

УДК 543:427

© М. С. Горбунов, А. Ю. Портной, Г. В. Павлинский

ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ ГЕОМЕТРИИ ЭНЕРГОДИСПЕРСИОННОГО РЕНТГЕНОВСКОГО ФЛУОРЕСЦЕНТНОГО СПЕКТРОМЕТРА НА ФОРМУ СПЕКТРА ПРИ УЧЕТЕ МНОГОКРАТНОГО РАССЕЯНИЯ

Рассмотрены существующие модели учета влияния геометрического фактора на формирование аналитического сигнала и фона при выполнении рентгеновского флуоресцентного анализа на энергодисперсионном спектрометре. Предложена модель учета многократного рассеяния с использованием метода Монте-Карло для моделирования процессов радиационного и электронного переноса в элементах рассматриваемого спектрометра. Показано, что учет многократного рассеяния существенно улучшает согласие расчетных и экспериментальных данных.

Кл. сл.: полупроводниковый детектор, функция отклика, EDXRF, геометрический фактор

ВВЕДЕНИЕ

Учет многократного взаимодействия первичного излучения с веществом образца и деталями спектрометра представляет собой достаточно сложную задачу при реальной геометрии энергодисперсионных спектрометров с малым расстоянием между источником излучения, образцом и детектором. При таких условиях для корректного описания спектрального распределения излучения,

попадающего в детектор от образца и от элементов спектрометра, требуется детальное рассмотрение процессов когерентного и некогерентного рассеяния. Возникающие задачи оказываются аналогичными при возбуждении рентгеновской флуоресценции излучением рентгеновской трубки и при использовании для этих целей радиоактивных источников, например ^{109}Cd или ^{241}Am .

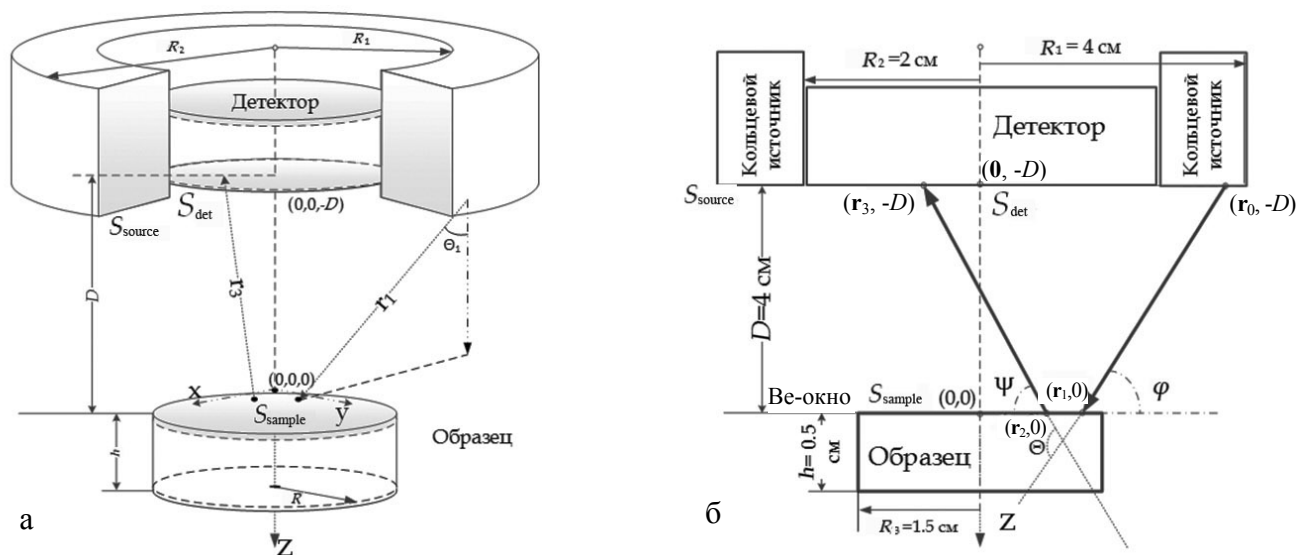


Рис. 1. К расчету геометрического фактора аналитическим методом [1].

а — модель спектрометра, б — углы падения первичного и отбора флуоресцентного излучений

Модель радиационного переноса с помощью решения транспортного уравнения, предложенная, например, в работе [2], предполагает взаимодействия излучения с веществом, с удаленными от образца источниками излучения и детектором, при которых девиация угла рассеяния пренебрежимо мала.

