meth. Phys. B 71, 465 (1992).
2. R.B. Gammage, G. Espinosa, Radiat. Measur. 28, 835 (1997).
3. O.A. Bondarenko, Yu.N. Onishchuk, A.V. Be-rezhnoy, P.B. Aryasov, D. Antonyuk, Radioanal. Nucl. Chem. 243, 555 (2000).
4. O.A. Bondarenko, P.L. Salmon, D.L. Henshaw, A.P. Fews, Radiat. Measur. 26, 59 (1996).

ELABORATION OF ALPHA SPECTROMETRY APPROACH USING SOLID-STATE NUCLEAR TRACK DETECTORS

S. Yurchenko, Yu. Onishchuk, S. Gorbachov

Taras Shevchenko National University of Kyiv, Faculty of Physics,
Volodymyrska Str. 64, Kyiv 01033
e-mail: yurchenko@univ.kiev.ua

Alpha spectrometry approach using solid-state nuclear track detectors (SSNTD) of CR-39 type is considered within the energy range 4-6 MeV. The stages of obtaining experimental information are described from SSNTD irradiation procedure to its etching with subsequent analysis of individual tracks. A special algorithm and software have been designed for automated precise image processing. The results for the samples containing plutonium isotopes are presented. Possible energy resolution of the technique is analysed. The possibility of the experimental results approaching to the physical limit of the technique (straggling) is discussed.