

И.Н.Бекман**ЯДЕРНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ В ТОМОГРАФИИ НА α -ИЗЛУЧАЮЩИХ
ДИФФУЗИОННЫХ ГАЗОВЫХ ЗОНДАХ****Аннотация**

Рассмотрены перспективы одновременного использования метода радиоактивного газового зонда и метода α -спектроскопии для целей диффузионно-структурного анализа слоистых материалов. Проведены расчеты спектров α -частиц, испускаемых из гомогенной и слоистой пластины, подвергнутой диффузионному отжигу в атмосфере радиоактивного газа. Основное внимание уделено таким режимам, как равновесная сорбция, стационарная и нестационарная проницаемость. Показано, что в целом α -спектры отражают форму концентрационного профиля газового зонда, однако имеет место повышенный вклад низкоэнергетической составляющей. Аппаратурная функция характеризуется крутым высокоэнергетическим фронтом и пологим низкоэнергетическим. Предлагаемая методика позволяет определить глубину залегания областей с аномально высокой сорбционной способностью, рассчитать предельные емкости адсорбционных центров и глубины соответствующих потенциальных ям, а также оценить высоту потенциальных энергетических барьеров на входах в ловушки.

При использовании метода томографии на радиоактивных диффузионных газовых зондах для целей диффузионно-структурного анализа [1] основное внимание уделяют восстановлению пространственного распределения концентрации зонда по объему гетерогенного материала. Задача может быть решена путем измерения распределения плотности радиационного поля вокруг образца. В случае образцов плоской формы достаточно измерить локализуящим детектором (например, методом автордиографии) распределение плотности поля на одной из поверхностей пластины. Используя способ аналитического продолжения радиационных полей удастся выявить региональные и локальные неоднородности в концентрационном поле и локализовать источники излучения. Однако, при практическом применении данного способа для анализа произвольных структур возникают существенные трудности, связанные с некорректностью обратных задач диффузии. Можно ожидать, что вовлечение в томографию спектроскопии ядерного излучения, выходящего из образца, позволит существенно увеличить информативность методик диффузионного материаловедения.

Настоящая работа демонстрирует возможности использования ядерной спектроскопии для восстановления пространственных распределений α -излучающих зондов, возникающих как в стационарных, так и нестационарных условиях диффузионного эксперимента. Основное внимание уделено однородным и слоистым средам, диагностируемым такими вариантами диффузионно-зондового анализа, как сорбционный метод и метод газопроницаемости.

Как известно, под вычислительной диагностикой понимают определение количественных или качественных характеристик различных материальных объектов по измеренной косвенной информации о них $Y=AX$, где A - оператор, определяемый природой величин X , Y и методом регистрации косвенной информации Y [2]. Он может представлять собой суперпозицию операторов, каждый из которых описывает либо физические процессы, происходящие при распространении излучения в исследуемых объектах и в измерительной аппаратуре, либо формальные связи между регистрируемыми и определяемыми характеристиками. Оператор A имеет различный вид в зависимости от симметрии исследуемого объекта.

Основные математические задачи вычислительной диагностики (в том числе и компьютерной томографии) сводятся к решению операторных уравнений 1 рода. Например, при томографии на радиоактивных зондах с мягким γ -излучением носителем информации

являются гамма-кванты, поле излучения которых характеризуется функцией потока излучения $I(r, \Omega, E)$, где вектор r - пространственные координаты, вектор Ω - угловые координаты, а E - энергия фотонов. Если функцию плотности источников гамма-квантов обозначить через $I_0(r, \Omega, E)$, то распространение гамма-квантов в веществе с линейным коэффициентом ослабления $f(r, E)$ можно описать с помощью уравнения переноса [3]:

$$S_f I = \Omega \nabla I + f(r, E) I - \int_{E_1}^{E_2} dE \odot \int \Sigma_c(\Omega \odot, E \odot, \Omega, E) I(r, \Omega \odot, E \odot) d\Omega \odot = I_0(r, \Omega, E), \quad (1)$$

где Σ_c - макросечение рэлеевского или комптоновского рассеяния.

В отличие от медицинской томографии, в которой обычно используется рентгеновское или гамма-излучение, в диффузионной томографии в связи с существенно более малыми объектами исследования и, следовательно, со значительно более жесткими требованиями к разрешающей способности методик, нашли применение α -излучающие газы, например, радон.

Способы расчета энергетических спектров α -частиц рассмотрим на примере источника, представляющего собой пластину толщиной H , в которой распределен радиоактивный газовый зонд с концентрационным профилем $a(x)$. Пусть зонд испускает моноэнергетические α -частицы, а толщина пластины соизмерима с длиной пробега R в материале образца α -частицы, но не превышает ее. По площади источника атомы зонда распределены равномерно. Считая α -излучение изотропным и пренебрегая отражением α -частиц и незначительным краевым эффектом найдем относительное число α -частиц N , вылетающих из образца [4]:

$$N = \frac{1}{2} \int_0^H A(x) x \int_x^R \frac{1}{r^2} dr dx, \quad (2)$$

$$\text{где } A = \frac{a(x)}{\int_0^H a(x) dx}.$$

Разбив длину пробега α -частиц в материале на m участков, а толщину пластины - на k слоев представим уравнение (2) в матричной форме:

$$\mathbf{N} = \mathbf{B} \mathbf{A} \quad (3)$$

где $\mathbf{N}$ и $\mathbf{A}$ - матрицы с одним столбцом, содержащие m и k элементов соответственно.