В статье [1] предложена модель энергодисперсионного спектрометра, которая учитывает разброс углов взаимодействия в системе источник—образец—детектор, однако в такой модели не учитывается процесс многократного рассеяния фотона.

Целью настоящей работы является учет многократного рассеяния первичного излучения в энергодисперсионном спектрометре при малых расстояниях между основными его элементами: источником излучения, образцом и полупроводниковым детектором. При моделировании поведения рассматриваемой системы использован метод Монте-Карло. Результаты расчетов сопоставлены с данными, полученными в работе [1].

ТЕОРИЯ

В работе [1] предложена модель спектрометра с радиоизотопным источником (рис. 1), в которой рентгеновский фотон, с энергией E_0 покидающий поверхность источника площадью S_{source} в точке \mathbf{r}_0 , попадает на поверхность образца площадью S_{sample} под углом φ к его поверхности, проникая в глубину его рабочего объема и взаимодействуя с его веществом в точке \mathbf{r}_1 . После взаимодействия фотон, имеющий энергию E , покидает поверхность образца под углом ψ в направлении детектора и попадает в точку \mathbf{r}_3 его поверхности площадью S_{det} . В первом приближении считается, что точка выхода фотона с поверхности образца \mathbf{r}_3 совпадает с точкой \mathbf{r}_2 попадания первичного фотона. Энергетический спектр с учетом допущения, что $|\mathbf{r}_{1,2} - \mathbf{r}_3|$ и $|\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_{1,2}|$ меняются слабо, может быть описан в следующем виде для данного процесса взаимодействия:

$$\frac{dN_{\text{detector}}}{dE} = \frac{\text{const}}{\left(\frac{\mu(E_0)}{\sin(\varphi_{\text{эфф}})} + \frac{\mu(E)}{\sin(\psi_{\text{эфф}})} \right)} \times \int_{\Theta} K(E_0 \rightarrow E, \Theta) \frac{dG(\Theta)}{d\Theta} \cdot d\Theta, \quad (1)$$

где $K(E_0 \rightarrow E, \Theta)$ — вероятность преобразования первичного фотона с энергией E_0 в веществе детектора в E с углом рассеяния Θ между векторами $|\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_{1,2}|$ и $|\mathbf{r}_{1,2} - \mathbf{r}_3|$; $\frac{dG(\Theta)}{d\Theta}$ — геометрический фактор, который можно интерпретировать как вероятность наблюдения события при угле однократного рассеяния Θ в заданной геометрии.

Согласно работе [1], были произведены геометрические расчеты геометрического фактора $\frac{dG(\Theta)}{d\Theta}$, на основании которого корректировался расчетный спектр рентгеновского излучения с использованием выражения (1).

В рамках данной работы для учета процессов многократного взаимодействия предложен иной подход к расчету геометрического фактора и спектра излучения, основанный на моделировании процессов в системе источник—образец—детектор по методу Монте-Карло.

Процесс моделирования разбит на три основных этапа:

- моделирование источника первичного излучения;
- моделирование процессов переноса внутри образца;
- моделирование процессов взаимодействия флуоресцентного и рассеянного излучений образца с веществом детектора и корректировка спектра функцией отклика детектора.

Геометрическая модель спектрометра при этом полностью аналогична представленной на рис. 1:

– образец — представляет собой цилиндрическое тело с высотой h и радиусом R , расположенное так, чтобы плоскость верхней грани, а также его ось симметрии проходили через точку начала координат $(0, 0, 0)$;

– источник — кольцо с внутренним радиусом R_1 , внешним радиусом R_2 и некоторой высотой h_{ring} , расположенный на удалении D от поверхности образца;

– детектор в виде цилиндра с радиусом R_1 и высотой h_{ring} , расположенного внутри кольца источника излучения.

Пространство между детектором, источником и образцом заполнено воздухом, находящимся под таким давлением, при котором длина свободного пробега фотона в данном объеме в интересующем нас диапазоне энергий была много большей, чем расстояние D между детектором и образцом.

