

РАЗРАБОТКА ДЕТЕКТОРА ИОНОВ НА ОСНОВЕ ВРЕМЯ-ПРОЕКЦИОННОЙ КАМЕРЫ НИЗКОГО ДАВЛЕНИЯ ДЛЯ УСКОРИТЕЛЬНОЙ МАСС-СПЕКТРОМЕТРИИ

© 2021 г. А. Е. Бондарь^{1),2)}, А. Ф. Бузулуцков^{1),2)}, В. В. Пархомчук^{1),2)},
А. В. Петрожицкий^{1),2)}, А. В. Соколов^{1),2)}, Е. А. Фролов^{1),2)}, Т. М. Шакирова^{1),2)*}

Поступила в редакцию 05.05.2020 г.; после доработки 05.05.2020 г.; принята к публикации 05.05.2020 г.

Предложен новый метод идентификации ионов для ускорительной масс-спектрометрии на основе измерения длин пробега ионов. Для проверки метода была создана время-проекционная камера низкого давления с усилением зарядового сигнала с помощью толстого газового электронного умножителя, в которой были успешно зарегистрированы треки альфа-частиц от разнообразных радиоактивных источников. В частности, с высокой точностью (около 2%) были измерены их длины пробега. Было проведено моделирование и показано, что с помощью метода измерения длин пробега ионов можно эффективно разделять изобарные ионы бора и бериллия (на уровне 10 сигма). Ожидается, что данная методика будет использоваться на УМС в Новосибирске для датировки геологических объектов, в частности в геохронологии кайнозойской эры.

DOI: 10.31857/S0044002721010086

1. ВВЕДЕНИЕ

Ускорительная масс-спектрометрия — это современный сверхчувствительный метод изотопного анализа веществ. Метод основан на “извлечении” из исследуемого образца отдельных атомов с последующим подсчетом интересующих изотопов. Обычно это радиоактивные атомы с большим периодом полураспада [1]. Типичным примером является ¹⁴C, который имеет период полураспада 5730 лет и содержится в живых организмах на уровне 10⁻¹² относительно стабильного изотопа ¹²C. Используя УМС, радиоуглеродный возраст образца менее 50000 лет может быть определен с точностью 0.5% в течении нескольких минут [2].

На УМС-комплексах помимо ¹⁴C используют другие радиоактивные изотопы, самые важные из которых перечислены в табл. 1. Большой интерес вызывает бериллий, так как он имеет больший период полураспада, чем углерод, поэтому временной интервал датировки составляет от 1 тысячи до 10 миллионов лет. Радиоактивный космогенный изотоп ¹⁰Be образуется под действием космических лучей в атмосфере, а также *in situ* в поверхностных породах. Атмосферный ¹⁰Be адсорбируется

на аэрозоли, затем выпадает с осадками на поверхность Земли, где и включается в различные отложения. Снижение содержания ¹⁰Be за счет радиоактивного распада может служить мерой возрастов осадконакопления. *In situ* ¹⁰Be используется для датирования кварц- и оливинсодержащих пород [3].

В настоящее время УМС-комплексы работают более чем в 100 физических лабораториях по всему миру, один из которых расположен в Центре коллективного пользования “Геохронология Кайнозой” в Новосибирске. В настоящее время на УМС ИЯФ проводятся измерения концентрации изотопа ¹⁴C порядка 10⁻¹⁵ относительно основного изотопа

Таблица 1. Радиоактивные изотопы, используемые в УМС

Анализируемые изотопы	Период полураспада	Стабильные изотопы	Стабильные изобары
¹⁰ Be	1.39 млн лет	⁹ Be	¹⁰ B
¹⁴ C	5730 лет	^{12,13} C	¹⁴ N
²⁶ Al	717 тыс. лет	²⁷ Al	²⁶ Mg
³⁶ Cl	301 тыс. лет	^{35,37} Cl	³⁶ Ar, ³⁶ S
⁴¹ Ca	102 тыс. лет	^{40,42,43,44} Ca	⁴¹ K
¹²⁹ I	15.7 млн лет	¹²⁷ I	¹²⁹ Xe

¹⁾Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН, Новосибирск, Россия.

²⁾Новосибирский государственный университет, Новосибирск, Россия.

