ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

13 - 3495

С.А. Карамян, Я. Шукуров

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

РАСЧЕТ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ И ИЗБИРАТЕЛЬНОСТИ МЕТОДА ЭЛЕМЕНТНОГО АНАЛИЗА ПО УПРУГОМУ РАССЕЯНИЮ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ

1967.

13 - 3495

С.А. Карамян, Я. Шукуров

РАСЧЕТ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ И ИЗБИРАТЕЛЬНОСТИ МЕТОДА ЭЛЕМЕНТНОГО АНАЛИЗА ПО УПРУГОМУ РАССЕЯНИЮ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ

Направлено в АЭ

В работах[1,2] изложены методы грубого количественного анализа элементного состава некоторых образцов с использованием рассеяния на большие углы протонов и α -частиц.

В работе[3] показана перспективность применения для этой цели тяжелых ионов, ускоренных на циклотроне. Однако до настоящего времени не произведен полный количественный расчет чувствительности и избирательности метода анализа веществ с помощью рассеяния тяжелых заряженных частиц и не определены принципиальные возможности и границы применимости этого метода.

Данная работа посвящена расчету чувствительности и избирательности этого метода в зависимости от массы используемой частицы, от области масс ядер элементов, подвергающихся анализу, и от различных условий постановки опыта (толщины мишени, телесного угла детектора и др.).

1. Избирательность метода

Как известно из кинематики процесса упругого рассеяния, энергия рассеяной частицы в лабораторной системе определяется формулой

$$E_L = E_0 \frac{M^2 + m^2 + 2Mm\cos\theta_c}{(M+m)^2}, \qquad (1)$$

где E_0 - первоначальная энергия частицы,

m и M - массы ядер бомбардирующей частицы и мишени,

θ_c - угол рассеяния в системе центра масс.

Видно, что энергия рассеянной частицы является функцией массы ядра рассеивателя.

На этом основывается принцип анализа методом рассеяния заряженных частиц: наблюдая в спектре частиц, рассеянных на тонкой мишени, какой-либо характерный максимум, нетрудно по его энергии определить массу ядра элемента, рассеянию на котором обязано появление этого максимума, а по интенсивности пика получить количество ядер этого элемента в мишени.

Из формулы (1) легко получить величину $d_M E_L$, характеризующую изменение энергии рассеянной частицы при изменении массы ядра - рассеивателя на величину dM

$$d_M E_L = 2 E_0 \frac{m(M-m)(1-\cos\theta_c)}{(M+m)^3} \cdot dM \qquad (2)$$

Если теперь в формуле (2) $d_M E_L$ заменить на ΔE_L - минимальное расстояние по энергии между двумя максимумами в спектре упруго рассеянных частиц, дающее возможность разделить эти два максимума и определить их индивидуальную интенсивность, то величина ΔM будет иметь смысл минимального расстояния по массе между элементами, которые еще можно разделить при анализе данным способом.

$$\frac{\Delta M}{M} = \frac{\Delta E_L}{2E_0} \frac{(M+m)^3}{Mm(M-m)} \frac{1}{1-\cos\theta_c}, \qquad (3)$$

ΔM - предельное массовое разрешение метода в абсолютных единицах, а $\frac{\Delta M}{M}$ - в относительных. Чем меньше величины ΔM и $\frac{\Delta M}{M}$, тем выше избирательность метода, поэтому избирательность количественно можно характеризовать величинами $1/\Delta M$ и $\frac{M}{\Delta M}$.

Очевидно, что величина ΔE_L пропорциональна ширине монолинии в спектре рассеянных частиц, причем коэффициент пропорциональности должен зависеть от относительной интенсивности двух близких различаемых линий и от того, что мы будем понимать под словами "две различаемые линии".

В принципе путем математического анализа возможно разделить и определить индивидуальные интенсивности двух чрезвычайно близких друг к другу линий, однако точность определения интенсивностей будет не высокой, особенно, если форма монолинии не точно описывается аналитически, что и имеет место в действительности.

В связи с этим будем предполагать, что две близкие линии в спектре упругого рассеяния различаемы, если они еще представляются в виде двух максимумов и величина интенсивности счета в провале между ними не превышает 2/3 от интенсивности в наименьшем максимуме.

Предполагая кроме того, что монолинии имеют гауссовскую форму, получим, что

$$\Delta E_L = \frac{\delta E}{2 \ln 2} \left(\sqrt{\ln 3W} + \sqrt{\ln 3} \right), \tag{4}$$

δE – ширина монолинии на ее полувысоте,

W – отношение площади более интенсивной линии к площади менее интенсивной.

В этих предположениях, безусловно, есть произвол, который, однако, не сказывается на качественном поведении всех рассчитываемых значений и на порядке их величины.

