

7963

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА



Экз. чит. зала

С344.1м + С344.1с

С-89

13 - 7963

2401/1-74

В.Г.Субботин, Ю.П.Харитонов, В.Я.Выропаев,
В.Ф.Кушнирук

СПЕКТРОМЕТР РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ
И НЕКОТОРЫЕ ВОЗМОЖНОСТИ ЕГО ПРИМЕНЕНИЯ

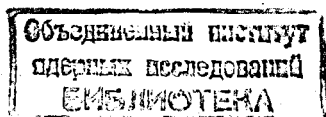
1974

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

13 - 7963

В.Г.Субботин, Ю.П.Харитонов, В.Я.Выропаев,
В.Ф.Кушнирук

СПЕКТРОМЕТР РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ
И НЕКОТОРЫЕ ВОЗМОЖНОСТИ ЕГО ПРИМЕНЕНИЯ



Развитие техники полупроводниковой рентгеновской спектрометрии – одного из важных методов ядерной физики – вызывает все больший интерес с точки зрения ее использования и в прикладных задачах, связанных с элементными анализами.

Особый интерес представляет спектрометр с разрешением 350 эВ, т.к. такое разрешение позволяет выделять соседние элементы большей части Периодической системы.

В данной работе приводится краткое описание основных элементов спектрометра с разрешением 330 эВ на линии 6,4 кэВ; даются анализ характера шумов, метод изготовления Si(Li) –детекторов, их характеристики и приводятся примеры использования спектрометра для элементного анализа некоторых образцов.

ВХОДНОЙ КАСКАД ПРЕДУСИЛИТЕЛЯ

Для того чтобы доступными мерами свести к минимуму общий шум входного каскада, при конструировании предусилителя особое внимание уделялось исследованию характера шумов и определению шумового вклада различных элементов.

Первый каскад выполнен по каскадной схеме с полевым и биполярным транзисторами, включенными в схему с общей базой^{1/}. Полевой транзистор имел при комнатной температуре следующие характеристики: $U_{нас.} = 3 \text{ В}$, $I_{нас.} = 8,4 \text{ мА}$, $S = 6,4 \text{ мА/В}$, $I_{затв.} =$

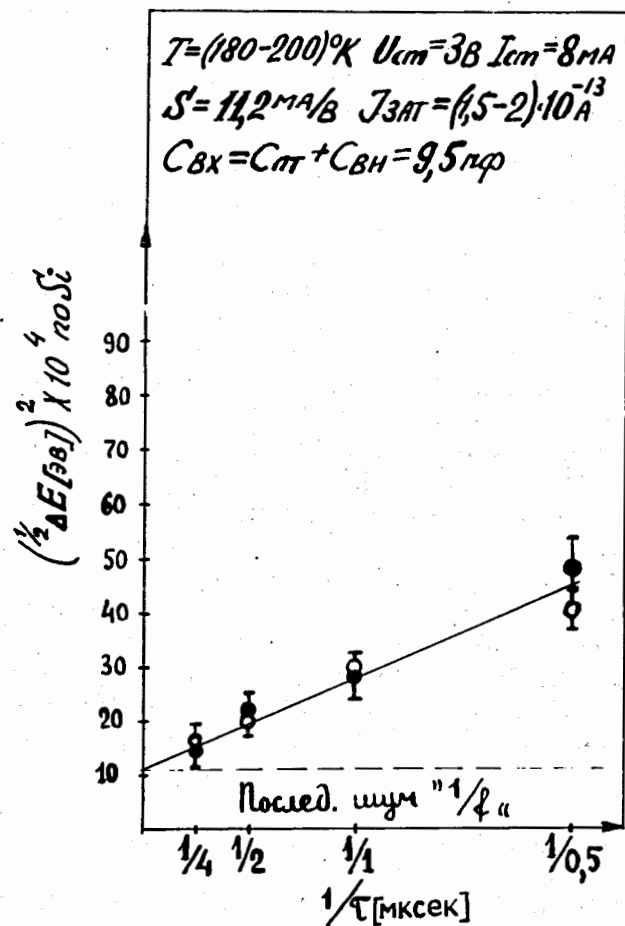


Рис. 1. Вклад шумов различного типа в разрешение предусилителя. \circ - разрешение по генератору для $C_{вх} = 9,5$ пФ, \bullet - расчётный последовательный шум для той же емкости, ---- - уровень последовательного шума типа "1/f".