Согласно предлагаемой модели, рентгеновский фотон, возникающий в объеме источника излучения, покидает его поверхность в направлении некоторого вектора \mathbf{r}_1 , затем фотон попадает

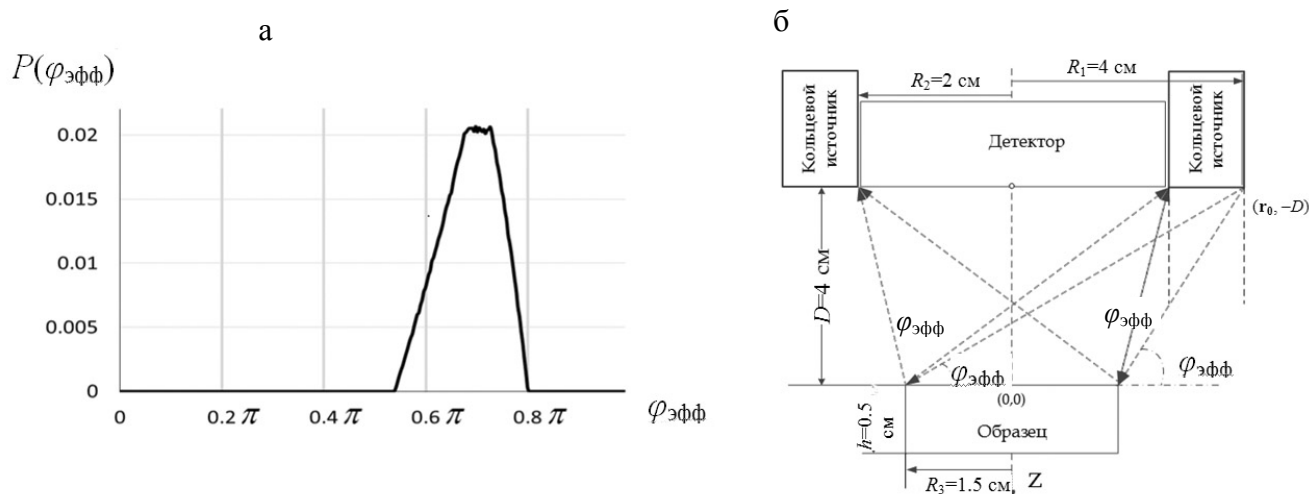


Рис. 2. Моделирование распределения угла падения первичного излучения. а — функция распределения первичных фотонов $P(\varphi)$, покинувших поверхность источника излучения в направлении образца; б — геометрические пояснения угла $\varphi_{\text{эфф}}$

в "рабочий объем" образца. В процессе взаимодействия с веществом образца возникающий флуоресцентный фотон покидает образец из точки \mathbf{r}_2 в направлении вектора \mathbf{r}_3 и затем регистрируется детектором.

В качестве основы для расчетов были взяты результаты и модели, представленные в работах [3–5]. Но предлагаемая модель имеет существенные отличия от них: присутствует моделирование первичного излучения и его пространственное распределение, рассмотрены многократные процессы взаимодействия первичного излучения с веществом образца, а также рассмотрено пространственное и угловое распределения покидающих образец в процессе взаимодействия фотонов.

Для реализации модели кольцевого источника рентгеновского излучения вводятся следующие допущения:

- в качестве спектрального распределения первичного излучения используется спектр радиоактивного источника ^{241}Am , согласно работе [6];

- излучение первичного фотона происходит непосредственно с его поверхности, направленной в сторону образца, а положение точки возникновения лежит в пределах кольца источника между внутренним радиусом R_1 и внешним R_2 .

Следовательно: $x = |R_2 - R_1| \cdot \text{random} \cdot \cos(\alpha)$ и $y = |R_2 - R_1| \cdot \text{random} \cdot \sin(\alpha)$ — координаты точки возникновения в плоскости XY поверхности источника; α — случайный угол в диапазоне 0 до 2π .

В процессе моделирования производится многократный розыгрыш событий возникновения излучения на поверхности источника, его дальнейшего попадания в образец, взаимодействия с веществом образца и детектирования рассеянного и флуоресцентного излучений, а также точки положения входа на поверхности образца вектора \mathbf{r}_1 и его полярного, а также азимутального углов. Результатом моделирования будет распределение угла падения φ , функция распределения которого представлена на рис. 2, а.

Попавший в активный объем образца рентгеновский фотон взаимодействует с веществом, при этом происходит изменение направления его движения, а также потеря энергии в процессе некогерентного рассеивания и флуоресценции. Следует отметить, что в рамках данной работы в первом приближении для упрощения модели расчетов не производится моделирование и расчет вкладов спектра тормозного излучения, возникшего в процессе взаимодействия с электронами вещества.

Вероятности процессов взаимодействия, рассматриваемых в данной работе, описываются следующими выражениями.

