

УДК 539.1.074

## НИЗКОФОНОВЫЙ СПЕКТРОМЕТР ПОВЕРХНОСТНОЙ АЛЬФА-АКТИВНОСТИ БОЛЬШИХ ОБРАЗЦОВ

Ю.М. Гаврилюк<sup>1</sup>, А.М. Гангапшев<sup>1</sup>, В.В. Казалов<sup>1</sup>, В.В. Кузьминов<sup>1</sup>,  
С.М. Панасенко<sup>2</sup>, С.С. Раткевич<sup>2</sup>, И.Д. Федоренко<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Институт ядерных исследований, Российская академия наук, пр. 60-летия Октября, 7а, г. Москва, 117312, Россия

<sup>2</sup> Харьковский национальный университет им. В.Н.Каразина, пл.Свободы, 4, г.Харьков, 61077, Украина

Поступила в редакцию 12 ноября 2007 г.

Описана конструкция импульсной ионной ионизационной камеры для измерения поверхностной альфа-активности различных образцов. Созданный на основе ионизационной камеры низкофононовый спектрометр вместе с соответствующими методами регистрации и обработки сигналов позволяет достичь высокой чувствительности прямых измерений сверхмалых уровней поверхностной альфа-активности. Он дает возможность решить проблему контроля сверхчистых материалов, с нарушенным равновесием в цепи распадов уранового и ториевого рядов, используемых при создании детекторов для исследования редких ядерных процессов. Описана процедура моделирования формы импульсов тока в зависимости от ориентации и местоположения треков альфа-частиц в камере. Приведены результаты измерений с альфа-источником, а также с образцами меди, нержавеющей стали и светоотражающей пленки VM2000.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** альфа-частица, трек, структура, импульсная ионная ионизационная камера, форма импульса, моделирование, поверхностная альфа-активность.

При создании современных низкофононовых детекторов, предназначенных для поиска двойного бета-распада различных изотопов, поиска частиц "темной" материи и регистрации солнечных  $pp$ -нейтрино, требуются материалы с предельно низким содержанием естественных радиоактивных элементов  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , их дочерних продуктов распада и  $^{40}\text{K}$ . Обычно контроль этих элементов в выбранном материале осуществляется путем регистрации гамма-излучений, возникающих при их  $\beta$ -распаде, с помощью сверхнизкофононовых полупроводниковых детекторов. В цепочках распада  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  не все изотопы испытывают  $\beta$ -распад, сопровождающийся вылетом гамма-квантов. Часть изотопов распадается с испусканием альфа-частиц. При расчете содержания таких изотопов по гамма-излучению предполагается наличие векового равновесия в цепочке. Однако это условие может не выполняться. Например, известно [1], что в процессе получения чистых металлов из рудного сырья происходит существенное нарушение равновесия в ряду  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  за счет преимущественного удаления  $^{226}\text{Ra}$  ( $T_{1/2}=1600$  лет) и  $^{228}\text{Ra}$  ( $T_{1/2}=5,7$  лет), соответственно. В готовом металле содержание радия может быть до 1000 раз меньше равновесного [2]. Основные гамма-излучающие изотопы являются дочерними продуктами распада радия. В случае использования их гамма-излучения для определения содержания  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  в предположении равновесия пересчитанное значение будет существенно ниже реального. Кроме того, если исследуемый материал долго находился в среде с высоким содержанием  $^{222}\text{Rn}$ , то в поверхностном слое может накопиться избыточное по сравнению с равновесным количество атомов  $^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2}=22,3$  года). Распад  $^{210}\text{Pb}$  и дочерних изотопов даст дополнительный фон электронов и альфа-частиц. Поэтому требуется одновременно с гамма-фоном измерять поверхностную альфа-активность (ПАА) исследуемого материала. Возможности существующих современных методов измерений ПАА ограничены по следующим причинам:

1. В случае применения поверхностно-барьерных ППД, измеряемая площадь образца мала ( $<2\div 5\text{ см}^2$ ), а наличие входного окна искажает спектр и создает неустранимый фон.

2. Пластический скинтилятор имеет отношение световых выходов от альфа-частицы к световых выходов от электронов  $\sim 0,1$ , что сдвигает амплитуды сигналов от альфа-частиц в область фона от электронов естественной радиоактивности; применение методов разделения сигналов по временам нарастания и спада не дает полного устранения фона электронов; плохое энергетическое разрешение затрудняет устранение альфа-частичного фона от поверхностных загрязнений; существует собственный неустранимый фон.

3. Пропорциональная камера с тонким входным окном требует постоянной продувки чистым рабочим газом в случае работы с газящими образцами; материалы окна и внутренних конструкций создают собственный неустранимый фон; спектры искажаются из-за ионизационных потерь энергии альфа-частиц в материале окна.

4. Метод, в котором с помощью поверхностно-барьерного ППД измеряется ПАА осажденного на поверхность электрода раствора исследуемого металла с эталонным содержанием  $^{210}\text{Po}$ , отличается большой сложностью и требует дорогостоящих высокочистых химических реактивов. Кроме того, метод не является универсальным по отношению к исследуемым материалам.

Цель настоящей работы – разработка и создание низкофононового спектрометра для измерения сверхмалых уровней ПАА на основе ионной импульсной ионизационной камеры с ионным собиранием (ИКИС). Применен-

ние этого спектрометра, предназначенного для контроля сверхчистых материалов, используемых в исследованиях редких ядерных распадов [3], не имеет перечисленных выше ограничений. В газовом детекторе такого типа, как ИКИС обеспечивается полный сбор заряда, образованного в рабочем газе ионизирующей частицей, независимо от типа и подвижности носителей. В этом состоит отличие ИКИС от детекторов с электронным собиранием, для работы которых требуются высокочистые газы, не содержащие электроотрицательных примесей, способных захватывать электроны. Для получения хорошего энергетического разрешения в детекторы с электронным собиранием вводят экранирующие сетки, разделяющие дрейфовый и регистрирующий промежутки. Сетка позволяет устранить зависимость амплитуды сигнала, наведённого движущимися в электрическом поле электронами ионизации, от расстояния между ионизационным треком и собирающим электродом. В ИКИС такая сетка не нужна.