$= 2,5 \cdot 10^{-12}$ А, $C_{вх} = 4,5$ пФ. При температуре $180-200^\circ\text{K}$ $S = 11,2$ мА/В, $I_{затв} \approx 2 \cdot 10^{-13}$ А.

Для уменьшения параллельного шума выбрана схема с обратной связью в сток^{2/}. В качестве диэлектрика для изготовления емкостей генератора и обратной связи использован фторопласт-4. Для уменьшения "1/f" - шума диэлектрика, через который проходят выводы полевого транзистора, корпус транзистора изготовлен из материала с малыми диэлектрическими потерями.

Последовательный шум предполагалось уменьшать путем применения многократного интегрирования с большими постоянными формирования. При этом для согласования с анализатором была изготовлена схема, преобразующая медленно нарастающий (15-20 мксек) выходной импульс основного усилителя в прямоугольный с фронтом ~ 150 нсек и длительностью 2 мксек.

На рис. 1 представлена зависимость квадрата разрешения $(\Delta E_1)^2$ от величины обратной постоянной времени формирования $1/\tau_{\phi}$. Эта зависимость получена для входной емкости $C_{вх1} = 9,5$ пФ, состоящей из входной емкости полевого транзистора $C_{пт} = 4,5$ пФ и $C_{внешн1} = 5$ пФ. Для определения доли последовательного шума выполнены аналогичные измерения с достаточно большой внешней емкостью ($C_{внешн2} = 33$ пФ), когда можно считать, что разрешение целиком определяется последовательным шумом. Доля последовательного шума $(\Delta E_1)^2_{\text{посл}}$ для малой входной емкости рассчитывалась затем по формуле:

$$(\Delta E_1)^2_{\text{посл}} = (\Delta E_2)^2 \left(\frac{C_{вх1}}{C_{вх2}} \right)^2, \quad (1)$$

где (ΔE_2) - разрешение, измеренное для случая $C_{вх2} = 4,5 + 33$ пФ. Результаты расчета $(\Delta E_1)^2_{\text{посл}}$ по формуле (1) для различных τ показаны на том же рис. 1 и практически совпали с измеренной зависимостью $(\Delta E_1)^2 = f(1/\tau_{\phi})$. Отсюда можно сделать вывод, что даже при малых входных емкостях (~ 5 пФ) разрешение исследуемого каскада определяется только последователь-

Источники ^{57}Co и ^{65}Zn

Si(Li)-детектор
 $S = 30 \text{ мм}^2$, $W = 3 \text{ мм}$
 $U_{\text{раб}} = 600 \text{ В}$
 $T_{\text{раб}} = -90^\circ \text{ К}$

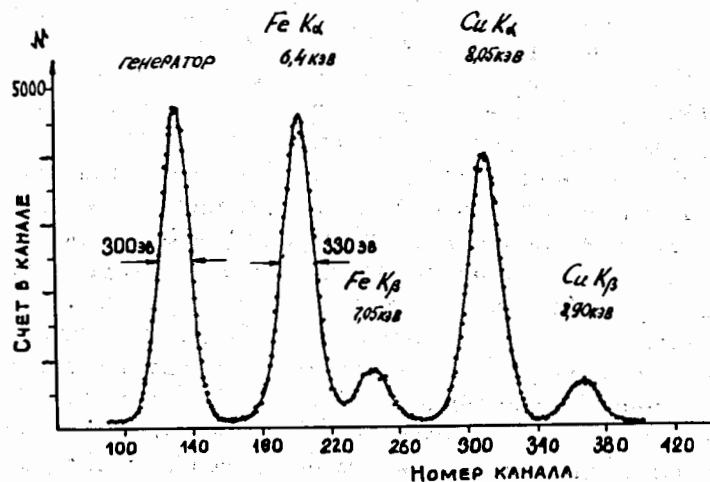


Рис. 2. Спектр рентгеновского излучения ^{57}Fe и ^{65}Cu , полученный с помощью спектрометра.

