

УДК 553.08

В. Г. Федорков**О возможности применения бета-альбедно-абсорбционного метода для создания приборов неразрушающего контроля размерных параметров наноматериалов (толщины, поверхностной плотности и покрытий) при их производстве**

Приведено обоснование потенциальной возможности применения малоизвестного бета-альбедно-абсорбционного (БАА) метода, исследованию которого была посвящена кандидатская диссертация автора, для создания современного, не имеющего мировых аналогов комплекса приборов для неразрушающего контроля (НК) основных размерных параметров наноматериалов при их производстве (толщины, поверхностной плотности и покрытий) в нанодиапазоне, т.е. при значении толщины менее одного микрона. Актуальность проблемы определяется интенсивным развитием в настоящее время в России и во всем мире производства наноматериалов различных видов при практическом отсутствии разработок и производства приборов для НК. Даны аналитические выражения для расчета основных количественных характеристик БАА геометрии измерения – радиального распределения плотности и интегрального коэффициента обратного рассеяния электронов при переменных параметрах отражающей газовой или воздушной среды. Описан принцип построения оптимальной, мало зависимой от изменения параметров отражающей среды, геометрии измерения, способствующий минимизации погрешностей измерения для БАА метода. Приведены разработанные конструкции датчиков. Даны рекомендации по проведению дополнительных экспериментальных исследований БАА метода с целью обеспечения возможности измерения параметров в нанодиапазоне за счет применения промышленных бета-источников с меньшим значением максимальной энергии бета-спектра, повышения активности бета-источников или времени измерения, применения специальных фильтров для смятения спектра испускания бета-источников и использования детекторов бета-излучения с максимально возможной площадью измерения.

Ключевые слова: наноматериалы, измерение, толщина, поверхностная плотность, бета-излучение, диапазон измерения, погрешность измерения

Об авторах

Федорков Виктор Георгиевич – кандидат технических наук, доцент кафедры нанотехнологий и новых материалов государственного университета «Дубна». *E-mail*: VGFedorkov@mail.ru. 141980, Московская обл., г. Дубна, ул. Жолио-Кюри, д. 15, кв. 7.

В связи с бурным развитием в настоящее время в России и во всем мире исследований, связанных с отработкой технологии производства наноматериалов различных видов и внедрения новых материалов в разные отрасли промышленности, становится актуальной задача создания комплекса приборов для неразрушающего контроля (НК) основных размерных параметров наноматериалов при их производстве (толщины, поверхностной плотности и покрытий). Внедрение систем АСУ ТП при производстве наноматериалов позволит существенно повысить качество материалов – уменьшить продольную и поперечную разнотолщинность, т.е. удерживать размерные параметры материалов в строго заданных рамках, в соответствии с требованиями техни-

ческих условий. Кроме того, внедрение приборов контроля, как правило, приводит к снижению себестоимости выпуска продукции. Из-за крайне малых значений массы наноматериалов (измерять необходимо материалы толщиной менее одного микрона) применение традиционных методов неразрушающего контроля, например ультразвуковых, сверхвысокочастотных или радиоизотопных, в связи с низкой физической чувствительностью становится практически невозможным. Особенно это относится к тем случаям, когда по технологии изготовления материала в зоне контроля нет доступа к материалу с двух сторон, т.е. датчик может располагаться только с одной стороны материала (изготовление методом вакуумного и лазерного напыления, распыление материалов и осаждение на горизонтальную поверхность за счёт естественной седиментации и др.).

В этой связи интересным представляется рассмотрение потенциальной возможности применения малоизвестного бета-альбедно-абсорбционного (БАА) метода измерения, исследованию которого была посвящена кандидатская диссертация автора, для создания современного комплекса приборов для неразрушающего контроля (НК) основных парамет-

ров наноматериалов при их производстве. Рассмотрим основной принцип измерения БАА метода, подробно описанного в монографии [1]. На рис. 1 представлена геометрия измерения данного метода, т.е. расположение источника излучения, детекторов излучения и измеряемого материала в пространстве.

