

А 139

УДК 539.1.074

13-88-698

АБДУШУКУРОВ
Джамшед Алиевич

РАЗРАБОТКА, ИССЛЕДОВАНИЯ
МНОГОСТУПЕНЧАТЫХ ЛАВИННЫХ ДЕТЕКТОРОВ
И ИХ ПРИМЕНЕНИЕ
ДЛЯ РАДИОИЗОТОПНОГО АНАЛИЗА

Специальность: 01.04.01 - экспериментальная физика
Автореферат диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Работа выполнена в Лаборатории высоких энергий
Объединенного института ядерных исследований.

Научный руководитель
доктор физико-математических наук
старший научный сотрудник

ПЕШЕХОНОВ
Владимир Дмитриевич

Официальные оппоненты:
доктор физико-математических наук
старший научный сотрудник

ЛЯПИДВСКИЙ
Виктор Константинович

кандидат физико-математических наук
старший научный сотрудник

ШАФРАНОВ
Михаил Дмитриевич

Ведущее научно-исследовательское учреждение

Ленинградский институт ядерной физики
им. Б.П.Константинова АН СССР, г. Гатчина

Защита диссертации состоится " " 1988 года
в " " часов на заседании специализированного совета Д-047.01.02
при Лаборатории высоких энергий Объединенного института ядерных
исследований, г.Дубна Московской области

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ЛВЭ ОИЯИ
Автореферат разослан " " 1988 г.

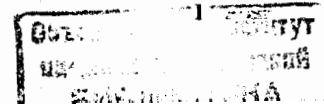
Ученый секретарь
Специализированного совета *М.Ф.Лихачев* М.Ф.ЛИХАЧЕВ.

Актуальность. Методы и аппаратура экспериментальной ядерной физики постоянно пополняются детекторами новых видов, обладающими более высокими пространственными и временными возможностями. Разработаны новые сцинтилляторы ВG O и ВаF₂, находят применение микроканальные пластины, приборы с зарядовой связью и др. Тем не менее значимость газовых позиционно-чувствительных детекторов (ГПЧД) не уменьшается. Это связано с их относительно невысокой стоимостью, технологичностью изготовления детекторов различной формы и размеров, а также с хорошими пространственными и временными характеристиками этих детекторов.

В результате развития методики ГПЧД в 1979 г. в ЦЕРНЕ был предложен новый тип детектора - многоступенчатая лавинная камера (МСЛК). Сообщение об этом стимулировало разработку и изучение характеристик этих детекторов во многих научных центрах и в том числе в ОИЯИ. МСЛК обладает рядом преимуществ по сравнению с традиционными многопроволочными пропорциональными камерами (МПК). К числу таких преимуществ можно отнести следующие: более высокий коэффициент газового усиления (10^6+10^7); высокое быстродействие (10^5 л/с·мм²); равнозначность по обем (X и Y) координатам и значительно лучшее пространственное разрешение при регистрации изотропного излучения. Эти преимущества открыли новые возможности для применения ГПЧД.

Газовые ПЧД наряду с физикой высоких энергий применяются и в прикладных областях науки и техники, в том числе в медицине и биологии для радиоизотопного анализа. Эти детекторы позволяют регистрировать двумерную картину распределения радиоактивности по площади образцов с высокой эффективностью и быстродействием. При анализе меченых тритием образцов хорошо зарекомендовали себя МПК, но плохое пространственное разрешение при регистрации излучения радионуклидов ¹⁴C, ³²P и др. ограничивало возможность их применения. Установки на основе МСЛК позволили значительно улучшить пространственное разрешение при анализе образцов, содержащих радионуклиды ¹⁴C, ³²P, ³⁵S и ¹²⁵I. Разработанные радиохроматографы позволили поднять уровень автоматизации радиоизотопных анализов. Их применение позволило на два порядка сократить время анализа образцов и одновременно уменьшить количество требуемого для исследования материала. Поэтому задача разработки и применения для радиоизотопных анализов детекторов на основе МСЛК и МПК является, несомненно, актуальной.

Цель работ заключалась в разработке многоступенчатых лавинных камер, изучения их характеристик с целью дальнейшего использования этих детекторов в практике радиоизотопного анализа β- и γ-активных образцов для повышения чувствительности и пространственного разрешения методов анализа.