Подставив в формулу (3) значение для ΔE и, заменив $\frac{m}{M}$ на γ, перепишем это выражение в виде

$$\frac{\Delta M}{M} = \frac{\delta E}{2 E_0} \frac{(1+\gamma)^3}{\gamma(1-\gamma)} \frac{1}{1-\cos\theta_c} \frac{1}{2\ln 2} \left(\sqrt{\ln 3W} + \sqrt{\ln 3} \right) = \tag{5}$$

$$= \frac{1}{2} \frac{\delta E}{E_0} f_1(\gamma)\, f_2(\theta_c)\, f_3(W).$$

Видно, что переменные в этой формуле разделяются, поэтому дальнейший анализ формулы будем производить отдельно для каждой функции своего переменного.

Наилучшее разрешение по массе достигается при угле рассеяния $\theta_c = 180^\circ$ и существенно ухудшается для меньших углов. Чувствительность метода при этом незначительно улучшается, поэтому оптимальный для анализа угол рассеяния частиц равен 180°.

На рис. 1 показана зависимость $f_3(W)$ от отношения концентраций близких по массе элементов, которые требуется различить при анализе. Естественно, требование выделения все более слабой линии на спаде интенсивной приводит к необходимости все большего расстояния между ними.

На рис. 2 изображена зависимость $\frac{\Delta M}{M}$ от γ. Функция имеет минимум при $\gamma = 0{,}268$. Это означает, что для каждого значения массы ядра элемента, подвергающегося анализу, существует вполне определенное значение массы рассеиваемой частицы, при которой избирательность метода будет наилучшей при прочих равных условиях. Следовательно, для каждой области анализируемых элементов необходимо выбирать для анализа по рассеянию ту или иную частицу.

На рис. 2 видно, что в довольно широкой области $0{,}6 > \gamma > 0{,}15$ значение функции $f_1(\gamma)$ не сильно отличается от минимального, поэтому для каждой частицы при использовании ее для анализа по рассеянию имеется интервал масс анализируемых элементов, для которых можно получить хорошее массовое разрешение метода.

В таблице 1 приведены эти значения.

При правильном выборе угла рассеяния и массы рассеиваемой частицы и для определенного значения $f_3(W)$ величина предельного массового разрешения метода будет определяться только шириной монолинии в спектре рассеянных частиц $\frac{\delta E}{E}$, которая зависит от энергетического разрешения детектора рассеянных частиц, монохроматичности пучка, толщины мишени и величины телесного угла детектора рассеянных частиц.

Предполагая, что разброс энергии регистрируемых частиц за счет каждого из перечисленных параметров подчиняется гауссовскому распределению, получим

$$(\delta E)^2 = (\delta_{\text{п}} E)^2 + (\delta_d E)^2 + (\delta_{\text{м}} E)^2 + (\delta_{\Omega} E)^2. \qquad (6)$$

Предположение это безусловно не строгое, однако, как уже говорилось, данный расчет не претендует на высокую абсолютную точность рассчитываемых величин.

Увеличение толщины мишени и величины телесного угла, ухудшая избирательность метода, приводит к улучшению его чувствительности.

Во второй главе будет обсуждаться вопрос об оптимальном выборе этих параметров при постановке опыта.

В то же время увеличение $\delta_{\text{п}} E$ и $\delta_d E$ ухудшает избирательность и не влияет на чувствительность метода, поэтому эти величины в конечном итоге и определяют предельные возможности метода анализа по рассеянию заряженных частиц.

Пучки заряженных частиц, получаемые на ускорителях Ван-де-Граафа, имеют монохроматичность до 0,01%, на циклотронах возможно получить монохроматичность 0,2 – 0,3% [4]. Полупроводниковые поверхностно-барьерные детекторы заряженных частиц имеют разрешение ≈20 кэв для α -частиц. Для более тяжелых частиц разрешение детекторов ухудшается.

Предполагая ширину монолинии в спектре заряженных частиц $\frac{\delta E}{E_0}$ = 0,5% и при следующих значениях остальных параметров в формуле (5)

$$\gamma = \gamma_{опт} = 0{,}268$$

$$W = 10$$

$$\theta_c = 180^\circ$$

получим, что предельное разрешение по массе $\frac{\Delta M}{M} = 2\%$.

Основные выводы расчета избирательности метода таковы:

1. С использованием существующих ускорителей и техники регистрации заряженных частиц возможно получить высокую избирательность метода анализа веществ посредством рассеяния тяжелых заряженных частиц.

2. Для достижения хорошей избирательности при анализе на содержание в веществах средних и тяжелых элементов требуется применение ускоренных тяжелых ионов $m > 10$.

3. При использовании тяжелых ионов таких как O^{16}, Ne^{20}, Ar^{40} избирательность метода достаточно высока в очень широком интервале массы анализируемых элементов.