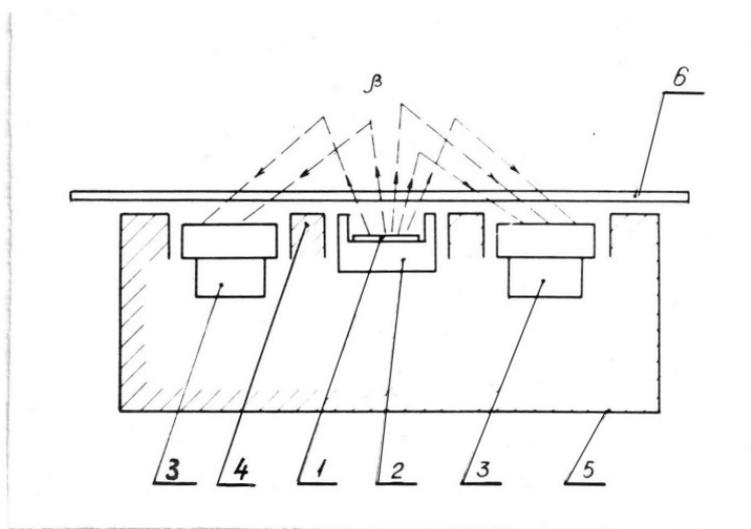


Рис. 1. Геометрия измерения толщины (поверхностной плотности) для БАА метода:
 1 – источник β -излучения; 2 – защитный контейнер; 3 – детекторы; 4 – рабочая поверхность датчика;
 5 – корпус; 6 – измеряемый материал

Метод основан на использовании обратного рассеяния β -излучения от газовых (воздушных) сред, расположенных за измеряемым материалом. Практическая реализация БАА метода следующая. Поток первичного бета-излучения от одного или нескольких источников, проходя через измеряемый материал, частично поглощается в нем, частично проходит через него и отражается от газовой (воздушной) среды за материалом, затем вторично проходит через материал и регистрируется детекторами. Источники и детекторы располагаются по одну сторону от измеряемого материала. Геометрия их расположения исключает возможность попадания отраженного от материала бета-излучения в детекторы. Благодаря эффекту «двойного прохождения» сохраняется основное преимущество классического бета-абсорбционного метода – слабая зависимость от атомного номера Z материала, при этом существенно расширяется нижняя граница измеряемых толщин за счет значительного смягчения средней энергии регистрируе-

мого излучения. Кроме того, сохраняется основное преимущество бета-альбедной геометрии – односторонность измерений [1; 2; 3]. Для того, чтобы понять – возможно ли снизить нижнюю границу измерения толщины БАА метода до нанодиапазона, необходимо проанализировать кривые поглощения бета-излучения (градуировочные кривые) при использовании различных бета-источников. Исходя из общефизических представлений, выражение для семейства кривых поглощения можно записать в виде (1).

$$N^{(1)} = f(E_m, I, r, \sigma) = N_{or}^{(1)} e^{-\mu_0(r, E_m)\sigma}, \quad (1)$$

где $N^{(1)}$ – плотность отражённого потока бета-частиц, регистрируемых детектором на определенном расстоянии r от источника с ионизационным током I и образцом со значением поверхностной плотности σ , $/ \frac{\text{имп/с}}{\text{см}^2} /$;

$N_{or}^{(1)}$ – плотность отражённого потока бета-частиц, регистрируемых детектором на определенном расстоянии r от источника

с ионизационным током I (эквивалент активности) и образцом со значением поверхностной плотности $\sigma = 0, / \frac{\text{ИМП/с}}{\text{см}^2}$;

μ_0 – массовый коэффициент поглощения отраженного излучения выбранного изотопа с максимальной энергией бета-спектра $E_m, / \frac{\text{МэВ}}{\Gamma}$;

σ – значение поверхностной плотности выбранного образца, $/ \frac{\text{г}}{\text{м}^2}$.