Конструктивно МСЛК состоит из стандартной МПК, расположенной в едином газовом объёме с электродами А, В и С (рис.1), на которые подведены соответствующие потенциалы. Электроды образуют конверсионный (АВ), предусилительный (ВС) и дрейфовые (СД) промежутки. Конверсионный промежуток используется для эффективного поглощения γ -квантов. Образованные электроны под действием слабого электрического поля (~ 2 кВ/см) переводятся в плоскопараллельный промежуток предварительного усиления, где в сильном электрическом поле (до 10 кВ/см) развивается электронно-фотонная лавина. Часть электронов лавины через дрейфовый промежуток (СД) переводится в МПК, где происходит дальнейшее газовое усиление и осуществляется регистрация событий. Координатная информация считывается при помощи линий задержек с двух ортогонально намотанных (X и Y) катодных плоскостей.

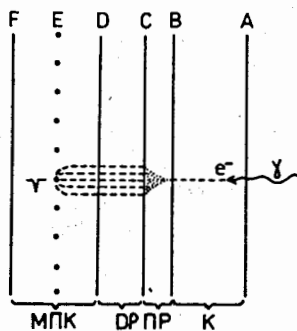


Рис.1.

Схематическое изображение МСЛК. К - конверсионный, ПР - предусилительный и ДР - дрейфовые промежутки, D, F - катоды и E - анод МПК.

При работе МСЛК используют смеси благородного газа с небольшим количеством добавки. При этом потенциал ионизации газовой добавки должен быть ниже уровня возбуждения используемого благородного газа.

Характеристики МСЛК исследовались на созданном для этих целей стенде.

Одним из основных достоинств МСЛК является большой коэффициент газового усиления G , определяемый как:

$$G = K \cdot G_{\text{пр}} \cdot G_{\text{мпк}}, \quad (1)$$

где $G_{\text{пр}}$ - и $G_{\text{мпк}}$ - коэффициенты газового усиления предусилительного промежутка и МПК. Коэффициент K характеризует эффективность перевода лавины из предусилительного промежутка в дрейфовый и примерно равен отношению напряженности электрических полей промежутков ($E_{\text{др}}/E_{\text{пр}}$). Величина газового усиления в промежутке ВС определяется выражением

$$G_{\text{пр}} = (\exp(\alpha L) - 1) / (1 - \alpha L), \quad (2)$$

где α - первый коэффициент Таусенда, а L - величина зазора предусилительного промежутка. При регистрации γ -квантов с энергией 6 кэВ достигался коэффициент предварительного усиления $G_{\text{пр}} - 10^5$. На рис.2 приведена зависимость величины $G_{\text{пр}}$ от напряженности электрического поля в предусилительном промежутке толщиной 3 мм.

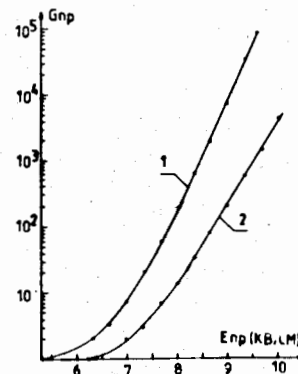


Рис.2. Величина коэффициента предварительного усиления в зависимости от напряженности электрического поля. Газовая смесь $Ar + 1,6\%$ ацетона (кривая 1) и 3% ацетона (кривая 2).

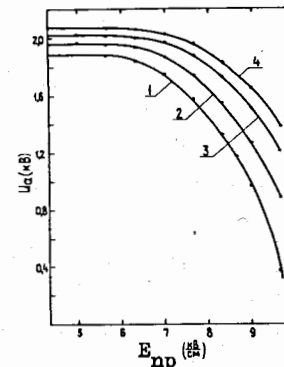


Рис.3. Взаимосвязь, указывающая на соотношение величин $G_{\text{пр}}$ и $E_{\text{пр}}$. Газовая смесь аргона с $1,6\%$; $2,1\%$; $2,6\%$; 3% ацетона - соответственно кривые 1 ÷ 4.

