

Национальная академия наук Украины
Институт сцинтилляционных материалов

Состояние и перспективы развития функциональных
материалов для науки и техники ®

ФИЗИКА СЦИНТИЛЛЯТОРОВ.

МАТЕРИАЛЫ, МЕТОДЫ,
АППАРАТУРА

Харьков
2015

Физика сцинтилляторов. Материалы, методы, аппаратура
– Харьков: “ИСМА”, 2015.– 270 стр.

ISBN 966-02-2555-5 (серия)

ISBN 978-966-02-7602-4

В книге представлены материалы четвертой конференции ИСМАРТ 2014 (“Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии <http://inp.bsu.by/ismart2014/>) посвященной развитию современных методов сцинтилляционного материаловедения и сцинтилляционной физики в целом.

Книга будет интересна и полезна как ученым, работающим в данных направлениях науки и техники, так и для аспирантов, студентов соответствующих специальностей.

Главный редактор

Б.В. Гринев

Отв. секретарь Е.В. Щербина

Редколлегия выпуска

А.В. Гектин, Н.З. Галунов, Ю.В. Малюкин

ISBN 966-02-2555-5 (серия)

ISBN 978-966-02-7602-4

© ИСМА 2015

СОДЕРЖАНИЕ

Сцинтилляционные материалы

Сцинтилляционные материалы – настоящее и будущее <i>А. В. Гектин</i>	7
Сцинтилляционная эффективность и гигроскопичность щелочных и щёлочноземельных иодидов <i>Н. В. Ширан</i>	27
Эффекты повреждения неорганических кристаллических материалов в условиях экспериментов на коллайдерах <i>М. Коржик</i>	69
Исследование длинных кристаллов GSO и LYSO для создания сегментированных электромагнитных калориметров <i>В. Калинин, Е. Величева, А. Лобко</i>	137
Новые методы измерений в сцинтилляционной физике	
Методы моделирования диффузии частиц в область гало и их применение для моделирования системы коллимации Большого адронного коллайдера <i>А.И. Сытов, И.В. Сафронов</i>	158
Методика измерения распределения урана в Мишенях для наработки ⁹⁹ Mo неразрушающим методом гамма- плотнометрии <i>А.В. Кремер, Ю.А. Кушнир, А.А. Леоненко, Д.А. Леоненко, Ю.И. Лещенко, А.П. Малков, В.С. Романовский, А.И. Теллин</i>	170
Исследование параметров и разработка алгоритма пространственной реконструкции для калориметра СОМЕТ эксперимента 184 <i>В. Калинин, Е. Величева</i>	184

Применение Грид для реконструкции координат
сцинтилляции в диагностической радионуклидной
аппаратуры

С.В. Баранник, А.В. Демин, В.А. Колбасин 204

Сцинтилляционная техника

Исследование сборки модулей электромагнитного
калориметра ECAL0 для эксперимента COMPASS на
электронном пучке ускорителя ELSA

*В. Аносов, Н. Анфимов, Й. Барт, А. Гуськов, М. Дзиевицки,
М. Жембицки, К. Заремба, Ф. Клейн, З. Крумитейн,
Р. Курята, Я. Мажец, А. Нагайцев, А. Ольшевский,
И. Орлов, Т. Резинько, А. Рихтер, А. Рыбников,
А. Селюнин, В. Фролов, Ф. Фроммбергер, В. Хиллерт,
В. Чальшев, И. Чириков-Зорин, Д. Элснер 211*

Установка для исследования характеристик
протяженных сцинтилляционных кристаллов

*Н.В.Анфимов, З.В.Крумитейн, А.А.Ноздрин,
А.Г.Ольшевский, Т.В.Резинько, А.В.Рыбников,
А.С.Селюнин, Д.В.Федосеев. 220*

Высокотехнологичные источники ионизирующего
излучения производства ОАО «ГНЦ НИИАР» и
особенности их применения для целей контроля
ядерных материалов неразрушающими методами
229

*А.В. Кремер, Ю.А. Кушнир, А.А. Леоненко,
Д.А. Леоненко, Ю.И. Лещенко, А.П. Малков,
В.С. Романовский, А.И. Теллин 229*

Перспективы генерации сверхкоротких импульсов
жесткого излучения

А.С. Лобко. 245

Уважаемые коллеги!

В октябре 2014 успешно прошла очередная, четвертая конференция ИСМАРТ 2014 (“Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии <http://inp.bsu.by/ismart2014/>) посвященная развитию современных методов сцинтилляционного материаловедения и сцинтилляционной физики в целом. Эта встреча впервые состоялась в г.Минск и значительно расширила круг участников за счет белорусских ученых и инженеров. Мы с удовольствием констатируем, что интерес к этой деятельности и новые разработки на постсоветском пространстве непрерывно развиваются и, несмотря на многочисленные проблемы, дают все новые результаты, в значительной мере определяющие мировые тенденции данного направления науки и техники.

В целом вопросы были сконцентрированы вокруг трех основных направлений – разработки новых сцинтилляционных материалов, методы сцинтилляционных измерений и сцинтилляционная техника в целом. Доклады охватывали разнообразные области применения сцинтилляторов, начиная от физики высоких энергий и заканчивая приборостроением, источниками радиации и инженерными решениями в области детектирования радиации. Всего было представлено более 12 докладов, часть из которых опубликована в журнале «Functional Materials». Вместе с тем, организационный комитет принял решение опубликовать несколько наиболее важных работ и обзоров в виде отдельной книги, чтобы дать представление не столько о характере конференции, сколько о наиболее актуальных тенденциях развития каждого из вышеперечисленных направлений сцинтилляционной физики. Они

должны стать настольной книгой физиков и инженеров сцинтилляционной техники, позволяющей взглянуть на тенденции науки и предсказать наиболее актуальные направления этой деятельности на ближайшие годы.

От имени Организационного комитета международной конференции ИСМАРТ-2014 мы благодарим всех участников конференции и желаем успехов в новых разработках и исследованиях в области сцинтилляционного материаловедения.

От имени оргкомитета ИСМАРТ-2014

М.В.Коржик

А.В.Гектин

СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫЕ МАТЕРИАЛЫ – НАСТОЯЩЕЕ И БУДУЩЕЕ

А. В. Гектин

*Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины,
Харьков, Украина*

1 История и эволюция сцинтилляторов.

История поиска и появления современных сцинтилляционных материалов берет начало с 1948 г, когда Роберт Хофштадтер открыл и запатентовал первый синтетический сцинтиллятор NaI:Tl [1]. Это открытие довольно быстро привело к появлению серии галоидных сцинтилляторов (CsI:Tl, CsI:Na, LiI:Eu и др.), которые сегодня принято называть традиционными [2]. К началу 80-х годов были разработаны технологии получения таких материалов (прежде всего – технологии роста соответствующих монокристаллов) и промышленность на долгие годы была удовлетворена номенклатурой и качеством сцинтилляторов. Многогранные потребности сцинтилляторов для физики высоких энергий были также своевременно удовлетворены [3, 4].

Следующий виток развития подобных материалов был спровоцирован развитием медицинских применений (КТ, ОФЭКТ и ПЭТ). В этом случае были необходимы материалы с гораздо более высокой плотностью и меньшими (десятки нс) временами затухания сцинтилляционного импульса. Так стартовала эпоха поиска и бур-

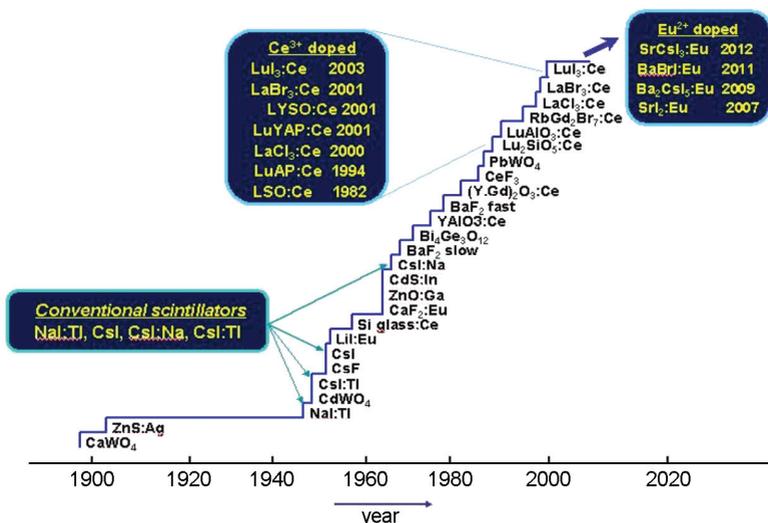


Рис.1. История появления новых синтетических сцинтилляторов.

ного развития оксидных сцинтилляторов. В настоящее время такие сцинтилляторы как GOS, LSO, LYSO и ряд других производится в промышленных объемах и в принципе соответствует современным требованиям детектирования радиации в медицине. Параллельно, были получены и доведены до массового производства оксидные сцинтилляторы для физики высоких энергий (PWO для LHC проекта в ЦЕРН), требовавшей десятки тонн сцинтилляторов [3,5].

Последнее десятилетие ознаменовалось новым циклом интереса к сцинтилляторам и их бурным развитием в связи с появлением интереса к материалам с высоким спектроскопическим качеством. Этому способствовали потребности развития систем радиационного контроля и безопасности [6], вследствие чего было разработано множество галоидных сцинтилляционных материалов, позволяющих регистрировать излучение с разрешением порядка 2.5 – 3.5% (для источника ^{137}Cs) [7]. Параллельно совершенствование оксидных сцинтилляторов привело к появлению кристаллов типа GAGG:Ce, обладающих световым выходом порядка 60 000 фот/мэВ и разре-

шением, сравнимым с параметрами традиционных галоидных сцинтилляторов (~ 6-7%) [8, 9].

Таким образом, можно утверждать, что мы находимся на качественно новом уровне потребностей и развития сцинтилляторов. Многообразие материалов позволяет удовлетворять разнообразные и даже, можно сказать, весьма специфические потребности разработчиков аппаратуры, регистрирующей радиацию. Это, несомненно, положительный момент. Но обратной стороной медали является недостаточно глубокая разработка технологии получения таких материалов, наличие альтернативных материалов с неопределенным уровнем оптимальности самого материала и технологии его получения, завышенная стоимость. Именно в силу такого рода обстоятельств и возникает все большая потребность углубленного анализа и дополнительных исследований потенциала сцинтилляционных кристаллов.

В рамках настоящего обзора будет предпринята попытка ответить хотя бы на часть поставленных выше вопросов.

2 В поисках идеального сцинтиллятора.

Классическая формула для определения понятия идеальный (т.е. максимально эффективный) сцинтиллятор приведена на рис.2 ниже. Она разбивает сцинтилляционный процесс на три основные стадии – зарождение и разлет электронов и дырок после поглощения энергии ионизирующей частицы, термализация электронно-дырочных пар, перенос возбуждений к центру свечения и, собственно, излучательную релаксацию, сопровождающуюся эмиссией фотона.

