

7. RNRA - Analýza materiálov pomocou rezonančných jadrových reakcií

1. Všeobecná časť

Pri interakcii iónov s látkou môže nastať prípad, že letiaci kladný ión (protón, deuterón, α -častica a pod.) prekoná potenciálovú jadrovú bariéru a prenikne do jadra. Vzniknuté zložené jadro má narušenú rovnováhu nukleónov. Je nestabilné a po veľmi krátkom čase sa rozpadá, pričom časť nukleónov emituje. Po dosiahnutí stabilného počtu nukleónov vzniká nový prvok vo vzbudenom stave, t.j. s prebytkom energie, ktorá však nestačí na emisiu ďalšieho nukleónu. Tejto energie sa jadro zbavuje vyžiarovaním jedného, prípadne niekoľkých γ -kvánt. Emitované nukleóny a γ -kvantá majú definované energie charakteristické pre jednotlivé jadrové reakcie. Ak poznáme pravdepodobnosť vzniku jadrovej reakcie, môžeme meraním energie a počtu vyžiarených nukleónov alebo γ -kvánt určiť druh a množstvo určitého izotopu v skúmanej vzorke.

Letiaci ión môže prekonať potenciálovú jadrovú bariéru v dvoch prípadoch, a to, ak je jeho energia vyššia ako coulombovská bariéra - **nadprahové reakcie**, alebo ak spĺňa podmienku povoleného prechodu medzi jadrovými hladinami - **podprahové reakcie**. Pri hĺbkovej analýze vzoriek pomocou NRA (Nuclear Reaction Analysis - analýza pomocou jadrových reakcií) sa využívajú predovšetkým podprahové reakcie, pretože k nim dochádza len pri určitých konkrétnych kinetických energiách iónov, ktoré označujeme ako **rezonančné energie E_r** .

Podprahové jadrové reakcie používané na analýzy vznikajú pri relatívne nízkych energiách ľahkých iónov ($E_0 \sim \text{MeV}$) dopadajúcich na ľahké prvky ($Z_2 \leq 15$). Účinné prierezy σ jadrových reakcií na ťažkých jadrách sú pre ióny s energiou $\sim \text{MeV}$ zanedbateľné kvôli silnému coulombovskému odpudzovaniu.

Poznáme dva druhy NRA, podľa závislosti zmeny účinného prierezu reakcie od energie dopadajúcich iónov.

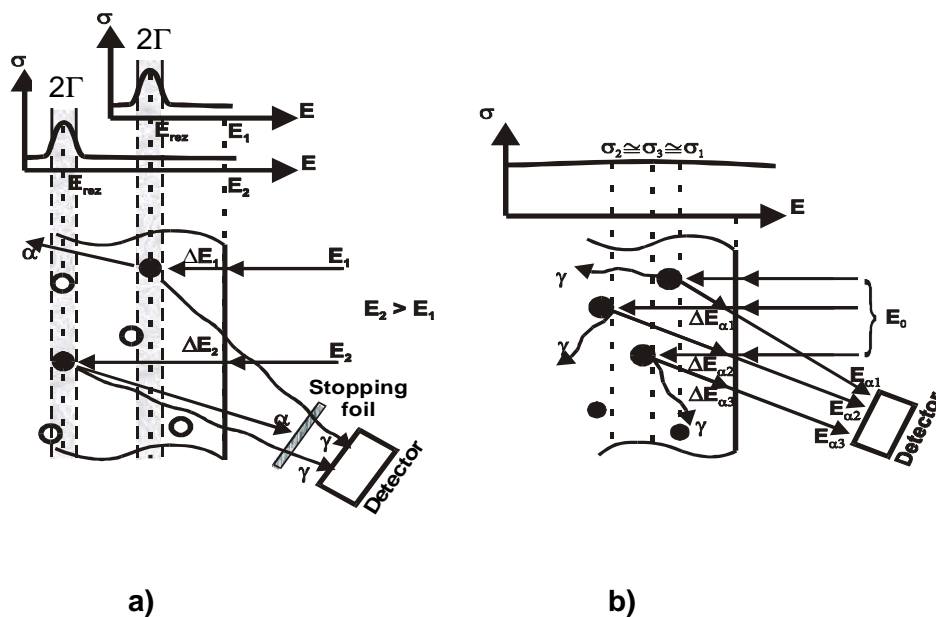
1. *Analýza jadrovými reakciami s výraznou rezonanciou (RNRA - Resonant Nuclear Reaction Analysis):*