Наличие дополнительного усиления в промежутке ВС позволяет снизить напряжение на аноде МПК. Взаимосвязь между величинами напряженности поля в предусилительном промежутке и напряжением на аноде МПК показана на рис.3. Все точки приведенных зависимостей отвечают фиксированному значению G . При $G_{\text{пр}} > 10^4$ наблюдаются редкие искровые пробои в предусилительном промежутке. Общий коэффициент усиления МСЛК с учетом усиления в МПК может достигать значения $G = 10^6 + 10^7$. При $G > 10^6$ наблюдается повторное срабатывание МСЛК, обусловленное фотонной обратной связью. Часть фотонов, образованных в МПК, достигают электрода А (входного окна, выполненного из Al - майлара), вызывая появление вторичных импульсов спустя 1 мкс после первого срабатывания.

Счётные характеристики МСЛК при регистрации γ -квантов от источника ^{55}Fe показаны на рис.4. Зависимости получены для различных значений $E_{\text{пр}}$. Временное разрешение МСЛК $20 + 30$ нс (ШПВ) при использовании смесей на основе аргона и 15 нс (ШПВ) для неоновых смесей.

Эти детекторы в отличие от МПК равноточны по обеим (X и Y) координатам. Так, величина пространственного разрешения при регистрации узкоколлимированного пучка γ -квантов (^{55}Fe) составила 400 мкм (ШПВ) по обеим координатам.

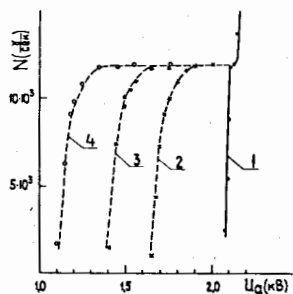


Рис.4. Счётные характеристики детектора в зависимости от величины на - прядения на аноде МПК. Величина Епр равна 2 кВ/см (1); 8,3 кВ/см (2); 9,0 кВ/см (3) и 9,7 кВ/см (4).

сигналов будет соответствовать точке входа частиц в детектор. МСЛК позволяют различить два расположенных на входном окне детектора источника ^{14}C при расстоянии между их границами более 1 мм и в случае ^{32}P — более 1,5 мм (1).

Предложен способ улучшения пространственного разрешения МСЛК при регистрации изотропного заряженного излучения путем амплитудного анализа событий (2). При этом по амплитуде сигналов можно косвенным образом судить об угле входа частиц в объём камеры. Применение данного способа — "электронной коллимации" — позволяет примерно в 2 раза улучшить пространственное разрешение при регистрации излучения ^{14}C , ^{32}P и ^{35}S .

Исследована зависимость характеристик МСЛК от концентрации газовых добавок (3). Зависимость коэффициента газового усиления от концентрации добавки хорошо описывается выражением

$$G(p) = 10^{-(n \cdot p)}, \quad (3)$$

где p — концентрация добавки в %, а n — коэффициент, зависящий от p и для диапазона 0,5 + 3% равный 2. Так, изменение p в пределах $\pm 0,5\%$ вызывает изменение G в ± 10 раз. Оптимальной для достижения максимального коэффициента усиления является концентрация 1,5 + 2%.

Предложены новые газовые смеси для работы МСЛК (3), такие, как $\text{Ar} + \text{n}$ — гептан, $\text{Ar} + \text{изопропиловый спирт}$, $\text{Ne} + \text{метан}$, $\text{Ne} + \text{Ar} + \text{метан}$. Описаны способы стабилизации режимов работы МСЛК, которые при использовании вышеуказанных смесей позволяют обеспечить долговременную высокостабильную работу детекторов.

В третьей главе рассмотрены конструктивные особенности МСЛК, а также исследовано влияние некоторых элементов конструкции на характеристики МСЛК.

Для электродов дрейфового и предусилительного промежутков, выполняемых в виде сеток с высокой оптической прозрачностью, выбраны оптимальные величины шага их намотки и диаметра проволоки.

Устойчивая работа МСЛК может быть достигнута и без дрейфового (СД, см. рис.1) промежутка. Исследования подобных двухступенчатых структур, которые также позволяют получать достаточно высокое газовое усиление, выявили ряд их недостатков. Так, при возникновении искрового пробоя происходит пробой линий задержек и выход из строя усилителей.

При регистрации γ — излучения необходимо использовать широкий (10 + 20 мм) конверсионный промежуток. При регистрации β — излучения желательнее использовать конверсионный промежуток величиной 0,5 + 1 мм.