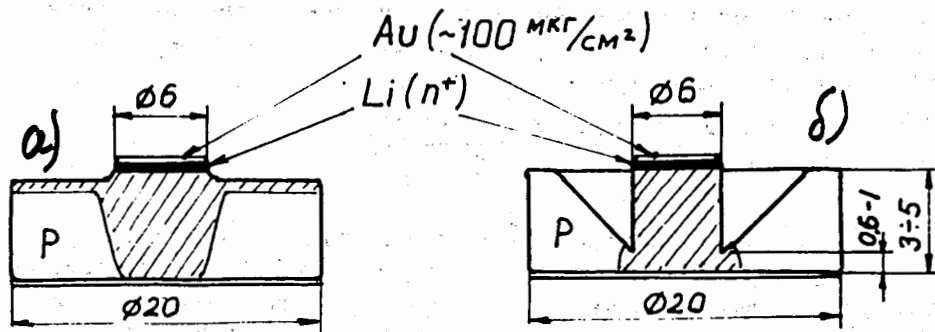


Рис. 3. Геометрия использованных в спектрометре детекторов: а) с двойным дрейфом; б) с глубокой канавкой.

ным шумом. Кроме того, поскольку последовательный "белый" шум пропорционален $1/\tau_{\text{ф}}$, а последовательный шум "1/f" не зависит от постоянных формирования $1/f$, можно сделать второй вывод: при достаточно больших постоянных формирования ($\tau_{\text{ф}} > 4 \text{ мксек}$) разрешение определяется почти полностью последовательным шумом типа "1/f".

Этот вывод подтверждается и измерениями, выполненными на полностью собранном спектрометре. При работе предусилителя с детектором ($C_{\text{дет}} \sim 2 \text{ пф}$) разрешение по линии генератора составило 300 эВ (рис. 2) и изменялось лишь на 20 эВ при изменении постоянных формирования в широких пределах: от двухкратного интегрирования по 2 мксек до четырехкратного - по 8 мксек.

Оптимальная рабочая температура полевого транзистора ($150 + 160^\circ \text{ К}$) определена по результатам измерений, аналогичных описанным выше для различных температур от 100 до 295° К .

Мы испытали также схему с резистивной обратной связью ($R_{\text{ос}} = 220 \text{ ГОм}$ типа КВМ). С теми же детектором и полевым транзистором разрешение осталось таким (300 эВ), как и для схемы с обратной связью в сток и так же слабо зависело от постоянных времени формирования. Это еще раз свидетельствует об определяющем вкладе последовательного шума типа "1/f".

ИЗГОТОВЛЕНИЕ И ХАРАКТЕРИСТИКИ Si(Li) - ДЕТЕКТОРОВ

Детекторы для спектрометра изготовлены из p-кремния, паспортные данные которого: $\rho = 800 - 1500 \text{ Ом}\cdot\text{см}$, $\tau = 700 - 900 \text{ мксек}$, плотность дислокаций $\sim 7 \cdot 10^3 \text{ см}^{-2}$. Перед изготовлением все пластины травились для выявления дислокации, и образцы, имеющие скопления или линии дислокаций, отбраковывались.