При переходе от спектра пробегов α -частиц к энергетическому спектру следует учесть зависимость остаточной энергии α -частиц от их пробега в исследуемом материале. С этой целью H и R разбивают на отрезки таким образом, чтобы на каждом из них α -частица теряла одну и ту же энергию, равную произвольной и достаточно малой энергетической единице. Тогда элементы квадратной матрицы $\mathbf{B}$ имеют вид [4]:

$$b_{ij} = \begin{cases} \frac{2j-1}{4i(i-1)} & j < i \\ \frac{1}{4i} & i = j \\ 0 & j > i \end{cases} \quad (4)$$

где i и j - номера слоев пробега и толщины, соответственно.

Аппаратурная функция, при помощи которой осуществляется переход от спектра пробега α -частиц $N(r)$ к спектру амплитуд импульсов выражается в виде матрицы $\mathbf{G}$ каждый элемент которой g_{ik} показывает относительное число импульсов, попадающих в канал анализатора с уровнем дискриминации от E до $E + \Delta E$, вызываемых α -частицами, энергия которых лежит в интервале от ε до $\varepsilon + \Delta \varepsilon$. Искомый спектр амплитуд импульсов выражается матричным уравнением:

$$\mathbf{I} = \mathbf{G} \mathbf{N} = \mathbf{G} \mathbf{B} \mathbf{A} \quad (5)$$

Функцию $G(\epsilon, E)$ можно рассчитать аналитически, либо определить экспериментально, например, используя тонкие источники α -частиц различной энергии.

В настоящей работе матричное уравнение типа (5) положено в основу компьютерной программы для расчета спектров α -излучения, выходящих из образцов, диагностируемых методом диффузионно-зондовой томографии. В ходе расчетов учитывали функцию ослабления узкого пучка α -частиц изотопа в веществе, аппаратную функцию размытия узкой линии α -спектра, а так же уровень статистического разброса результатов измерений. В ходе математического моделирования задавали функцию распределения радиоактивного газового зонда по толщине пластины, возникающую при данном типе диффузионного эксперимента (сорбция [5], десорбция [6], проникаемость [7]) и рассчитывали спектр α -излучения, выходящего из образца. Для нестационарных режимов диффузии определяли эволюцию спектров во времени.