Из аналитического выражения (1) следует, что крутизна градуировочных кривых, а значит и предельная точность измерения толщины, определяется значением массового коэффициента поглощения бета-излучения – μ_0 . В результате экспериментального исследования БАА метода в работе [1] установлено, что массовый коэффициент поглощения (μ_0) для отраженного излучения существенно пре-

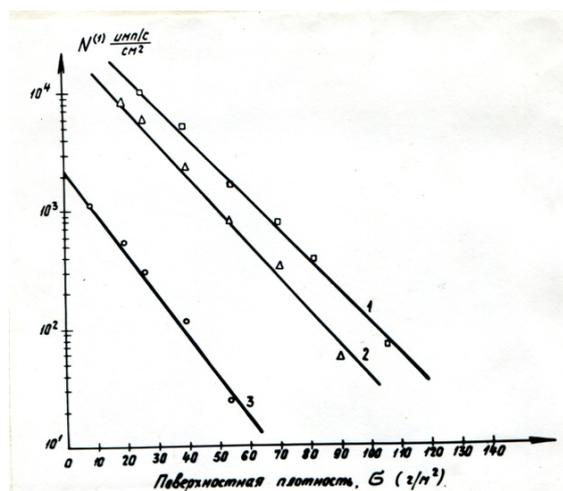


Рис. 2. Кривые поглощения для отраженного бета-излучения изотопа Pm^{147} , $r = 50$ мм – кривая 1, $r = 90$ мм – кривая 2, $r = 170$ мм – кривая 3

На рис. 4 приведена кривая поглощения для отраженного бета-излучения изотопа $\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$, снятая при значении активности бета-источника $A = 20$ мК, $r = 50$ мм.

Анализ семейства кривых поглощения бета-излучения позволил сделать следующие выводы:

1. Ввиду существенного снижения средней энергии регистрируемого бета-спектра (прохождение через материал, отражение от воздуха, вторичное прохождение через измеряемый материал) массовый коэффициент поглощения (μ_0) для отраженного излучения существенно (в 5–6 раз и более) превышает значение массового коэффициента поглощения для классического случая про-

вышает значение массового коэффициента поглощения при прямом прохождении бета-излучения через измеряемый материал ($\mu_{\text{опр}}$), т.е. для классического бета-абсорбционного метода.

На рис. 2 приведены выборочные кривые поглощения для отраженного бета-излучения изотопа Pm^{147} , снятые при следующих условиях: $I = 4,1 \cdot 10^{-7} \text{ А}$, $r = 50$ мм (кривая 1), $I = 5,59 \cdot 10^{-7} \text{ А}$, $r = 90$ мм (кривая 2), $I = 4,1 \cdot 10^{-7} \text{ А}$, $r = 170$ мм (кривая 3).

На рис. 3 приведены выборочные кривые поглощения для отраженного бета-излучения изотопа Tl^{204} , снятые при следующих условиях: $I = 7,36 \cdot 10^{-8} \text{ А}$, $r = 50$ мм (кривая 1), $I = 7,36 \cdot 10^{-8} \text{ А}$, $r = 90$ мм (кривая 2), $I = 7,36 \cdot 10^{-8} \text{ А}$, $r = 170$ мм (кривая 3).

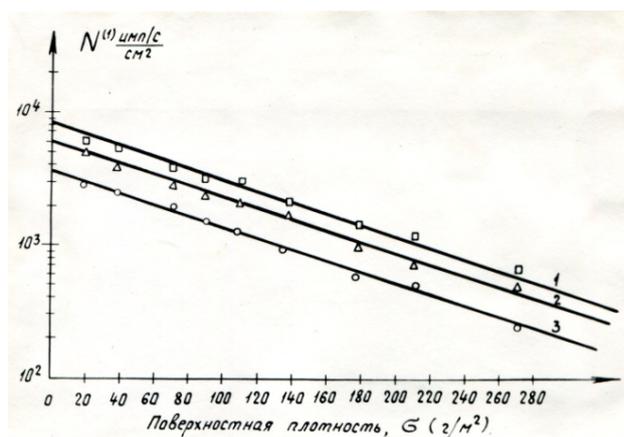


Рис. 3. Кривые поглощения для отраженного бета-излучения изотопа Tl^{204} , $r = 50$ мм – кривая 1, $r = 90$ мм – кривая 2, $r = 170$ мм – кривая 3

хождения бета-излучения через материал ($\mu_{\text{опр}}$).