В наилучшем случае эффективность переноса и излучательной релаксации может достигать практически 100%. Это характерно для ряда активаторов (таких как Ce, Eu) и для высоких концентрации активатора и кристаллов с минимальной концентрацией дефектов – ловушек носителей заряда или возбуждений.

Scintillator efficiency:

$$N_{ph} = \beta S Q$$

$$\beta = \frac{E_\gamma \gamma}{E_{e-h}}$$

E_γ quantum energy

$E_{e-h} = \sim 2.4 E_g$

S energy transfer efficiency

Q luminescence center efficiency

β – e-h creation efficiency is a key to the new material search and investigation

Q is ~ 1 for many typical activators, Ce, Eu etc

S is also ~ 1 for many hosts.

1-5% of uniform distributed activator minimizes the transfer length to 2-5 a (lattice parameters)

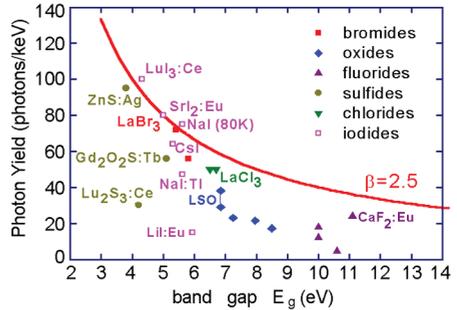


Рис. 2. К оценке максимального сцинтилляционного выхода.

Параметр β более труден для анализа. До настоящего времени предполагается (но сейчас это является предметом более глубоко перерасчета на основе современных методов моделирования трека и его эволюции), что минимальная энергия для создания одной электронно-дырочной пары составляет $\sim 2.2 - 2.4 E_g$ (где E_g – ширина запрещенной зоны) [10-17]. Анализ, проведенный П. Доренбосом [17], показывает разумность и справедливость такого рода оценок. (рис. 2-4) Вместе с тем в отдельных случаях (например, световой выход для классических кристаллов NaI и CsI при низких температурах, когда доминирующую роль играет выход люминесценции триплетных экситонов [18, 19]), значения общей сцинтилляционной эффективности могут превышать указанный предел. Это означает, что оценка величины β нуждается в пересмотре и более точном анализе, т.е. она может составлять и менее $2.2 E_g$ на одну электронно-дырочную пару.

Более того, вопрос о том, как перераспределяется оставшаяся часть поглощенной энергии остается открытым. Следует констатировать, что фононные механизмы потерь к настоящему времени

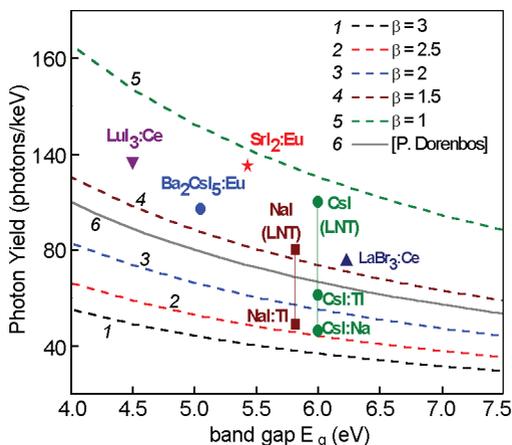


Рис. 3. Эффективность сцинтилляторов с различной запрещенной зоной.

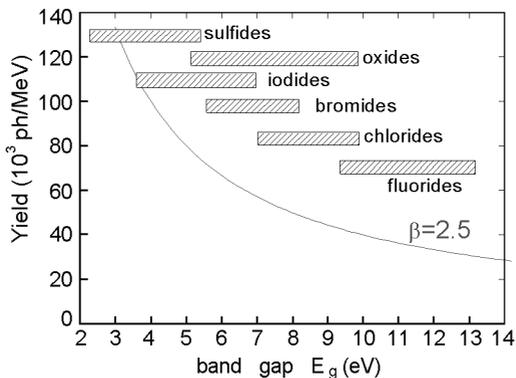


Рис. 4. К вопросу о потенциально допустимом световом выходе для различных типов диэлектрических материалов, отличающихся величиной запрещенной зоны [17].

изучены в гораздо меньшей степени, чем электронно-дырочные. Возможно, именно в этом направлении и следует искать ответ на вопрос об идеальном сцинтилляторе, т.е. достигнутые результаты не являются фундаментальным пределом возможностей сцинтилляционного материала.

Crystal	2007 - 2009		2011 - 2014	
	LY ph/MeV	R, % Cs ¹³⁷	LY ph/MeV	R, % Cs ¹³⁷
SrI ₂ :Eu	100.000	2.6	120.000	2.5
Ba ₂ CsI ₅ :Eu	97.000	3.8	102.000	2.55
SrCsI ₃ :Eu	65.000	5.2	73.000	3.9
BaBrI:Eu	81.000	4.8	97.000	3,4

Рис.5. Улучшение качества сцинтилляционных параметров кристаллов.

Поэтому существует стремление к поиску новых сцинтилляционных материалов с минимальной величиной запрещенной зоны. Тенденции, которые можно реализовать, используя различные классы диэлектрических материалов и широкозонных диэлектриков, продемонстрированы на рис. 4.

Вместе с тем, следует отметить, что потенциал большинства новых сцинтилляционных материалов далеко не исчерпан, и они достаточно далеки от фундаментальных пределов светового выхода. Анализируя прогресс разработок технологии выращивания монокристаллов виден прогресс в повышении сцинтилляционных материалов за последние годы (см. таблицу Рис. 5).

Любопытно отметить, что в отдельных случаях такой прогресс столь разителен, что порождает новый бум в сцинтилляционном материаловедении. Наиболее яркий пример – ренессанс сцинтилляционных кристаллов SrI₂:Eu. Впервые этот материал был описан и запатентован в 1968 г Р. Хофштадтером [20]. Однако материал не привлек особого внимания из-за гигроскопичности и недостаточно высокого световыхода (~30,000 ph/MeV). За прошедшее время качество исходного сырья и методы выращивания существенно улучшились. Поэтому удалось решить основную проблему, связанную с обеспечением эффективного переноса энергии от решетки к центрам свечения. И только 40 лет спустя материал получил «новую жизнь», когда вследствие технологических улучшений

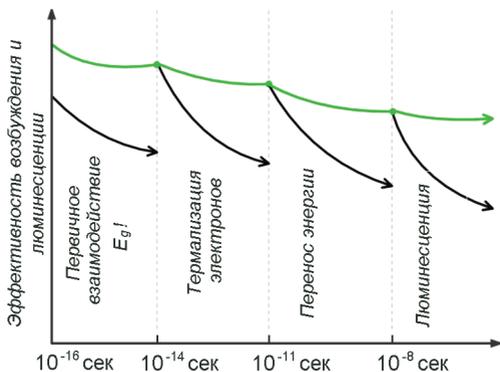


Рис.6. Схема преобразования энергии в широкозонных диэлектриках.

были получены небольшие экспериментальные образцы кристаллов $\text{SrI}_2:\text{Eu}$ со световым выодом 120 000 ph/MeV и энергетическим разрешением 2.5% [21].

И все же пока не ясно является ли это предельным значением величин светового выхода и энергетического разрешения.

Такого рода факты являются существенной мотивацией нового витка исследований фундаментальных процессов, проходящих при поглощении энергии частицы и последующей релаксации энергии возбуждений. Рассмотрим логику такого рода исследований и отдельные примеры, иллюстрирующие ее разумность.

3 Каналы потерь энергии при релаксации электронных возбуждений.

Потери энергии на разных стадиях развития сцинтилляционного процесса схематично показаны на рис. 6. Следует обратить внимание на то, что первые этапы развиваются за времена недоступные современной экспериментальной физике. Поэтому наши представления о начальных стадиях развития и эволюции трека основываются лишь на данных моделирования трека, которые в последние годы значительно расширились и видоизменились, благодаря появлению новых моделей и, главное, вычислительных возможностей [11–16].

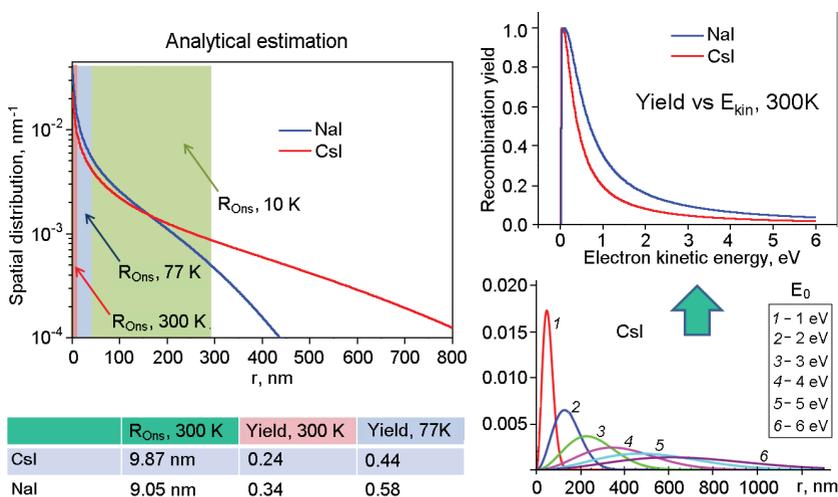


Рис.7. Схема разлёт и термализация электронно-дырочных пар в CsI и NaI.

Постепенное нарастание потерь по мере развития процесса обуславливается различными механизмами преобразования электронов и дырок и не носит абсолютно одинаковый характер для разных кристаллов. Поэтому для примера выбраны наиболее распространенные галоидные кристаллы CsI и NaI. На рис. 7. приведены результаты моделирования разлета электронов и дырок. Расчеты разными методами [11–16] показывают схожие данные, главной особенностью которых является весьма большое количество пар, разлетающихся на большие расстояния (сотни нм).

Расстояние разлета существенно больше радиуса Онсагера даже при низких температурах, когда эта величина достигает сотен нанометров. Таким образом, становится понятным, что роль гомологических пар в релаксационном процессе падает, а среди стохастических рекомбинаций возможны достаточно большие потери. Такого рода процессы приводят к потерям, не связанным с чистотой материала или наличием в нём дефектов кристаллической структуры. Именно они и лежат в основе ограничений в величине

квантового выхода люминесценции классических сцинтилляторов. Соответственно [13, 16], следует ожидать большую эффективность сцинтилляций среди щелочноземельных галогенидов.

Важную роль играют и собственно процессы эволюции электронно-дырочных пар. В этом плане представляется разумной модель и расчеты, представленные в [15, 16], которые позволяют наглядно проиллюстрировать различия каналов потерь для высоких и низких температур, больших и малых концентраций активатора (см. Рис. 8)

Важно отметить, что современные модели и методы расчета постепенно начинают описывать сцинтилляционные процессы адекватно не только с точки зрения качественного анализа, но и количественно. То есть теория развития сцинтилляционного процесса становится все более предсказательной, а результаты расчетов полезными не только для описания экспериментальных данных, но и для определения оптимальных составов сцинтилляционного материала и выбора соответствующего активатора.