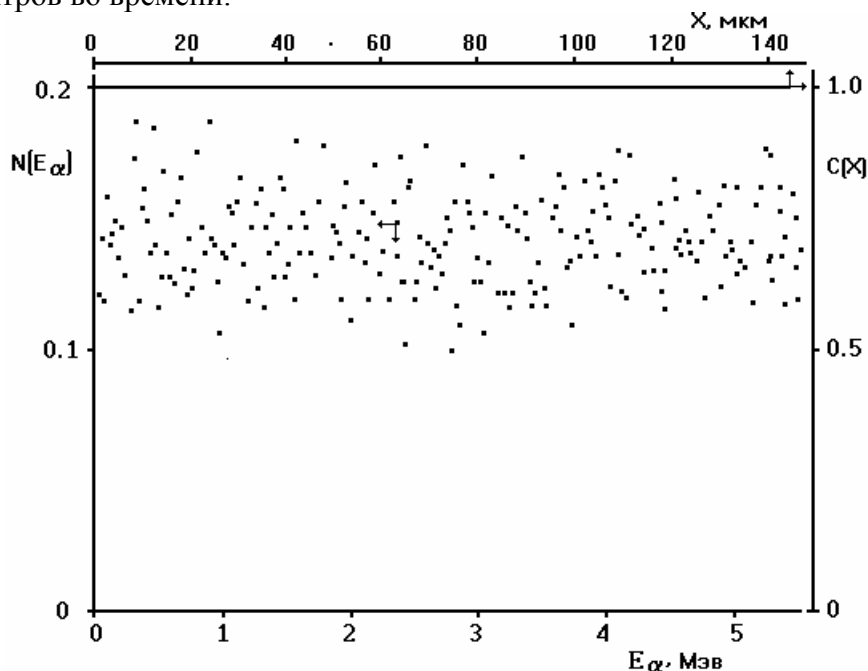


Рис.1а

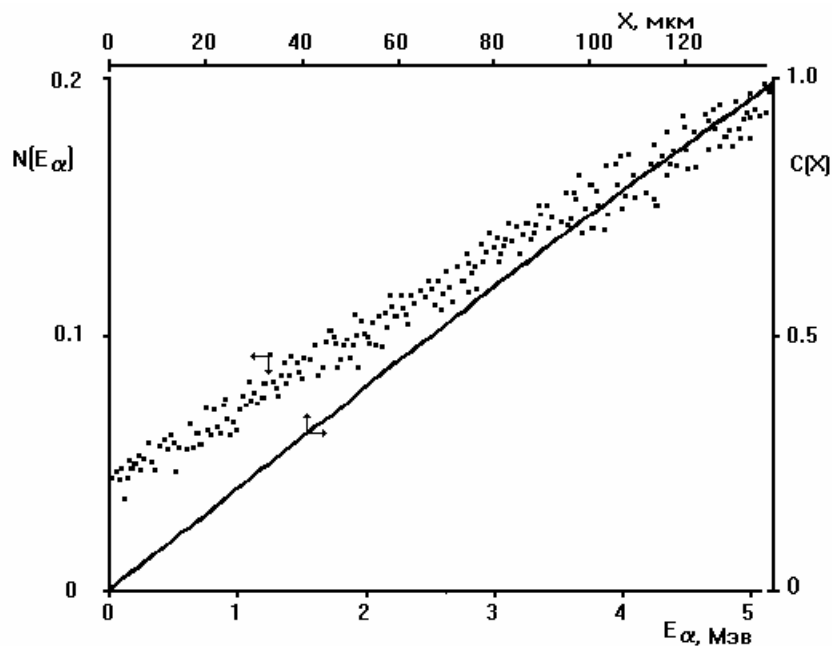


Рис.1б

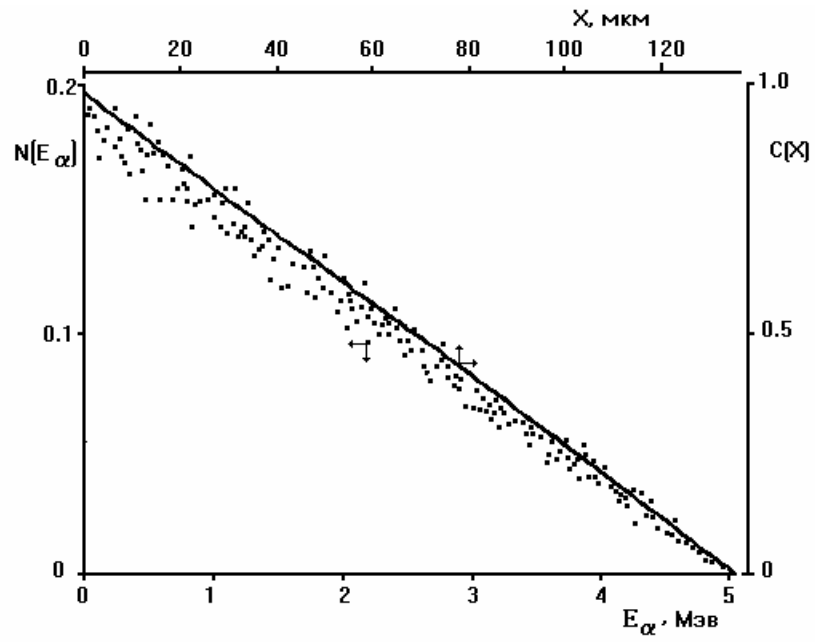


Рис.1в

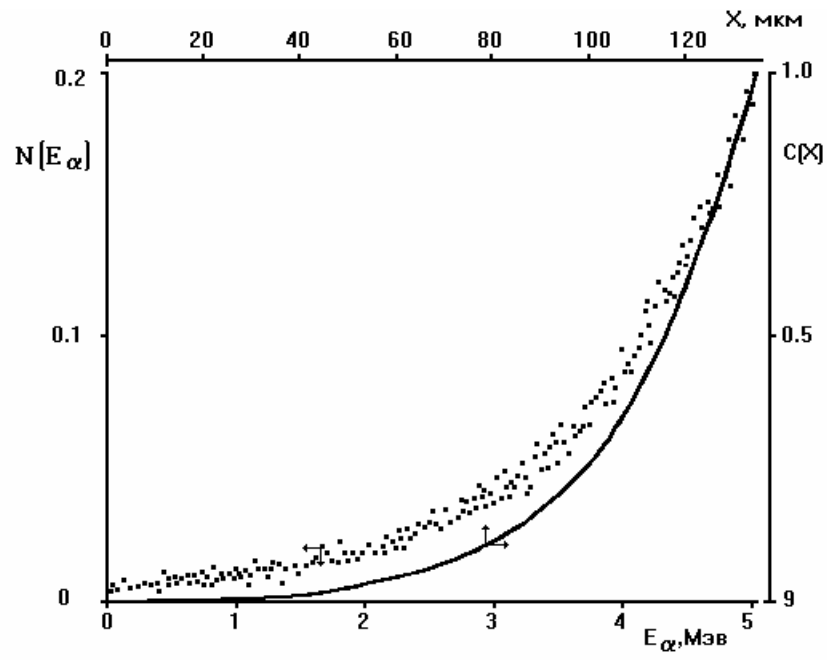


Рис.1г

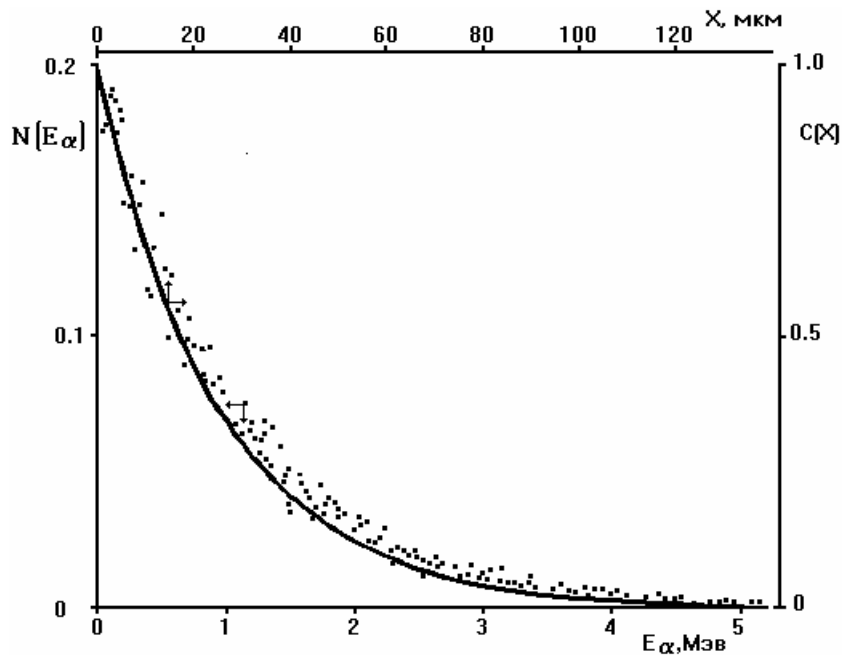


Рис. 1д

Рис. 1. Концентрационные профили радиоактивного газового зонда и спектры α -частиц, возникающие в различных вариантах диффузионно-зондовой томографии однородных сред.

- а) Метод равновесной сорбции;
- б) Метод стационарной проницаемости. Регистрация α -спектра осуществляется с входной стороны мембраны.
- в) Метод стационарной проницаемости. Регистрация α -спектра осуществляется с выходной стороны мембраны.
- г) Метод нестационарной проницаемости. Регистрация α -спектра осуществляется с входной стороны мембраны.
- д) Метод нестационарной проницаемости. Регистрация α -спектра осуществляется с выходной стороны мембраны.

Некоторые примеры приведены на рис.1. При однородном объемном распределении, возникающем при равновесной сорбции, радионуклида энергетический спектр α -частиц является равномерным: все энергии от нуля до максимальной присутствуют в спектре с одинаковой вероятностью. (рис.1а). В случае линейного концентрационного профиля, устанавливающегося в стационарном режиме газопроницаемости, энергетические спектры α -частиц также являются линейными, хотя тангенс угла наклона спектра отличается от такового для концентрационного профиля. Особенно это заметно при регистрации спектра с входной стороны мембраны (рис.1б), где вклад низкоэнергетической составляющей существенно выше, чем при снятии спектра с выходной стороны мембраны (рис.1в). Аналогичные эффекты наблюдаются при концентрационных профилях экспоненциального типа, возникающих в нестационарных режимах проницаемости (рис. 1г-входная сторона мембраны и рис.1д - выходная сторона мембраны).

Перейдем теперь к анализу слоистых сред.

Пусть в нашем распоряжении имеется однородная пластина равномерно насыщенная радиоактивным газом. Будем покрывать пластину последовательно увеличивающимися слоями из того же, но не активного материала. Эволюция энергетических спектров α -частиц представлена на рис.2. Видно, что по мере роста толщины покрытия, энергетические спектры переходят от равномерного вида к линейно ниспадающему.