Среднее значение массового коэффициента поглощения $\mu_{\text{оср}}$ для отраженного излучения выбранных изотопов (Прометий-147, $E_m = 220$ кэВ; Таллий-204 $E_m = 760$ кэВ и Стронций-90 + Иттрий-90, $E_m = 2.2$ МэВ) по результатам экспериментов составляет:

$$\mu_{\text{оср}/\text{Pm}^{147}} = 6,8 \cdot 10^{-2} \text{ М}^2/\Gamma;$$

$$\mu_{\text{оср}/\text{Tl}^{204}} = 0,95 \cdot 10^{-2} \text{ М}^2/\Gamma;$$

$$\mu_{\text{оср}/\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}} = 0,47 \cdot 10^{-2} \text{ М}^2/\Gamma.$$

Для приближенных расчётов [1] оценка массовых коэффициентов поглощения бета-излучения для БАА метода в диапазоне энер-

гий бета-источников от 0,1 до 1,0 МэВ может производиться по выражению (2):

$$\mu_{\text{ББА}} = \frac{9,75 \cdot 10^{-4}}{E_m^{1,6}} \left[\frac{\text{см}^2}{\text{г}} \right]. \quad (2)$$

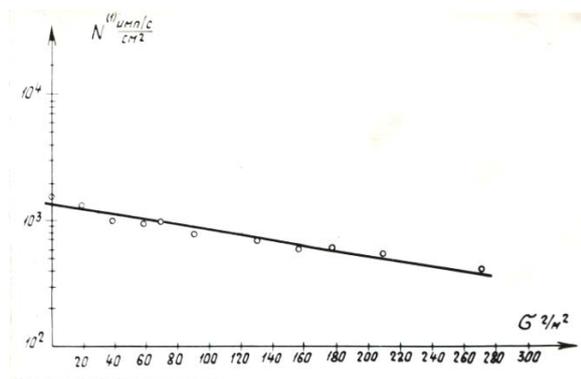


Рис. 4. Кривая поглощения для отраженного бета-излучения изотопа $\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$, $r = 50$ мм

Зависимость μ_0 от расстояния r для изотопа Pm^{147} может быть объяснена существенным изменением средней энергии регистрируемого бета-спектра (чем дальше детектор расположен от источника, тем больше происходит смягчение регистрируемого бета-спектра).

Отсутствие зависимости μ_0 от r для изотопа Tl^{204} объясняется относительно малым изменением при экспериментах расстояния $\Delta r = r - r_0$ (где r_0 – минимально доступное, по конструктивным соображениям, расстояние расположения детектора от источника)

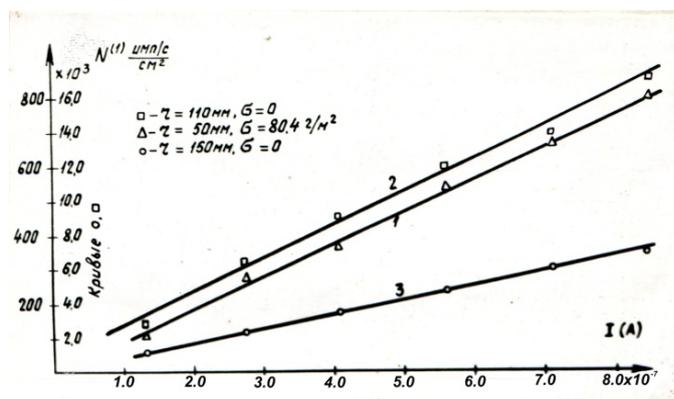


Рис. 6. Зависимость плотности отражённого потока регистрируемых бета-частиц $N^{(1)}$ от ионизационного тока I

При сравнении (выборе) методов измерения решающим аргументом, как правило, являются значения (величины) достижимых

2. Для изотопа Pm^{147} наблюдается зависимость μ_0 от выбранного расстояния r от центра детектора до центра источника (рис. 5).