- Вероятность ионизации оболочки i фотоном с энергией E_0 вещества с атомным номером Z при длине пробега dl будет определяться выражением

$$dP_i = \tau_i(E_0) \rho dl, \quad (2)$$

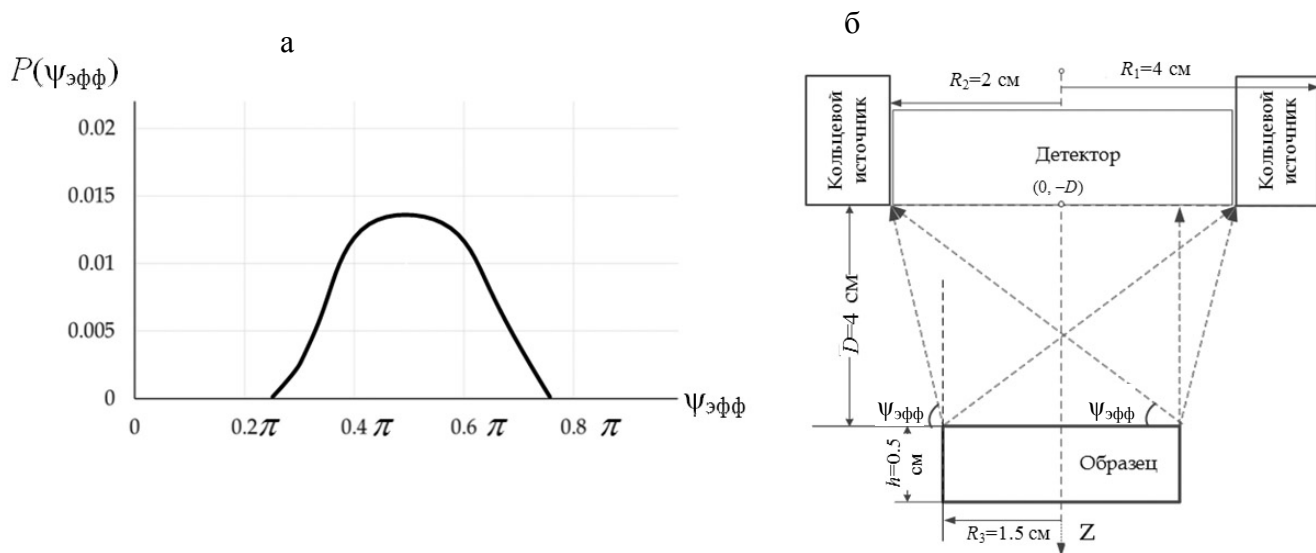


Рис. 3. Моделирование распределения угла отбора детектируемого излучения. а — угловая функция распределения рассеянных либо флуоресцентных фотонов, покинувших образец и попавших в детектор; б — геометрическое пояснение угла $\Psi_{эфф}$

где $\tau_i(E_0)$ — массовый фотоэлектрический коэффициент поглощения i -оболочкой, ρ — плотность вещества детектора.

• Для вероятности когерентного рассеяния фотона в веществе детектора на угол θ при длине пробега dl используется уравнение

$$\frac{d^2 P_{coh}(\theta)}{d\theta \cdot dl} = \rho \frac{N_A}{A} \cdot \frac{d\sigma^K(\theta)}{d\Omega} \cdot 2\pi \cdot \sin(\theta) \cdot F^2, \quad (3)$$

где $\frac{d\sigma^K}{d\Omega}$ — дифференциальное сечение когерентного рассеяния, определяемое формулой Томсона; F — атомный форм-фактор, определяющий электронную структуру атома.

• Для некогерентного (комптоновского) рассеяния вероятность будет иметь следующий вид:

$$\frac{d^2 P_{comp}(E_0 \rightarrow E(\theta))}{d\theta \cdot dl} = \rho \frac{N_A}{A} \cdot \frac{d\sigma^{KHT}(\theta)}{d\Omega} \cdot S, \quad (4)$$

где $\frac{d\sigma^{KHT}}{d\Omega}$ — дифференциальное сечение некогерентного рассеяния, определяемое формулой Клейна—Нишины—Тамма; S — функция некогерентного рассеяния.

Флуоресцентное и / или рассеянное излучение, покидающее активный объем образца, попадает в детектор рентгеновского излучения либо покидает рабочий объем спектрометра.

На рис. 3 представлены функции распределения азимутальных углов фотонов, покидающих образец.

На рис. 4 даны результаты расчета геометрического фактора как распределения углов однократного рассеяния в сравнении с результатами работы [1]. Как видно из этого рисунка, модель, рассчитанная аналитическим методом, и модель, полученная моделированием методом Монте-Карло спектрометра, имеют удовлетворительную сходимость.