Рассмотрим далее случай бесконечно тонких слоев материала с повышенной абсорбционной способностью, расположенных в объеме исходного материала. Пусть, для определенности мы имеем образец в виде четырех пластин из материала 1, проложенных тремя тонкими пленками из материала 2, в котором значение константы растворимости радиоактивного газа существенно выше, чем сорбционная емкость основного материала 1.

При двустороннем равномерном насыщении такого слоистого материала радиоактивным газом концентрационный профиль зонда будет равномерным в областях основного материала и характеризоваться узкими пиками высокой концентрации в зоне тонких прокладок из материала 2 (рис. 3а). Энергетические спектры α -частиц, покидающих образец в какую-либо сторону так же имеют однородные и пикообразные участки. Рис.3а демонстрирует, что аппаратная функция является существенно асимметричной: форма линии энергетического спектра имеет крутой высокоэнергетический фронт и экспоненциально ниспадающий низкоэнергетический фронт. Заметная ширина линии существенно ухудшает разрешающую способность ядерно-спектроскопического варианта диффузионно-зондовой диагностики. При одностороннем насыщении слоистого образца радиоактивным газом (стационарный режим проницаемости) по толщине мембраны устанавливается линейный концентрационный профиль (рис.3б), прерываемый узкими пиками концентрации на границах раздела слоев, высота которых линейно уменьшается по мере приближения к выходной поверхности мембраны. Энергетический спектр α -частиц отражает характер распределения газового зонда по объему образца, но форма спектра существенно зависит от стороны мембраны, с которой проводилась регистрация спектра. Спектроскопия с выходной поверхности мембраны лучше отражает глубокие, и хорошо насыщенные слои, чем более близко расположенные к детектору, но слабо насыщенные газом слои. Спектроскопия со стороны входа диффузанта в мембрану лучше отражает слои на средних глубинах: глубокие слои содержат мало газа и тонут в фоновом уровне, а слои с высокой концентрацией зонда, расположенные близко к детектору, сильно размыты из-за широкой аппаратной функции.