Применения ИКИС вместе с соответствующими методами регистрации и обработки сигналов позволяют достичь уникальных характеристик по отношению к чувствительности прямых измерений ПАА, что в сочетании с простотой и экспрессностью делает использование этой методики чрезвычайно привлекательным и для решения прикладных задач контроля ПАА сверхчистых материалов.

### ИМПУЛЬСНАЯ ИОННАЯ ИОНИЗАЦИОННАЯ КАМЕРА

Ионная ионизационная камера, схематически представленная на рис.1, при одновременном сборе отрицательной и положительной компонент заряда позволяет определить не только энергетические, но и пространственные параметры трека альфа-частиц: место образования, ориентацию трека, длину проекции трека в направлении дрейфа, распределение плотности ионизации по длине трека. Эта информация может быть получена из сравнения величины и формы импульсов тока обеих компонент. В состав камеры входят две одинаковые соосные секции, разделенные высоковольтным сетчатым катодным электродом (С5). Сетка выполнена из параллельных медных нитей  $\varnothing 0,08$  мм с шагом 2 мм. На катод подаётся высокое напряжение (-2 кВ). Однородное дрейфовое поле в каждой секции создаётся набором формирующих медных кольцевых электродов, подключенных к делителю высокого напряжения. Собирающие электроды (аноды) верхней и нижней секций разделены электрически на внутреннюю дисковую и наружную кольцевую части. На рис.1 для верхней и нижней секций они обозначены как С1, С2 и С4, С3, соответственно. Электрод С4 имеет цилиндрическое углубление для размещения исследуемого образца. В случае, когда материал образца является диэлектриком, он сверху накрывается медной сеткой (диаметр нити 0,08 мм, шаг  $8 \times 8$  мм), имеющей электрический

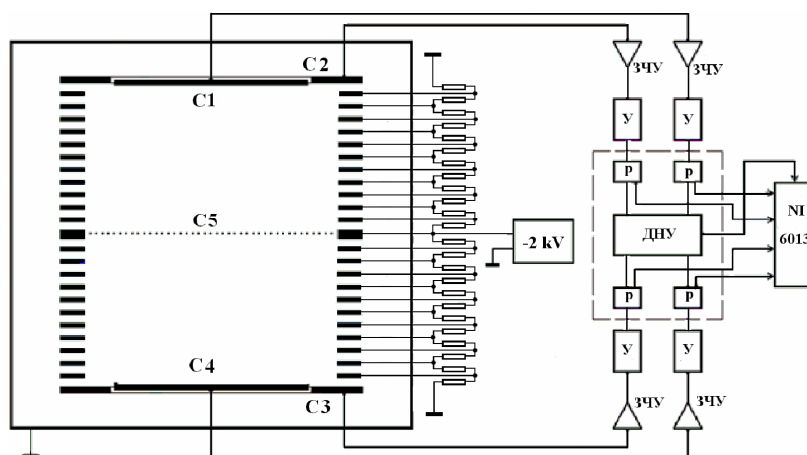


Рис.1. Схематический поперечный разрез и схема подключения ИКИС:

С1 – верхний центральный анод; С2 – верхний кольцевой анод; С3 – нижний кольцевой анод; С4 – нижний центральный анод; С5 – катод;

контакт с бортиком электрода. Полный диаметр дрейфового промежутка равен 126 мм, высота – 74 мм, диаметр электрода – 91 мм. Диаметр и глубина выборки для образца составляет 84 мм и 3 мм соответственно. Геометрическая площадь образца равна  $55,4 \text{ см}^2$ . Высота дрейфового промежутка при заданном напряжении на катоде и давлении газа определяет полное время сбора заряда и, соответственно, амплитуду и длительность импульса тока. Для улучшения соотношения сигнал/шум высота должна быть минимально возможной. Её значение выбрано из условия полного поглощения альфа-частицы с энергией 7,69 МэВ, стартующей с поверхности образца, при заполнении воздухом (азотом) при н.у. С целью получения исходного низкого уровня собственного альфа-фона в качестве основного конструкционного материала выбрана медь, имеющая, по данным многочисленных измерений, низкое содержание радиоактивных элементов. Полное подавление фона от стенок может быть достигнуто включением центральной части камеры в режим антисовпадений с кольцевой. Отсутствие перегородки между верхней и нижней секциями позволяет в режиме антисовпадений исключать из основного

спектра альфа-частицы, рожденные в газе и пересекающие границу высоковольтного электрода. Верхняя секция может быть использована для независимого измерения содержания радона в рабочем газе. Для регистрации достаточно длинных импульсов был специально разработан зарядочувствительный малошумящий преусилитель (ЗЧУ) с оптической обратной связью, имеющий время саморазряда на уровне  $\sim 100$  мс. Сигналы с четырех анодов ИКИС через ЗЧУ подаются на усилители (У) с коэффициентом усиления 400. Далее сигналы через разветвители (Р) подаются на вход амплитудно-цифрового преобразователя (АЦП) NI6013 в составе персонального компьютера (ПК) и на дискриминатор нижнего уровня (ДНУ). ДНУ вырабатывает логический сигнал, запускающий АЦП, если по любому из входов амплитуда импульса превысит заданный порог. Частота оцифровки NI6013 одного канала 2,5 кГц (полная частота опроса – 10 кГц). Оцифрованные импульсы регистрируются ПК.

### МОДЕЛЬНОЕ ПРЕДСТАВЛЕНИЕ ОТКЛИКА ИКИС

Для выявления закономерностей в распределении параметров импульсов тока в зависимости от места образования и ориентации треков альфа-частиц было проведено моделирование этих импульсов. При моделировании предполагалось, что ионизационная камера имеет форму цилиндра диаметром  $\varnothing 91$  мм, высотой  $h=74$  мм.