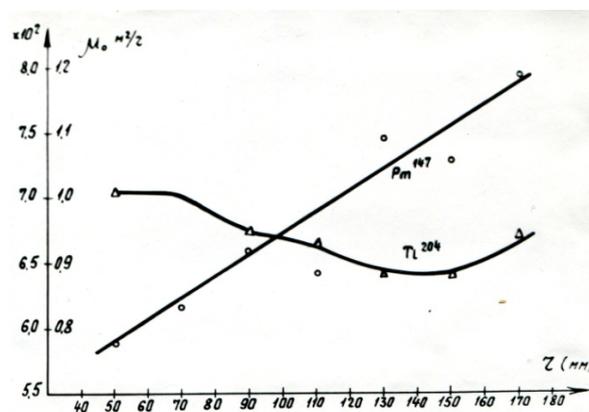


Рис. 5. Зависимость массового коэффициента поглощения от расстояния r до центра источника для отраженного излучения изотопов Pm^{147} и Tl^{204}

по сравнению с длиной свободного пробега электронов в воздухе – R_0 .

3. Зависимость плотности отраженного потока регистрируемых бета-частиц от активности изотопов, оцениваемых в величинах ионизационного тока I , – линейная. На рис. 6 приведена зависимость $N^1 = f(I)$ для изотопа Pm^{147} , при $r = 50$ мм, $\sigma = 80,4 \frac{\text{г}}{\text{м}^2}$ (кривая 1), $r = 100$ мм, $\sigma = 0$ (кривая 2), $r = 150$ мм, $\sigma = 0 \frac{\text{г}}{\text{м}^2}$ (кривая 3).

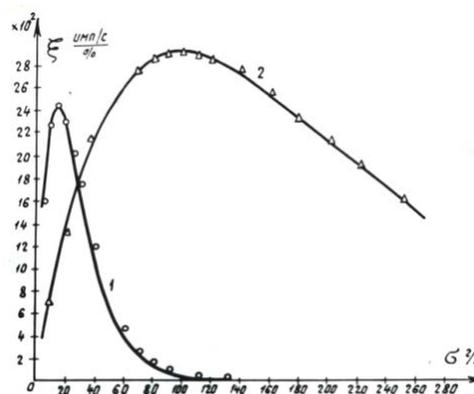


Рис. 7. Зависимость абсолютной физической чувствительности ББА метода ξ от поверхностной плотности σ для изотопа Pm^{147} (кривая 1) и для изотопа Tl^{204} (кривая 2)

значений минимальных погрешностей измерения, а именно: абсолютной погрешности измерения поверхностной плотности (толщины) ds

и относительной погрешности измерения $d\sigma/\sigma$. Естественно, чем выше физическая чувствительность метода, тем более низкое значение погрешностей измерения может быть достигнуто. При оценке физической чувствительности метода обычно рассматриваются:

1) абсолютная физическая чувствительность метода измерения толщины (поверхностной плотности) $\xi = \frac{dN}{d\sigma/\sigma}$ (отношение абсолютного прироста выходного сигнала измерителя к относительному изменению измеряемой величины);

2) относительная физическая чувствительность метода измерения толщины (поверхностной плотности) $\theta = \frac{dN/N}{d\sigma/\sigma}$ (относительное изменение выходного сигнала измерителя к относительному изменению измеряемой величины).

На рис. 7 приведена зависимость коэффициента абсолютной физической чувствительности БАА метода ξ от поверхностной плотности σ для изотопа Pm^{147} (кривая 1) и для изотопа Tl^{204} (кривая 2).