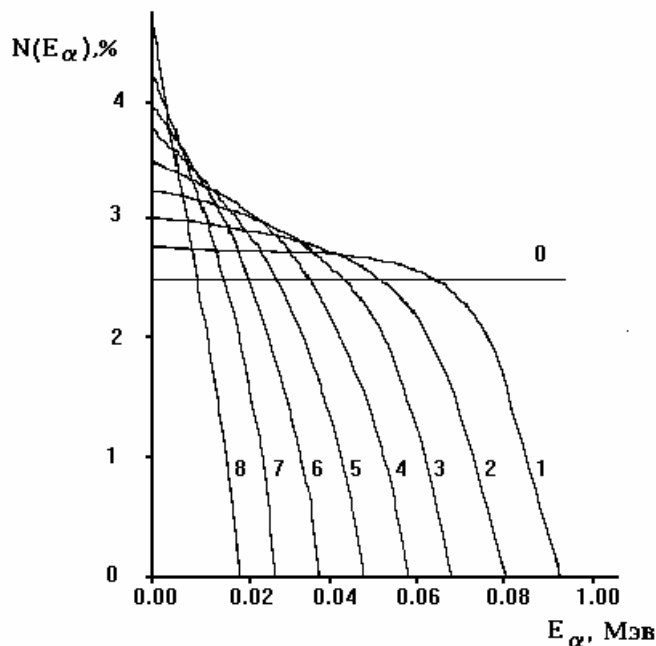


Рис. 2. Эволюция спектра α -частиц из однородно меченой толстой пластины при последовательном наложении на нее слоев неактивного материала толщиной $\Delta=0.1 R_{\alpha}$. Цифры на кривых обозначают число слоев неактивного материала.

Выводы, сделанные для слоистых сред, справедливы и для дефектных сред. Действительно, если однородное распределение потенциальных ям и барьеров, ответственных за растворение и диффузию газового зонда, прерываются глубокими потенциальными ямами (рис.3в), способными аккумулировать молекулы диффузанта, то спектры α -частиц будут аналогичны рассмотренным выше.

Прейдем теперь к рассмотрению перспектив использования нестационарных диффузионных режимов и ядерной спектроскопии для целей диффузионно-структурного анализа. Очевидно что равновесное насыщение образца радиоактивным газом обнаруживает наличие в материале аномально глубоких потенциальных ям ("ловушек"), но не регистрирует присутствие высоких энергетических барьеров, так же замедляющих миграцию зонда.

Нестационарные диффузионные эксперименты, сопровождаемые α -спектроскопией в различные интервалы времени вдали от равновесной сорбции, позволяют получать информацию как о ловушках, так и о транспортных путях.