4. Оптимальными условиями постановки опыта для достижения наилучшей избирательности являются:

$$\theta_c \to 180^\circ, \quad \gamma = \gamma_{опт.} = 0{,}268, \quad \frac{\delta E}{E} \to 0 .$$

II. Чувствительность метода

Чувствительность описываемого метода анализа определяется выходом рассеянных заряженных частиц, который, в свою очередь, пропорционален сечению упругого рассеяния, потоку падающих частиц, толщине мишени и геометрическому фактору. Использовав формулу Резерфорда для дифференциального сечения упругого рассеяния на $\theta_c = 180^\circ$, легко получить

$$P = \frac{C\,(dN/dt)_{min}\,E_0^2\,M}{Z_m^2\,Z_M^2\,(1+\gamma)^2\,\Omega_c\,J\,b}\,, \qquad (7)$$

где P – предельно обнаруживаемая концентрация элемента в веществе мишени в весовых процентах;

$(dN/dt)_{min}$ – минимально допустимая скорость счета ($\frac{1}{сек}$) ионов, рассеянных на ядрах данного элемента;

C – коэффициент, зависящий от выбора системы единиц;

Z_m и Z_M – заряд ядер бомбардирующей частицы и определяемого элемента;

Ω_C – телесный угол детектор в системе центра масс в стерадианах;

J – поток бомбардирующих частиц ($\frac{1}{сек}$);

b – толщина мишени в мкг/см^2.

Предельная обнаруживаемая концентрация пропорциональна минимально необходимой скорости счета ионов, рассеянных на мишени, которая зависит только от требуемой экспрессности анализа и от фона детектора заряженных частиц. Кроме того чувствительность метода пропорциональна потоку бомбардирующих частиц, который определяется лишь конструкцией используемого ускорителя.

Зависимость P от таких параметров как в Ω и γ более сложна, так как изменение этих параметров влечет за собой изменение избирательности метода. Это приводит к необходимости выбора оптимальных значений этих параметров для обеспечения, например, наилучшей чувствительности анализа при заданной избирательности или при других условиях.

Обеспечение необходимой избирательности анализа требует, чтобы величина $\frac{\delta E}{E_0}$ не превышала определенного значения

$$\frac{\delta E}{E_0} = 8\ln 2\,\frac{\Delta M}{M}\,\frac{\gamma(1-\gamma)}{(1+\gamma)^3(\sqrt{\ln 3W}+\sqrt{\ln 3})}\,. \qquad (8)$$

Для определенности здесь предполагалось, что $\theta_c = 180^\circ$.

Из формулы (6) следует, что

$$(\delta_M E)^2 + (\delta_\Omega E)^2 = (\delta E)^2 - (\delta_п E)^2 - (\delta_d E)^2\,. \qquad (9)$$

Если в данную формулу подставить значения δE из формулы (8) и $\delta_п E$ и $\delta_d E$, полученные экспериментально, то получим величину энергетического разброса, остающегося на удовлетворение требований чувствительности к увеличению телесного угла и толщины мишени. Если имеющееся размытие энергии за счет пучка и детектора превышает значение δE, получаемое из формулы (8), то это означает, что данная избирательность $\frac{\Delta M}{M}$ не может быть получена при таких условиях опыта.

Рассмотрим теперь случай, когда $(\delta_M E)^2 + (\delta_\Omega E)^2 > 0$.

Требование наилучшей чувствительности, как видно из формулы (7), выполняется при условии максимального значения произведения $\Omega\, b$.

Легко показать, что с учетом одинаковой функциональной зависимости Ω и b от величин $\delta_M E$ и $\delta_\Omega E$ (формулы 11, 12), данное требование выполняется, когда произведение $\delta_M E \cdot \delta_\Omega E$ достигает максимума, а именно при условии, что

$$\delta_M E = \delta_\Omega E = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{(\delta E)^2 - (\delta_{\text{п}\,d} E)^2}\,. \qquad (10)$$

Зная величину энергетического разброса рассеянных частиц за счет конечной толщины мишени и телесного угла, нетрудно теперь рассчитать предельно-допустимые значения последних для достижения заданной избирательности метода.

$$\Omega = \frac{8\pi}{3}\,\frac{\delta_\Omega E}{E_0}\,\frac{(1+\gamma)^2}{\gamma} \qquad (11)$$

$$b = \frac{\delta_M E}{2(dE/dx)_m}\,, \qquad (12)$$

где $(dE/dx)_m$ - удельные потери энергии частицы с массой m в веществе.

В этих формулах имеется неточность, связанная с тем, что форма энергетического распределения рассеянных частиц не является гауссовской.

Комбинируя теперь формулы 7, 8, 10, 11, 12, получим окончательное выражение для чувствительности метода

$$P = C\,\frac{(dN/dt)_{min}\,\epsilon_0}{J\,Z_m}\;\frac{(1.98 + 0.015\,M^{2/3})^2\,\dfrac{(dE/dx)_m}{Z_m}}{\dfrac{30.7\,(1-\gamma)^2\,\Delta M^2}{(\sqrt{\ln 3W} + \sqrt{\ln 3})^2 M^2 (1+\gamma)^2} - \dfrac{(1+\gamma)^4}{\gamma^2}\left(\dfrac{\delta_{\text{п}\,d} E}{E_0}\right)^2} \qquad (13)$$

где ϵ_0 – энергия бомбардируюшей частицы на единицу массы (Мэв/нукл.).

В этой формуле Z_M выражено через M с помощью полуэмпирической закономерности, дающей хорошую точность для всех элементов, кроме гелия и водорода.