*E-mail: T.M.Shakirova@inp.nsk.su

Таблица 2. Результаты

Время формирования усилителя	Коэффициент усиления ТГЭУ	Давление	Sigma/Range
500 нс	40	120 торр	3.2%
200 нс	40	120 торр	2.2%

^{12}C с помощью времяпролетной методики разделения изотопов [4, 5]. Однако существует проблема разделения изобар — нуклидов разных химических элементов, имеющих одинаковое массовое число. Типичным примером являются радиоактивные изотопы ^{10}Be и ^{10}B . Для решения этой проблемы мы предлагаем новую методику, основанную на измерении длин пробегов ионов во время-проекционной камере (ВПК) низкого давления с толстым газовым электронным умножителем (ТГЭУ, [6]).

2. МОДЕЛИРОВАНИЕ В ПРОГРАММЕ SRIM

Для оценки возможности эффективного разделения изобар был использован пакет программ SRIM [7]. В данной программе было проведено моделирование ионизационных потерь для бора и бериллия. В частности, были рассчитаны длины пробегов ионов ^{10}Be и ^{10}B в изобутане при низком давлении с учетом тонкого входного окна из нитрида кремния. На рис. 1 видно, что пробеги ионов отличаются приблизительно на 12 мм при давлении 50 торр. Следовательно, время-проекционной

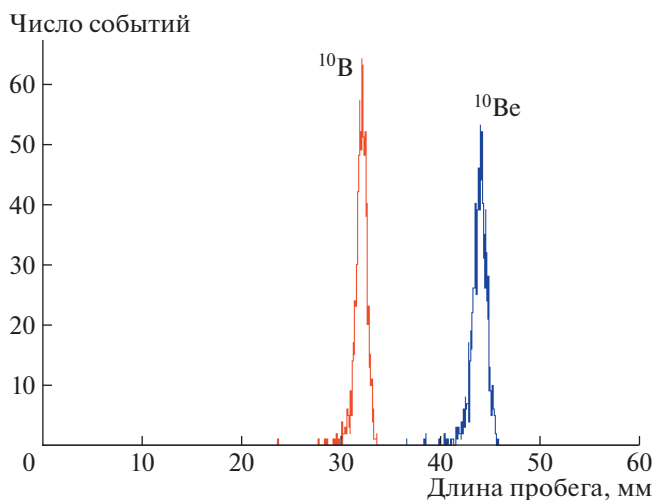


Рис. 1. Распределение длин пробегов ионов ^{10}Be и ^{10}B с энергией 4 МэВ при прохождении мембраны из нитрида кремния толщиной 200 нм и изобутана при давлении 50 торр.

камеры низкого давления с пространственным разрешением порядка 2–3 мм будет достаточно для разделения таких ионов.

3. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ УСТАНОВКИ

Для разделения изобарных ионов была разработана время-проекционная камера низкого давления с толстым газовым электронным умножителем. Схематическое изображение детектора представлено на рис. 2.

Корпус время-проекционной камеры представляет собой керамический секционированный изолятор. Внутренний диаметр камеры составляет 76 мм, а высота — 131 мм. Рабочий объем детектора имеет длину 126.4 мм, который разделен полеформирующими кольцами на 8 секций. Благодаря потенциалам, приложенным к полеформирующим кольцам, в объеме детектора создается однородное электрическое поле, напряженность которого составляет 50 В/см. Для генерации карты электрического поля внутри детектора использовалась следующая связка программ: Gmsh [8], Elmer [9], Garfield++ [10]. В программе Gmsh была построена геометрическая модель детектора в виде 3D сетки, Elmer использовался в качестве инструмента для расчета электростатического поля, а с помощью Garfield++ проведено моделирование дрейфа электронов. Результат показан на рис. 3, из которого видно, что линии электрического поля однородны.

К верхнему фланцу детектора прикреплен металлическая емкость, в которую помещается источник альфа-частиц. При работе с ионами фланец будет заменен на входное окно из нитрида кремния [11], через которое будет проходить ионный пучок. На нижнем фланце размещен толстый газовый электронный умножитель, который закреплен на четырех капролоновых стержнях. Под ТГЭУ размещен секционированный анод.