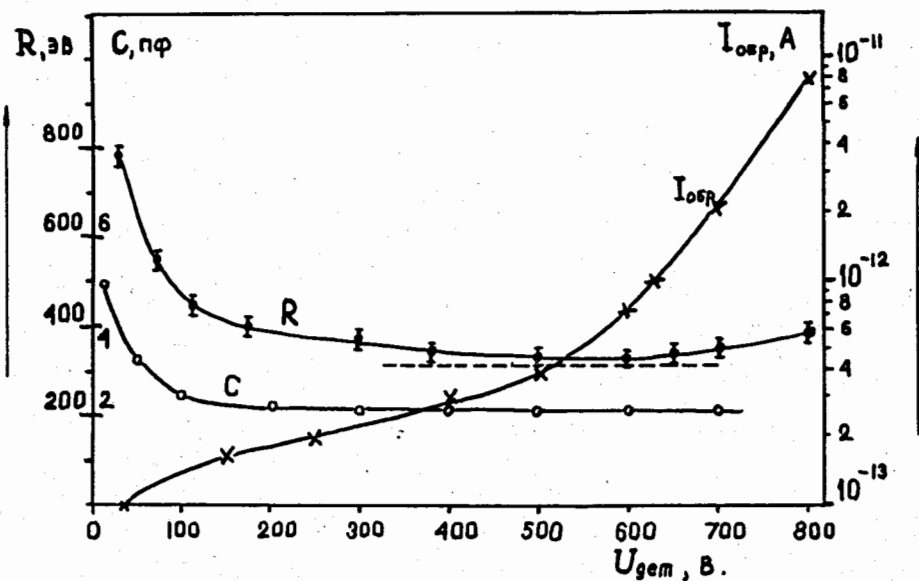


Рис. 4. Зависимость емкости (С), обратного тока ($I_{обр}$) и энергетического разрешения по линии 6,4 кэВ (R) от напряжения смещения для детектора ϕ 6 мм с толщиной чувствительной области $W = 3$ мм; ---- - уровень шумов электроники, определенный по генератору при подключенном детекторе.

В основном мы использовали общепринятые операции подготовки и травления кристаллов^{/3,4/}. В отличие от использованной нами ранее так называемой "меза" - структуры^{/3,4/}, в этой работе опробованы две другие конфигурации детекторов: а) с двойным дрейфом^{/5/}, б) с глубокой канавкой^{/6/} (рис. 3). Двойной дрейф^{/5/} мы использовали в надежде получить высокие рабочие напряжения. Действительно, при комнатной температуре изготовленные по такому способу детекторы имели вольт-амперные характеристики без заметной тенденции к пробое до напряжений смещения 1000 В (ток утечки при этом напряжении - 3-4 мкА). Однако при охлаждении до рабочей температуры ($90 \pm 100^\circ\text{K}$) токи утечки резко возрастали уже при 250 - 300 В. Кроме того, емкость таких детекторов оказывается на 1 - 2 пФ выше, чем у детекторов, имеющих геометрию "б" при равной толщине чувствительной области.

Для использования в спектрометре мы остановились на геометрии детектора с глубокой канавкой. После дрейфа на рабочую глубину (3-5 мм, температура дрейфа $110-115^\circ\text{C}$), в образце вырезалась канавка, образец травился в смеси кислот HF и HNO_3 (с защитой p^+ -контакта), затем напылялись золотые электроды и примерно в течение суток проводился выравнивающий дрейф при температуре $65-75^\circ\text{C}$. После этого детектор монтировался в криостат. Вакуум в криостате в рабочем состоянии был равен $\sim 10^{-6}$ мм рт. ст.

Основные характеристики одного из детекторов приведены на рис. 4. Собственное энергетическое разрешение детектора (за вычетом шумов электроники) при оптимальных напряжениях (400-600 В) близко к теоретическому пределу ~ 100 эВ для энергии рентгеновского излучения 6,4 кэВ.

Зависимость разрешения спектрометра от энергии рентгеновского излучения приведена на рис. 5. Статистическая разница