Такой уровень понимания, в определённой мере, привел в последние годы к бурному прогрессу в поиске и получении нового поколения сцинтилляционных материалов, о чем пойдет речь в следующем разделе.

4 Понимание и предсказуемость растут.

В таблице (Рис. 9) показаны данные о наиболее перспективных сцинтилляторах, полученных в ходе исследований и разработок последнего десятилетия. Следует отметить, что все наилучшие показатели относятся к различным комбинациям щелочноземельных иодидов. Нижние три строки относятся к традиционным щелочногалогенидным сцинтилляторам. Видно, что световыход новых сцинтилляторов почти в три раза выше и, соответственно, они имеют значительно лучшее энергетическое разрешение, являющееся критическим показателем для спектроскопических детекторов наивысшего качества.

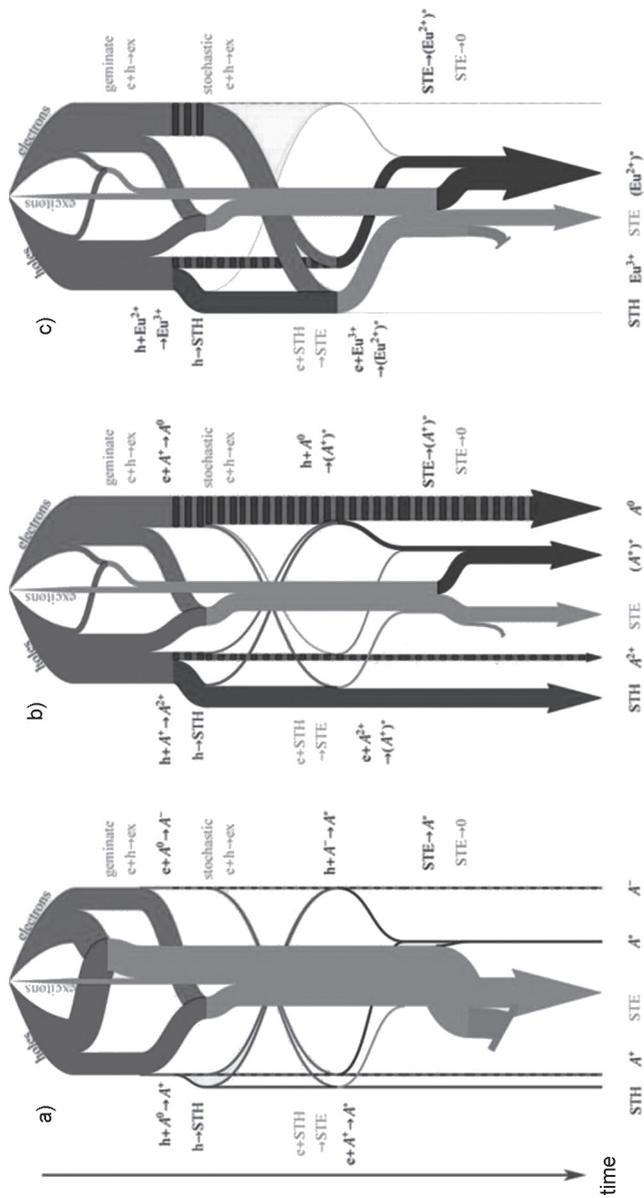


Рис.8. Схемы каналов потерь энергии и ее перераспределения в нелигированном кристалле CsI (а) и в кристаллах CsI , активированных Tl (b) и Eu (c) .

Crystal	ρ g/cm ³	Lum λ , nm	LY ph/Mev	R, % Cs ¹³⁷	Decay τ , ns	Hygro- scopy	References
CaI ₂ :Eu	3.96	467	110.000	5,2	1.000	strong	Cherepy, Moses, Derenzo, Bizarri, Bourret et al. 2007 - 2012
SrI ₂ :Eu	4.55	435	115.000	2.6	1.500	strong	
Ba ₂ CsI ₅ :Eu	4.9	435	102.000	2.55	383;1.500	medium	
SrCsI ₃ :Eu	4,25	458	73.000	3.9	2.200	medium	
BaBrI:Eu	5.2	413	97.000	3,4	500	low	Bizarri et al. 2011
NaI:TI	3.67	415	44.000	5.6	230	strong	
CsI:TI	4.53	560	56,000	6.0	980	no	
CsI:Na		420	46,000	6.4	600	low	

Рис.9. Наиболее перспективные сцинтилляторы, полученные в последние годы.

Существенным недостатком всех материалов является их высокая гигроскопичность, что определяет необходимость эксплуатации лишь в герметичных корпусах, аналогично сцинтилляторам на основе NaI(Tl). Не решены также проблемы выращивания таких кристаллов достаточно больших размеров (более 50 мм в диаметре). В настоящее время не ясна и целесообразность использования детекторов на основе новых сцинтилляционных материалов в связи с малым стоковым сдвигом, характерным для всех люминофоров, легированных ионами двухвалентного европия. Можно предположить, что связанная с этим явлением реабсорбция будет снижать прозрачность кристалла к собственному излучению. Этот фактор предстоит исследовать более детально, чтобы определить до каких геометрических размеров кристалла новые сцинтилляторы будут превышать по эффективности традиционные щелочно-галогидные сцинтилляторы.

Отдельно следует отметить и прогресс в разработках более эффективных оксидных сцинтилляционных материалов. В последние 3 – 4 года появилась не просто серия новых оксидных композиций, но и достигнут уровень совершенства, позволяющий говорить об оксидных сцинтилляторах спектрометрического качества. Они, в принципе, сравнимы с традиционными щелочно-галогидными

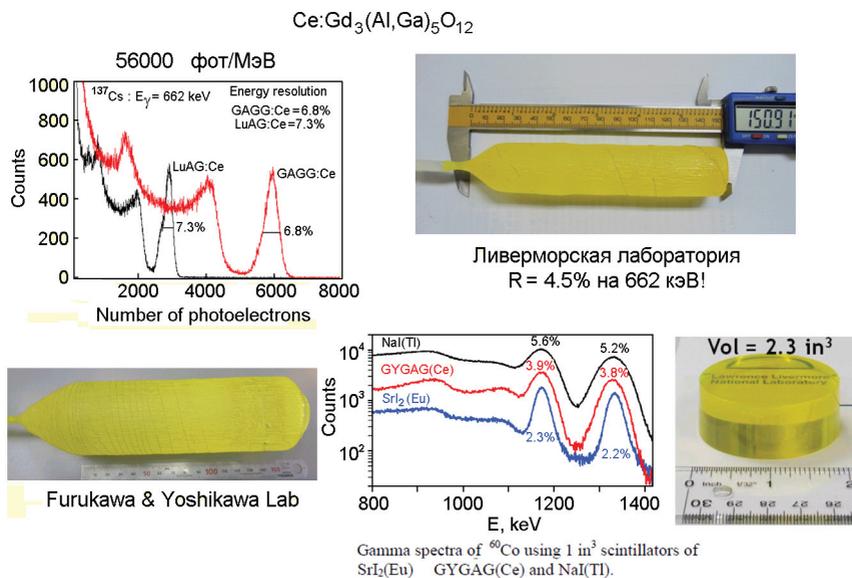


Рис. 10. Наиболее эффективные оксидные сцинтилляторы [8, 9].

кристаллами. Как и в случае новых галоидных сцинтилляторов возникает вопрос о выборе оптимального материала для дальнейшего промышленного производства. Анализ многочисленных разработок позволяет выделить лидера разработок – кристаллы Ce:GAGG [8, 9]. На рис. 10 показаны данные, позволяющие сделать такого рода вывод. Это, прежде всего, большой световой выход (56 000 фотонов/мэВ), высокое спектрометрическое качество (энергетическое разрешение ниже 5-6%) и, что, наверное наиболее важно практически, наличие технологий выращивания монокристаллов достаточно крупных размеров, позволяющее наладить промышленное производство детекторов.

При этом можно утверждать, что полученные результаты не являются фундаментальным пределом сцинтилляционной эффективности оксидных кристаллов. Анализ данных конференции СЦИНТ-2013 показал, что возможна модификация свойств, позволяющая повысить квантовую эффективность материалов. Это, прежде всего,

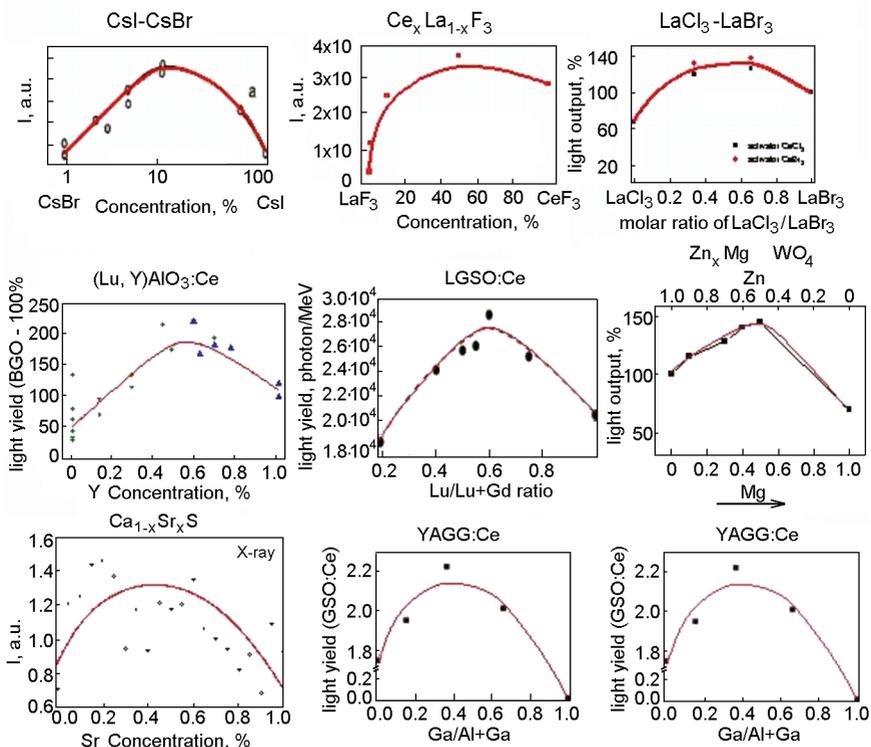


Рис. 11. Зависимость сцинтилляционной эффективности от состава твердого раствора в различных соединениях [22].

переход к смешанным кристаллам (в тех случаях, когда твердые растворы устойчивы вообще) [22]. На рис. 11 показаны данные для различных сцинтилляторов, свидетельствующие о том, что в результате смешения различных катионов (а в галогидных кристаллах – анионов) удастся значительно повысить выход свечения. В настоящее время обсуждаются несколько возможных механизмов данного эффекта, но сам факт улучшения совершенства сцинтиллятора несомненен. Для такого рода систем предстоит провести серию исследований, направленных на выяснение оптимальных соотношений смешанных кристаллов.