При прохождении через изобутан альфа-частицы (или ионы пучка) создают ионизацию. Электроны первичной ионизации дрейфуют в электрическом поле в направлении к ТГЭУ с постоянной скоростью, где развиваются в электронные лавины и попадают на секционированный анод. Для того чтобы отделить прямые треки от наклонных, анод разделен на 2 секции: центральный круг с диаметром 24 мм и кольцо с внутренним и внешним диаметрами соответственно 24 и 30 мм. Сигналы с обеих частей анода усиливаются зарядочувствительным предусилителем CAEN A1422, за которыми следуют два формирующих предусилителя NAICAM NCB226 (время формирования 200 нс или 500 нс). Усиленный

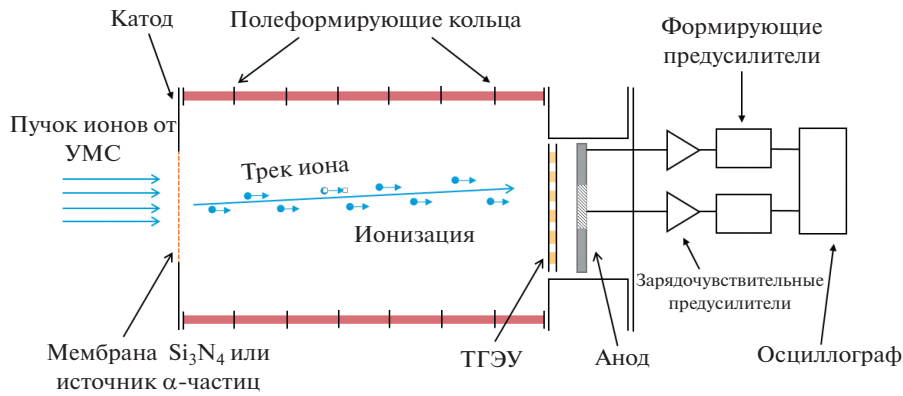


Рис. 2. Схематическое изображение ВПК низкого давления.

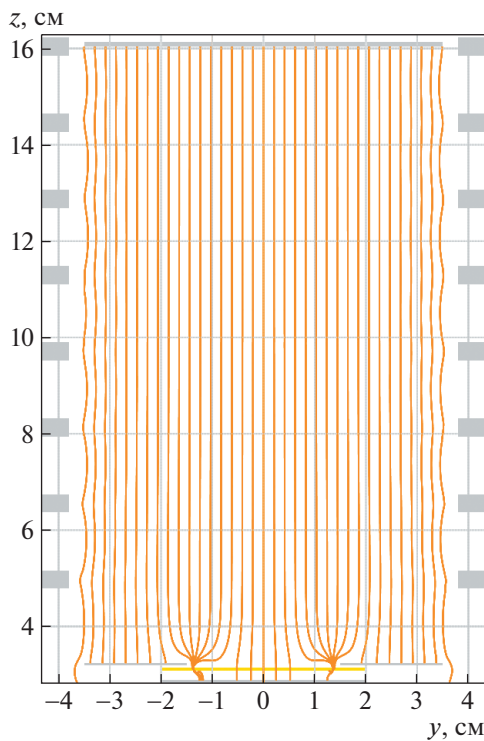


Рис. 3. Карта электрического поля в ВПК низкого давления.

сигнал оцифровывается с помощью осциллографа LeCroy 4032AR. Только прямые треки, которые не создают сигнала во внешнем кольце анода, отбираются для дальнейшей обработки.

Высокое напряжение, приложенное к полеформирующим кольцам, ТГЭУ и аноду, обеспечивается программируемым источником питания SAEN N1470H HV через два резистивных делителя. Потенциал на электродах выбирался таким образом, чтобы нулевой потенциал был на верхней обкладке ТГЭУ. Такая конструкция позволяет независимо изменять поля в области дрейфа и в области умножения электронов. Коэффициент усиления ТГЭУ