В силу того, что G экспоненциально зависит от величины L (обычно $L = 3+8$ мм) и коэффициента α , для получения хорошего пространственного разрешения необходимо уменьшать зазор предусилительного промежутка. При этом возрастают требования к параллельности промежутков. Выражение

$$\Delta L = \Delta G / \bar{G} \cdot 1/\alpha = \Delta G / \bar{G} \cdot L / e_n \bar{e} \quad (4)$$

позволяет определить необходимую точность изготовления этого промежутка.

Кратко рассмотрены принципы съёма координатной информации при помощи электромагнитных линий задержек (ЛЗ). Описана конструкция, методы расчёта и параметры ЛЗ.

Четвёртая глава посвящена исследованию характеристик детекторов, составивших основу автоматизированных установок для радиоизотопного анализа биохимических веществ. Кратко рассмотрены биохимические методы, использующие в качестве метки радиоактивные изотопы. Описаны некоторые особенности регистрации излучения тонкослойных образцов и проанализирован опыт практического применения разработанных радиохроматографов.

Сформулированы основные требования, предъявляемые к детекторам излучения: проведение одновременного, неразрушающего и экспрессного анализа всей площади образцов размером 150 x 150 мм²; высокая эффективность и низкий уровень собственных шумов; хорошее пространственное разрешение при регистрации β — излучения в широком диапазоне их энергий; возможность автоматизированной обработки регистрируе-

мой информации. Детекторы на основе МСЛК и МПК в значительной степени удовлетворяют этим требованиям.

В главе рассмотрены состав аппаратуры и программное обеспечение разработанных установок. Типичная блок-схема установки приведена на рис.5

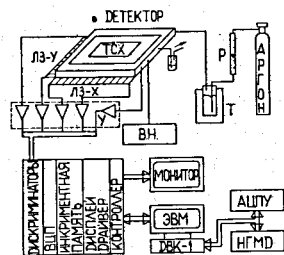


Рис.5. Блок-схема установки.

У - усилители, Р - ротаметр, Т - термостат, ВН - высоковольтные источники напряжения; ТХС - тонкослойная хроматограмма.

Установка для цифровой автордиографии (9,10), созданная впервые в стране на основе многоступенчатой лавинной камеры, предназначена для радиоизотопного анализа биополимеров, меченных радионуклидами ^{14}C , ^{32}P , ^{35}S и ^{125}I . Установка осуществляет пространственную локализацию β -активных радионуклидов, а также радионуклидов, испускающих мягкое рентгеновское и γ -излучение (^{125}I). Результаты анализа представляются в удобном для восприятия графическом виде на экран цветного телемонитора, графопостроитель и АЦПУ. Установка с 1983 г. эксплуатируется в ИМБ АН СССР (г.Москва).

На основании опыта, накопленного при разработке, исследовании характеристик и эксплуатации этой установки, были разработаны двумерные детекторы, составившие основу малой серии радиохроматографов РДОI.

Радиохроматограф РДОI-1 предназначен для работы с образцами меченными тритием. Низкая энергия β -излучения трития (E макс=18 кэВ) диктует необходимость или ввода образцов непосредственно в газовый объем детектора, или существенного уменьшения толщины входного окна детектора. В процессе создания РДОI-1 были разработаны и исследованы пропорциональная камера "МПК-Н", в которой осуществляется ввод образцов в газовый объем детектора, и многоступенчатая лавинная камера "МСЛК-Н" с тонким входным окном большой площади. Основные характеристики детекторов представлены в таблице 1.

Радиохроматографы РДОI-2+3 предназначены для работы с образцами, меченными радионуклидами ^{14}C , ^{32}P , ^{35}S и ^{125}I . Эти установки созданы на основе МСЛК. Основные характеристики детекторов приведены в таблице 2.

Радиохроматографы внедрены в ИМБ АН СССР (г.Москва), в ИБХ АН СССР (г.Москва) и в ИБ АН СССР (г.Пушино).