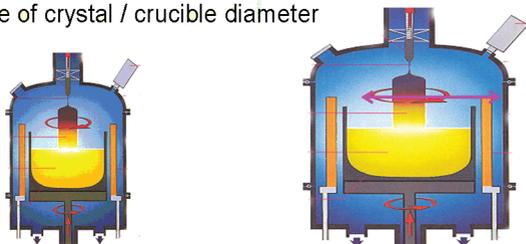
Таким образом, даже краткий анализ полученных за последние годы кристаллов, указывает на выход разработок сцинтилляторов на качественно новый уровень. Это относится и собственно к пониманию физики сцинтилляционного процесса, и разработкам как галоидных, так и оксидных сцинтилляционных материалов. Поэтому, следует ожидать, что в ближайшие годы такого рода материалы станут коммерчески доступными для инженерии детекторов и приборов нового поколения. Открытыми остаются лишь вопросы о технологии, размерах и ценах кристаллов. В следующем разделе рассмотрим критические параметры для такого рода разработок.

5 *Альтернативные технологии. Можно ли получить дешевый сцинтиллятор?*

Описанный выше прогресс в понимании сцинтилляционного процесса и в получении лабораторных образцов новых эффективных сцинтилляционных материалов ставит вопрос об их получении в промышленном объеме и о разумных для инженерии ценах. То есть, следует констатировать, что конечная цель исследований – получение детекторов хотя бы средних (\varnothing 50 x 50 мм и выше) размеров – пока не достигнута. Более того, работы в этом направлении развиваются весьма медленно. Именно поэтому и следует рассмотреть основные причины такого состояния проблемы.

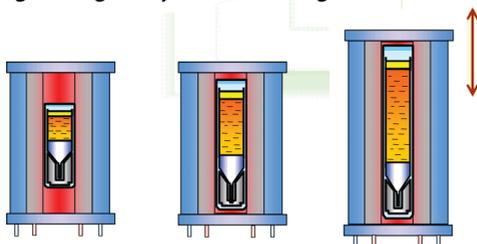
Прежде всего, следует проанализировать особенности собственно выбора метода выращивания кристалла. На рис.12 схематично показаны два основных метода выращивания сцинтилляционных кристаллов. Они отражают тенденции в дальнейшем использовании материала для изготовления детекторов. Для детекторов большой площади (например, для медицинских применений и научных проектов) изначально наиболее эффективен метод Чохральского. Отсутствие контакта растущего кристалла со стенками тигля позволяет минимизировать вероятность растрескивания и повысить структурное совершенство слитка. Но весьма большой объем кристаллизационной камеры создает дополнительные проблемы в случае роста гигроскопичных кристаллов. Длинномерные

1. Increase of crystal / crucible diameter

**Czochralski**

- increased power input
- melt turbulences

2. Lengthening of crystal / melt height

**VGF**

- increased interaction with ampoule
- increasing melt convection

P.Rudolf, IWCGT 2008

Рис.12. Альтернативы в промышленном подходе (P.Rudolf, IWCGT-4, Berlin, 2008).

кристаллы удобно получать методом Бриджмена-Стокбаргера. В этом случае объем кристаллизационной камеры во много раз меньше. Но для этих методов характерно неравномерная концентрация активатора вдоль кристалла и адгезия кристалла к стенкам тигля. Иными словами, изначально даже выбор метода роста кристаллов является неоднозначно решаемой проблемой.

Вторая проблема связана с отсутствием производства исходного сырья для массового роста кристаллов. Имеющиеся в настоящее время возможности ограничены лабораторными количествами химических реактивов. Соответственно и цены на такие материалы значительно выше, чем требуемые для производства. Наглядной иллюстрацией проблемы цена/качество сырья являются данные, приведенные на рис. 13. На этом рисунке показаны зависимость качества полученного методом Стокбаргера кристалла $\text{SrI}_2:\text{Eu}$ от чистоты исходного сырья. Минимальная чистота исходного сырья

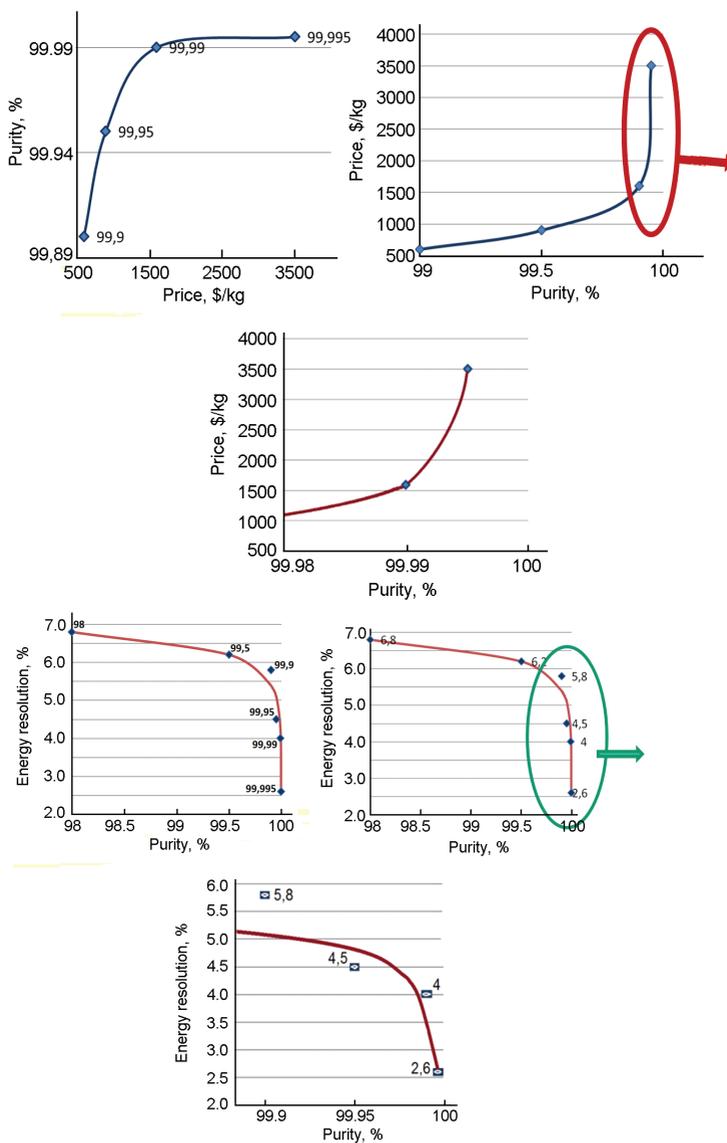


Рис.13 Совершенство сцинтиллятора SrI₂:Eu в зависимости от качества и стоимости исходного сырья.

для получения таких сцинтилляторов на уровне отборного спектрометрического качества, т.е. менее 4% разрешение при ^{137}Cs возбуждении, должна составлять как минимум 4N или даже выше. Следует отметить, что для выращивания традиционных сцинтилляционных кристаллов на основе NaI или CsI в настоящее время используется сырье квалификации 5N. На этом же рисунке приведены данные о росте стоимости сырья при повышении его чистоты. Очевидно, что при стоимости сырья на уровне 3-4 тыс долларов за килограмм стоимость детектора будет исключительно высокой (порядка 100 дол за см³).

Таким образом, можно утверждать, что именно проблема получения исходного сырья в достаточно больших количествах и ценах, измеряемых в сотнях долларов за кг, является ключевой для решения проблемы промышленного производства сцинтилляторов нового поколения.

Заключение.

Несмотря на весьма краткий объем настоящего обзора, можно выделить несколько важных выводов и, главное, тенденций развития сцинтилляционного материаловедения и техники, которые будут определять задачи и ключевые разработки ближайшего будущего.

Прежде всего, следует констатировать тот факт, что появление серии новых радикально более эффективных сцинтилляторов на основе щелочноземельных галогенидов гарантировано даст толчок разработкам спектрометрических приборов нового поколения. Существенное улучшение спектрометрических характеристик сцинтилляторов абсолютно реально и доказано на ряде конкретных примеров.

Общей чертой всех новых материалов является наличие в них ионов щелочноземельных металлов в качестве решетко-образующих элементов. Это указывает на общность механизма повышения эффективности излучательного канала релаксации поглощенной

энергии и может быть связано со спецификой электрон-фононного взаимодействия. Но в целом, следует констатировать, что единый физический механизм, описывающий данное явление, на сегодня так и не сформулирован.

Важно подчеркнуть, что как и в предыдущие годы экспериментальные достижения значительно опережают развитие соответствующих теоретических моделей. Следствием этого и является продолжение активного поиска все новых соединений вместо определения кандидатов наиболее подходящих для промышленного внедрения. Такое положение вещей приводит к значительному отставанию технологических разработок от получения маленьких лабораторных экземпляров новых сцинтилляционных материалов. Так или иначе, необходимо отметить, что ни один из новых галоидных сцинтилляторов в настоящее время в промышленных масштабах не выпускается.

Критическим параметром для внедрения разработок в практику является стоимость исходного сырья для выращивания кристаллов. Текущая стоимость сырья должна быть снижена на порядок величины, чтобы такого рода сцинтилляторы стали общедоступными. А это возможно лишь при условии увеличения объемов производства соответствующих солей.

Картина развития разработок оксидных сцинтилляторов весьма похожа на историю с галоидными соединениями. Т.е. массированный поиск новых материалов привел к появлению ряда высокоэффективных смешанных оксидных сцинтилляторов (в основном – гранатов), но до сих пор ни одного из них нет в промышленном производстве, а отсутствие критериев выбора одного кандидата для производства – замедляет прогресс этого направления, аналогично описанному выше для щелочноземельных галогенидов.

Перечисленные выше факты указывают на то, что такого рода селекция завершается в ближайшее время и в обоих направлениях можно ожидать существенного практического прогресса, связанного с производством сцинтилляторов нового поколения в больших масштабах, критерияльно больших размеров и разумной стоимости.

Литература

1. R. Hofstadter, The detection of gamma-rays with Thallium-activated sodium iodide crystals, *Phys. Rev.*, 74 (1948) 100; *Phys. Rev.*, 75 (1949) 796–810.
2. S.E. Derenzo, <http://scintillator.lbl.gov/> .
3. P. Lecoq, A. Annenkov, A. Gektin, M. Korzhik, C. Pedrini, *Inorganic Scintillators for Detector Systems*, Springer, 2006, 287 p.
4. A. Gektin, *Scintillators: crystals growth and performance*, in *Bulk Crystal Growth*, ed. by P.Capper, WILEY, England , 2006, p. 357-386.
5. E. Auffray, Overview of the 63000 PWO Barrel Crystals for CMS_ECAL Production, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 55 Issue 3 (2008) 1314-1320
6. *Handbook of Particle Detection and Imaging*, Springer, Ed. C. Grupen and I. Buvat, 2012, 1205p.
7. A. Gektin, N. Shiran, A. Vasil'ev, A. Belsky. Development of high efficient scintillators generation. Theory and practice of scintillator production, in *Funct. Mater. for scint. technique and biomedicine*, Kharkov: ISMA, 2012, p. 52-71 (in Russian).
8. O. Sakthong, , W. Chewpraditkul, Ch. Wanarak et al. Luminescence and scintillation characteristics of GAGG:Ce scintillators, *Optical Materials* 36 (2013) 568–571.
9. A. Yoshikawa, Y. Fujimoto, A. Yamaji et al. Crystal growth and characterization of Ce:Gd₃(Ga,Al)₅O₁₂ single crystal using floating zone method in different O₂ partial pressure, *Optical Materials* 35 (2013) 1882–1886.
10. A. N. Vasil'ev, “Elementary processes in scintillation and their inter-connection in scintillation process,” in *Proc. Int. Conf. on Inorganic Scintillators and their Applications (SCINT2005)*, Alushta, Ukraine, 2005, pp. 1–6.
11. Z. Wang, Y. Xie, B. Cannon, L. Campbell, F. Gao, and S. Kerisit, Computer simulation of electron thermalization in CsI and CsI(Tl), *J. Appl. Phys.*, 110 (2011) 064903.
12. Z. Wang, Y. Xie, L. Campbell, F. Gao, and S. Kerisit, Monte Carlo simulations of electron thermalization in alkali iodide and alkaline-earth fluoride scintillators, *J. Appl. Phys.*, 112 (2012) 014906.