В первую группу сомножителей вынесены величины, зависящие только от конкретных экспериментальных условий опыта($J, \frac{dN}{dt}, \epsilon_0$), они определяют абсолютный уровень чувствительности. К подобным же параметрам относится и $\frac{\delta_{\text{п}\,d} E}{E_0}$, однако, он более сложным образом входит в формулу и связан с другими переменными.

Чувствительность линейно ухудшается (возрастает P) с увеличением энергии частиц ϵ_0, однако, брать очень низкое значение для ϵ_0 также невыгодно ввиду сильного увеличения в этом случае величины $\frac{(dE/dx)_m}{Z_m}$. Оптимальная энергия, согласно нашим оценкам, лежит в районе 1 Мэв/нукл., что хорошо согласуется также и с требованием, чтобы энергия частицы была ниже кулоновского барьера системы частица + ядро мишени.

Сводка данных о величине $\frac{(dE/dx)_m}{Z^2_m}$ из работы (5) дана на рис. 3.

На рисунках 4, 5, 6, 7 дана серия зависимостей чувствительности при заданной избирательности от массы элемента (M), на который производится анализ, для разных бомбардируюших частиц, различной избирательности и величины $\frac{\delta_{\text{п}\,d} E}{E_0}$.

При этом считалось, что величина $\frac{(dE/dx)_m}{Z_m}$ не меняется для данной частицы с изменением M; это имеет место в случае, если речь идет об обнаружении небольших количеств элемента с массой M в веществе с зафиксированным составом по основным компонентам. Значения для $\frac{(dE/dx)_m}{Z_m}$ были взяты из результатов опытов по торможению заряженных частиц в алюминии (рис. (3)) ввиду отсутствия других данных.

Из рисунков 4, 5, 6 видно, что вид кривых сильно зависит от соотношения между величинами $\frac{\Delta M}{M}$ и $\frac{\delta_{\text{п}\,d} E}{E}$. Если $\frac{\delta_{\text{п}\,d} E}{E} = 0$, то величина P плавно уменьшается с увеличением M, не имея минимума. В остальных случаях имеется кривая с минимумом, конкретные характеристики которой зависят от численного соотношения между $\frac{\delta_{\text{п} d} E}{E}$ и $\frac{\Delta M}{M}$.

В случае, если

$$\frac{\delta_{\text{п} d} E}{E_0} \geq \frac{8 \ln 2 \gamma (1-\gamma)}{(1+\gamma)^3 (\sqrt{\ln 3 W} + \sqrt{\ln 3})} \frac{\Delta M}{M} \qquad (14)$$

никаким образом невозможно обеспечить требуемую избирательность анализа $(\frac{\Delta M}{M})$.

При зафиксированном $\frac{\delta_{\text{п} d} E}{E_0}$ чувствительность анализа резко ухудшается с улучшением избирательности для всех элементов.

Как видно из рис. 7, с увеличением массы бомбардирующей частицы при постоянстве всех остальных параметров минимум функции смещается в сторону больших масс, уширяется область масс, для которых значение Φ близко к наименьшему и уменьшается Φ_{min}.

На рис. 8 показана зависимость Φ_{min} от массы бомбардирующей частицы.

Из этих рисунков следует, что с применением все более тяжелых частиц чувствительность анализа при заданной избирательности улучшается и расширяется возможности применения этого способа для анализа широкого ряда элементов периодической системы элементов. Одновременно представляются возможности для достижения высокой избирательности анализа за счет его чувствительности.

Абсолютная величина чувствительности определяется конкретными условиями опыта. Например, используя пучок ионов Ne^{20} с энергией 1 мэв/нуклон интенсивностью 1 мка, полагая $(dE/dt)_{min} = 0{,}1 \frac{1}{\text{сек}}$, $W = 10$, $\frac{\delta_{\text{п} d} E}{E_0} = 1\%$, возможно получить чувствительность анализа на элементы с массой ≈ 150, равную $\approx 10^{-3}\%$ при избирательности $\frac{\Delta M}{M} = 5\%$.

Подобным же образом возможно рассчитать чувствительность анализа при любых других экспериментальных значениях и при любой требующейся избирательности. При этом, согласно формулам 11, 12, рассчитываются необходимые для достижения данной чувствительности значения толщины мишени и телесного угла. На основе имеющихся формул возможно делать расчеты и при другой постановке задачи. Например, расчет максимальной избирательности анализа при заданной чувствительности и экспрессности анализа. Экспрессность анализа входит в рассчитываемые величины через параметр $(dN/dt)_{min}$ – минимально допустимую скорость счета рассеянных частиц.

В заключение следует отметить, что основными параметрами, от которых зависят возможности данного способа анализа, являются ток пучка используемого ускорителя и величина $\frac{\delta_{\text{п}\,d}\, E}{E_0}$.