Účinný prierez reakcie má výrazný pík pre určitú energiu E_r , resp. šírka reakcie $\Gamma \ll E_r$. Analýza sa robí pomocou zvyšovania energie dopadajúcich iónov na vzorku. Keď je energia iónov rovná rezonančnej, dôjde k reakcii na povrchu vzorky. Pri zvýšení energie iónov

nenastane už jadrová reakcia na povrchu vzorky (lebo tu bude energia vyššia ako rezonančná), ale nastane až po znížení energie iónov na rezonančnú prechodom cez určitú vrstvu vzorky. Ďalším zvyšovaním energie zväzku analyzujeme vrstvy vo väčšej hĺbke, pozri obr. 7.1a.

2. Jadrové reakcie so slabou rezonanciou:

Ak účinný prierez jadrovej reakcie σ len slabo závisí od energie primárnych iónov E_0 ($\Gamma \cong E_r$), produkty reakcie vznikajú v celom ožarovanom objeme s približne rovnakou pravdepodobnosťou. Emitované nukleóny sú prechodom cez vzorku postupne spomaľované – strácajú energiu ΔE v závislosti od dĺžky dráhy, ktorú prešli vo vzorke. Analýza energie detekovaných častíc preto vedie priamo ku hĺbkovému profilu sledovaného izotopu, pozri obr. 7.1b. Výhoda tejto metódy spočíva v tom, že na analýzu celej vzorky stačí zväzok s jednou energiou a z jedného nameraného energetického spektra môžeme určiť hľadaný koncentračný profil.



Obr. 7.1: Princíp NRA s využitím: a) rezonančnej reakcie, detekujú sa γ -kvantá. Γ – šírka reakcie, ΔE – straty iónov v dôsledku brzdenia v látke. b) reakcie s účinným prierezom slabo závisiacim od energie primárneho zväzku, detekujú sa emitované nukleóny, napr. α -častice.

Na KJFT je rozpracovaná metóda RNRA s využitím rezonančných jadrových reakcií typu (p,γ) , resp. $(p,\alpha\gamma)$ s energiou primárnych protónov $E_0 \leq 1\text{MeV}$. Detekuje sa emitované γ -žiarenie. Čiastočný prehľad možných reakcií je v tab. 7.1.

Vybrané možnosti analýz pomocou (p, γ) rezonančných jadrových reakcií.

Tab. 7.1

E_{H^+} - energia dopadajúcich protónov, E_γ - energia emitovaných γ -kvánt, σ - účinný prierez, Γ - šírka rezonancie, ε - emisné percento na reakciu. Kurzívou sú vyznačené reakcie doteraz zaregistrované na KJFT.