На рис. 8 приведена зависимость коэффициента относительно физической чувствительности БАА метода θ от поверхностной плотности σ для изотопа Pm^{147} при значении массового коэффициента поглощения $\mu_0 = 6,8 \cdot 10^{-2} \text{ м}^2/\text{г}$ (кривая 1) для изотопа Tl^{204} при $\mu_0 = 1,0 \cdot 10^{-2} \text{ м}^2/\text{г}$ (кривая 2) и для изотопа $\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$ при $\mu_0 = 0,47 \cdot 10^{-2} \text{ м}^2/\text{г}$ (кривая 3).

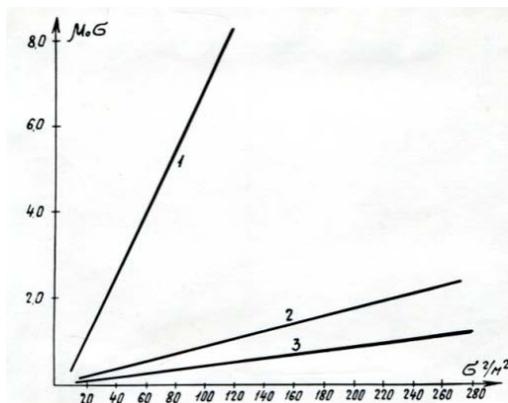


Рис. 8. Зависимость относительно физической чувствительности БАА метода θ от поверхностной плотности σ для изотопа Pm^{147}

Из рассмотрения кривых рис. 7 и 8 можно сделать вывод, что для создания приборов контроля размерных параметров нано-

материалов при использовании БАА метода необходимо стремиться выбирать бета-источники с минимально возможными значениями максимальной энергии бета-спектра.

Для радиоизотопных методов измерения значения $d\sigma$ и $\frac{d\sigma}{\sigma}$ вычисляются [4] по формулам (3) и (4):

$$d\sigma = \frac{e^{\frac{\mu_0 \sigma}{2}}}{\mu_0 \sqrt{N_0 t_{\text{изм}}}} \quad (3); \quad \frac{d\sigma}{\sigma} = \frac{e^{\frac{\mu_0 \sigma}{2}}}{\mu_0 \sigma \sqrt{N_0 t_{\text{изм}}}}, \quad (4)$$

где N_0 – значение (величина) выходного сигнала датчика (скорость счета детектора), а $t_{\text{изм}}$ – время измерения. Известно также [4], что выражение (3) для случая, когда значение погрешности определяется флюктуационной составляющей (наиболее распространенный случай, т.к. методические и аппаратные погрешности всегда могут быть сведены к минимуму), имеет минимум при определенном (оптимальном) значении поверхностной плотности, а именно:

$$\sigma_{\text{opt}} = \frac{2}{\mu_0}. \quad (5)$$

В работе [1] показано, что для бета-альбедно-абсорбционного метода измерения толщины (поверхностной плотности) минимальные значения относительных среднеквадратичных ошибок измерения при условии, что $dN \cong dN_{\text{фл}}$, т.е. когда погрешность измерения определяется в основном флюктуационной составляющей, получаются для различных бета-источников при следующих значениях поверхностной плотности: 1) для изотопа Pm^{147} $\sigma \cong 30 \text{ г}/\text{м}^2$; 2) для Tl^{204} $\sigma \cong 200 \text{ г}/\text{м}^2$; 3) для $\text{Sr}^{90} + \text{Y}^{90}$ $\sigma \cong 420 \text{ г}/\text{м}^2$.

Таким образом, чтобы измерять малые значения поверхностной плотности материалов, т.е. в нанодиапазоне, надо стремиться, чтобы значение массового коэффициента поглощения бета-излучения было как можно больше. Например, из формулы (5) следует, что для измерения материалов со значениями поверхностной плотности менее $1,0 \text{ г}/\text{м}^2$ (при плотности материала в $1,0 \text{ г}/\text{см}^3$ соответствует значению толщины менее $1,0 \text{ мкм}$) необходимо иметь значение μ_0 не меньше чем $2,0 \text{ м}^2/\text{г}$. Из аналитического выражения (2), определяющего зависимость μ_0 от энергии бета-спектра, можно определять оптимальные значения энергии регистрируемого бета-спектра для каждого конкретного случая измерения.