Если использовать ускоритель, дающий ток ≈ 10 мка при $\frac{\delta_{\text{п}\,d}\, E}{E_0} < 0{,}1\%$, то данный способ анализа не будет уступать по чувствительности активационным методам, в то время как в других отношениям (экспрессность, возможность анализа многокомпонентных систем и др.) этот метод анализа превосходит активационные способы.

Авторы благодарят проф. Г.Н. Флерова за интерес к работе.

Т а б л и ц а 1

Масса падающей частицы	1	4	10	15	20	25	30	35
Область масс анализируемых элементов	от 2 до 10	от 7 до 40	от 16 до 100	от 25 до 150	от 33 до 200	от 41 до 250	выше 50	выше 60

Литература

1. A. Turkevich, Science 134, 672 (1961).
2. S. Rubin, T. Passell, L. Bailey. Anal. Chem. 29, 5, p. 736.
3. С.А. Карамян, Я. Шукуров. Атомная энергия, 20, 1 (1966), стр. 56-57.
4. Н.И. Веников, А.З. Хамидов. Препринт ИАЭ-1361, Москва, 1967.

Рукопись поступила в издательский отдел
5 сентября 1967 г.

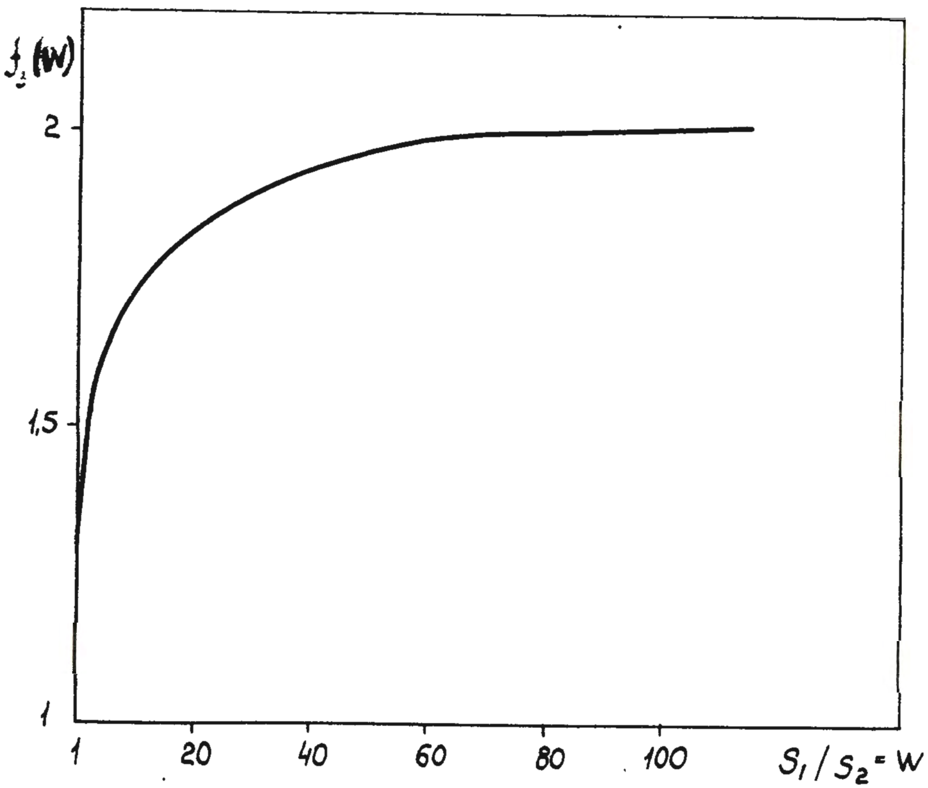

Рис. 1. Зависимость $f_3(W)$ от отношения концентраций близких по массовому числу элементов, которые требуется различить при анализе.