REAKCIA	E_{H^+} [keV]	E_γ [MeV]	σ [mb]	Γ [keV]	ε [%]
${}^7\text{Li}(p,\gamma){}^8\text{Be}$	441	17,65	6	12	63
		14,75			37
${}^9\text{Be}(p,\gamma){}^{10}\text{B}$	330	6,15	-	160	21
		5,15			55
		4,75			11
		2,15			3,5
		1,7			13
		1,43			4,5
		1,02			58
		0,72			84
		0,41			3,5
${}^{11}\text{B}(p,\gamma){}^{12}\text{C}$	163	16,11	0,157	7	3,5
		11,68			96,5
		4,43			96,3
	675	12,15	0,050	322	100
		4,43			100
${}^{12}\text{C}(p,\gamma){}^{13}\text{N}$	459	2,36	0,127	39,5	100
${}^{13}\text{C}(p,\gamma){}^{14}\text{N}$	550	8,06	1,44	32,5	-
${}^{14}\text{N}(p,\gamma){}^{15}\text{O}$	278	6,8	-	1,6	-
	700	8,0	-	100	-
${}^{15}\text{N}(p,\alpha\gamma){}^{12}\text{C}$	360	4,43	0,03	94	100
	429	4,43	300	0,9	100
${}^{18}\text{O}(p,\gamma){}^{19}\text{F}$	630	8,5	-	2,6	-
${}^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma){}^{16}\text{O}$	224	7,12	0,2	1	-
		6,72			-
	340	6,13	102	2,4	96,5
	483,6	6,13	32	0,9	79
	597	6,13	7	30	100
	672	6,13	57	6	81
${}^{24}\text{Mg}(p,\gamma){}^{25}\text{Al}$	226	2,06		1	
		1,56			
		0,95			

2. Experimentálne zariadenie

Základom zariadenia je vertikálny lineárny elektrostatický urýchľovač iónov vlastnej konštrukcie s kaskádnym zdrojom urýchľujúceho napätia. Urýchľovač pozostáva z týchto hlavných častí (obr. 7.2.):

- *iónového injektora*, ktorý produkuje iónový zväzok s energiou 20 - 40 keV
- *elektrostatického urýchľovacieho systému*, ktorý urýchľuje ióny na požadovanú energiu (70 keV - 1 MeV)
- *systému monitorovania a analýzy* urýchleného zväzku
- *vákuového systému*.

Iónový injektor sa nachádza vo vysokonapäťovom termináli urýchľovača. Je tvorený výmenným iónovým zdrojom, extrakčným a fokusačným systémom, rýchlostným filtrom.

Urýchľovací systém je konštruovaný ako tzv. nehomogénna trubica tvorená sústavou siedmich, geometricky identických imerzných šošoviek.

Na výstupe urýchľovacieho systému je umiestnená prvá monitorovacia komora a hlavný vákuový čerpací systém.