13. A. Vasilèv and A. Gektin, Multiscale approach to estimation of scintillation characteristics, *IEEE Trans. Nucl. Sci*, 61, N 1 (2014) 235-245.
14. S. Gridin, A. N. Vasil'ev, A. Belsky, N. Shiran, and A. Gektin, Excitonic and activator recombination channels in binary halide scintillation crystals, *Phys. Stat. Sol. B*, 251, N 5, (2014) 942–949.
15. S. S. Gridin, A. N. Belsky, N. V. Shiran, and A. V. Gektin, Channels of Energy Losses and Relaxation in CsI:A Scintillators (Tl,In), *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 61, N. 1 (2014) 246-251.
16. A. Gektin, S. Gridin, S. Vasyukov, A. Vasil'ev, A. Belsky and N. Shiran, Effect of the activator impurity on the scintillation yield in alkali-halide crystals, *Phys. Stat. Sol. B*, 252, N 2 (2015) 380–385.
17. P. Dorenbos, Fundamental Limitations in the performance of Ce^{3+} , Pr^{3+} and Eu^{2+} –activated scintillators, *IEEE Trans. Nucl. Sci*, 57, N 3 (2010) 1162-1167.
18. W.J. van Sciver, *IRE Trans. Nucl. Sci. NS-* 5 (1956) 39.
19. Moszynski M., M. Balcerzyk, W. Czarnacki et al. *NIM A* 537 (2005) 357.
20. R. Hofstadter, Europium activated strontium iodide scintillator. U.S. Patent No. 3,373,279. 1968.
21. N. J. Cherepy, G. Hull, A. D. Drobshoff , et al. Strontium and barium iodide high light yield scintillators, *Appl. Phys. Lett.*, 92, N 8 (2008) 0835081.
22. A. Gektin, A. Belsky, and A. Vasilèv, Scintillation efficiency improvement by mixed crystal use, *IEEE Trans. Nucl. Sci* , 61, N 1 (2014) 262-269.

СЦИНТИЛЛЯЦИОННАЯ ЭФФЕКТИВНОСТЬ И ГИГРОСКОПИЧНОСТЬ ЩЕЛОЧНЫХ И ЩЁЛОЧНОЗЕМЕЛЬНЫХ ИОДИДОВ

Н. В. Ширан

*Институт сцинтилляционных материалов НАНУ,
пр. Ленина 60, Харьков, 61001, Украина*

1 Введение. Ключевые аспекты получения гигроскопичных галоидных сцинтилляторов.

Высокая сцинтилляционная эффективность щелочных иодидов NaI:Tl и CsI:Tl была выявлена в 50-х годах прошлого века. С тех пор они широко используются в качестве детекторов. Как известно, совершенство традиционных сцинтилляторов на базе кристаллов NaI и CsI является одним из важнейших факторов их сцинтилляционной эффективности. Эффективность сцинтиллятора определяется не только структурным совершенством, но и химическим составом кристалла. Так, квантовая эффективность и кинетика свечения, энергетическое разрешение и пропорциональность, а также радиационная стойкость кристаллов, варьируются в зависимости от качества исходной шихты, условий её обработки и технологии выращивания.

Возможность применения соединений с затянутым временем высвечивания ($\geq 1\mu\text{sec}$) стимулировала новый виток поиска сцинтилляционных материалов и привлекла внимание к легированным европием щёлочноземельным иодидам. Наличие интенсивной

радиолюминесценции кристаллов SrI_2 и CaI_2 , легированных европием, была выявлена ещё в 60-х годах прошлого века [1]. В частности, кристалл $\text{SrI}_2:\text{Eu}$ был запатентован как сцинтилляционный материал ещё в 1968 г. [2]. Однако материал не привлек особого внимания из-за гигроскопичности и недостаточно высокого световыхода ($\sim 30,000$ ph/MeV). За прошедшее время качество исходного сырья и методы выращивания существенно улучшились, поэтому удалось решить основную проблему, связанную с обеспечением эффективного переноса энергии от решетки к центрам свечения. Так, выращенные в 2009 г. небольшие экспериментальные образцы кристаллов $\text{SrI}_2:\text{Eu}$ продемонстрировали рекордные показатели: световыход ($100,000$ ph/MeV) и энергетическое разрешение (2,5%) [3]. К настоящему времени в лабораторных условиях получен целый ряд простых и многокомпонентных эффективных сцинтилляционных материалов $\text{CaI}_2:\text{Eu}^{2+}$, $\text{BaI}_2:\text{Eu}^{2+}$, $\text{SrI}_2:\text{Eu}^{2+}$, $\text{Ba}_2\text{CsI}_5:\text{Eu}^{2+}$, $\text{SrCsI}_3:\text{Eu}^{2+}$, $\text{BaBrI}:\text{Eu}^{2+}$ (Таблица. 1 [4]). Оценки показали, что именно щелочноземельные галогениды обладают оптимальными условиями для реализации излучательной рекомбинации электронных возбуждений [5].

Обзор имеющихся экспериментальных данных показывает, что величины световыхода (LY) и энергетического разрешения (R), полученные для небольших опытных образцов в разных лабораториях, варьируются в достаточно широких пределах ($\pm 20\%$), что свидетельствует о зависимости эффективности от качества кристаллов. Предварительный анализ показывает, что для получения достаточно больших и совершенных сцинтилляционных монокристаллов на основе активированных европием щелочноземельных иодидов, необходимых для целей радиационного контроля, нет непреодолимых физических и методических ограничений. В то же время промышленные технологии получения крупногабаритных детекторов такого рода и инфраструктура (сырьевая база и технологии, ростовые технологии и оборудование, методы обработки кристаллов и собственно изготовление сцинтилляционных детекторов) пока отсутствуют. Это в значительной степени связано

Таблица 1. Свойства сцинтилляторов на основе активированных европием щелочноземельных иодидов и кристаллов на основе NaI и CsI [4]

<i>Crystal</i>	ρ <i>g/cm³</i>	<i>Lumin</i> λ , <i>nm</i>	<i>LY</i> <i>ph/Mev</i>	<i>R</i> , % <i>Cs¹³⁷</i>	<i>Decay</i> , <i>ns</i>	<i>Hygroscopicity</i>
CaI ₂ :Eu ²⁺	3.96	467	110.000	5,2	1000	+++
SrI ₂ :Eu ²⁺	4.55	435	115.000	2.6	1500	+++
KSr ₂ I ₅ :Eu ²⁺	4.39	452	94,000	2.4	990	+++
CsSrI ₃ :Eu ²⁺	4,25	458	73.000	3.9	2200	++
CsBa ₂ I ₅ :Eu ²⁺	4.9	435	102.000	2.5	383; 1500	++
BaBrI:Eu ²⁺	5.2	413	97.000	3,4	500	+
NaI:TI ⁺	3.67	415	45.000	5.6	230	++
NaI:Eu ²⁺		474	35.000	6.2	1100	
NaI:Eu ²⁺ ,TI ⁺		415, 474	50.000	6.0	230, 1100	
CsI:TI ⁺	4.53	560	61,000	7.0	980	-
CsI:Na ⁺		420	46,000	6.4	600	+
CsI:Eu ²⁺		441, 474	8,000	14	1100	+
CsI:CO ₃ ²⁻		395, 435	35,000		2000	-

с гигроскопичностью щелочноземельных иодидов, что осложняет технологию их получения. По-видимому, такого рода состояние дел определяет и исключительно высокую стоимость образцов.

С другой стороны, хотя параметры традиционных сцинтилляторов на основе NaI и CsI существенно уступают вновь разработанным соединениям, методы их получения отработаны и это позволяет получать относительно недорогие крупногабаритные кристаллы, качество которых в определенной мере удовлетворяет потребности рынка. В сложившейся ситуации становятся актуальными вопросы – чем ограничивается квантовая эффективность и можно ли (и каким путем) получить сцинтилляторы на основе щелочноземельных иодидов в виде крупногабаритных кристаллов разумной стоимости.

Заметим также, что благодаря высокой квантовой эффективности преобразования вакуумного ультрафиолетового излучения, для детектирования применяются пленки чистого иодида цезия. В последнее время наряду с монокристаллическими сцинтилляторами на основе активированных таллием и европием галогенидов щелочных металлов, привлекают внимание структурированные экраны, поскольку они обладают высоким пространственным разрешением, необходимым для визуализации изображения в медицине и технике. Основной проблемой в таких случаях является развитая поверхность, деградирующая в процессе пребывания на воздухе в результате взаимодействия с влагой.

Представленный ниже краткий обзор исследований критических параметров сцинтилляторов, определяемых присутствием нежелательных анионных примесей, может служить основой для выработки рекомендаций для получения и совершенствования гигроскопичных детекторов ионизирующего излучения.

Целью настоящего обзора и является выделение ключевых аспектов получения эффективных сцинтилляторов, определяемых присутствием кислород- и водород содержащих примесей.

1 Роль дефектов в переносе энергии в галоидных сцинтилляторах.

Измеряемый сцинтилляционный выход зависит от интенсивности люминесценции и от светособирания. Эффективность светособирания является функцией прозрачности, отражения и поглощения на поверхности и в объёме кристалла. Эти факторы могут существенно варьироваться при переходе от материала к материалу.

Механизм переноса энергии от решетки к центрам излучательной рекомбинации в сцинтилляторах определяется в основном быстрой излучательной рекомбинацией. Энергетические потери связаны с процессами захвата носителей заряда ловушками и безызлучательной рекомбинацией:

$$\eta_{\text{scint}} + \eta_{\text{trap}} + \eta_{\text{loss}} = 1,$$

где η_{scint} — излучательная рекомбинация, η_{trap} — захват носителей заряда ловушками, η_{loss} — безызлучательная рекомбинация

Основные потери определяются несколькими факторами, связанными в основном с вакансионными дефектами и неконтролируемыми примесями. Они являются источниками дополнительных центров свечения и захвата, проявляющихся в виде затянутой фосфоресценции, реабсорбции, термостимулированной люминесценции и окрашивания. Уровень потерь существенно зависит от типа и концентрации неконтролируемых примесей.