Таблица 1

	"МПК-Н"	"МСЛК-Н"
Чувствительная площадь	200 x 200 мм ²	150 x 150 мм ²
Входное окно	---	100 мкг/см ²
Газовая смесь	А ₂ + 20% метан + 3% спирт	А ₂ + н-гептан
Расход газа	300 см ³ /мин.	150 см ³ /мин
Пространственное разрешение	0,7 мм	0,7 мм
Эффективность регистрации ^3H с бесконечно тонкого слоя	20%	6%
Шумы детектора	12 имп/мин·см ²	4,8 имп/мин·см ²
Минимальная чувствительность ^3H с подложек фирмы "Merck"	270 пКи/см ²	810 пКи/см ²

Таблица 2

Чувствительная площадь	180 x 180 мм ²
Входное окно	20 мкм АС - майлар
Газовая смесь	А ₂ + н-гептан
Пространственное разрешение при контрастном отношении 30% для ^{14}C	1 мм
^{32}P и ^{125}I	2 мм
Эффективность регистрации (Минимальная чувствительность)	
^{14}C	18% (16 пКи/см ²)
^{32}P	44% (7 пКи/см ²)
^{125}I	3,5% (90 пКи/см ²)
Шумы детектора	2 имп/мин·см ²

Разработана методика экспресс-анализа меченных радионуклидами биополимеров. Рассмотрены факторы, влияющие на эффективность и минимальную чувствительность установок. При использовании радионуклида ^{32}P метод позволяет непосредственно определять абсолютную активность препаратов. При анализе биополимеров, меченных ^{14}C и ^{35}S , необходимо учитывать ослабление излучения в тонкослойных носителях. При регистрации излучения трития можно лишь определять относительное содержание активности по меткам.

Проведено сравнение радиохроматографов с традиционно используемыми методами, которые характеризуются большими временами экспозиции (авторадиография) и большой трудоёмкостью (метод жидких сцинтилляторов). Радиохроматографы обладают пространственным разрешением, близким к получаемому в "непрямой" авторадиографии, и эффективностью, сравнимой со сцинтилляционным методом. Радиохроматографы на основе МПК целесообразно применять при регистрации излучения трития, а на основе МСЛК при регистрации излучения ^{14}C , ^{32}P , ^{35}S и ^{125}I . Детекторы в радиохроматографах взаимозаменяемы.

Описаны некоторые применения радиохроматографов. Показана возможность их применения для определения радиохимической чистоты препаратов, меченных тритием (4).

Впервые показана возможность и разработана методика одновременной обработки результатов твердофазного радиоиммунологического анализа на стандартных 96- и 60-луночных планшетах и фильтрах (8). На рис. 6 показан результат тестового измерения 96-луночного планшета, во все лунки внесено примерно равное количество ^{125}I .

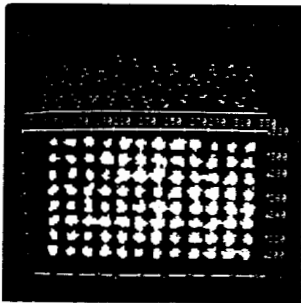


Рис. 6. Результат анализа 96-луночного планшета. Снимок с экрана телемонитора.

В заключении сформулированы основные выводы диссертации:

1. Впервые в стране разработана многоступенчатая лавинная камера, исследованы её характеристики, отработана конструкция и технология изготовления.

2. Проведены детальные исследования характеристик МСЛК при использовании различных газовых смесей и при разных концентрациях газовых добавок. Выведена эмпирическая зависимость коэффициента газового усиления МСЛК от концентрации добавок. Предложены новые газовые смеси, такие как $\text{Ar} + \text{n-гептан}$, $\text{Ne} + \text{метан}$, $\text{Ne} + \text{Ar} + \text{метан}$, обеспечивающие долговременную высокостабильную работу МСЛК.

3. Впервые предложен способ улучшения пространственного разрешения МСЛК при регистрации изотропного β -излучения. Показано, что

амплитудный анализ событий позволяет судить об угле входа частиц в объём МСЛК.

4. Разработаны и исследованы позиционно-чувствительные детекторы для регистрации мягкого β -излучения трития: многопроволочная пропорциональная камера "МПК-Н" и многоступенчатая лавинная камера "МСЛК-Н". При этом впервые разработана МСЛК с тонким 100 мкг/см^2 входным окном большой площади ($150 \times 150 \text{ мм}^2$). Детекторы обладают хорошим пространственным разрешением - $0,7 \text{ мм}$, и эффективностью регистрации излучения ^3H с бесконечно тонкого слоя 20 и 6% (МПК-Н и МСЛК-Н соответственно).