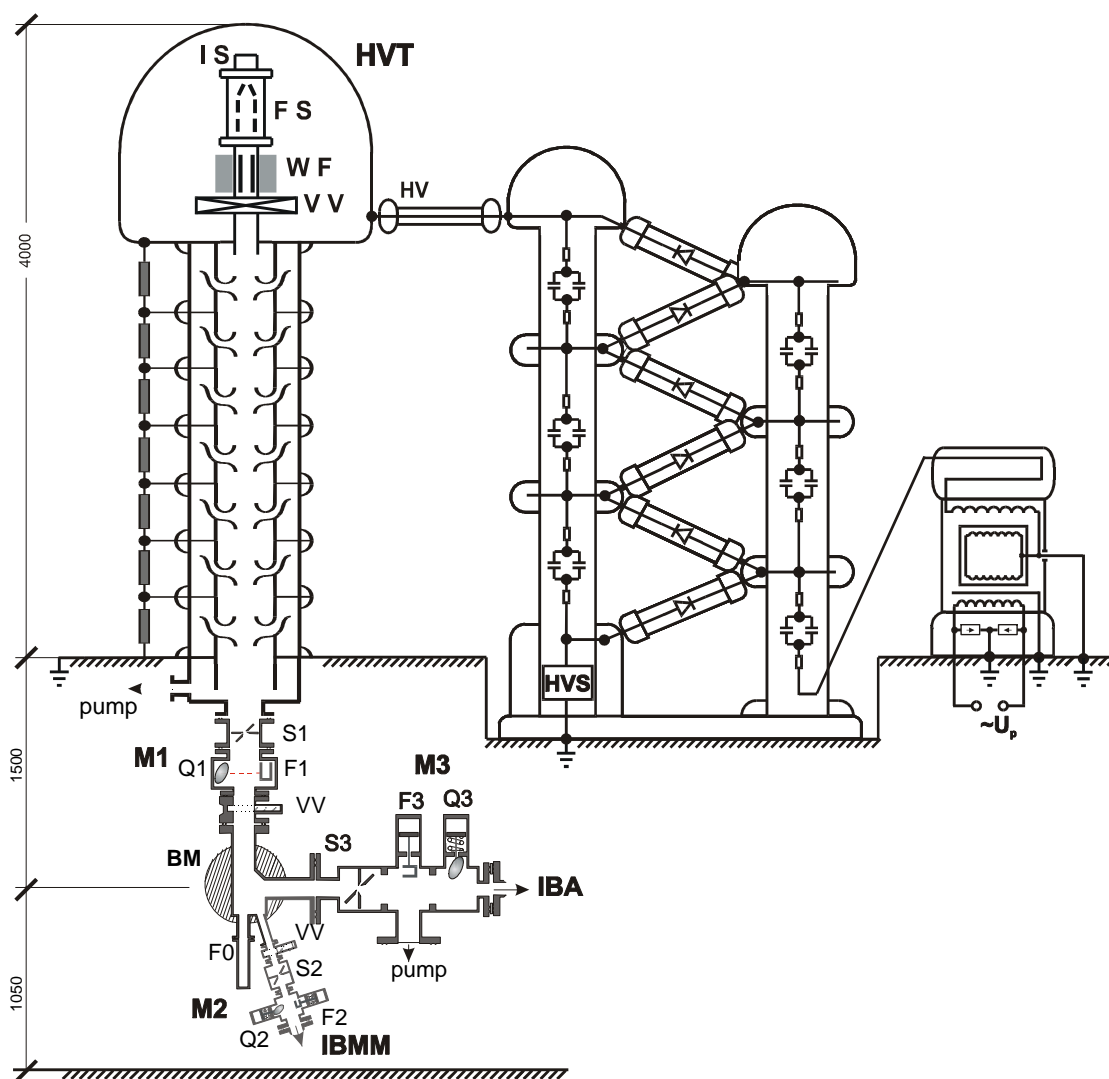
Energia zväzku v mieste jeho využitia, t.j. v terčíkových komorách, je definovaná kombinovaným 109° 90° elektromagnetickým separátorom, za ktorým sú umiestnené ďalšie monitorovacie komory a systém kolimátorov.

POPIS ČINNOSTI URÝCHĽOVAČA.

Urýchľovaný prvok sa v plynnej forme privádza do iónového zdroja, kde dochádza ku ionizácii (odtrhnutiu jedného až niekoľkých elektrónov) pôvodne neutrálnych atómov, resp. molekúl. Vytvorené kladné ióny sa extrakčným napätím "vyťahujú" z priestoru plazmy čím získavajú počiatočnú energiu danú súčinom potenciálu extrakčnej elektródy a náboja iónu.

V trojelektrodovom fokusačnom systéme sa iónový zväzok ďalej urýchľuje na energiu injekcie a fokusuje približne do ohniska prvej urýchľovacej šošovky. Nasledujúci rýchlostný (Wienov) filter zo zväzku oddelí nepotrebné frakcie a takto "očistený" zväzok iónov príslušného prvku vstupuje do urýchľovacieho systému. V ňom sa iónový zväzok elektrostatickým poľom v jednotlivých šošovkách urýchli a zároveň ďalej fokusuje.