$$\Delta E_{изб} = \sqrt{\Delta E_{ап} - \Delta E_{эл} - 2,35^2 \epsilon FE}$$

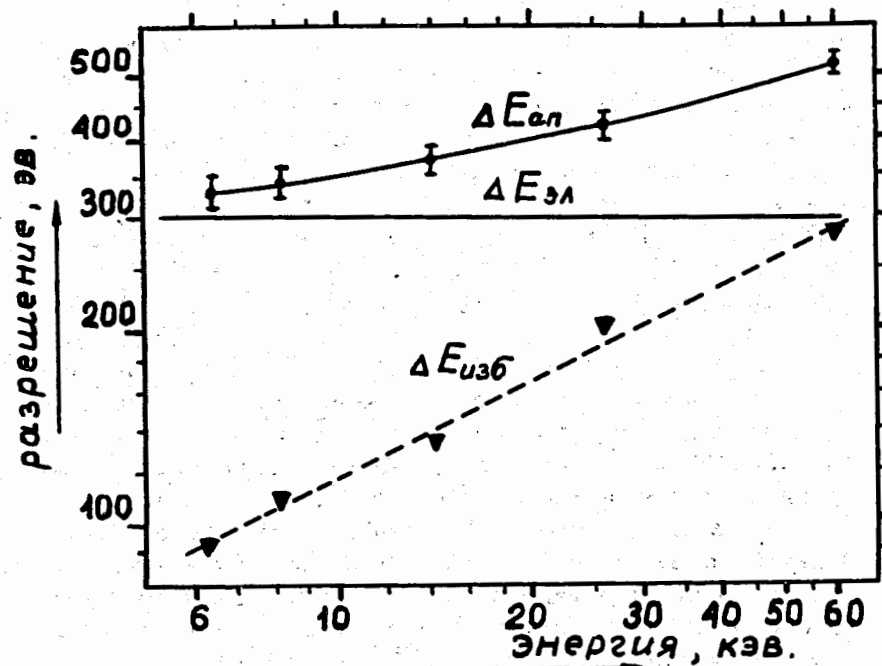


Рис. 5. Зависимость энергетического разрешения спектрометра ($\Delta E_{ап}$) от энергии рентгеновского излучения.

характеризует дополнительное размытие линий спектра, обусловленное качеством исходного кремния. В первом приближении $\Delta E_{изб} \sim \sqrt{E}$ и связано, вероятно с низким временем жизни носителей при температурах 90 - 100°K.

ЭЛЕМЕНТНЫЙ АНАЛИЗ С ПОМОЩЬЮ СПЕКТРОМЕТРА

Некоторые возможности изготовленного спектрометра иллюстрируются ниже примерами его применения для элементного анализа с регистрацией флуоресцентного рентгеновского излучения или излучения, вызванного процессами внутренней конверсии электронов в образцах, предварительно облученных нейтронами. Во всех случаях использовались образцы известного элементного состава.

При флуоресцентном анализе для возбуждения рентгеновского излучения использовался источник ^{109}Cd активностью 15 мКюри. Геометрия измерения показана на рис. 6. В диапазоне анализируемых энергий от 4,5 до 18 кэВ (20-й и 400-й каналы анализатора) фон приблизительно постоянен и составлял не более 0,3 имп/канал за 41 мин. В этом диапазоне энергий можно проводить анализ на элементы от V до Mo по K-линиям рентгеновского излучения и от La до U по L-линиям.

На рис. 7 приводится спектр фильтра воздуха, взятого в лесном массиве. При фильтрации из воздуха отбирались частицы пыли с размерами менее 50 мкм. Проба помещалась в кювету с доньшком из 2-микронного лавсана. Вес пробы - 80 мг, толщина слоя ~ 27 мг/см².

Помимо отмеченных на рис. 7 элементов проба содержала Hg, Br, Se, As в концентрациях ~ 10⁻¹² г/литр, а также Co, редкие земли, Hf, W, Th и U в концентрациях 10⁻¹³ - 10⁻¹⁵ г/литр, которые были определены нейтронно-активационным ме-