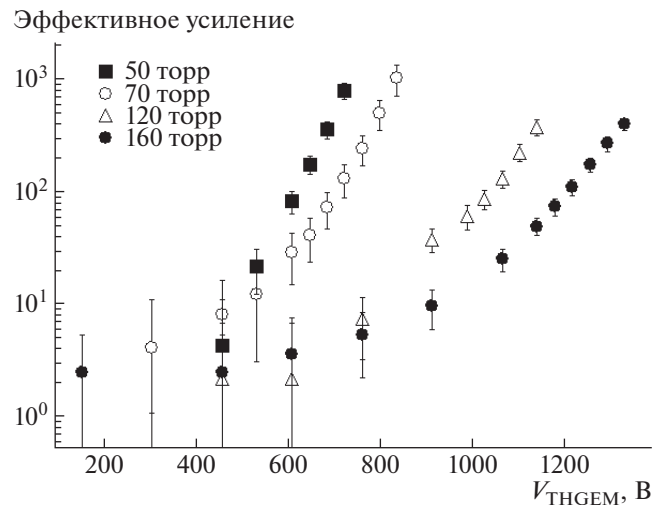


Рис. 4. Зависимость эффективного коэффициента усиления от напряжения между электродами ТГЭУ в изобутане в диапазоне давлений от 50 до 160 торр в ВПК низкого давления.

был измерен при различном напряжении и давлении газа. На рис. 4 показана зависимость эффективного коэффициента усиления от напряжения, подаваемого между электродами ТГЭУ в изобутане в диапазоне давлений от 50 до 160 торр. Выбор чистого изобутана гарантирует разумный компромисс между хорошей локализацией заряда, стабильным усилением при низких давлениях и высокой скоростью дрейфа.

Для отладки детектора использовался тройной источник альфа-частиц ^{233}U , ^{238}Pu и ^{239}Pu с энергиями 4.8, 5.5 и 5.2 МэВ соответственно. Источник представляет собой подложку из нержавеющей стали, на которую тонким слоем нанесен активный материал. Диаметр активной части составляет 11.5 мм, а подложки — 24 мм. Источник альфа-частиц прикреплен к верхнему фланцу детектора. Для остановки альфа-частиц в объеме детектора

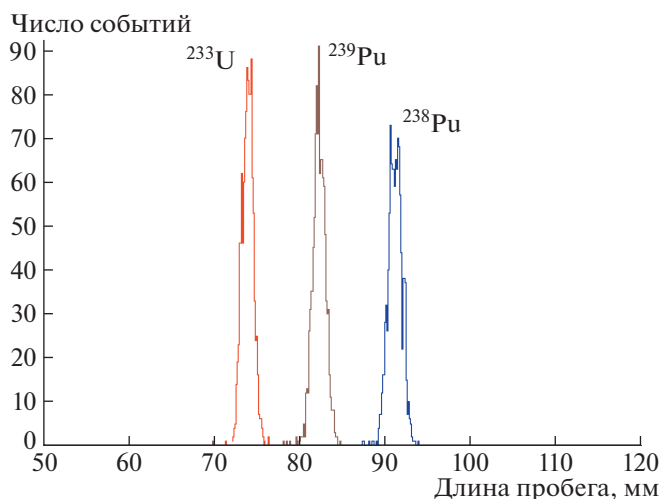


Рис. 5. Распределение длин пробегов альфа-частиц с различной энергией в изобутане при давлении 120 торр.

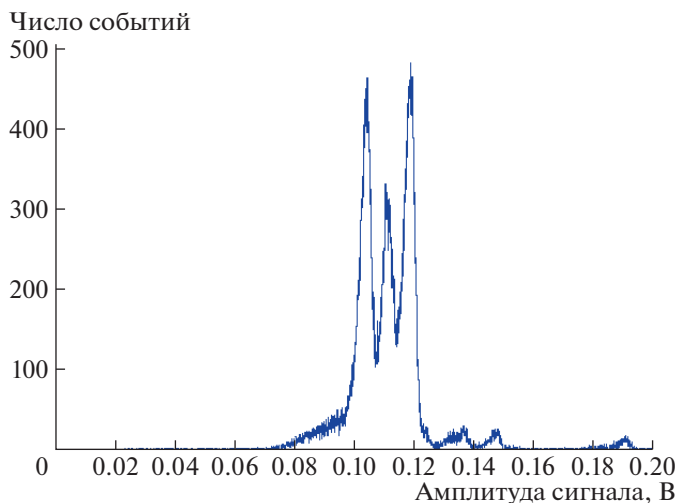


Рис. 6. Распределение событий по амплитуде сигнала от тройного источника альфа-частиц, полученное с помощью полупроводникового детектора.

давление изобутана должно составлять 120 торр. Для альфа-частиц также были промоделированы длины пробегов в изобутане при давлении 120 торр. Как можно увидеть из рис. 5, расстояния между пробегами альфа-частиц отличаются на 8 мм. Если мы сможем разделить такие треки в ВПК низкого давления, то сможем и разделить треки от изобарных ионов ^{10}Be и ^{10}B .