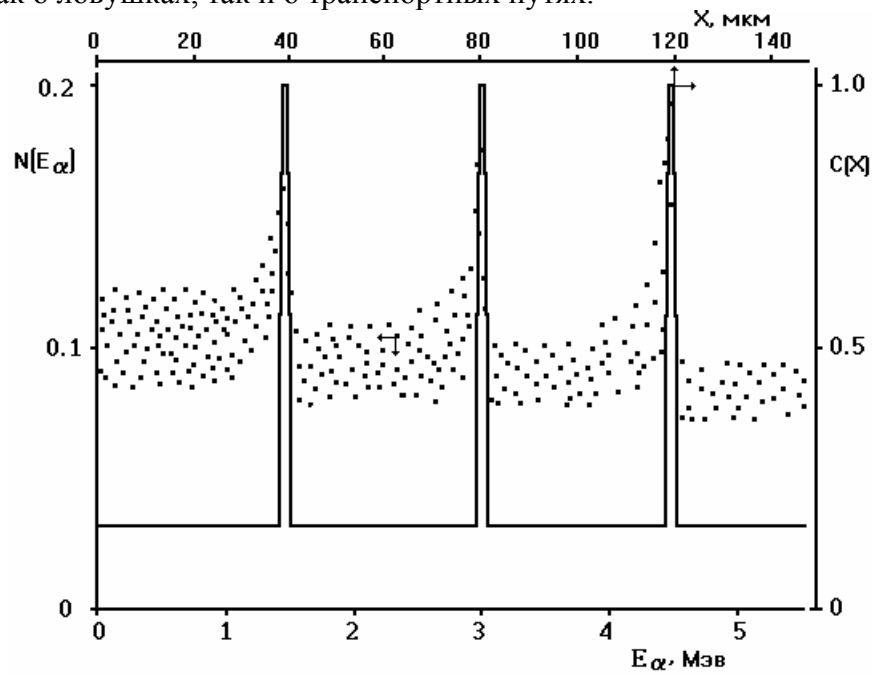


Рис.3а

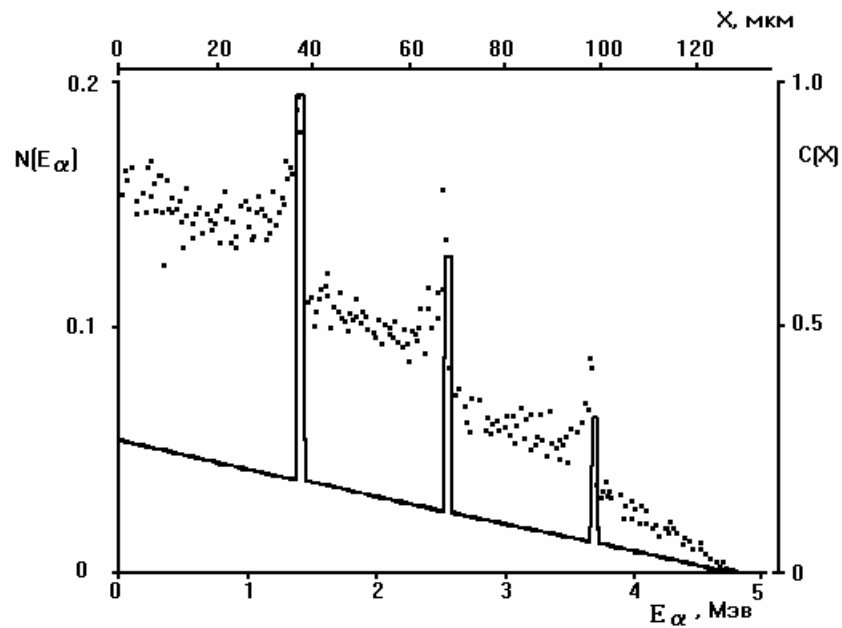


Рис.3б

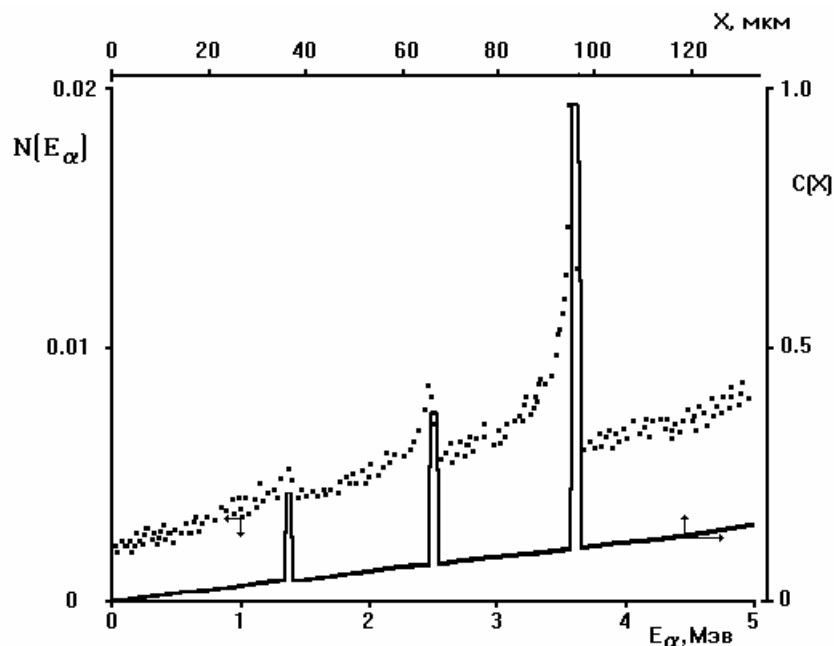


Рис.3в

Рис. 3. Концентрационные профили радиоактивного газового зонда и спектры α -частиц, возникающие в различных вариантах диффузионно-зондовой томографии слоистых сред.

а) Метод равновесной сорбции;

б) Метод стационарной проницаемости. Регистрация α -спектра осуществляется с входной стороны мембраны.

в) Метод стационарной проницаемости. Регистрация α -спектра осуществляется с выходной стороны мембраны.

Особенности использования нестационарных режимов в диффузионно-зондовой диагностике проиллюстрируем на примере выявления и определения высот потенциальных барьеров на входе в ловушку.