5. Разработана, исследована и внедрена установка для цифровой авторадиографии на основе многоступенчатой лавинной камеры. Установка предназначена для пространственной локализации и измерения активностей биополимеров, меченных радионуклидами ^{14}C , ^{32}P , ^{35}S и ^{125}I .

6. Разработана методика экспресс-анализа меченных радионуклидами веществ при помощи двумерных газовых детекторов. Использование данной методики по сравнению с традиционными методами позволяет сократить время анализа на два порядка, при одновременном уменьшении требуемого для анализа вещества.

7. Впервые показана возможность и разработана методика одновременной обработки результатов радиоиммунологического анализа на стандартных 96- и 60-луночных планшетах и фильтрах, при помощи ГПЧД.

8. На основе накопленного опыта разработаны и исследованы детекторы, составившие основу малой серии радиохроматографов РДО1. Радиохроматографы внедрены в ведущие биологические центры АН СССР.

Основные результаты диссертации опубликованы в работах:

1. Абдушукуров Д.А., Заневский Ю.В., Мовчан С.А. и др. Исследование характеристик многоступенчатой лавинной камеры. ОИЯИ, 13-82-216, Дубна, 1982.

2. Абдушукуров Д.А., Заневский Ю.В. и Пешехонов В.Д. Исследование влияния состава газовых смесей на характеристики многоступенчатых лавинных камер. ОИЯИ 13-87-245, Дубна, 1987.

3. Абдушукуров Д.А. и Смыков Л.П. Возможность улучшения пространственного разрешения в многоступенчатых лавинных камерах. ОИЯИ 13-87-290, Дубна, 1987.

4. Абдушукуров Д.А., Александров Е.В., Заневский Ю.В. и др. Разработка позиционно-чувствительных детекторов для исследований биологических объектов, меченных тритием. ОИЯИ, 18-85-391, Дубна, 1985.

5. Абдурашидова Г.Г., Абдушукуров Д.А., Аксентьева М.С. и др.

Применение многоступенчатой лавинной камеры для анализа распределения радиоактивности после двумерного разделения смеси меченных соединений. Анализ ^{125}I - меченных белкой 30S - субчастиц рибосом. В сборнике "Краткие сообщения ОИЯИ, № 9-85, Дубна, 1985, с.19.

6. Абдурашидова А.Г., Абдушукуров Д.А., Будовский Э.И. и др. Использование многоступенчатой лавинной камеры для анализа распределения радиоактивности после двумерного разделения смеси меченных соединений. Анализ ^{32}P - меченных олигонуклеотидов. ОИЯИ 18-86-64, Дубна, 1986.

7. Заневский Ю.В., Абдушукуров Д.А., Анисимов Ю.С. и др. Автоматические системы на основе МПК для электронной автордиографии. *Isotopenpraxis*, 1987, 23, p.343.

8. Абдушукуров Д.А., Заневский Ю.В., Меркушов А. и др. Возможность применения двумерного проволочного позиционночувствительного детектора для радиометрического определения результатов твердофазного радиоиммунологического анализа. ОИЯИ P18-84-758. Дубна, 1984.

9. Абдушукуров Д.А., Абдурашидова Г.Г., Заневский Ю.В. и др. Разработка и биомедицинское применение многоступенчатой лавинной камеры. ОИЯИ 18-84-182, Дубна, 1984; *Nucl. Instr. and Meth.*, 1985, A238, p.119.

10. Анисимов Ю.С., Абдушукуров Д.А., Заневский Ю.В. и др. Разработка и применение координатных многопроволочных детекторов для экспресс-анализа меченных соединений в тонких слоях. ОИЯИ, 18-85-282, Дубна, 1982; *Nucl. Instr. and Meth.*, 1986, v.B17, p.524.

11. Анисимов Ю.С., Абдушукуров Д.А., Черемухина Г.А. и др. Некоторые применения многопроволочных координатных детекторов в молекулярной биологии и кристаллографии. *Nucl. Instr. and Meth.*, 1986, v.A252, p.260.

12. Анисимов Ю.С., Абдушукуров Д.А., Заневский Ю.В. и др. Автоматизированные радиохроматографы для анализа меченных радионуклидами соединений на плоских носителях. ОИЯИ, 18-87-289, Дубна, 1987.

Рукопись поступила в издательский отдел
20 сентября 1988 года.