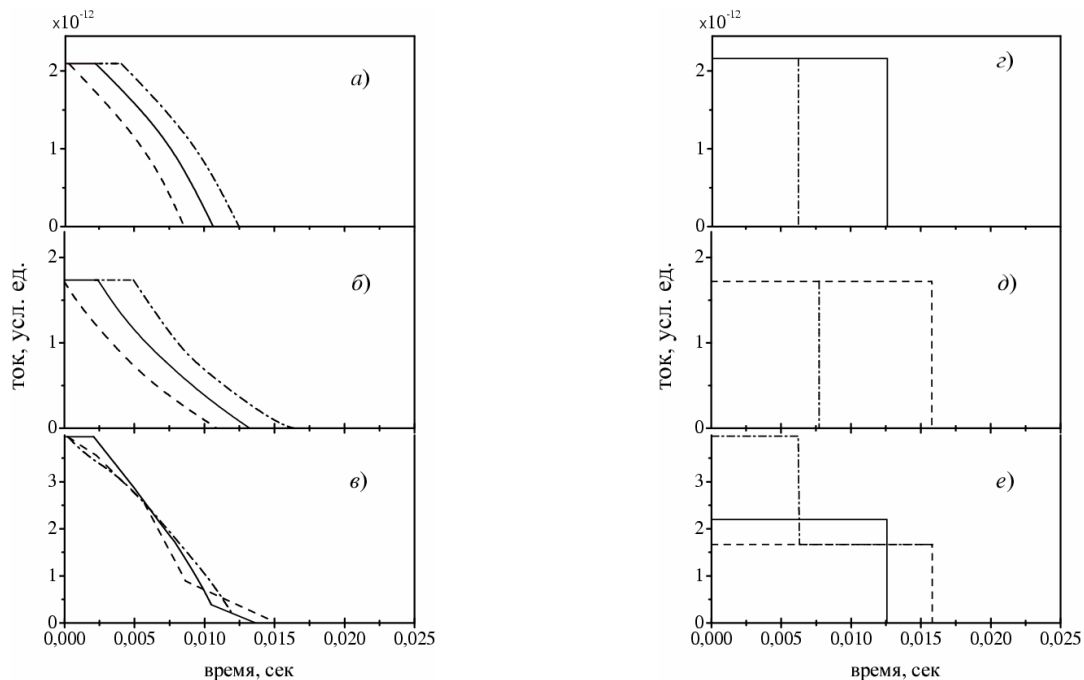


Рис.2. Форма модельных импульсов тока в кислороде для трех позиций ( $h=0$  см - штриховая кривая;  $h=3,7$  см - сплошная кривая;  $h=7,4$  см - штрихпунктирная кривая: а) - отрицательная компонента; б) - положительная компонента; в) - суммарный импульс для  $\theta=90^0$  и з), д), е) соответственно для  $\theta=0^0$ .

Собирающий электрод (анод) – дно, высоковольтный (катод) – крышка. На катод подается напряжение (- 2000 В). Расчет проводился отдельно для кислорода (электроотрицательный газ, подвижность отрицательных ионов –  $350 \text{ см}^2/(\text{В}\times\text{сек}\times\text{торр})$ ), подвижность положительных ионов –  $1070 \text{ см}^2/(\text{В}\times\text{сек}\times\text{торр})$  и азота (подвижность электронов –  $10^6 \text{ см}^2/(\text{В}\times\text{сек}\times\text{торр})$ , подвижность положительных ионов –  $980 \text{ см}^2/(\text{В}\times\text{сек}\times\text{торр})$ ) [4]. Давление рабочего газа выбрано равным 620 торр (среднее атмосферное давление на высоте расположения БНО ИЯИ РАН). Энергия альфа-частицы была принята равной 6 МэВ. Средняя длина пробега в кислороде такой альфа-частицы равна 5,1 см, в азоте 5,6 см. Формы импульсов тока в зависимости от ориентации трека (угол  $\theta$ ) к поверхности анода камеры ( $0^0, 90^0, -90^0$ ) для трех позиций ( $h$ ) вдоль оси камеры показаны на рис.2: (0 см (штриховая кривая) – трек начинается на аноде; 3,7 см (сплошная кривая) - середина трека посередине камеры; 7,4 см (штрихпунктирная кривая) – трек заканчивается на катоде). Из-за того, что плотность ионизации в начале и конце трека отличаются в четыре раза, то распределения плотности ионизации по длине треков влетающей и вылетающей альфа-частиц, при одном и том же энерговыделении в газе, будут существенно отличаться. Эти отличия должны найти отражения в форме импульса тока.

Формы импульсов тока в кислороде для  $\theta = 90^0$  (трек направлен к катоду) и трех позиций для каждой компоненты приведены на рис.2: а) - отрицательная компонента; б) - положительная компонента; в) - суммарный импульс. Кривизна компонент импульсов тока (вогнутая, выпуклая) определяется последовательностью оседания заряда соответствующей компоненты (начало или конец трека). Для  $\theta=-90^0$  (трек направлен к аноду) общий вид формы импульсов тока соответствует рис. 2(а-б), однако компоненты меняют кривизну. На рис.2(г-д)

приведены соответственные формы импульсов тока для  $\theta=0^0$ . Для случаев поверхностного расположения треков, амплитуда импульса тока компоненты, знак которой обратен знаку заряда поверхности, будет равна нулю, поскольку заряды при движении проходят нулевое расстояние. Из сравнения графиков рис.2 видно, что импульсы тока от альфа-частиц, касающихся анода, имеют максимальную длительность, которая определяется временем прихода наиболее удаленного положительного иона на катод. Различие в полных временах собирания положительных (15,8 мс) и отрицательных (12,5 мс) ионов связано с различием скоростей дрейфа. Формы суммарных импульсов на рис. 2в ( $\theta=90^0$ ) и рис. 2е ( $\theta=0^0$ ) существенно отличаются.

Параметрами, по которым отбираются полезные события, могут служить: амплитуда и длительность полного импульса тока; максимум дифференциала импульса тока; интервал времени между началом импульса тока и максимумом его дифференциала.

