

12

©1993 г.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОСТАВА СМЕТЕЙ ТРАНСУРАНОВЫХ НУКЛИДОВ ПО СПЕКТРАМ α -РАСПАДА С ПОМОЩЬЮ ПРЕЦИЗИОННЫХ Si ДЕТЕКТОРОВ

*Е.М.Вербицкая, В.К.Еремин, А.М.Маляренко,
Ю.Ф.Родионов, Н.Б.Строкан, Ю.А.Яшин*

В последние годы в полупроводниковой спектрометрии короткопробежных частиц (α -частицы, ускоренные ионы) достигнут уровень точности, приближающийся к теоретическому пределу используемого ионизационного принципа. Предел обусловлен флуктуациями двух фундаментальных процессов преобразования энергии частицы в измеряемый заряд. Первый из них — рассеяние энергии в актах упругого взаимодействия с атомами материала детектора. Второй — развитие каскада ионизаций, в ходе которого и образуется регистрируемый (как мера энергии частицы) неравновесный заряд электронно-дырочных пар. Для α -частиц естественного распада $E = 5-6$ МэВ оценка предела приводит к значению $\delta \simeq 5.5$ кэВ [1].

Разработанный на базе высококчистого p-Si класс детекторов, выполненных методами планарной технологии [1-5], позволяет реализовать разрешение по энергии $\delta = 8-9$ кэВ. Здесь проявляется дополнительный вклад немонохроматичности источника, шумов и входного окна детектора. Сравнительно со стандартным уровнем выигрыш в точности составляет $\simeq 2$ раза, что привносит новое качество — разрешение сверхтонкой структуры спектров α -распада. Представляет интерес апробировать такие детекторы в актуальной для атомной техники задаче — определении состава ядерного топлива. Его компоненты, претерпевая α -распад, дают группы с минимальным расстоянием между отдельными линиями $\simeq 10$ кэВ.

Ранее отмечалось [6], что использование детекторов ФТИ в сочетании с обработкой спектров по адаптированной программе реализует при разделении изотопов плутония точность $\simeq 1\%$. Эксперименты были проведены на структурах площадью $S = 10$ мм², выполненных на базе Si сравнительно низкого сопротивления $\rho = 0.4$ кОм·см.

В сообщении приведены спектрометрические характеристики детекторов с $S = 30$ мм² ($\varnothing 6$ мм). Последнее не только ускоряет анализ, но и способствует снижению краевых эффектов. Обработка спектров велась по программе HRISOLIT, учитывающей особенности формы линии детекторов высокого разрешения.

1. Детекторы выполнялись методом газофазной диффузии бора. Режим процесса обеспечивал плучение сильнолегированных слоев, когда значения концентрации на поверхности выдерживались на уровне $N_B = 10^{19} - 10^{20}$ см⁻³, а глубина залегания p^\pm -перехода не превышала 10^3 Å. При этих условиях в p^+ -слое (вы-

полняющим роль входного окна) создается сильное встроенное поле $\approx 10^4$ В/см, оттесняющее в ходе рассасывания трека носители тока от поверхности [7-8]. В результате потери неравновесного заряда на рекомбинацию сводятся к минимуму. Удельное сопротивление исходного n -Si $\rho = 3$ кОм · см позволяет при смещении 50 В развить зону обеднения носителями до 200 мкм, что снижает емкость (шумы) детектора.

При снятии спектров α -распада использовалась стандартная блок-схема: специализированный предусилитель — усилитель + экспандер (571 и 408А фирмы ORTEC соответственно) — амплитудный анализатор АМА-ОЗФ. На рис. 1 приведен ход шума как функция постоянной RC-формирования полосы пропускания усилителя в режиме двухкратного интегрирования и однократного дифференцирования. Видно, что при коротких формированиях заметна роль емкости, а при длинных — преобладают шумы обратного тока. Оптимальными оказываются значения $\theta = 1-2$ мкс, где $\delta_{ш} = 2.5-2.6$ кэВ.

Спектры α -распада изотопов Pu имеют две группы близко расположенных линий (см. рис. 2). Одна из них в области 5.0-5.17 МэВ соответствует трем линиям ^{239}Pu и двум ^{240}Pu . Вторая, в области 5.44-5.50 МэВ, имеет 4 основных линии, испускаемые ^{241}Am и ^{238}Pu попарно. В случае второй группы (рис. 2, б) построение в логарифмическом масштабе выявляет две дополнительные линии ^{241}Am малой интенсивности. Видно, что тонкая структура спектров разрешается визуально. Разрешение по энергии для пика 5.124 МэВ (рис. 2, а) составило 8.33 кэВ.