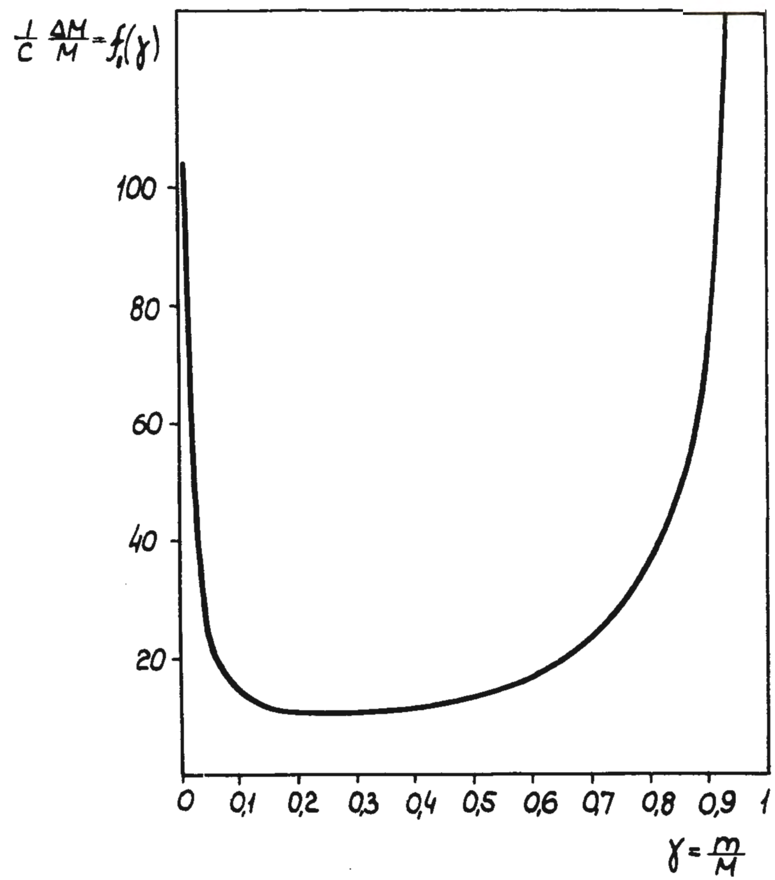

Рис. 2. Зависимость относительной избирательности от величины $\gamma = \frac{m}{M}$

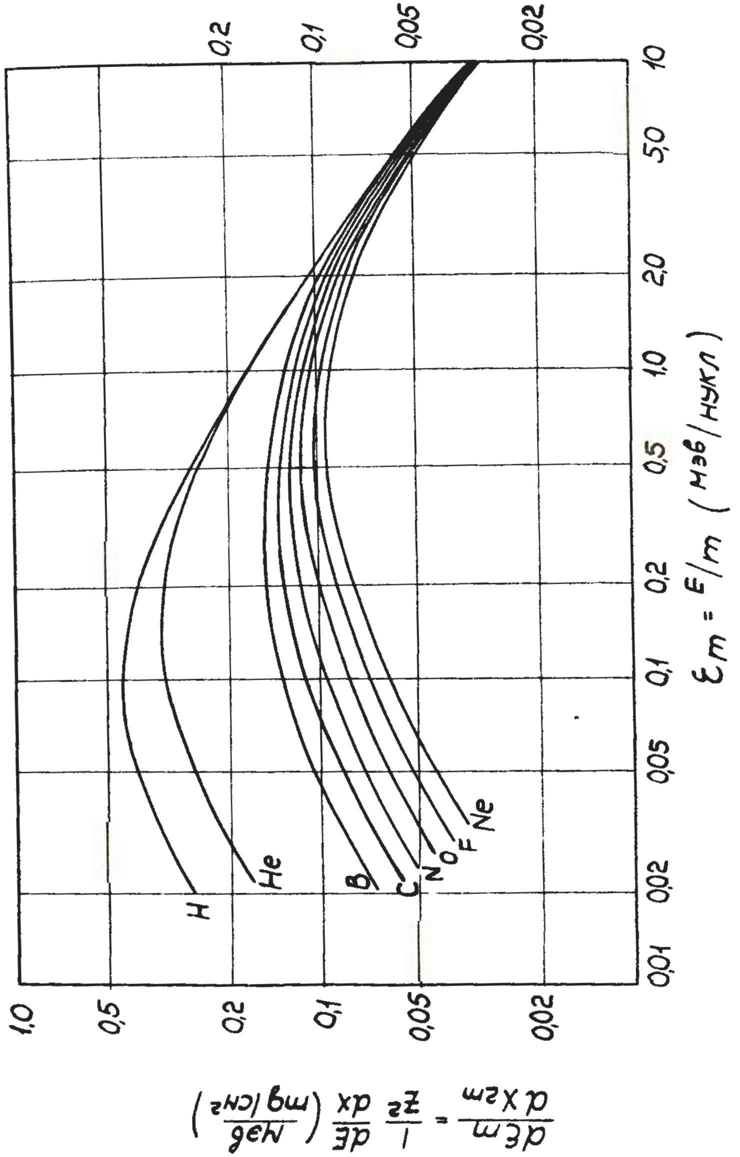

Рис. 3. Зависимость энергетических потерь различных ионов от их энергии.