Основания для выбора этих параметров следующие:

- 1) треки, пересекающие поверхность анода (образца) будут давать самые длинные импульсы, так как медленные положительные ионы при дрейфе проходят весь дрейфовый промежуток;
- 2) максимум дифференциала импульса тока соответствует моменту оседания участка отрицательной (быстрой) компоненты трека с максимальной плотностью ионизации (конец трека);
- 3) время между началом импульса и максимумом дифференциала определяет расстояние области конца трека от анода и позволяет определить его ориентацию (от анода или к аноду).

На реальных импульсах из-за наличия шумов электроники и конечной частоты считывания отдельных точек импульса различия между абсолютным максимумом дифференциала тока и локальным максимумом могут сглаживаться. Это вносит существенную неопределенность в определение ориентации трека.

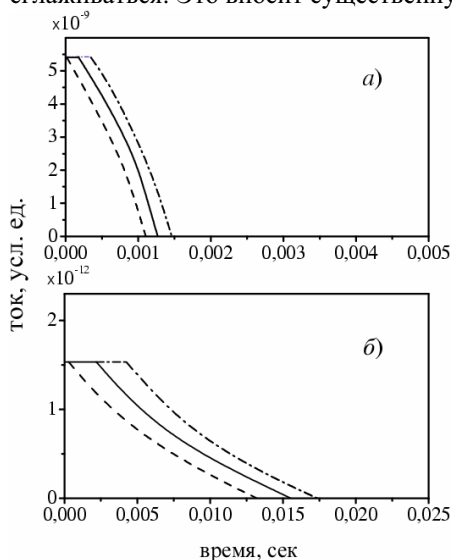


Рис.3. Форма импульсов тока в азоте для  $\theta=90^0$  и трех позиций (как на рис.2): а) - отрицательная компонента (электроны); б) - положительная компонента.

Иная картина наблюдается при заполнении камеры азотом.

Если азот достаточно хорошо очищен от кислорода ( $\leq 10^{-4}$ ), то в нем отсутствует захват электронов и в качестве отрицательных ионов выступают электроны. Их подвижность в  $\sim 10^3$  раз выше, чем у положительных ионов. Поэтому компоненты не перекрываются, и анализ существенно облегчается. На рис.3 для  $\theta = 90^0$  и трех расстояний от анода приведены формы импульсов тока отрицательной компоненты и положительной компоненты. Видно, что в масштабе времени собирания положительной компоненты импульс тока отрицательной компоненты имеет нулевую длительность.

Расчётное максимальное время дрейфа положительных и отрицательных ионов в дрейфовом промежутке при напряжении (-2 кВ) и давлении газа 620 торр (среднее атмосферное давление на высоте расположения БНО ИЯИ РАН) для воздуха и азота равно  $1,57 \times 10^{-2}$  с;  $1,26 \times 10^{-2}$  с и  $1,73 \times 10^{-2}$  с;  $1,7 \times 10^{-5}$  с, соответственно. Длительность импульсов тока положительных ионов максимальна для треков, пересекающих поверхность. Направление трека (от анода – к катоду) может быть определено по кривизне формы импульсов тока положительных ионов (соответственно, вогнутая – выпуклая). Площадь токового сигнала (заряд) пропорциональна среднему расстоянию трека от анода.

## РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

На рис.4 приведён пример события, в котором альфа-частица пересекла все четыре чувствительные области в случае заполнения камеры воздухом. Нумерация графиков сверху вниз соответствует нумерации собирающих электродов на рис.1. На рис.5 приведено аналогичное событие при продувке ИКИС парами жидкого азота. Из сравнения графиков рис.4 и рис.5 видно, что скорость нарастания начального участка импульса для азотного наполнения много выше, чем для воздуха. Это отличие связано с приведенным выше различием скоростей дрейфа носителей отрицательного заряда. В случае, когда азот не достаточно очищен от кислорода, в формировании импульса будут участвовать оба типа носителей отрицательного заряда. Их соотношение будет зависеть от расстояния элементов трека до анода, поскольку вероятность захвата электрона электроотрицательной молекулой кислорода пропорциональна пройденному пути. Для проверки работоспособности ИКИС в центре ёмкости для образцов был размещён альфа-источник  $^{239}\text{Pu}$  ( $E_\alpha \approx 5,157$  МэВ) из набора ОСАИ. Его поверхность ( $\varnothing 24$  мм) была покрыта никелевой фольгой толщиной 0,05 мм. По центру фольги сделано отверстие  $\varnothing 1$  мм. Это обеспечило скорость счёта альфа-частиц  $\sim 1$  с $^{-1}$ . Камера продута азотом в течение 3 часов ( $\sim 30$  л азота).

На рис.6а приведён спектр импульсов с нижней центральной секции (С4), полученный за 70 мин. Спектр построен по значениям амплитуд зарядовых импульсов в максимуме. Разрешение линии составило 7,2%. Значение амплитуды в максимуме импульса для одного и того же энерговыделения может отличаться, поскольку

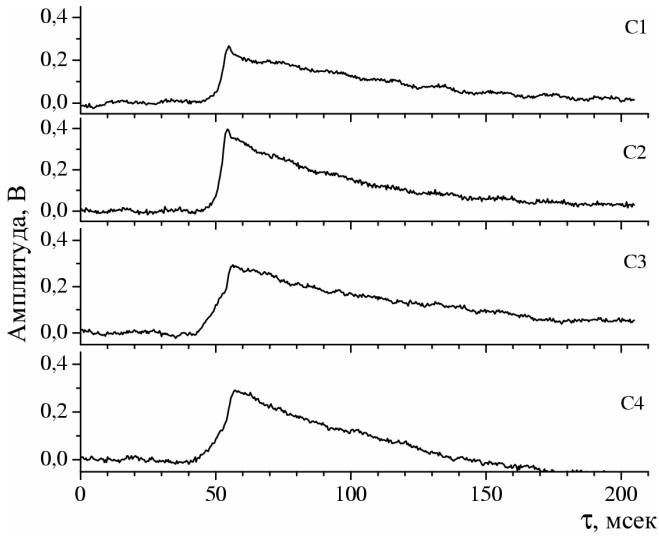


Рис.4. Пример события, в котором альфа-частица пересекла все четыре чувствительные области (камера заполнена воздухом).