Výsledný urýchlený priamy zväzok sa kontroluje v monitorovacej komore M1 (prúd zväzku pomocou Faradayovho valca F1, stopa zväzku pomocou scintilačného tienidla Q1). Centrálna časť zväzku prechádza kolimátorom S1 a vstupuje do elektromagnetického separátora, v ktorom sú trajektórie častíc dané ich impulzom, nábojom a magnetickým poľom separátora. Magnetický separátor tak v kombinácii so sústavou kolimátorov S1-S2 pre 10° odklon zväzku a S1-S3 pre 90° odklon definuje i mpulz zväzku, ktorý priamo súvisí s jeho energiou. Výsledné parametre nastaveného iónového zväzku sa kontrolujú v monitorovacích komorách M2, resp. M3.



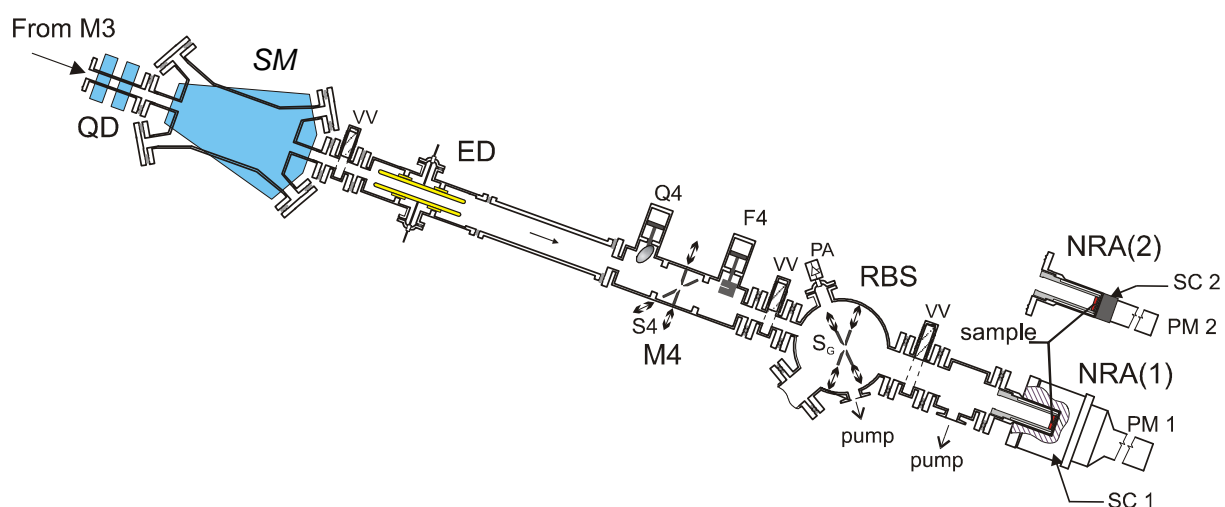
Obr. 7.2: Bloková schéma 1 MV lineárneho kaskádneho elektrostatického urýchľovača: HVT – Vysokonapäťový terminál; HV – Vysoké napätie, HVS – Stabilizácia vysokého napätia, IS – Iónový zdroj, FS – Fokusačný systém, WF – Wienov filter, VV – Vákuový ventil, M – Monitorovacia komora: F – Faradayov valec, S – kolimátor, Q – Tienidlo, BM – Odkláňací magnet, pump – Vákuové čerpanie, IBMM – (Ion Beam modification of Materials) Modifikácia materiálov pomocou iónových zväzkov, IBA - (Ion Beam Analysis) Analýza pomocou iónových zväzkov.

Urýchľovač slúži ako zdroj iónov s určitou energiou pre experimenty, ktoré sa uskutočňujú v **experimentálnej časti** laboratória. Táto sa nachádza v miestnostiach pod halou urýchľovača a tvorí ju systém transportu iónových zväzkov a terčové komory s príslušným experimentálnym vybavením.