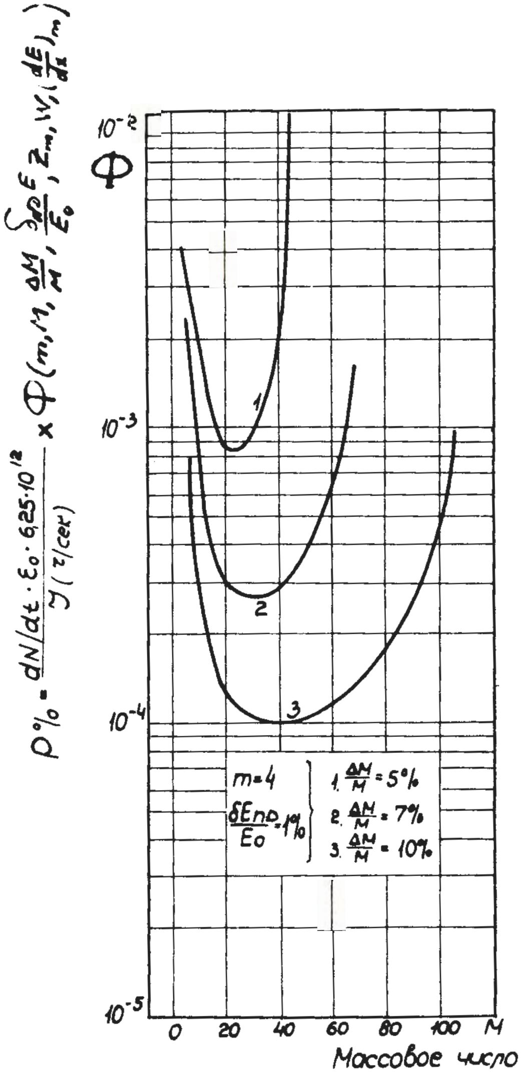

Рис. 4. Зависимость чувствительности от массового числа определяемого элемента при использовании альфа-частиц.

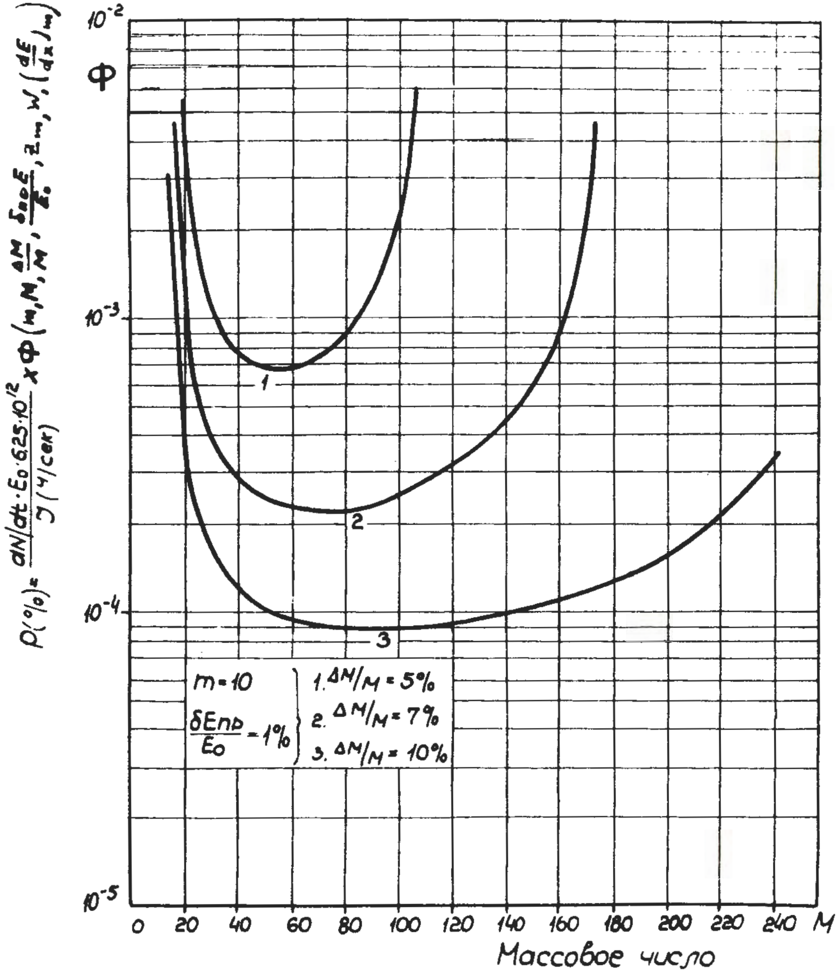

Рис. 5. Зависимость чувствительности от массового числа определяемого элемента при использовании ионов с массовым числом 10.