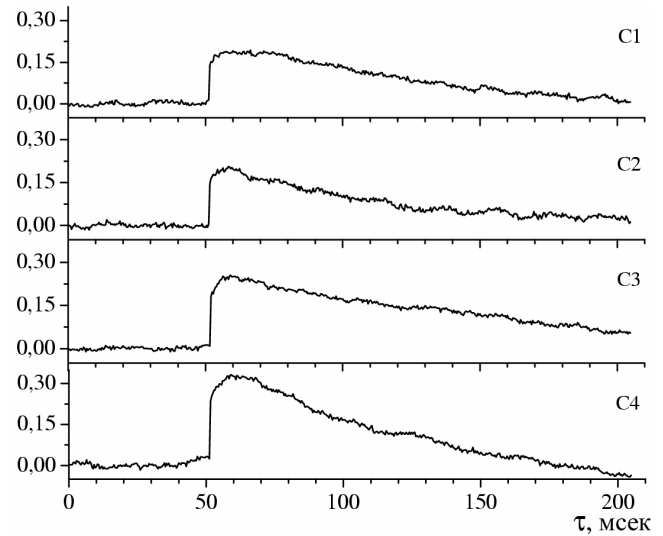


Рис.5. Пример события, в котором альфа-частица пересекла все четыре чувствительные области (камера заполнена азотом).

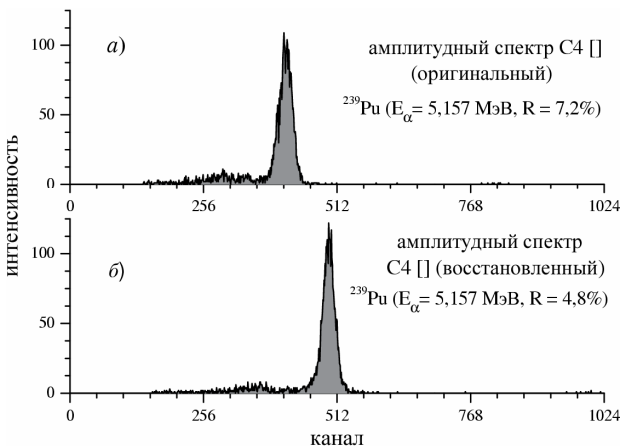


Рис.6. Амплитудный спектр с нижней центральной секции (С4) от альфа-источника  $^{239}\text{Pu}$ , полученный за 70 мин: а) - оригинальный спектр; б) - восстановленный спектр.

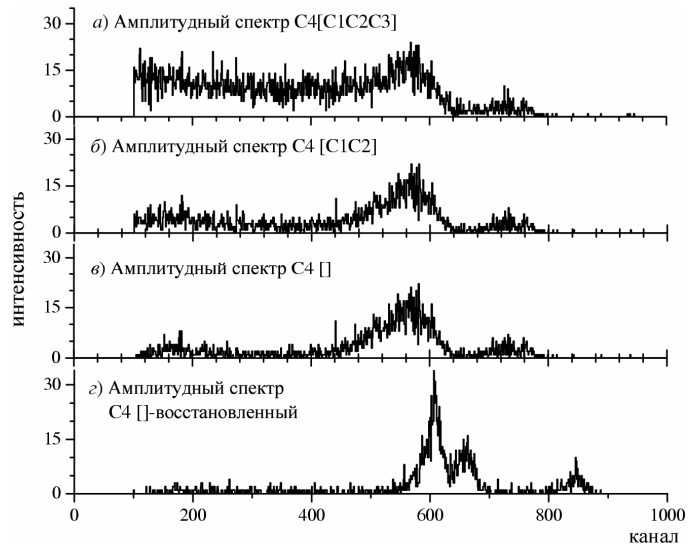


Рис.7. Спектр фона образца меди: а) - секция С4 + секции С1С2С3; б) - секция С4 + секции С1С2; в) - спектр секции С4; г) - восстановленный спектр секции С4;

эта величина для конечной постоянной разряда ЗЧУ является функцией плотности тока. Истинное значение созданного альфа-частицей заряда может быть восстановлено введением поправки на саморазряд ЗЧУ пересчетом к бесконечной постоянной разряда. При такой коррекции значение амплитуды определяется усреднением по заданному числу точек из временного интервала, следующего за моментом окончания импульса тока. На рис.6б представлен спектр восстановленных импульсов. Амплитуда усреднена по десяти точкам. Разрешение улучшилось до 4,8 %.

Для исследования возможностей ИКИС было проведено измерение альфа-фона образца меди. Образец изготовлен в виде диска Ø83,5 мм и толщиной 3 мм. Поверхность обработана абразивным материалом и протравлена в азотной кислоте.

Сначала камера была заполнена атмосферным воздухом с содержанием  $^{222}\text{Rn}$  на уровне  $\sim 20$  Бк/м<sup>3</sup>. Полное время набора статистики составило 97 час. Порог срабатывания схемы запуска выбран равным 150 мВ, что соответствует энергии альфа-частицы  $\sim 1$  МэВ. На рис.7а приведён полный спектр амплитуд не восстановленных импульсов от секции С4 при совпадении логических сигналов от секций С1, С2, С3. Для иллюстрации эффективности работы режима активной защиты на рис.7б приведён спектр, отобранный из 7а по условию отсутствия в нижней кольцевой секции С3 импульсов с амплитудой выше 0,5 МэВ. На рис.7в добавлен отбор по отсутствию импульсов в верхней центральной С1 и кольцевой С2 секциях. На рис.7г представлен спектр амплитуд тех же импульсов после введения поправки на саморазряд ЗЧУ и коррекции шумов микрофонного эффекта от