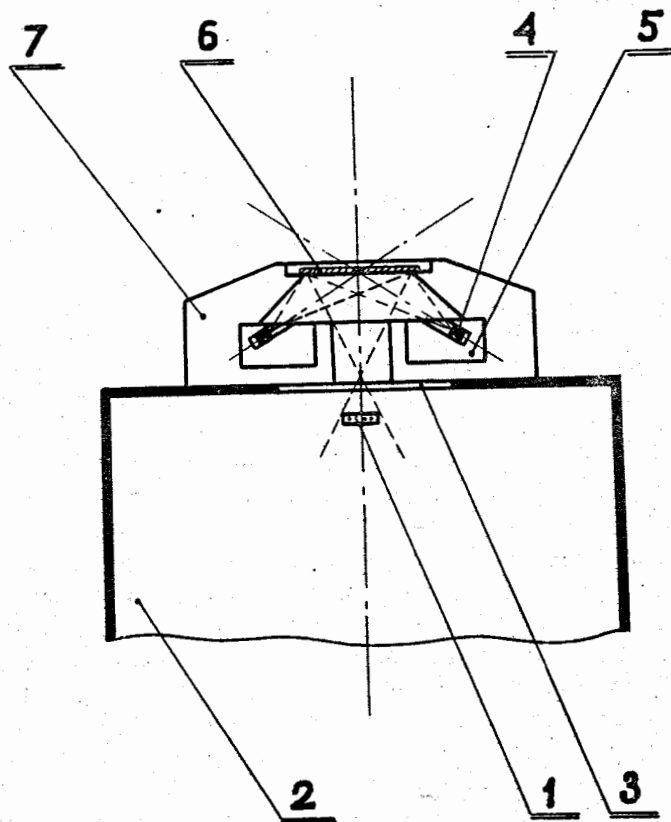


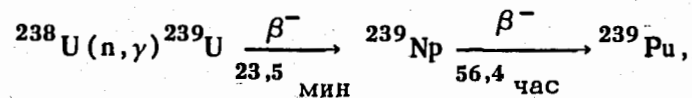
Рис. 6. Геометрия измерений, использованная при флюоресцентном анализе. 1 - детектор, 2 - крышка кристалла, 3 - бериллиевое окно, 4 - источник ^{109}Cd , 5 - защита из свинца, 6 - образец, 7 - защита из титана.

тодом. Однако этим методом не удалось определить Pb, Rb, Sr, Zr, которые четко выделяются на флюоресцентном спектре (рис. 7).

Указанные концентрации Fe, Cu, Zn и Mo определены методом нейтронно-активационного анализа, а концентрации Pb, Rb, Sr, Zr оценены по известной концентрации Zn и сечениям фотоэффекта.

На рис. 8 приведен спектр искусственного гранита, содержащего по 0,2% эталонных элементов As, Cu, Ni, Pb и Zn. Компоненты основы - SiO_2 (70%), Al_2O_3 (18%), Fe_2O_3 (2%), MgO (2%), CaCO_3 (2%), Na_2CO_3 (3%) и K_2SO_4 (3%). Вес пробы - 250 мг, толщина слоя - 80 мг/см², время набора информации - 5 мин. В спектре отчетливо выделяются линии, соответствующие соседним по Z элементам Ni, Cu, Zn.

Пример спектра рентгеновского излучения образца, предварительно облученного нейтронами, показан на рис. 9. Образцом служила анионитная смола, применяемая в цветной металлургии для избирательного извлечения различных элементов. Для определения содержания урана в смоле 860 мг смолы облучались в течение 90 час. в потоке нейтронов $\sim 10^{10}$ н/см²сек. Спектр γ -излучения ^{239}Np , получающегося в реакции



измерялся через 60 час. после облучения с помощью Ge(Li) -детектора объемом 35 см³. В области γ -линии ^{239}Np (208, 228 и 278 кэВ) при этом наблюдался сильный комптоновский фон из-за присутствия в пробе Na, Fe и других элементов. Отношение пика (за вычетом фона) к фону для линии 278 кэВ составляло лишь $\sim 0,4$. Как видно из рис. 9, регистрация L-серии излучения ^{239}Pu , испускаемого при β -распаде ^{239}Np , может существенно повысить точность анализа. По результатам анализа на уран, проведенного с