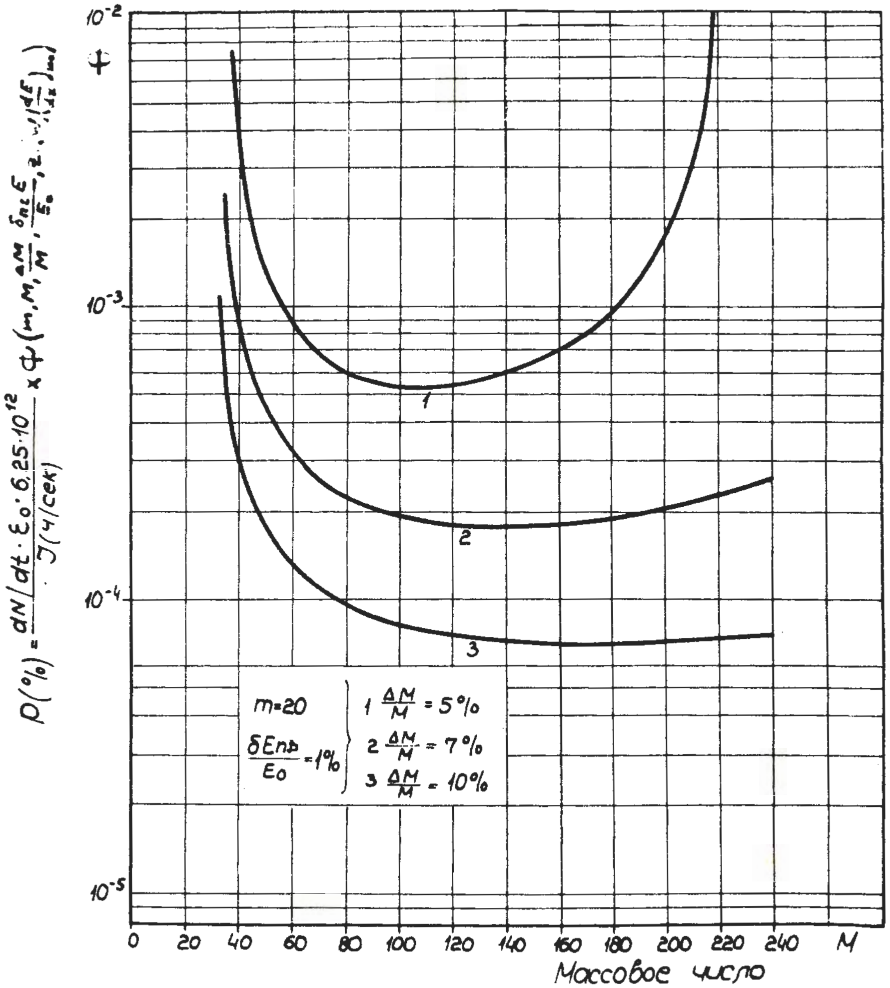

Рис. 6. Зависимость чувствительности от массового числа определяемого элемента при использовании ионов с массовым числом 20.

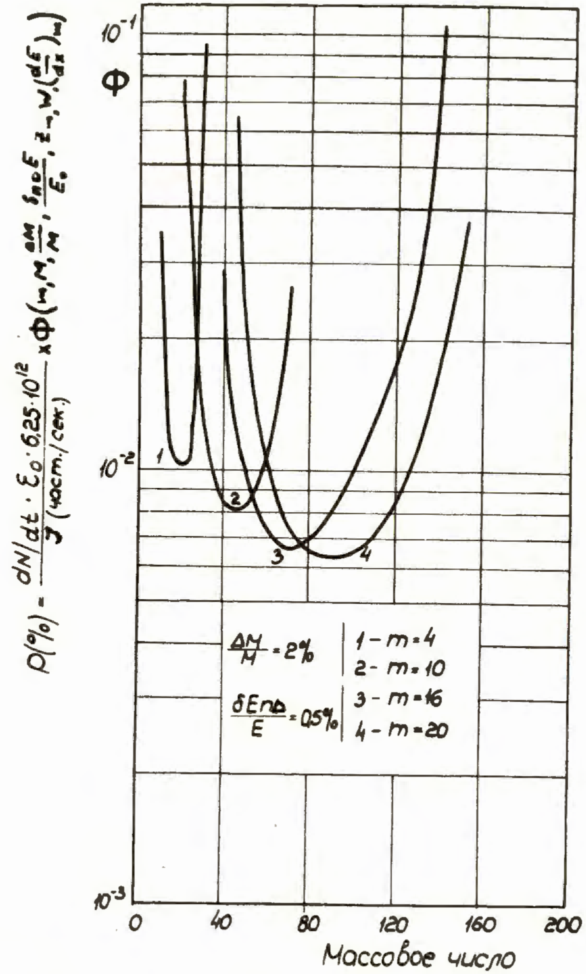

Рис. 7. Зависимость Ф от массового числа определяемого элемента при использовании различных ионов.

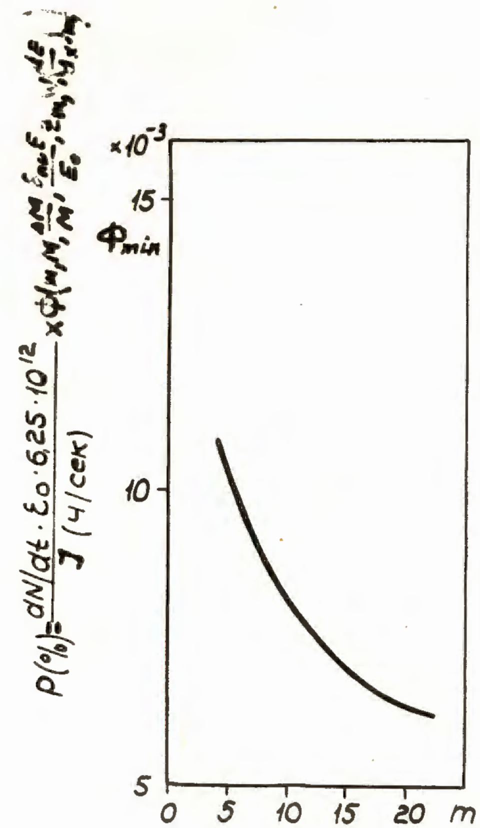

Рис. 8. Зависимость Φ_{min} от массового числа бомбардирующей частицы.