4. РЕЗУЛЬТАТЫ

Спектр тройного источника альфа-частиц прежде был измерен с помощью полупроводникового детектора. Для этого была собрана



Рис. 7. Типичная форма сигнала от альфа-частицы в ВПК низкого давления.

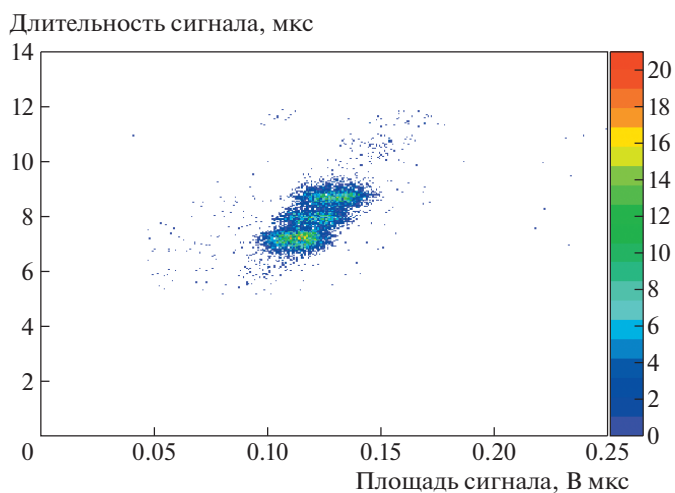


Рис. 8. Двумерное распределение по длительности и площади сигнала от тройного источника альфа-частиц в изобутане при давлении 120 торр в ВПК.

другая измерительная установка, в которой в качестве детектирующего элемента использовался кремниевый фотодиод. К верхней крышке был прикреплен тройной источник альфа-частиц. Объем детектора откачивался до вакуума. Была набрана статистика и построено распределение событий по амплитуде сигнала. Результаты показаны на рис. 6: три линии альфа-частиц разделяются с хорошим разрешением. Нужно отметить, что с помощью полупроводникового детектора нельзя разделить изобары ^{10}Be и ^{10}B , так как на выходе из УМС они имеют одинаковую кинетическую энергию.

В ВПК низкого давления также был измерен спектр тройного источника альфа-частиц при давлении 120 торр и эффективном усилении ТГЭУ,

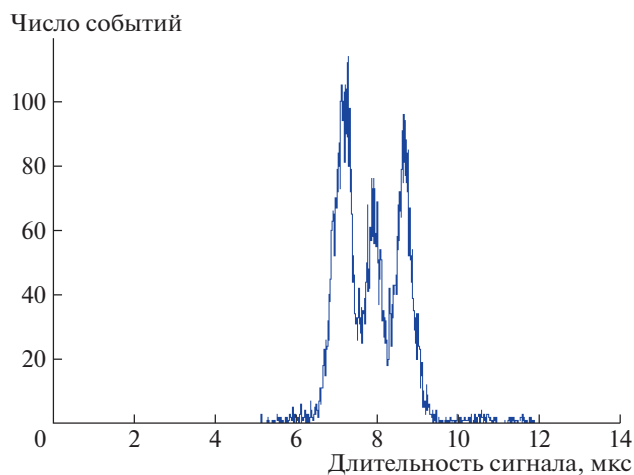


Рис. 9. Распределение событий по длительности сигнала от тройного источника альфа-частиц в изобутане при давлении 120 торр в ВПК.

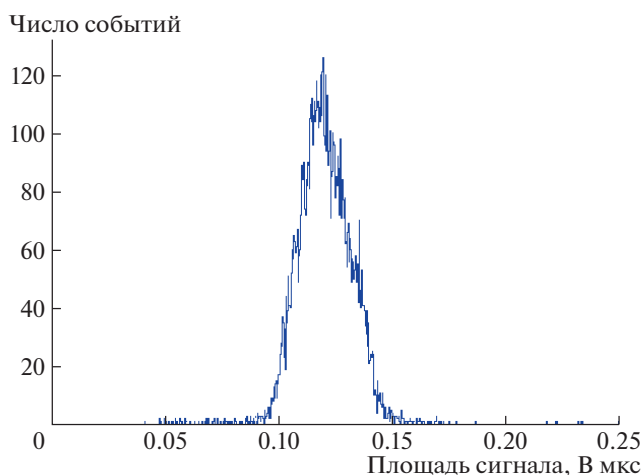


Рис. 10. Распределение событий по площади сигнала от тройного источника альфа-частиц в изобутане при давлении 120 торр в ВПК.