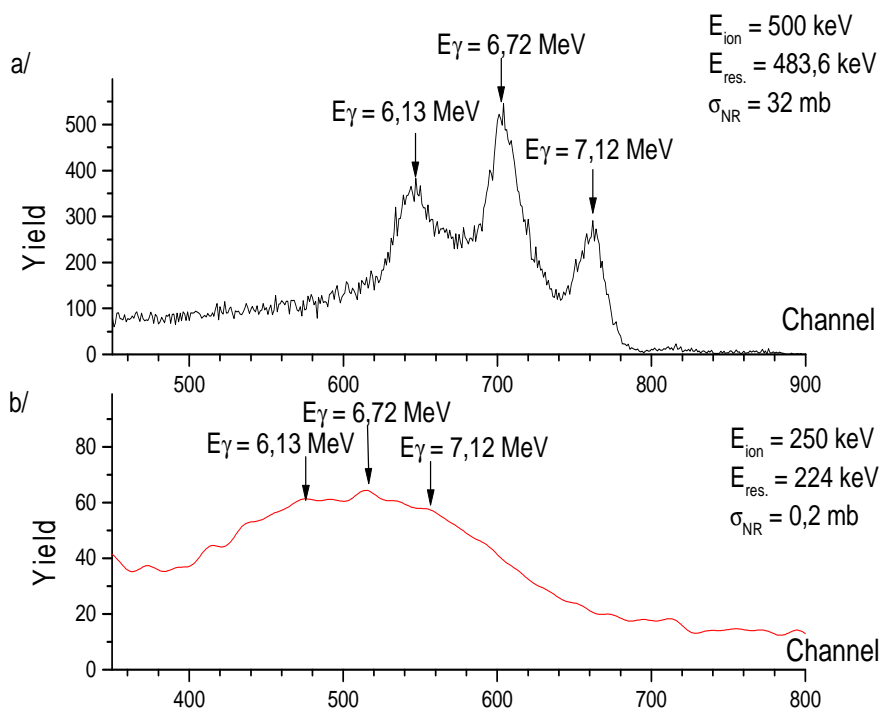
RNRA

Systém transportu protónového zväzku a terčová komora pre RNRA je na obr. 7.3. Metóda RNRA sa na KJFT využíva na kalibráciu energie a energetického rozptylu iónového zväzku, ako aj na analýzu tenkých vrstiev tuhých látok. Jadro aparatury tvorí terčiková komora umiestnená vo vnútri studňového veľkoobjemového NaI(Tl) scintilačného detektora. V takomto usporiadaní sú γ -kvantá, ktoré sú produktom jadrovej reakcie vo vzorke, detekované v priestorovom uhle $3,9\pi$, čím sa dosahuje veľmi vysoká citlivosť metódy, umožňujúca registrovať reakcie s účinným prierezom $\sigma \approx 0,1 \text{ mb}$ ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$). Na presnejšiu identifikáciu detekovaných γ -kvant a pri kalibračných meraniach sa používa menší scintilačný detektor alebo HPGe detektor.

Porovnanie meraní so 6" studňovým a 1,5" koaxiálnym NaI(Tl) detektorom je na obr. 7.4.



Obr. 7.3: Bloková schéma iónovodu pre analýzy pomocou rezonančných jadrových reakcií: QD – kvadrupólový dublet, SM – prepínací magnet, ED – elektrostatický deflektor, M - monitorovacia komora: F - Faradayov valec, S - Kolimátor, Q - Scintilačné tienitko, VV - Vákuový ventil, pump - Vákuové čerpanie, NRA(1) - zostava s vysokou citlivosťou: SC – scintilačný kryštál NaI(Tl), PM - fotonásobič, NRA(2) - zostava s vysokým rozlíšením. Okrem scintilačného detektora SC2, PM2 sa používa aj HPGe detektor.