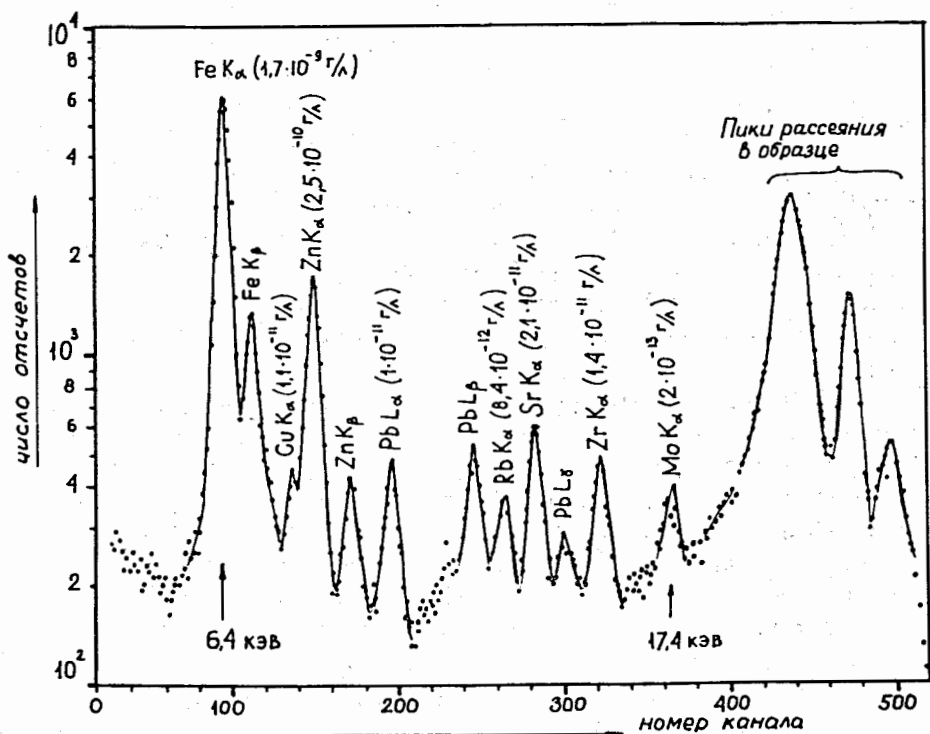


Рис. 7. Спектр фильтрата воздуха. Концентрация пыли в воздухе $\sim 0,01$ мг/м³. Вес пробы 80 мг, время измерения - 30 мин.

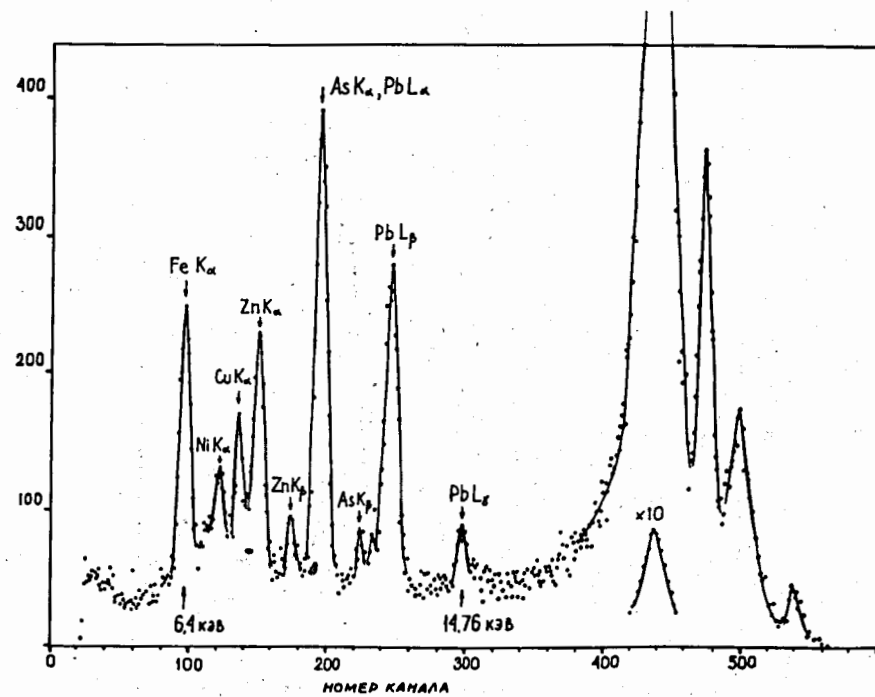


Рис. 8. Спектр искусственного гранита, содержащего по 0,2% As, Cu, Ni, Pb и Zn. Вес пробы 250 мг, время измерения - 5 мин.