Как известно, совершенство сцинтилляторов на базе кристаллов NaI и CsI является одним из важнейших факторов их сцинтилляционной эффективности [6]. Оценивая вклад собственных и примесных дефектов в переносе энергии в галоидных сцинтилляторах, также обратим особое внимание на роль гигроскопичности кристаллов. Рассмотрим абсорбционные и люминесцентные свойства непреднамеренно загрязненных нелегированных и активированных иодидов

NaI и CsI, а также связь между радиационной чувствительностью и содержанием анионных радикалов.

При изучении сцинтилляционных характеристик кристаллов одинакового химического состава, но разного качества, было установлено, что их параметры варьируются в широком интервале и существенно зависят от наличия собственных и примесных дефектов структуры [5, 6]. Абсорбционные и люминесцентные исследования показывают, что наряду с полосами, характерными для базовой матрицы и активатора, проявляются дополнительные центры, вклад которых отличается от образца к образцу [7 – 9]. Структура такого рода центров остается до сих пор не выясненной, однако установлено, что она обусловлена гигроскопичностью базовой матрицы и активирующей добавки.

Анализ данных об особенностях процесса переноса энергии к центрам свечения в таких иодидах, как NaI, NaI:Tl, NaI:Eu, CsI:Eu может служить основой для выработки рекомендаций по разработке и совершенствованию новых европий-содержащих гигроскопичных сцинтилляторов.

2 Гигроскопичность щелочных и щелочноземельных иодидов.

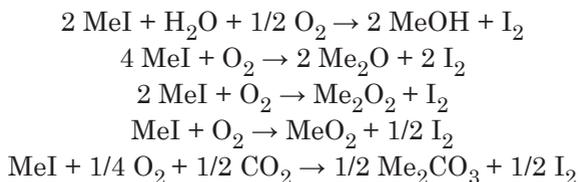
Гигроскопичность играет значительную роль в эффективности галоидных сцинтилляторов.

Определение гигроскопичности исторически носит качественный характер и является мерой того, насколько легко материал реагирует с влагой. Гигроскопичные соединения легко адсорбируют влагу из атмосферы и в случае сцинтилляционных материалов это приводит ко многим нежелательным проблемам, в частности к падению световыхода и снижению энергетического разрешения. Причинами падения эффективности может быть появление кислород- и водородсодержащих радикалов в объёме и на поверхности кристаллов. Поверхность образцов гигроскопичных материалов при контакте с атмосферой деградирует (мутнеет) с образованием

кристаллогидратов, поэтому для защиты необходимы тщательные меры герметизации.

Рассмотрим причины непреднамеренного загрязнения кислород- и водородсодержащими радикалами иодидов щелочных металлов MeI (Me=Li, Na, Cs) и щелочноземельных иодидов MeI₂ (Me=Ca, Sr, Ba).

Разложение **щелочных иодидов** в присутствии кислорода и влаги демонстрируют следующие реакции гидролиза, окисления и карбонизации:



Возникающие в результате приведенных реакций анионы OH⁻, CO₃²⁻, O₂²⁻, O²⁻ могут входить в твердый раствор с замещением ионов йода, а также образовывать агрегаты и фазовые включения, что зависит от их изоморфизма и условий выращивания. Отсюда следует, что гигроскопичность является значимым источником загрязнений иодидов щелочных металлов MeI (Me = Li, Na, Cs). Среди щелочных металлов наибольшей степенью гигроскопичности обладают LiI и NaI. Кристаллы на их основе (LiI:Eu и NaI:Tl) давно и успешно используются как коммерческие сцинтилляторы. Изучение ИК-спектров кристаллов NaI:Tl позволило выявить в них ионы OH⁻, SO₄²⁻, IO₃⁻, CO₃²⁻, HCO₃⁻ [7- 9]. Иодид цезия гораздо менее гигроскопичен (сцинтилляторы CsI, CsI:Tl и CsI:Na), однако при введении в CsI ионов натрия гигростойкость кристалла снижается.

Гидролиз **щелочноземельных иодидов** MeI₂ (Me = Ca, Sr, Ba), отличающихся высокой гигроскопичностью, приводит к протеканию реакций, связанных с окислением и гидратации:

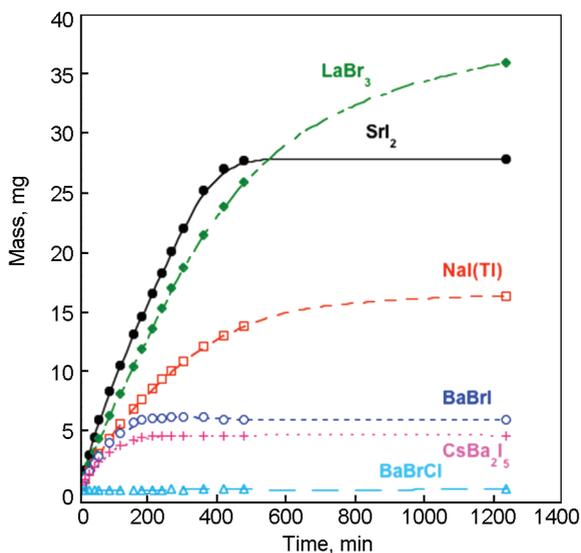
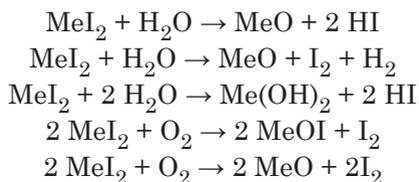


Рис. 1 Увеличение веса измельченных сцинтилляторов в процессе хранения на воздухе ($T=22^{\circ}\text{C}$, влажность 35-36%) [10].



Таким образом, в результате гидролиза щелочноземельных иодидов в соединениях на их основе можно ожидать появления нежелательных примесей в виде оксидов MeO , окси-иодидов MeOI и гидроксидов $\text{Me}(\text{OH})_2$.

Степень гигроскопичности некоторых галоидных сцинтилляторов оценена качественно с помощью гравиметрического метода, т.е. по увеличению веса материала в процессе пребывания на воздухе [10, 11]. Оценки показали, что наибольшей гигроскопичностью обладают соединения LaBr_3 , SrI_2 и NaI (рис. 1).

Визуально гигроскопичность проявляется в помутнении поверхности кристалла и в изменении структуры приповерхностного слоя. Количественными показателями, связанными с гигроскопичностью, является изменение прозрачности, световыхода и энергетического разрешения кристаллов в процессе эксплуатации. Для контроля радиационной безопасности требуется исключительно высокое разрешение $< 2\%$ для 662 keV , однако именно этот параметр является наиболее чувствительным к негативному воздействию влаги [7].

3 Щелочно-галогидные монокристаллы.

Имеющийся в настоящее время опыт позволяет получать совершенные крупногабаритные кристаллы на основе NaI и CsI, широко использующиеся в сцинтилляционной технике, науке и медицине. Вместе с тем известно, что следовые примеси могут влиять на сцинтилляционные свойства и радиационную стойкость изготовленных детекторов.

Сцинтилляторы и экраны на основе активированных таллием иодидов щелочных металлов при воздействии ионизирующего излучения, а также под действием света способны приобретать окраску и запасать светосумму. Это снижает их радиационную прочность и ухудшает энергетические характеристики. Далее мы проанализируем факторы, определяющие влияние процессов объемного и поверхностного загрязнения кислород-содержащими примесями на оптические и люминесцентные параметры щелочно-галогидных кристаллов.

3.1 Анионные примеси в объеме кристаллов щелочных иодидов.

Иодид натрия. Номинально чистые кристаллы NaI являются эффективными сцинтилляторами при низких температурах ($< 77 \text{ K}$) [12, 13]. Основная полоса свечения, проявляющаяся в УФ-области (295 нм), связана с излучательной релаксацией автолокализованных экситонов (STE). Однако, сцинтилляционные параметры

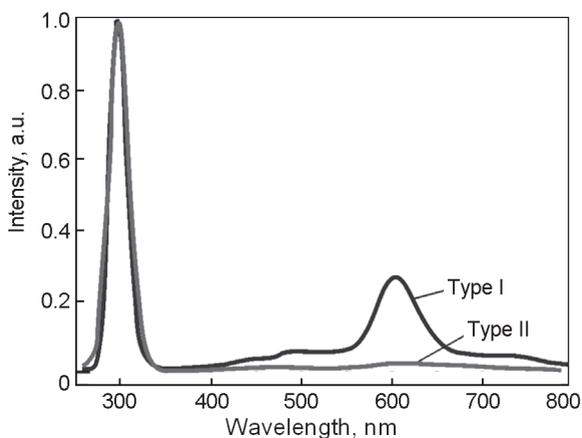


Рис.2 Радиолуминесценция загрязненного (1) и чистого (2) кристаллов NaI при 10К [14]

образцов разного происхождения существенно варьируются в зависимости от их чистоты и совершенства. Следы посторонних примесей проявляются в виде нежелательного затянутого во времени свечения в диапазоне 440-700 нм, связанного с присутствием анионных и катионных примесей (Рис.2) [14]. Основные примеси в чистых кристаллах обусловлены наличием кислород- и водородсодержащих анионов, что обусловлено взаимодействием соли с атмосферой при выращивании и последующей обработке.

Примеси, и в первую очередь, анионные радикалы, способствуют появлению центров окраски и запасанию энергии. Наличие дополнительных высокотемпературных пиков термостимулированной люминесценции в кристаллах NaI, X-облученных при 10 К, и послесвечения при комнатной температуре свидетельствует о существовании глубоких ловушек носителей заряда (Рис. 3)..

Известно, что чистые кристаллы NaI не поддаются окрашиванию [15]. В случае наличия OH^- ионов в спектрах NaI наблюдается характерная полоса поглощения ~ 240 нм [16]. При этом фиксируется радиационная чувствительность при комнатных температурах [14]. Под действием УФ-радиации и рентгеновского облучения

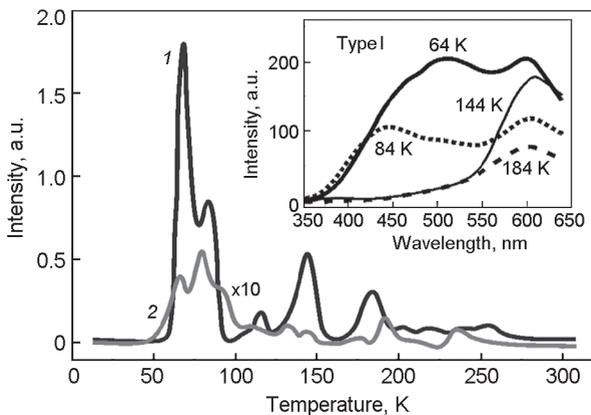


Рис.3 ТСЛ в загрязненном (1) и чистом (2) кристаллах NaI, X-облученных при 10 К [14].