Исходя из вышеизложенного, а также руководствуясь выражениями (3) и (4), из которых следует, что для снижения погрешностей измерения нужно применять бета-источники с большей активностью и проводить измерения с большими значениями $t_{изм}$ (что на практике всегда возможно без каких-либо ограничений), можно сделать вывод о потенциальной возможности измерения толщины (поверхностной плотности), а также толщины покрытий бета-альбедно-абсорбционным методом в нанодиапазоне, т.е. при толщине материалов менее одного микрона.

Ниже приводятся фотографии опытных образцов датчиков бета-альбедно-абсорбционных толщиномеров, внедренных на предприятиях, и диапазоны измерений поверхностной плотности или толщины. На рис. 9 показан датчик толщиномера папиросной бумаги типа РТРМ. Внедрен на бумажной фабрике (г. Лигатне, Латвия). Номинальное значение поверхностной плотности – 16,0 г/м², погрешность измерения – менее 0,1 г/м². На рис. 10

показан датчик с «широкой» геометрией измерения, что позволяет уменьшить влияние неравномерности толщины измеряемого материала на исходные показания. Датчик внедрен на картонажной фабрике (г. Шклов, Белоруссия). Диапазон измерения – от 10 до 300 г/м², погрешность измерения не более 0,1 г/м². Другие варианты реальных конструкций БАА толщиномеров, в том числе уникальный толщиномер рукавных пленок типа РТП-1 с кольцеобразным сканирующим устройством, детально описаны в работе [5].

В реальных конструкциях БАА датчиков для обеспечения возможности применения источников и детекторов бета-излучения с широким спектром активности источников излучения и рабочих площадей детекторов над источниками и детекторами устанавливаются специальные шторки с возможностью автоматического или ручного перекрытия рабочих поверхностей источников и детекторов. На рис. 11 показана схема расположения шторок над источниками и детекторами.

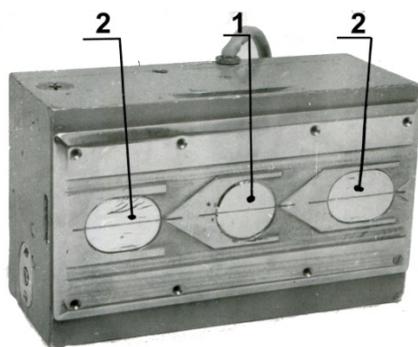


Рис. 9. Датчик толщиномера папиросной бумаги типа РТРМ: 1 – источник; 2 – детекторы

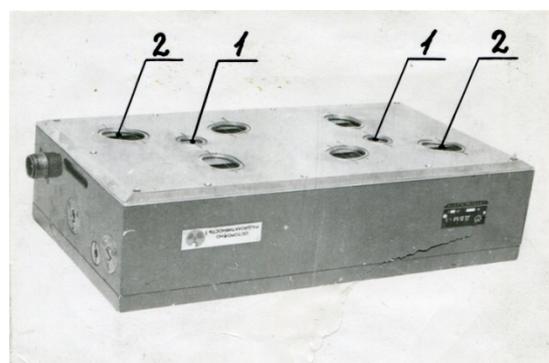


Рис. 10. Датчик с широкой геометрией измерения: 1 – источники; 2 – детекторы

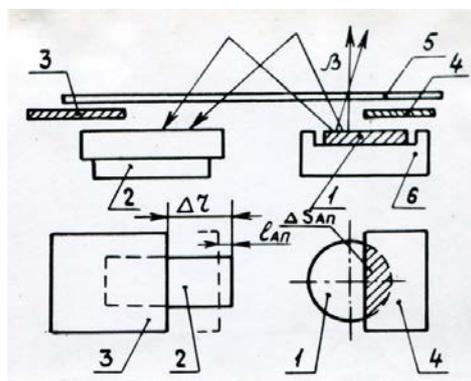


Рис. 11. Схема расположения шторок для установки «номинала» и «автоподстройки»: 1 – источник; 2 – детектор; 3 – шторка над детектором; 4 – шторка над источником; 5 – измеряемый материал