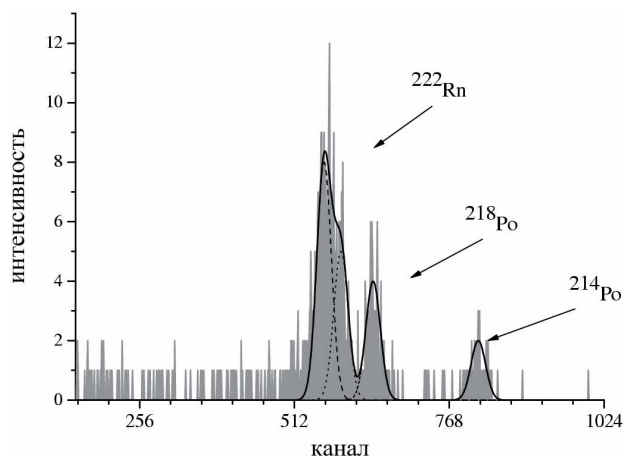


Рис.8. Спектр амплитуд импульсов от Cu, накопленный за 316 час, с поправкой на разряд и микрофонный шум (продувка парами жидкого азота).

Соотношение площадей пиков задаётся эффективностью поглощения альфа-частиц в С4 и соотношением исходных интенсивностей линий. Радионуклиды  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$  рождаются заряженными и оседают под действием электрического поля на соответствующие электроды. Поэтому при распаде этих изотопов половина альфа-частиц уходит в стенку, где и поглощается. В идеальном случае соотношение площадей пиков от  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$  равно 2:1:1. На рис.7г это отношение равно 2:1,34:0,53.

После измерений с воздухом было выполнено измерение при продувке ИКИС парами жидкого азота (~10 л/час). Полное время набора статистики составило 316 час. На рис.8 приведён спектр амплитуд импульсов от С4 с поправкой на разряд и микрофонный шум.

Анализ спектра можно начать с пика от  $^{214}\text{Po}$  (817 канал,  $R=4,6\%$ ). Его энергия превышает все остальные и мало подвержена искажениям за счет примешивания других линий, если пренебречь вкладом в фон альфа-частиц  $^{212}\text{Po}$  ( $E_\alpha=8,785$  МэВ), являющегося дочерним продуктом распада  $^{220}\text{Rn}$  ( $T_{1/2}=55,6$  с) из ряда  $^{232}\text{Th}$ . Отношение площадей пиков от  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$  должно соответствовать полученному из рис.7г, если атомы радона распадаются в рабочем газе. При этом следует учитывать отличие пробегов альфа-частиц в воздухе и азоте (пробег альфа-частицы с энергией 6 МэВ при давлении 620 торр равен 5,1 см в воздухе и 5,6 см в азоте). В общем случае это не так. Радон и его дочерние продукты могут находиться в образце меди, составляя часть объёмных радиоактивных примесей. На поверхности образца имеется микрорельеф. Если характерные размеры выступов много меньше пробега альфа-частицы, то потери энергии в них оказываются малыми. Вылетающие альфа-частицы формируют пик. Соотношение между площадями связанных пиков будет отличаться от полученного выше. Для выяснения вопроса о типе источника  $^{214}\text{Po}$  (внутренний или поверхностный) можно использовать данные, полученные в измерениях с воздухом. События, в которых присутствуют совпавшие импульсы только в секциях С1 и С4, вызываются, в основном, альфа-частицами, родившимися в газе от распада радона и пересёкшими границу высоковольтного электрода. Отношение числа таких событий к площади пика  $^{214}\text{Po}$  должно сохраняться при изменении активности радона, если он равномерно распределён в рабочем газе. Для воздушного наполнения отношение равно  $1,57\pm 0,15$ , для азотного –  $1,26\pm 0,26$ , что в пределах ошибки совпадает. Отсюда можно сделать вывод, что источник  $^{214}\text{Po}$  является поверхностным.

На рис.8 представлена аппроксимация пиков от  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$  гауссианами. Соотношение положений максимумов соответствует спектру рис.7г. Видно, что кроме «радоновых» пиков в спектре рис.6 присутствует пик с энергией 5,297 МэВ, соответствующий альфа-частицам от распада  $^{210}\text{Po}$  ( $T_{1/2}=138,4$  сут.). Он образуется в цепочке распадов  $^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2}=21,8$  лет), предположительно накопившегося на катоде за время наладочных работ при заполнении ИКИС воздухом с радоном.

Для определения поверхностной альфа-активности используется диапазон энергии 1,1÷4,7 МэВ. При этом предполагается, что спектр альфа-частиц в этом диапазоне имеет вид плоской ступеньки. В эту область дают вклад как собственно ПАА образца, так и доля альфа-частиц из пиков, потерявших часть энергии в материалах анода и катода. Относительный вклад в спектр альфа-частиц от распада радона и дочерних продуктов можно определить из рис.7г. Вклад от распада поверхностного  $^{210}\text{Po}$  учесть на данном этапе работы не представляется возможным. Поэтому весь оставшийся фон приписывается ПАА. В выбранном интервале величина приведенной ПАА составила  $(3,5 \pm 0,7) \times 10^{-3} \text{ см}^{-2} \text{ час}^{-1}$ . Эффективность регистрации альфа-частиц с данными энергиями принята равной единице (не учитывается краевой эффект). Для нахождения предела с уровнем достоверности 95% полученное значение ПАА увеличивается на 2 стандартных отклонения.

При переходе от измеренного количества альфа-частиц к активности конкретного изотопа вся ПАА приписывается этому изотопу. Производится пересчёт от исследуемого энергетического диапазона к полному диапазону возможных энерговыделений. Для  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  граница диапазона определена равной 5,16 МэВ и

сотрясения высоковольтного электрода путём суммирования шумовой дорожки графика С1 с импульсом С4. Микрофонный эффект этих секций находится в противофазе.