2. При анализе реальный контур спектра аппроксимировался суперпозицией модельных контуров статистически значимых пиков:

$$y(x) = \sum_{j=1}^N Y_{oj} [G(x) + T(x)],$$

где N — число пиков, гауссиан $G(x) = \exp[-(x - X_{oj})^2/2s^2]$; T — хвост в виде суммы трех компонент (для $x < X_{oj}$: длинной — L , средней — M , короткой — S).

$$T(x) = [L(x) + M(x) + S(x)] \cdot R(x).$$

Здесь $L(x) = A_1$;

$$M(x) = A_m \cdot \exp[B_m(x - X_{oj})]; \quad S(x) = A_s \cdot \exp[B_s(x - X_{oj})];$$

$$R(x) = \exp[-(x - X_{oj})^2/5s^2],$$

X_{oj}, Y_{oj} — центр и амплитуда i -го пика; s -параметр ширины гауссиана.

Параметры гауссиана и хвостов определяются на участках реального спектра, где присутствует (доминирует) та или иная компонента модельного пика. Вписывание модельного контура производится с помощью метода наименьших квадратов (МНК) с алгоритмом линеаризации Гаусса. В целях уменьшения времени обработки используется метод последовательных приближений, когда положение и амплитуда пиков вычисляются по мере уточнения

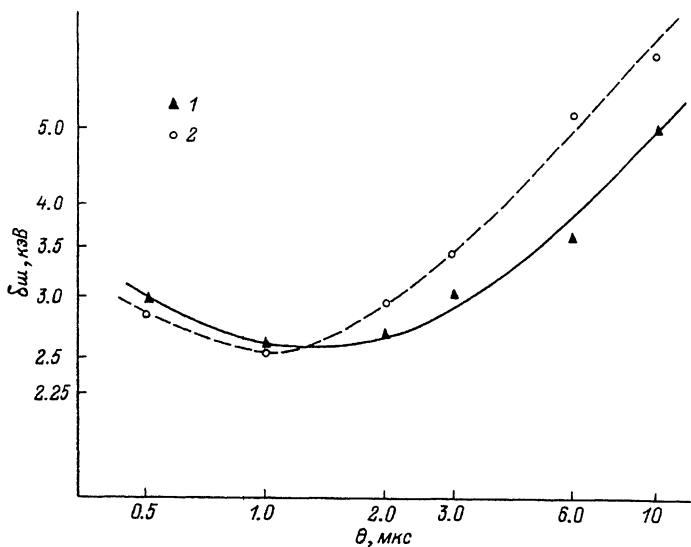


Рис. 1. Зависимость шума детектора от постоянной времени RC-формирования полосы пропускания усилительного тракта.

Напряжение на детекторе и обратный ток: 1 — 30 В и 1.0 нА; 2 — 50 В и 1.3 нА соответственно. Определялась как ширина линии генератора стабильной амплитуды на уровне 0.5 от максимума.

параметров модельного пика, которые определяются не на всем массиве спектра, а на отдельных участках. Критерием выхода из цикла (Long)-(Middle)-(Short)-(Gaussian)-(Peak) служит повторяемость в пределах ошибки всех параметров.

Сформулированные принципы обработки спектров реализованы в программе HRISOLIT. Программа для ПЭВМ, совместимых с IBM PC, написана на TURBO BASIC и скомпилирована в EXE файл. Программа имеет размер 120 кб и предназначена для работы с графическим адаптером EGA или VGA.

Был проведен эксперимент с модельными спектрами, которые создавались на основе приведенных формул и рандомизировались по нормальному закону. Число и положение пиков соответствовало спектрам фракции Pu-240 + Pu-239 (см. рис. 2, a).

На рис. 3 показана зависимость погрешности определения отношения Pu-240/Pu-239 от статистики спектра для трех модельных соотношений, — 2/1, 1/1, 1/2. Там же представлены аналогичные кривые обработки спектров с разрешением $\delta = 20$ кэВ программой ALMAS [9]. Из кривых следует, что применение детекторов нового типа с $\delta \leq 10$ кэВ по сравнению со стандартными ($\delta = 20$ кэВ) может дать выигрыш в уменьшении статистики на 1-2 порядка при равных (приемлемых практически) погрешностях обработки 1-2%.

Этот обнадеживающий результат подтверждается при анализе изотопного состава реального образца фракции плутония выгоревшего топлива АЭС. Массовое отношение Pu-240/Pu-239 определялось на масс-спектрометре МИ-1201 с позиционно-чувствительным детектором на основе микроканальных пластин [10] и по результатам обработки спектров α -распада с помощью программ ALMAS и HRISOLIT соответственно. Результаты при-