Obr. 7.4: γ - spektrá z jadrovej reakcie $^{19}\text{F}(p,\alpha\gamma)^{16}\text{O}$: a) Vzorka CaF_2 , $100\mu\text{g}/\text{cm}^2$, merané $1,5''\text{NaI}(\text{TI})$ detektorom v zostave NRA(2) (obr. 7.3), b) Vzorka NaF , $50\mu\text{g}/\text{cm}^2$, merané $6''\text{NaI}(\text{TI})$ detektorom v zostave NRA(1) (obr. 7.3). Meranie b) predstavuje 200 násobné zvýšenie citlivosti v porovnaní s meraním a).

3. Úlohy

Ióny v urýchľovači získavajú kinetickú energiu pôsobením elektrických polí. Už v procese ionizácie však vznikajú ióny s určitým rozdelením energií, ktoré sa v dôsledku nestability urýchľujúcich napätí ešte rozširuje. Keďže sa jedná o nezávislé fluktuácie, bude mať výsledné rozdelenie energie urýchleného zväzku gaussovský priebeh charakterizovaný určitou strednou hodnotou E a strednou kvadratickou odchýlkou ΔE , ktorú nazývame energetický rozptyl.

- 1) Pomocou jednej z jadrových reakcií z Tab.7.1. okalibrujte nastavenie energie protónového zväzku a určite jeho energetický rozptyl.
- 2) Pre zvolenú energiu zmerajte spektrum γ - žiarenia pomocou viacerých detekčných systémov a určite ich energetické rozlíšenie.

4. Postup merania

Vzhľadom na rozsiahlosť a zložitosť používaného zariadenia, úlohy vykonávajú dve skupiny študentov. Jedna skupina obsluhuje urýchľovač a iónooptickú trasu (zariadenia na obr. 7.2 a 7.3 až po monitorovaciu komoru M_4), t.j. nastavuje protónový zväzok potrebnej energie a intenzity. Druhá skupina obsluhuje terčovú komoru s výmenou vzoriek, detektormi γ - žiarenia a detekčnou elektronikou, t.j. pre každú nastavenú energiu protónového zväzku nameria energetické spektrum emitovaného γ - žiarenia.

Meranie sa začína pri energii nižšej ako je energia reakcie. Postupným zvyšovaním energie po cca 5 keV sa prechádza nábehom reakcie na povrchu vzorky až po plató (oblasť, v ktorej sa výťažok reakcie nemení) zodpovedajúce objemovej koncentrácii sledovaného izotopu.

5. Spracovanie nameraných výsledkov

Úloha č. 1

Z nameraných spektier sa určí plocha fotopíkov prislúchajúcich k danej jadrovej reakcii a vynesie sa do grafu v závislosti od energie protónového zväzku. Z derivácie nábežnej hrany zodpovedajúcej povrchu vzorky sa určí pološírka FWHM (Full Width at Half Maximum) ako rozdiel energií v 12 % a 88 % výšky vynesenej závislosti. Pološírka je so strednou kvadratickou odchýlkou δE zviazaná vzťahom $\delta E = \frac{FWHM}{2 \cdot \sqrt{2 \cdot \ln 2}}$, pričom δE obsahuje okrem rozptylu energie zväzku ΔE aj šírku reakcie Γ : $\delta E^2 = \Delta E^2 + \Gamma^2$. Celkový výsledok $E_r \pm \Delta E$ (E_r sa určí ako inflexný bod vynesenej závislosti) sa porovnáva s nastavenou hodnotou celkového urýchľujúceho napätia, ako aj s pol'om elektromagnetického separátora.

Úloha č. 2

V nameraných spektrách sa určí maximum a pološírka fotopíkov prislúchajúcich k danej jadrovej reakcii. Z pološírky sa analogicky ako v predchádzajúcom prípade vypočíta rozlíšenie ako stredná kvadratická odchýlka. Energetická kalibrácia použitého mnohokanálového analyzátoru sa urobí pomocou tabuľkových hodnôt energií γ - kvánt emitovaných pri sledovanej reakcii, alebo pomocou etalónových žiaričov ^{60}Co a ^{137}Cs a precízneho pulzného generátora.