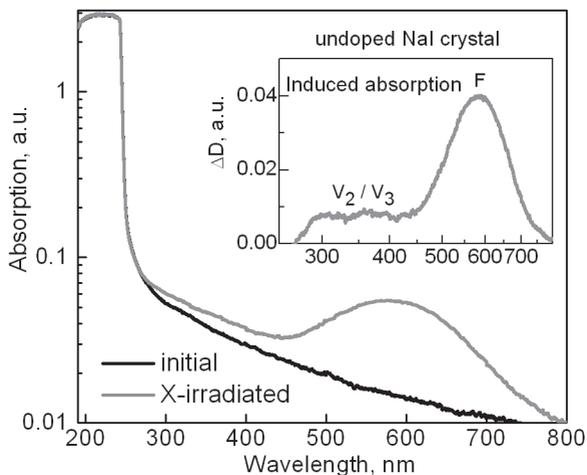


Рис. 4 Радиационно-наведенное поглощение в кристалле NaI, содержащем OH ионы, при 300 К [14].

кристаллы приобретают зеленоватую окраску, связанную с появлением F-полосы поглощения с максимумом 590 нм (Рис. 4). Механизм окрашивания связан с превращением OH^- в U-центры (H^-)

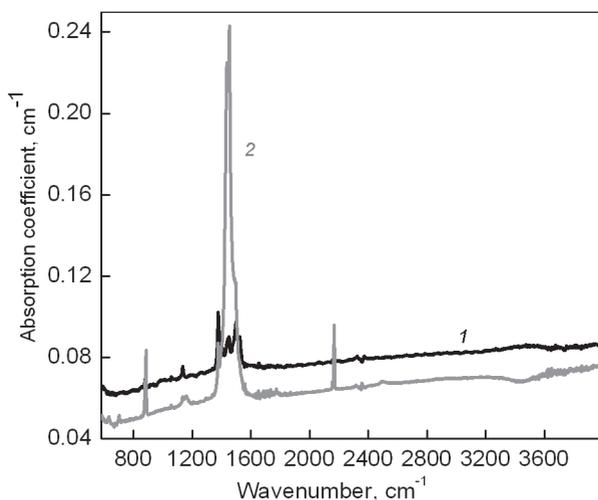


Рис.5 Спектры ИК поглощения кристаллов NaI:Tl со спектрометрическими характеристиками: LY = 45 000 фт/МэВ, R = 6.0% (1) и LY = 37 000 фт/МэВ, R = 6.6% (2). Толщина образцов 3 см.

с дальнейшим переходом $U \rightarrow F$. Таким образом, окрашиваемость номинально чистого NaI при комнатной температуре, является индикатором загрязнения кристаллов OH^- ионами.

NaI:Tl. В легированных кристаллах NaI:Tl в зависимости от концентрации активатора и чистоты, кроме одиночных ионов Tl^+ , образуются димеры $Tl^+ - Tl^+$ и центры, состоящие из иона активатора и соседствующего с ним кислорода или кислородсодержащего радикала [17]. Известно также, что наличие полигалоидных молекулярных ионов иода вызывает снижение прозрачности в области свечения активатора и обуславливает дополнительное послесвечение. [7, 8, 17].

Изучение ИК прозрачности коммерческих сцинтилляторов NaI:Tl указывает на то, что в случае нарушения регламента роста в них выявляются полосы поглощения радикалов CO_3^{2-} , HCO_3^- , SO_4^{2-} и CNO^- . При этом содержание примесей в разных кристаллах различается в зависимости от качества сырья и условий выращивания.

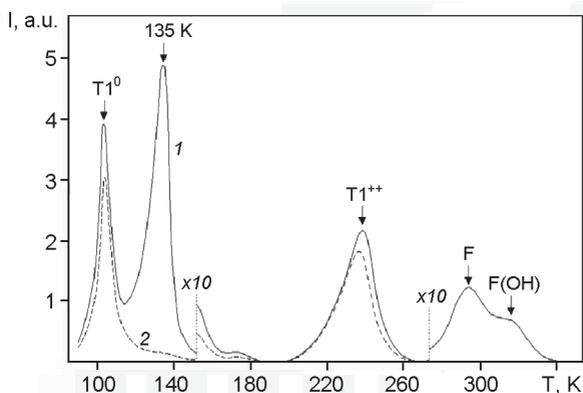


Рис. 6 Кривые ТСЛ кислородсодержащих (1) и чистых (2) кристаллов NaI:Tl. Рентгеновское облучение при 77 К [18].

ния. В качестве примера Рис. 5 приведены спектры ИК поглощения двух типов кристаллов, отличающихся по сцинтилляционным параметрам. Опыт показывает, что световыход и энергетическое разрешение ухудшается в тех случаях, когда суммарное содержание примесей молекулярных анионов превышает 10^{-4} %.

На практике в образцах с увеличением содержания анионных радикалов наблюдается повышение вклада глубоких ловушек, что проявляется в усилении интенсивности пиков термостимулированной люминесценции (Рис. 6) [18, 19].

Окрашиваемость кристалла NaI:Tl при 300 К является одним из важных критериев чистоты. Так, в образцах, содержащих анионы OH^- и CO_3^{2-} , имеет место пониженная радиационная стойкость. Спектр наведенного в кристалле радиацией поглощения представлен на Рис. 7 [14].

Кристаллы CsI, CsI:Tl и CsI:Na. О наличии анионных радикалов в коммерческих кристаллах CsI, CsI:Tl и CsI:Na свидетельствуют спектры инфракрасного поглощения, представленные на Рис. 8. Анализ показывает, что в кристаллах присутствуют ионы H_2O^- , OH^- , SO_4^{2-} , CH_3^- , CNO^- , CO_3^{2-} . Состав и концентрация этих примесей варьируется в зависимости от качества и под-

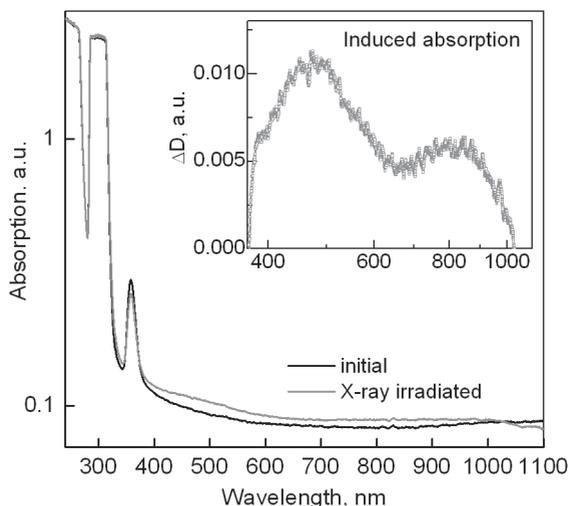


Рис.7 Радиационно-наведенное поглощение в кристалле NaI:Tl, содержащем анионные примеси. 300 К [14].

готовки (обезвоживания) исходной соли, методов выращивания и последующей обработки (шлифовки, полировки, упаковки). Суммарное содержание анионных радикалов может достигать значений $4 \cdot 10^{-3} - 2 \cdot 10^{-2}$ mol.%.

Известно, что практически полного устранения кислородсодержащих радикалов в кристаллах можно добиться лишь с помощью методов многократной перекристаллизации исходной соли, фильтрации расплава и использования в процессе роста реактивной атмосферы [20, 21].

Иодид цезия. Объемное и поверхностное загрязнение номинально чистых кристаллов CsI имеет особое значение. Это связано с их использованием в качестве прозрачных в ИК-области окон в мощных CO₂-лазерах [22], быстрых сцинтилляторов [24, 30], а также фотокатодов в газовых детекторах [23]. Преимущество неактивированного CsI по сравнению с другими известными материалами заключается в его сравнительно невысокой стоимости и возможности получения крупногабаритных кристаллов весом до нескольких

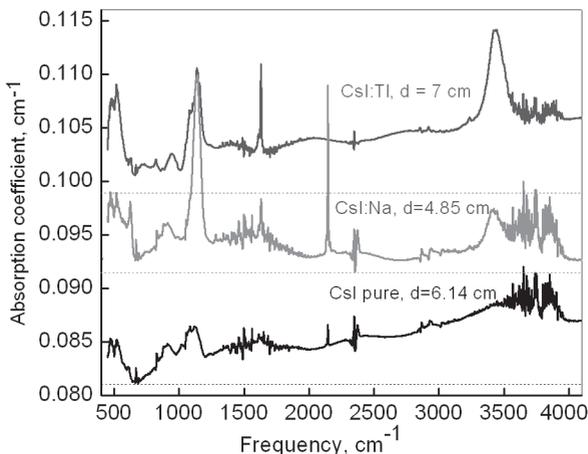


Рис. 8 Спектры ИК поглощения сцинтилляционных кристаллов CsI, CsI:Tl и CsI:Na.

сотен килограммов. Общим для всех случаев применения является требование к максимальной чистоте кристалла.

Постоянно растущий интерес к CsI как детектору для физики высоких энергий объясняется сочетанием таких его уникальных свойств, как высокое быстродействие, радиационная стойкость и эффективность регистрации продуктов ядерных реакций.

Кристаллы йодистого цезия при низких температурах (≤ 77 K) имеют интенсивное быстрое свечение в ультрафиолетовом диапазоне (полосы 290 и 330 нм), связанное с излучательной релаксацией синглетных и триплетных экситонов [24-28]. При температуре жидкого азота кристалл имеет исключительно высокие сцинтилляционные характеристики: световыход достигает значений 124 000 ph/MeV, а энергетическое разделение не превышает 4.3% [12, 13]. Это свидетельствует о перспективности применения материала как криогенного сцинтиллятора для поиска и исследования редких событий в физике элементарных частиц и астрофизике. В то же время, свойства кристаллов существенно зависят от их совершенства и примесного состава. В частности, наличие следов примесных катионов и анионов ведет к снижению эффективности и ухудше-

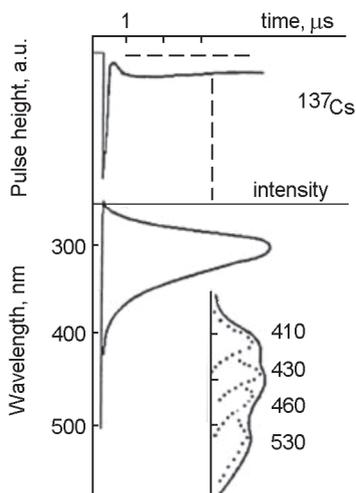


Рис. 9 Форма сцинтилляционного импульса и спектр люминесценции (быстрый и медленный компоненты) кристалла CsI (300K) и ^{137}Cs [28].

нию энергетического разрешения [27, 30]. Экситонное свечение, ответственное за высокий сцинтилляционный выход при низких температурах, исчезает при повышении температуры [29].