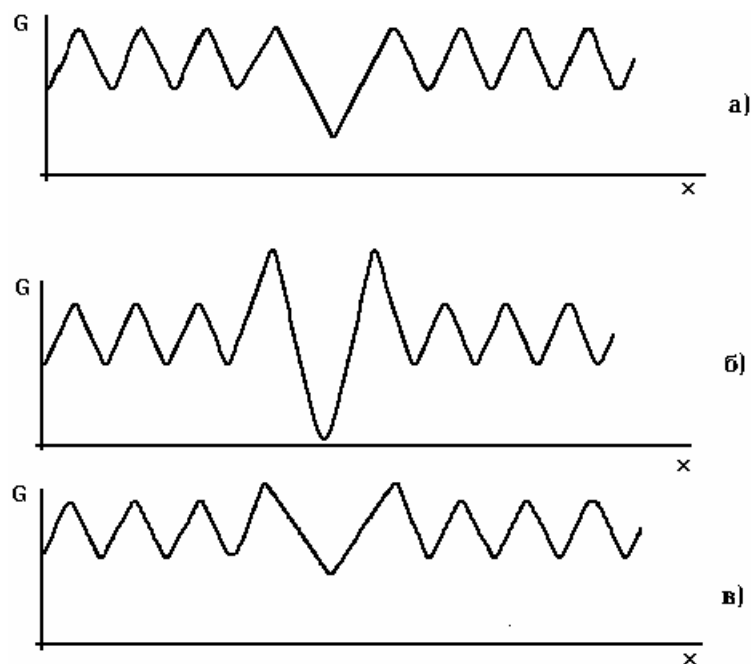


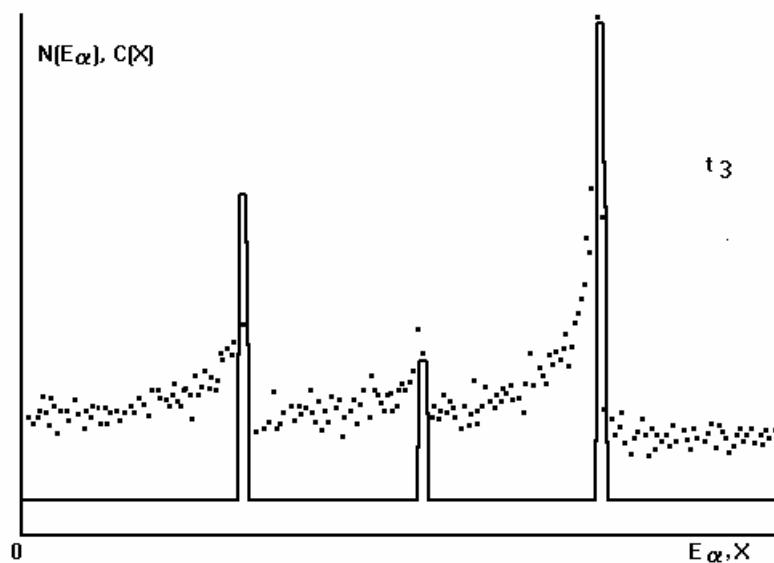
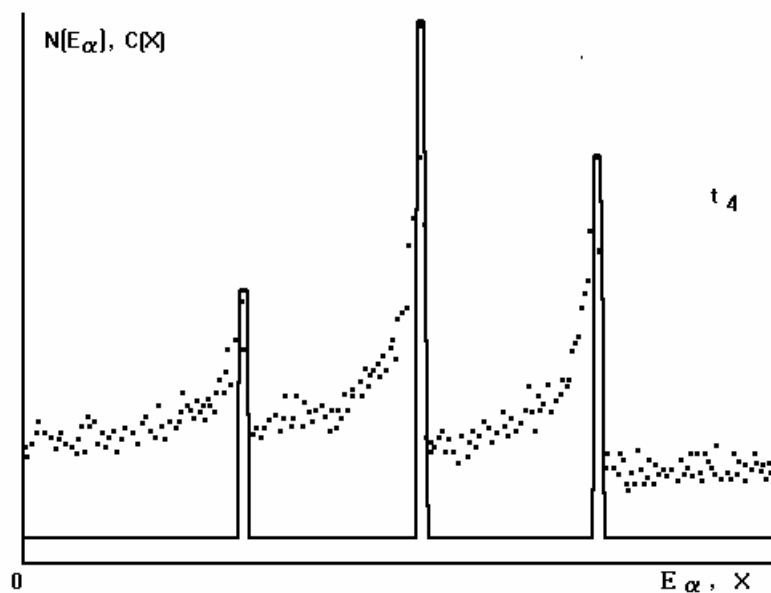
Рис. 4. Энергетические диаграммы ловушек в слоистых дефектных средах.

а) Ловушка средней глубины с отсутствием дополнительного потенциального барьера на входе (тип I).

б) Глубокая ловушка с высоким дополнительным потенциальным барьером на входе (тип II).

в) Мелкая ловушка с низким дополнительным потенциальным барьером на входе (тип II).

Пусть в нашем распоряжении имеется образец, в котором монотонное чередование потенциальных ям и барьеров прерывается слоями глубоких ловушек (рис.4). Здесь мы полагаем, что ширина ловушки равна одной постоянной решетки. Потенциальные ямы отличаются по глубине и по высотам барьеров на их входе. Яма типа I имеет среднюю глубину и не имеет дополнительного потенциального барьера на входе. Самая глубокая яма (тип II) имеет и самый высокий потенциальный барьер на входе. Самая мелкая яма типа III имеет потенциальный барьер на входе средней высоты. Приведем данный образец в контакт с радиоактивным газом и начнем диффузионный отжиг. Через определенные временные интервалы, t_i , диффузию прекращали и измеряли спектры энергий α -частиц, выходящих с одной из поверхностей образца. Эксперименты проводили вплоть до достижения равновесного распределения зонда.