Основная часть импульсов создана альфа-распадами  $^{222}\text{Rn}$  ( $T_{1/2}=3,82$  сут.) в воздухе и его дочерних ядер  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$  на высоковольтном и собирающем электродах С4. Амплитуды в пиках 6,00 МэВ ( $^{218}\text{Po}$ ) и 7,69 МэВ ( $^{214}\text{Po}$ ) соответствуют энергиям альфа-частиц. При определении положения пика 5,49 МэВ ( $^{222}\text{Rn}$ ) следует учитывать энергию ядра отдачи (0,10 МэВ), которая в газе не полностью передаётся в ионизацию. Положению пика от распада  $^{222}\text{Rn}$  в спектре показанном на рис.7г соответствует энергия 5,54 МэВ при пересчёте от положений пиков альфа-частиц  $^{218}\text{Po}$  и  $^{214}\text{Po}$ . Его разрешение составляет 4,3%.

Таблица 1. Концентрация радиоактивных изотопов в образцах, измеренная с помощью ИКИС и HPGe – детекторами.

Образец, Время измерения	Активность [мБк/кг] / Концентрация [г/г]		Метод
	$^{238}\text{U}$	$^{232}\text{Th}$	
Cu Ø83 мм, h=3 мм, 316 ч	$\leq 490 / \leq 4,0 \times 10^{-8}$	$\leq 860 / \leq 2,1 \times 10^{-7}$	Поверхностная $\alpha$ -активность (ИКИС)
VM2000 Ø83 мм, h=0,07 мм, 429 ч	$\leq 1200 / \leq 0,7 \times 10^{-8}$	$\leq 2100 / \leq 5,2 \times 10^{-7}$	
VM2000 m=372 г, 552 ч	$\leq 7,9 /$	$\leq 9,0 /$	$\gamma$ -спектрометр (HPGe-детектор)
Нержавеющая сталь AISI 321 m=4,2 кг, 1219,2 ч	$\leq 1 /$	$\leq 1,4 /$	

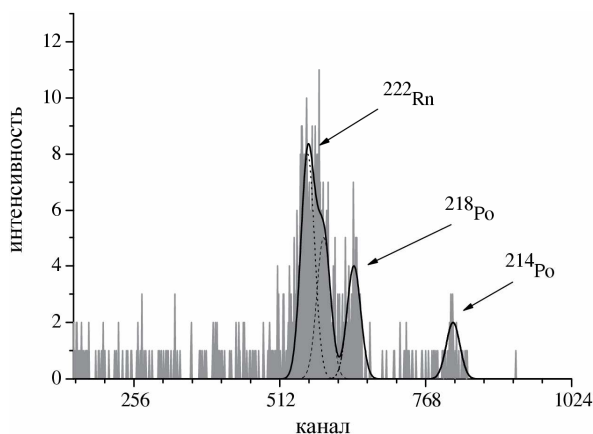


Рис.9. Спектр амплитуд импульсов от VM2000, накопленный за 429 час, с поправкой на разряд и микрофонный шум (продувка парами жидкого азота).

плёнка является диэлектриком, она была покрыта медной сеткой. При измерениях ИКИС продувалась парами жидкого азота. Спектр импульсов с нижней центральной секции С4, накопленный за 429 час, приведен на рис.9. Он полностью подобен спектру на рис.8. Скорость счета в интервале 1,1÷4,7 МэВ за вычетом вклада радона и его дочерних продуктов составила  $(3,0 \pm 0,6) \times 10^{-3} \text{ см}^{-2} \text{ час}^{-1}$ , что в пределах ошибки совпадает с данными для образца меди.

Это может служить косвенным подтверждением предположения о том, что остаточный фон определяется в основном  $^{210}\text{Po}$  на катодной сетке. Вклад собственной ПАА катодной сетки из меди с содержанием альфа-активных элементов на уровне, установленном для медного образца, должен быть в  $\sim 15$  раз меньше. Это следует из отношения площадей поверхностей сетки и образца.

Результаты вычислений активностей и содержания  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  в образце VM2000 приведены в табл.1. Для сравнения приведены значения удельной активности  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  в образцах нержавеющей стали и VM2000, полученные из анализа гамма-спектров. Измерения проводились в низкофоновой установке 4HPGe с тремя полупроводниковыми детекторами из сверхчистого германия [7]. Установка расположена в подземной низкофоновой лаборатории БНО ИЯИ РАН на глубине 660 м в.э. и ранее использовалась в эксперименте IGEX для поиска безнейтринного двойного бета-распада  $^{76}\text{Ge}$ .

Из прямого сравнения результатов по VM2000 видно, что достигнутая на данном этапе чувствительность ИКИС в  $\sim 150$  раз хуже гамма-метода. Однако если учесть рассмотренное ранее возможное нарушение равновесия в распадных цепочках в 30 и более раз, то отличие должно уменьшиться до  $\leq 5$  раз.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложенный метод обладает большими возможностями улучшения чувствительности. Так, фон  $^{210}\text{Po}$  от катодной сетки может быть уменьшен в 100 раз и более путём предварительной очистки поверхности нитей и введением мер по предотвращению повторного загрязнения дочерними продуктами распада радона в рабочем газе. Для этого ИКИС должна быть постоянно заполнена чистым азотом. Вклад собственной ПАА нитей может

4,30 МэВ, соответственно. Пересчёт производится с учётом того, что в рабочий газ выходит 25% альфа-частиц, родившихся в слое материала толщиной, равной пробегу этой альфа-частицы [5]. Полученные таким способом значения активности и содержания  $^{238}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$  в образце меди приведены в табл.1.

С помощью ИКИС были выполнены измерения ПАА светоотражающей плёнки VM2000, которую предполагается использовать в качестве стеночного отражателя в криостате с жидким аргоном установки GERDA [6]. Основным назначением криостата является охлаждение сборки германиевых детекторов, размещённых непосредственно в жидкости. Жидкий аргон обладает сцинтилляционными свойствами и может одновременно использоваться в качестве детектора антисовпадений. Стеночный отражатель необходим для улучшения условий светосбора.