Представленные на рисунках распределения нормированы на единицу, $\int_0^{2\pi} P(\theta) d\theta = 1$, это обусловлено тем, что вероятность сложного процесса (излучение источника—взаимодействие с веществом образца—регистрация) низкая, поэтому в модели рассматриваются отдельно угловые распределения для углов для каждого из этапов моделирования. А результат для распределения угла однократного рассеяния $\Theta = \psi - \varphi$ получается математической сверткой распределений

$$P(\Theta) = P(\psi) \cdot P(\varphi) = \int_0^{2\pi} P(\psi - \varphi) P(\varphi) d\varphi. \quad (5)$$

Для получения спектра регистрируемого сигнала следует анализировать процессы, происходящие в детекторе при поглощении фотона [5, 6].

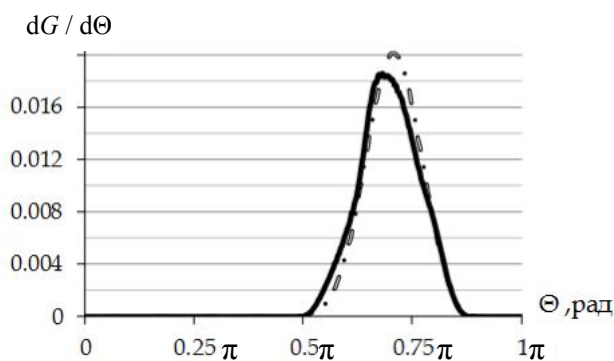


Рис. 4. Функция плотности вероятности углового распределения $P(\Theta)$ для падающего и выходящего из образца излучений. Расчеты данной работы — штрихпунктирная линия, данные из [1] — жирная линия.

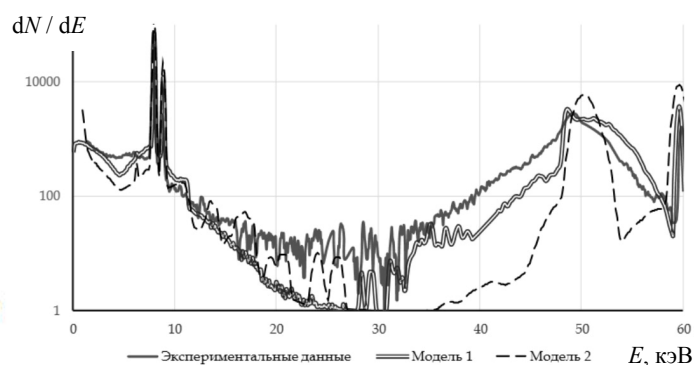


Рис. 5. Сравнение экспериментальных данных с расчетами, выполненными в рамках данной работы (модель 1), и расчетных данных работы [1] (модель 2) (^{241}Am , Cu).

Попавшее в детектор излучение может поглощаться веществом активной области детектора полностью в результате единичного взаимодействия или каскада взаимодействий. В случае, если фотон покидает пределы чувствительной области детектора при радиационном либо электронном переносе, соответствующий фотон будет зарегистрирован в "артефактах" функции отклика детектора. Также подобной проблемой является неполный сбор заряда в случае регистрации фотона в приповерхностном слое большой концентрации ловушек в приповерхностной области.

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ И ОБСУЖДЕНИЕ

Полученные в процессе моделирования спектры излучения, покинувшего образец и зарегистрированного детектором излучения, были скорректированы с учетом функции отклика детектора. На рис. 5 представлены расчетный спектр излучения Cu образца с корректировкой на функцию отклика детектора, использованного в данной работе, расчетный и измеренный спектры работы [1]. Все представленные графики нормированы по максимумам линий $\text{CuK}\alpha$.

В области энергий 48–60 кэВ (где фон обусловлен однократным и двукратным комптоновским рассеянием в образце) следует отметить улучшение точности описания фона в спектре по сравнению с работой [1] за счет включения в рассмотрение двух и более кратных процессов. Погрешность описания спектра в этой области составляет $\pm 10\%$.

В областях энергий менее 48 кэВ фон также обусловлен многократным комптоновским рассеянием в образце, поэтому представленный способ расчета, основанный на Монте-Карло-моделировании, также дает лучший результат по срав-

нению с работой [1]. Однако в данном случае погрешность описания фона остается достаточно высокой, что может быть связано с неточностями значений дифференциальных сечений рассеяния (см., например, [7]) либо отсутствием учета процесса рассеяния излучения на деталях и элементах спектрометра.