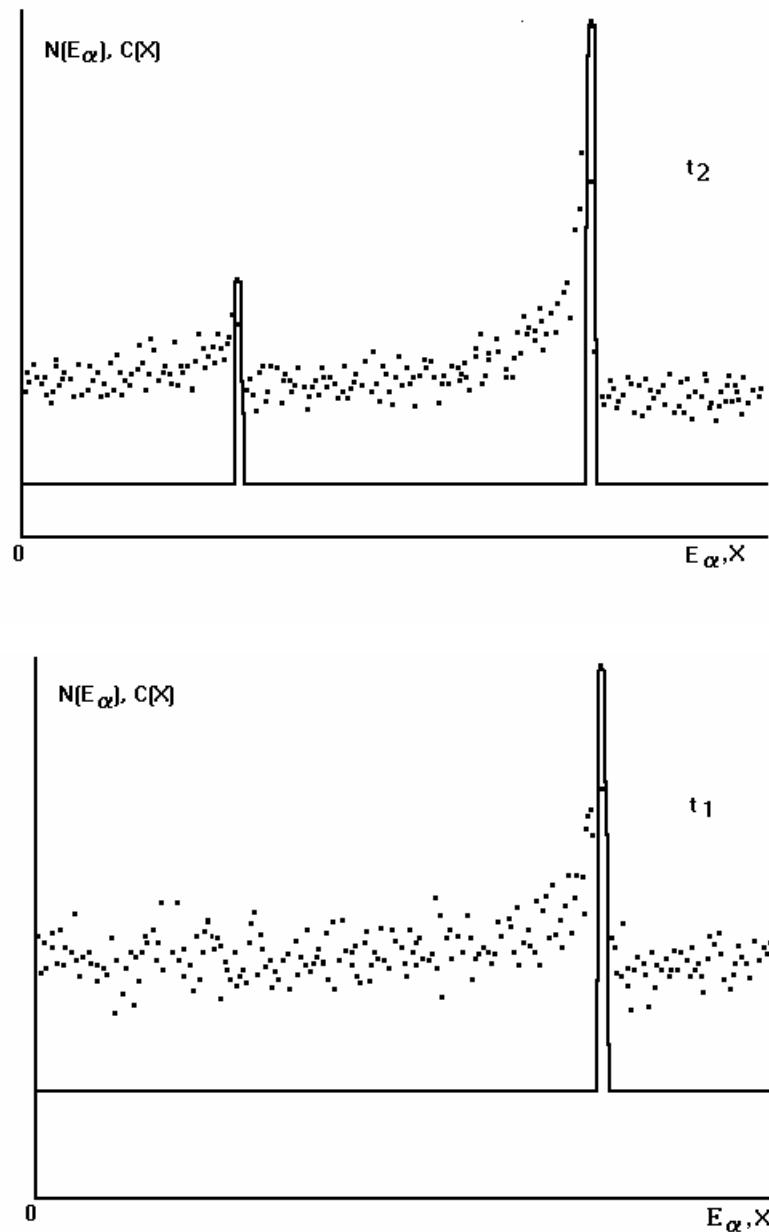


Рис. 5. Концентрационные профили радиоактивного газового зонда и спектры α -частиц, возникающие в ходе нестационарного сорбционного зондирования слоистой дефектной среды. Цифры на кривых - последовательно увеличивающиеся времена диффузии радиоактивного газа в пластину.

Таким образом был получен набор спектров α -частиц, снятых при последовательно увеличивающихся временах диффузии (рис.5). Хорошо видно, что при малых временах диффузии, начинают заполняться не самые глубокие ловушки II, а ловушки I со средней глубиной, но не имеющие дополнительных потенциальных барьеров на входе (рис.5а). При увеличении времени диффузии начинают заполняться самые мелкие ловушки III с умеренной высотой потенциального барьера на входе (рис.5б). При этих временах ловушки типа I уже полностью заполнены, и в дальнейшем концентрация зонда в них не изменяется. Лишь при больших временах начинается заполнение глубоких ловушек с высоким потенциальным барьером на входе (рис.5в). Со временем, однако, процесс ускоряется и концентрация газа в ловушках типа II начинает превышать концентрацию зонда в уже полностью заполненных ловушках типа I и III. Спектр при равновесной сорбции (рис.5г) наглядно отражает существующее в образце распределение потенциальных ям по глубинам. Высоты дополнительных потенциальных барьеров могут оценены по величинам параметров, описывающих кинетику изменения высот соответствующих пиков на α -спектрах.

В рамках настоящей работы мы методами математического моделирования продемонстрировали возможности варианта диффузионно-структурного анализа, сочетающего метод радиоактивного газового зонда (в стационарном и нестационарном режимах) с методом α -спектроскопии. Предложенный вариант позволяет обнаруживать в образце наличие областей с повышенной сорбционной способностью, определять энергетический спектр глубин потенциальных ям, рассчитывать их относительную емкость и глубину залегания в образце, а также оценивать высоту дополнительных потенциальных барьеров на входе в ловушку.

Следует, однако, помнить, что обратная задача интерпретации энергетических спектров α -частиц относится к классу некорректно поставленных задач математической физики. При нахождении приближенных решений подобных проблем необходимо использовать методы регуляризации, позволяющие учитывать дополнительную информацию о решаемой задаче [2]. Разнообразие такой информации порождает многочисленные алгоритмы решения основных математических задач вычислительной диагностики. Одна из главных проблем - выбор среди всех возможных алгоритмов в каком-то смысле лучший. Для компьютерной томографии критерием такого рода алгоритмов может быть, например, пространственное разрешение методики. Рассматриваемый здесь способ достаточно хорошо определяет глубину залегания областей с аномальными сорбционно-диффузионными свойствами, но не позволяет находить две другие координаты аномальной области. Для пространственной локализации отдельных аномалий необходимо прибегать к методу сканирующей спектроскопии, позволяющей регистрировать характер распределения спектров α -частиц по поверхности образца.

Литература.

1. Бекман И.Н. - Вестник МГУ, сер.2: химия, **1994**, 35, с.547
2. Тихонов А.Н., Арсенин В.Я., Тимонов А.А. Математические задачи компьютерной томографии. М.: Наука, **1987**, 160 с.
3. Фано У., Спенсер Л., Бергер М. Перенос гамма-излучения.-М.: Госатомиздат, 1963.
4. Григорьев В.П. - Атомная энергия, **1966**, 21, с.517
5. Бекман И.Н. - Радиохимия, **1983**, 25, с.252
6. Бекман И.Н., Швыряев А.А. - Радиохимия, **1987**, 29, с.337.
7. Бекман И.Н., Бровко А.П. - Радиохимия, **1981**, 23, с.267.