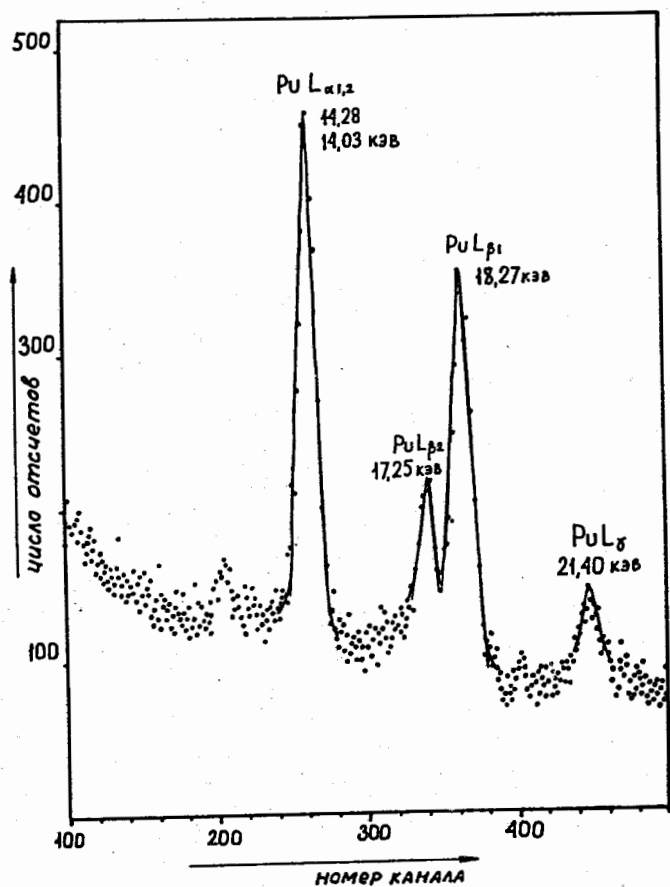


Рис. 9. Спектр насыщенной анионитной смолы после облучения интегральным потоком нейтронов $\sim 3 \cdot 10^{15} \text{ н/см}^2$. Вес пробы 500 мг, время измерения - 30 мин.

с помощью диэлектрических детекторов, концентрация его в образце составляла $\sim 3,3 \cdot 10^{-5} \text{ г/г}$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Достигнутый в спектрометре уровень шума ~ 300 эВ в основном определяется последовательным шумом типа "1/f" входного каскада предусилителя. Емкости (генераторная и обратной связи) и резистор обратной связи типа КВМ достаточно большого номинала ($> 200 \text{ гОм}$) не вносят существенного вклада в шумовую характеристику спектрометра.

Достаточно простые методы изготовления позволяют получить детекторы с токами утечки $\leq 10^{-12} \text{ А}$ при рабочих напряжениях. Такой ток не вносит заметного вклада в разрешение спектрометра.

Качество использованного для изготовления детекторов кремния ($\tau \approx 800 \text{ мксек}$, $N_{\text{дислок}} \sim 7 \cdot 10^3 \text{ 1/см}^2$) существенно не сказывается на разрешении при малых энергиях рентгеновского излучения (6-8 кэВ). При больших энергиях наблюдается заметное превышение над теоретически возможным разрешением, что связано, по-видимому, с низким временем жизни носителей при температурах $90 - 100^\circ \text{ К}$.

Разрешение 330 - 350 эВ позволяет эффективно использовать спектрометр для решения вопросов, связанных с анализом воды, воздуха, почвы, анализом руд и в других прикладных задачах народно-хозяйственного значения. Спектрометрия рентгеновского излучения в ряде случаев очень удачно дополняет нейтронно-активационный метод и позволяет повысить качество и точность анализа.

Следует отметить, что получаемая с помощью полупроводникового спектрометра рентгеновского излучения информация может быть легко приспособлена для обработки на вычислительных машинах. Особенно эффективно применение ЭВМ при многоэлементном анализе, когда спектры имеют сложный характер. С другой сто-

роны, при малоэлементном анализе могут быть использованы достаточно простые устройства, позволяющие получать оперативную информацию в полевых условиях.

Авторы выражают глубокую благодарность академику Г.Н.Флерову за постановку данной работы и энергичную поддержку.

Авторы благодарят В.В.Фурсова за полезные обсуждения и помощь в изготовлении элементов предусилителя, а также В.И.Томина, А.В.Соколова, Р.А.Никитину и А.В.Рыхлюк, принимавших участие в настройке аппаратуры и изготовлении $Si(Li)$ -детекторов.

Литература

1. V. Radeka. *International Symposium on Nuclear Electronics. Versailles. France, Sept. 10-13, 1968.*
2. E. Elad. *IEEE Trans. NS-19 N1 (1972), p. 403.*
3. Бачонэ, В.Ф. Кушнирук, В.Г. Субботин, З.А. Тер-Акопьян, Ю.П. Харитонов, Зо Зен Сам. Препринт ОИЯИ, Р13-3718, Дубна, 1968.
4. F. Goulding. *UCRL-16231 (1965).*
5. F. Goulding, R. Lothrop. *UCRL-17557 (1967).*

Рукопись поступила в издательский отдел
20 мая 1974 года.