Для энергий от 15 до 40 кэВ разница может достигать порядка, что вероятно связано с неполной информацией о спектре излучения радиоактивного источника ^{241}Am (отсутствие учета тормозного излучения α -частиц).

Расхождение экспериментального и расчетного спектра в области малых энергий (до 10 кэВ) можно объяснить неточностью дифференциальных сечений комптоновского рассеяния для моделей флуоресцентного излучения образца, а также возможными допущениями в расчетах функции отклика детектора.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках данной работы было проведено моделирование влияния геометрического фактора энергодисперсионного спектрометра с учетом многократного рассеяния, которое позволило улучшить согласие экспериментальных и расчетных данных по сравнению с моделями, описывающими только процессы однократного рассеяния. Тем не менее требуются дополнительные уточнения, касающиеся как сечения взаимодействия, так и моделирования взаимодействия с деталями спектрометра.

В настоящий момент практическая значимость данных расчетов невысока, но ее результаты должны помочь в понимании механизмов формирования фонового сигнала и его дальнейшего учета и поиску методов повышения соотношения сигнал / фон.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Портной А.Ю., Павлинский Г.В., Духанин А.Ю. и др.* Формирование аналитического сигнала и фона в флуоресцентном рентгенорадиометрическом анализе при использовании радиоактивного источника ^{241}Am и Si(Li) детектора // Журнал аналитической химии. 2004. № 11. С. 1171–1180.
2. *Fernandez J.E., Hubbell J.H., Hanson A.L., Spenser L.V.* Polarization effects on multiple scattering gamma transport // *Radiation Physics and Chemistry*. 1993. Vol. 41, No. 4/5. P. 579–630.
3. *Афонин В.П., Лебедь В.И.* Метод Монте-Карло в рентгеноспектральном микроанализе. Новосибирск: Наука. Сиб. Отделение, 1989. 110 с.
4. *Портной А.Ю., Павлинский Г.В., Горбунов М.С.* Об оптимизации соотношения аналитический сигнал / фон в энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном анализе // Журнал аналитической химии. 2009. Т. 64. С. 511–520.
5. *Портной А.Ю., Павлинский Г.В., Горбунов М.С., Сидорова Ю.И.* Об особенностях фона, обусловленных переносом и сбором электронов в Si детекторе // Научное приборостроение. 2012. Т. 22, № 1. С. 25–35.
6. *Плотников Р.И., Пиеничный Г.А.* Флуоресцентный рентгенорадиометрический анализ. М.: Атомиздат, 1973. 264 с.
7. *Финкельштейн А.Л., Фарков П.М.* Аппроксимации коэффициентов ослабления рентгеновского излучения в области 0.1–100 кэВ // Аналитика и контроль. 2002. Т. 6, № 4. С. 377–382.

*Иркутский государственный университет
(Горбунов М.С., Павлинский Г.В.)*

*Иркутский государственный университет
путей сообщений (Портной А.Ю.)*

Контакты: *Горбунов Михаил Сергеевич,
romepatrician@rambler.ru*

Материал поступил в редакцию: 29.04.2014

UDK 543:427

AN ESTIMATION OF GEOMETRY FACTOR INFLUENCE OF EDXRF SPECTRA TAKING INTO ACCOUNT MULTIPLE SCATTERING

M. S. Gorbunov¹, A. Yu. Portnoy², G. V. Pavlinsky¹

¹*Applied Physics Institute of Irkutsk State University, Irkutsk, RF*
²*Irkutsk State University of Transport, Irkutsk, RF*

The current mathematical models of taking into account of influence of geometry factor on signal to background ratio are considered in case of real EDXRF spectrometers. The model of multiple scattering based on electron and photon radiation transport in elements of spectrometer using the Monte Carlo method is proposed. It is shown that taking into account multiple scattering lead to better agreement between experimental and calculated data.

Keywords: semiconductor detector, response function, EDXRF, geometry factor

REFERENCES

1. *Fernandez J.E., Hubbell J.H., Hanson A.L., Spenser L.V.* Polarization effects on multiple scattering gamma transport. *Radiation Physics and Chemistry*, 1993, vol. 41, no. 4/5, pp. 579–630.

Contacts: *Gorbunov Mikhail Sergeevich,
romepatrician@rambler.ru*

Article arrived in edition: 29.04.2014