Образец плёнки Ø83 мм (толщина 70 мкм) был размещён на дне углубления анода С4. Поскольку

быть существенно снижен уменьшением диаметра нити и увеличением шага сетки. Например, переход от нити Ø80 мкм к нити Ø20 мкм и от шага 2 мм к шагу 4 мм снизит ПАА катодной сетки в 8 раз. Дальнейшее повышение чувствительности может быть достигнуто увеличением площади исследуемого образца. В настоящее время не видно причин, препятствующих увеличению диаметра ИКИС в ~3 раза.

Кроме этого, для отбора треков альфа-частиц, стартующих с поверхности образца, может быть применён анализ ионной компоненты импульса тока. Форма этой компоненты зависит от ориентации трека и распределения плотности ионизации по треку. Для осуществления качественного анализа требуется улучшить шумовые характеристики ЗЧУ в ~3 раза. При этом улучшится энергетическое разрешение.

С учётом всех факторов чувствительность ИКИС может быть повышена в 100 и более раз. Например, при скорости счёта альфа-частиц в интервале 1,1÷4,7 МэВ, равной 1/500 час, для медного образца площадью 400 см<sup>2</sup> чувствительность метода достигает 0,5 мБк/кг по <sup>238</sup>U и 0,9 мБк/кг по <sup>232</sup>Th.

Большое достоинство метода состоит в том, что для проведения измерений не требуются подземные низкофоновые условия, достаточно обычного лабораторного помещения. ИКИС может быть использоваться для контроля поверхностной альфа-активности материалов, применяемых при изготовлении современных радиокомпонентов. Процесс микроминиатюризации отдельных активных элементов в больших интегральных схемах привел к тому, что их размеры стали существенно меньше размеров треков альфа-частиц, испущенных при распаде радиоактивных изотопов, присутствующих в виде микропримесей в материале изделия. Высокая плотность ионизации по треку альфа-частицы создает сквозной проводящий канал, пробой которого может привести к повреждению одного или нескольких элементов схемы. Современные требования к поверхностной альфа-активности свинца, применяемого в изготовлении микросхем, задают уровень 0,005±0,001 альфа-частиц/(см<sup>2</sup>×час). Чувствительность разрабатываемого детектора позволяет измерять такую активность за разумное время (10-100 часов) при соответствующей площади собирающего электрода (50-500 см<sup>2</sup>), на которой размещается образец. Рассматриваемый прибор позволяет также проводить отбор сырья для производства сверхчистого свинца и контролировать возможное его загрязнение на разных стадиях обработки.

В заключении авторы выражают благодарность ведущему научному сотруднику ВИМС (г.Москва) Донченко В.А. за полезные обсуждения и интерес к работе.

Работа выполнена при частичной поддержке программы INTAS (грант INTAS-05-1-000008-7996 «The germanium detector array for the search of neutrinoless double beta decay of Ge-76 at LNGS»).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гаврин В.Н., Даньшин С.Н., Копылов А.В., Череховский В.И. Низкофоновый полупроводниковый гамма-спектрометр для измерения сверхнизких концентраций <sup>238</sup>U, <sup>226</sup>Ra и <sup>232</sup>Th: препринт/ИЯИ РАН П-0494, -1986. -28с.
2. Копылов А.В., Череховский В.И. Естественная радиоактивность конструкционных материалов. Препринт ИЯИ РАН П-0604, -1989. -10с.
3. Gavriljuk Yu. M., Gangapshev A. M., Kuzminov V.V., Osetrova N. Ya., Panasenko S. I., Ratkevich S. S. Analysis of  $\alpha$ -Particle Background Events in a High-Pressure Proportional Counter. // Phys. Atomic Nuclei. -2004.-Vol.67,- №11.- p.2017–2020.
4. Прайс В. Регистрация ядерного излучения. -М.: Изд-во ин. лит-ры, 1960. -464с.
5. Абрамов А.И., Казанский Ю.А., Матусевич Е.С. Основы экспериментальных методов ядерной физики.-М.: Атомиздат, 1970. -471с.
6. GERDA – The GERmanium Detector Array for the search of neutrinoless  $\beta\beta$  decays of <sup>76</sup>Ge at LNGS. Proposal, INFN LNGS, 2004.
7. Vasiliev S.I. (for GERDA collaboration) “Results of radiopurity measurements of the stainless steel sample AISI 321 and VM 2000 WLS one at the Baksan Neutrino Observatory(preliminary results)”. The talk given 26-28 June 2006 at Gran Sasso at the GERDA meeting.

#### LOW-BACKGROUND SPECTROMETER ALPHA-ACTIVITY OF DIFFERENT LARGE SAMPLES

Yu.M. Gavriljuk<sup>1</sup>, A.M. Gangapshev<sup>1</sup>, V.V. Kazalov<sup>1</sup>, V.V. Kuzminov<sup>1</sup>,  
S.I. Panasenko<sup>2</sup>, S.S. Ratkevich<sup>2</sup>, I.D. Fedorets<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institute for Nuclear Research, Russian Academy of Sciences, 60th October Anniversary pr., 7a, Moscow, 117312, Russia.

<sup>2</sup>V.N.Karazin Kharkiv National University, Svobody sq. 4, Kharkiv, 61077, Ukraine

The construction of an ion pulse ionization chamber aimed at measuring levels of surface alpha-activity of different samples is described. Created on a basis the ionization chamber the low-background spectrometer together with corresponding methods of registration and processing of signals allows to achieve high sensitivity of direct measurements of midget levels of superficial alpha-activity. Allows to solve a problem of the control of superpure materials, with the broken balance in a circuit of disintegrations of the uranium and thorium decay chains used at creation of detectors for research of rare nuclear processes. The results of modeling of pulses of a current are with depending on orientation and site of tracks of alpha-particles in the chamber are given. The results of measurement carried out with alpha-source, and also with copper samples, stainless steel and light-reflecting film VM2000 are presented.

**KEY WORDS:** alpha-particle, track, structure, pulse ionization chamber, form of a pulse, modeling, superficial alpha-activity.