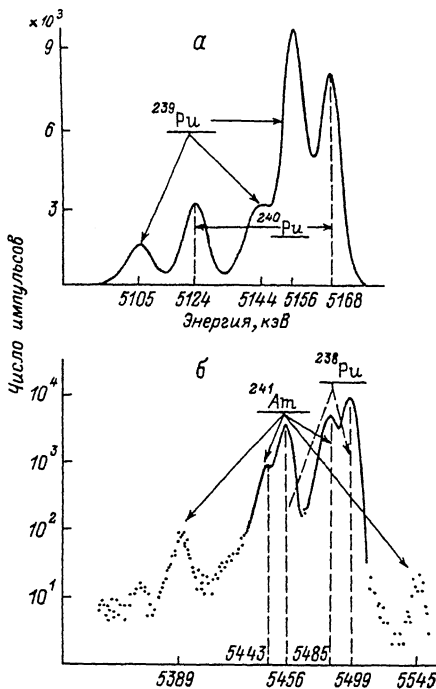


Рис. 2. Тонкая структура спектров α -распада фракций топлива, содержащих изотопы плутония. а — линии ^{239}Pu и ^{240}Pu , ^{238}Pu и ^{241}Am .

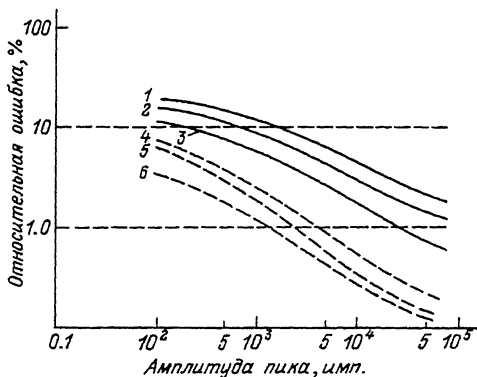


Рис. 3. Погрешность определения отношения $\text{Pu}-240/\text{Pu}-239$ от статистики модельных спектров при разрешении детекторов 9 и 20 кэВ. Задаваемое отношение $\text{Pu}-240/\text{Pu}-239$: 1/2 (кривые 1, 6), 2/1 (2, 4), 1/1 (3, 5). δ , кэВ: 20 — сплошные линии, 9 — пунктир. Цена канала модельного спектра 0.3 кэВ.

ведены в таблице, из которой видно, что для целей определения отношения $\text{Pu}-240/\text{Pu}-239$ метод альфа-спектрометрии на основе прецизионных Si-детекторов сравним по точности с методом масс-спектрометрии.

В заключение затронем вопрос радиационной деградации детекторов высокого разрешения. Она проявляется в первую очередь в возрастании обратного тока с темпом $5 \cdot 10^{-8}$ нА/α [11], однако вопрос вклада шумов в ширину спектральной линии требует дополнительных исследований.

В целом полученный результат подчеркивает принципиальную важность высокого разрешения по энергии в задачах количественного анализа. Представляется реальным повышение детекторов до диапазона \approx см² при сохранении разрешающей способности до 10 кэВ. Это позволит (с учетом результатов рис. 3) проводить экспрессный анализ состава трансурановых смесей, используя стандартную спектрометрическую аппаратуру.

Список литературы

- [1] *Вербицкая Е.М., Еремин В.К., Маляренко А.М., Строкан Н.Б., Сузанов В.Л.* // Письма в ЖТФ. 1986. Т. 12. В. 20. С. 1254-1258.
- [2] *Kemmer J., Burger P., Henck R., Heijne E.* // IEEE Trans. Nucl. Sci. 1982. NS-29. P. 733.
- [3] *Atoudry F., Burger P.*, // Nucl. Instr. Meth. 1984. V. 223. N 2/3. P. 360-367.
- [4] *Еремин В.К., Вербицкая Е.М., Маляренко А.М., Строкан Н.Б., Сузанов В.Л.* // ЖТФ. 1986. Т. 56. В. 10. С. 1987-1089.
- [5] *Maisch T., Gunzler R., Weiser M., Kalbitzer S., Welser W., Kemmer J.* // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 1990. A288. P. 19-23.
- [6] *Еремин В.К., Медведев Л.С., Родионов Ю.Ф., Строкан Н.Б., Яшин Ю.А.* Препринт ИАЭ им. И.В.Курчатова. 1989. 4914/14, С. 1-12.
- [7] *Еремин В.К., Вербицкая Е.М., Маляренко А.М., Медведев Л.С., Строкан Н.Б., Сузанов В.Л.* // ФТП. 1987. Т. 21. В. 8. С. 1394-1399.
- [8] *Еремин В.К., Медведев Л.С., Строкан Н.Б.* // ФТП. 1988. Т. 22. В. 7. С. 1239-1243.
- [9] *Родионов Ю.Ф., Яшин Ю.А.* // Атомная энергия. 1991. Т. 70. В. 2. С. 101-103.
- [10] *Dikhanov H.P. et al.* // J. of Radioanalytical Chemistry. 1980. V. 58. P. 161-164.
- [11] *Вербицкая Е.М., Еремин В.К., Иванов А.М., Строкан Н.Б., Дюмин А.Н., Лебедев В.М.* // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 18. В. 24. С. 69-73.

Физико-технический институт
им. А.Ф.Иоффе РАН
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию
13 мая 1993 г.