равном 40. При анализе данных определялись длительность сигнала, которая пропорциональна длине пробега и площадь сигнала, которая в свою очередь пропорциональна энергии альфа-частицы, что показано на рис. 7.

Было построено двумерное распределение длительности импульса в зависимости от площади импульса. На рис. 8 можно четко определить три области, соответствующие трем линиям альфа-частиц. Эти области хорошо разделяются по длительности сигнала на рис. 9, что говорит о том, что альфа-частицы можно разделять по длине пробега во время-проекционной камере. Но с другой стороны, альфа-частицы не разделяются по площади сигнала (рис. 10), то есть по энергии. Это связано с плохим энергетическим разрешением ТГЭУ.

Высокая разрешающая способность этого метода приведена в табл. 2 для двух времен формирования. Для ионов ^{10}Be и ^{10}B мы всегда можем воспроизвести разрешение, полученное для альфа-частиц, изменяя значения давления и напряженности электрического поля.

Сравнивая рис. 5 и 9, можно заметить худшее экспериментальное разрешение по сравнению с моделированием в программе SRIM. Это связано с тем, что при моделировании не учитывается диффузия электронов при их дрейфе в объеме газа. При совместной работе ВПК низкого давления с УМС будет предоставлен независимый сигнал запуска (триггер), что позволит значительно уменьшить зависимость от диффузии и улучшить временное разрешение.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Была разработана и успешно протестирована ВПК низкого давления с ТГЭУ, в которой были успешно зарегистрированы треки альфа-частиц от разных радиоактивных источников. В частности, с высокой точностью (около 2%) были измерены их длины пробегов. Было проведено моделирование и показано, что с помощью метода измерения длин пробегов ионов можно эффективно идентифицировать изобарные ионы бора и бериллия (на уровне 10 сигма), которые используются для датировки геологических объектов на УМС.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. A. E. Litherland, *Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.* **30**, 437 (1980).
2. L. K. Fifield, *Rep. Prog. Phys.* **62**, 1223 (1999).
3. G. Wagner, *Age Determination of Young Rocks and Artifacts: Physical and Chemical Clocks and Quaternary Geology and Archeology* (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1998).
4. S. A. Rastigeev *et al.*, *Prob. Atomic Sci. Technol.* **79**, 188 (2012).
5. V. V. Parkhomchuk and S. A. Rastigeev, *J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron and Neutron Techn.* **6**, 1068 (2011).
6. C. K. Shalem *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods A* **558**, 468 (2006).
7. J. Ziegler, SRIM, <http://www.srim.org/>
8. <http://gmsh.info/>
9. <https://www.csc.fi/web/elmer>
10. <https://garfieldpp.web.cern.ch/garfieldpp/>
11. M. Dobeli *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods B* **219–220**, 415 (2004).

DEVELOPMENT OF ION DETECTOR FOR ACCELERATOR MASS SPECTROMETRY BASED ON LOW-PRESSURE TPC WITH THGEM READOUT

**A. Bondar^{1),2)}, A. Buzulutskov^{1),2)}, E. Frolov^{1),2)}, V. Parkhomchuk^{1),2)}, A. Petrozhitskiy^{1),2)},
T. Shakirova^{1),2)}, A. Sokolov^{1),2)}**

¹⁾Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS, Novosibirsk, Russia

²⁾Novosibirsk State University, Russia

A new technique for ion identification in Accelerator Mass Spectrometry (AMS) has been proposed by measuring the ion track ranges using a low-pressure TPC. As a proof of principle, a low-pressure TPC with charge readout using a THGEM multiplier was developed. The tracks of alpha particles from various radioactive sources were successfully recorded in the TPC. The track ranges were measured with a high accuracy, reaching the 2% resolution level. Using these results and the SRIM code simulation, it is shown that the isobaric boron and beryllium ions can be effectively separated at ten sigma level. It is expected that this technique will be applied in the AMS facility in Novosibirsk for dating geological objects, in particular for the geochronology of Cenozoic Era.