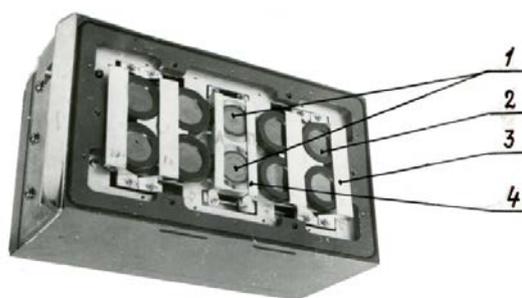


Рис. 12. Реальная конструкция БАА датчика со шторками: 1 – источники; 2 – детекторы; 3 и 4 – шторки

На рис. 12 приведена фотография варианта конструкции БАА датчика. Шторки над источниками 4 , которые непрозрачны для бета-излучения, позволяют устанавливать необходимое значение активности для исключения перегрузки детекторов, а в режиме автоподстройки компенсируют падение счета из-за старения изотопа. Шторки над детекторами позволяют исключать перегрузку детекторов при использовании максимальной активности бета-источника. Кроме того, для исключения влияния газовой (воздушной) среды на показания датчика было разработано специальное конструкторское решение, обеспечивающее минимизацию погрешности измерения при изменении параметров отражающей среды (так называемая «независимая» геометрия измерения) [6].

На основании вышеизложенного, а также с учетом того, что фактическая погрешность измерения бета-альбедно-абсорбционных толщиномеров даже при использовании изотопа Прометий-147 с максимальной энергией бета-спектра в 220 кэВ (далеко не оптимальной для измерения в нанодиапазоне) составляет около 0,1 мкм, т.е. сто нанометров, можно сделать вывод о принципиальной возможности применения БАА метода для создания приборов НК параметров наноматериалов при их производстве. Естественно, для практической реализации конструкции датчиков, обеспечивающих возможности измерения в нанодиапазоне, необходимо провести дополнительные экспериментальные исследования с использованием новых промышленных бета-источников с меньшими значениями максимальной энер-

гии (E_m) бета-спектра, малогабаритных бета-детекторов, в том числе полупроводниковых, а также изучить возможность смягчения бета-спектра источников с применением специальных поглощающих фильтров.

Библиографический список

1. Федорков В.Г. Радиоизотопные измерительные преобразователи толщины и поверхностной плотности тонких пленочных материалов на основе бета-альбедно-абсорбционного метода. М.: ЦНИИАтоминформ, 1986. 24 с.
2. Лейтис Ф.Э., Лейтис Ф.Э., Таксар И.М., Терехов В.В., Теснавс Э.Р., Федорков В.Г., Федотов И.Л., Янушковский В.А. Радиоизотопный толщиномер с односторонним расположением датчика типа РТРМ // Труды конференции специалистов стран-членов СЭВ. Лейпциг, 1970. С. 31–37.
3. Терехов В.В., Федорков В.Г., Федотов И.Л., Гордиенко А.С., Карелин Ю.М. Радиоизотопный датчик для толщиномеров с дискретной обработкой информации // Изотопы в СССР. 1973. № 34. С. 19–21.
4. Богачев А.М., Верховский Б.И., Макаров А.Н. К теории метода измерения толщины при помощи радиоактивного излучения // Заводская лаборатория. 1955. № 7. С. 808–812.
5. Федорков В.Г. Emerging New Application of Nucleonic Control Systems (NCS) in Industry (Austria, Vienna, 5–8 May 1998) // IAEA, Report of the Advisory group meeting, Annex 9.
6. Авторское свидетельство № 342514 от 17.03.1972. Устройство для измерений поверхностной плотности или толщины листовых материалов и плёнок / Федотов И.Л., Янушковский В.А., Таксар И.М., Тумулькан А.Д., Терехов В.В., Федорков В.Г.

*Поступила в редакцию
16.12.2019*