При комнатной температуре кристаллы CsI обладают свечением в ультрафиолетовой области (~ 307 нм) с характерным временем затухания ~ 10 нс и медленной (микросекундной) люминесценцией в диапазоне 410 – 530 нм (Рис. 9) [28]. Быстродействие позволяет регистрировать близкие по времени события, что необходимо для детектирования высокоэнергетического излучения. Важнейшим параметром сцинтиллятора CsIЮ как базового материала для калориметра Belle 2, является вклад основного быстрого свечения по сравнению с инерционным компонентом в видимом диапазоне. Размеры используемых кристаллов ($50 \times 50 \times 300$) мм³ и вес 5-6 кг. Присутствие нежелательной длительной люминесценции связано с наличием кислород- и водород- содержащих анионов.

Для оценки совершенства сцинтиллятора принято использовать отношение сигнала быстрого компонента (Fast), к суммарному

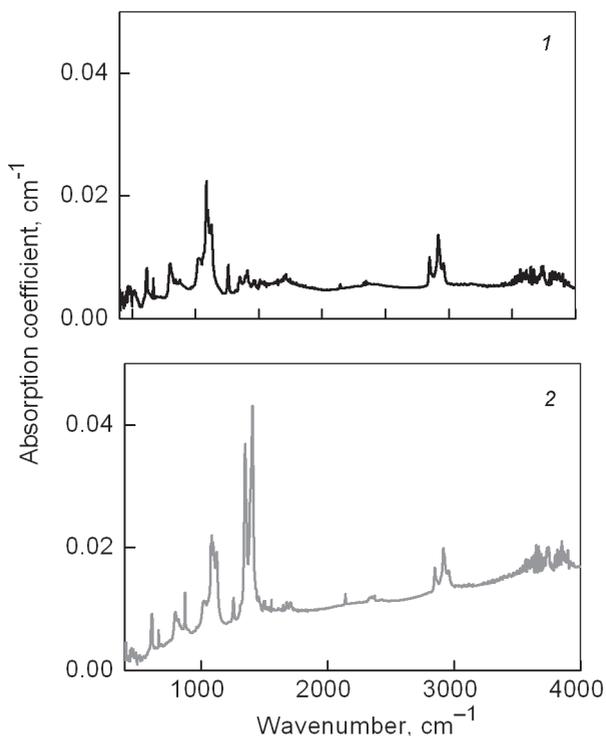


Рис. 10 Спектры ИК поглощения кристаллов CsI с соотношением Fast/Total 0.8 (1) и 0.6 (2).

высвечиванию (Total), то есть параметр F / T [27-29]. В идеальном случае величина F / T должна быть близкой к единице, однако на практике она варьируется в пределах 0.5 – 0.9 из-за присутствия посторонних примесей.

На Рис. 10 приведены спектры ИК поглощения характерные для кристаллов с оптимальным (0.8) и пониженным (0.6) соотношением F/T . Номенклатура и влияние нежелательных примесей разнообразны, но в целом все они связаны с разного рода кислородосодержащими анионами. Повышенное содержание анионных радикалов сопровождается ухудшением сцинтилляционных параметров.

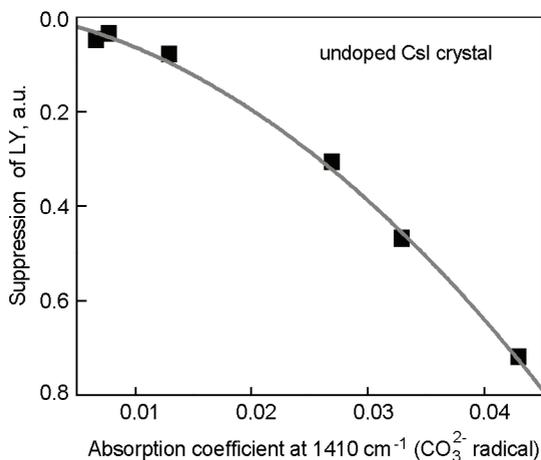


Рис. 11 Дegrаdация световыхода нелегированных кристаллов CsI в зависимости от концентрации карбонат-ионов при дозе γ -облучении 10^4 Рад [30].

Номенклатура и влияние нежелательных примесей разнообразны, но в целом все они связаны с разного рода кислородосодержащими анионами. Повышенное содержание анионных радикалов сопровождается ухудшением сцинтилляционных параметров.

Анализ спектрально-кинетических параметров сложной полосы люминесценции в длинноволновом диапазоне позволяет идентифицировать некоторые компоненты, входящие в её состав. Так, свечение, смещенное в красный диапазон (480 – 600 нм), возбуждающееся на краю фундаментального поглощения при 228 – 233 нм предположительно связано с присутствием ионов кислорода (O^{2-} или O_2^{2-}). В полосе с максимумом 242 нм возбуждается свечение в области 400-440 нм характерное для ионов Na^+ и CO_3^{2-} . Исходя из приведенных данных, можно заключить, что присутствие ионов CO_3^{2-} , O_2^{2-} , O^{2-} ведет к уменьшению соотношения Fast/Total в кристаллах CsI.

Одним из ключевых требований при использовании кристаллов CsI в переменных радиационных полях является **радиационная стойкость**. Ожидаемая нагрузка от электромагнитных ливней в

калориметра Belle 2 составляет 2-10 крад. Установлено, что примеси кислородсодержащих анионов не только снижают отношение F/T, но и ухудшают радиационную стойкость кристаллов CsI [30].

Для того, чтобы номинально чистые кристаллы CsI удовлетворяли требуемым сцинтилляционным параметрам, концентрация кислородсодержащих примесей в них, и, в частности, ионов OH^- и CO_3^{2-} , должна быть минимально низкой. Исследования показывают, что даже незначительное возрастание суммарного содержания примесей CO_3^{2-} , HCO_3^- , OH^- и CNO^- ведет не только к деградации сцинтилляционных параметров кристаллов CsI, но и к снижению радиационной стойкости. Так, как видно из Рис. 11, степень деградации световых выходов кристаллов CsI под действием γ -облучения зависит от концентрации карбонат-ионов.

CsI:Tl. Примеси кислородсодержащих анионов существенно ухудшают функциональные параметры не только чистых, но и легированных сцинтилляторов, что проявляется в снижении их эффективности и радиационной стойкости, а также увеличении уровня послесвечения [31, 32]. Спектры наведенного гамма-квантами и дневным светом поглощения в видимом и ИК диапазонах показаны на Рис. 12 и 13. Основной причиной наблюдаемого на практике окрашивания коммерческих кристаллов CsI:Tl является наличие в них радикалов CO_3^{2-} и OH^- , обуславливающих образование сложных активаторных центров окраски и соответствующих полос в видимой и ближней инфракрасной области спектра.

Снижение остаточного содержания анионных примесей является исключительно сложной технологической задачей, которая обычно решается глубокой очисткой и дегидратацией исходной соли, а также применением реактивной атмосферы в процессе выращивания.

Известно также, что одним из путей решения проблемы подавления нежелательного миллисекундного послесвечения для сцинтиллятора CsI (Tl) является введение европия. В настоящее время доминируют две модели, объясняющие причины положительного эффекта. Первая из них основана на идее вхождения ионов Eu^{2+}

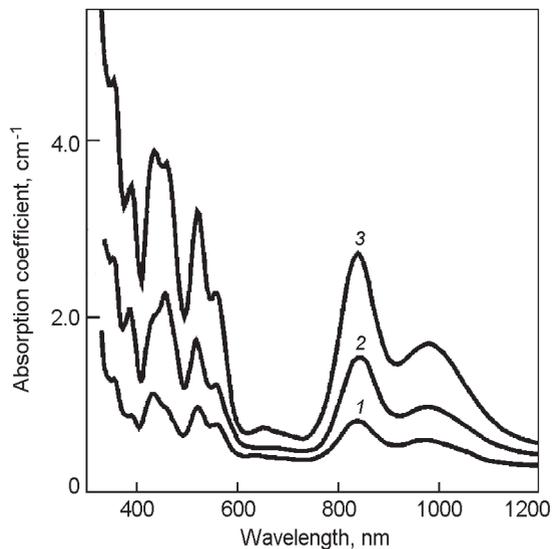


Рис. 12. Спектры наведенного гамма-квантами (^{60}Co ; 10^3 Gy) (1, 3) и дневным светом (2) поглощения кристаллов CsI:Tl. Концентрация (mol %): Tl — $9 \cdot 10^{-2}$; CO_3^{2-} — $7 \cdot 10^{-4}$; OH^- — $6 \cdot 10^{-3}$ [32].

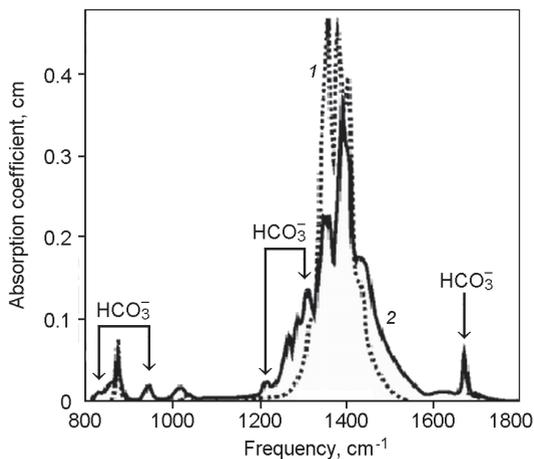


Рис. 13. Спектры ИК-поглощения кристаллов CsI:Tl до (1) и после облучения дневным светом. Концентрация (mol%): Tl — $9 \cdot 10^{-2}$; CO_3^{2-} — $3 \cdot 7 \cdot 10^{-4}$; OH^- — $6 \cdot 10^{-3}$ [32].

в кристаллическую решетку и создании дополнительных ловушек, которые снижают уровень послесвечения [33, 34].

Второе направление указывает на роль европия как скавангера – чистильщика расплава. В такой модели примесь европия связывает кислородсодержащие соединения, что ведет к образованию тугоплавких оксидов (типа EuO и Eu_2O_3), не входящих в твердый раствор. Этот процесс способствует очищению кристалла. Эффект во многом определяется взаимодействием ионов европия с кислородными примесями, ухудшающими оптические и сцинтилляционные свойства кристалла, и выведением их из расплава в процессе выращивания монокристаллов. Введение небольших ($< 1 \cdot 10^{-4}$ масс% Eu^{2+}) и строго контролируемых добавок иодида европия позволяет существенно улучшить ИК-прозрачность и сцинтилляционную эффективность кристаллов CsI [35, 36].

3.2 Влияние гидратации поверхности кристаллов на люминесценцию.

До сих пор речь шла о влиянии на свойства кристаллов анионных радикалов, входящих в объём. Однако известно, что на поверхности щелочногалоидных кристаллов образуется слой, обусловленный перекристаллизацией поверхности при её гидратации и дегидратации [37].

Изучение процесса гидролиза показывает, что на поверхности твердого раствора под действием атмосферного воздуха образуются свободные и связанные ионы гидроокиси и кристаллизационной воды. Их наличие фиксируется в первую очередь методом ИК-спектроскопии по характерным полосам 3740 и $3300\text{--}3600 \text{ cm}^{-1}$ (группа $\text{H} - \text{OH}^-$), а узкому пику 1610 cm^{-1} (H_2O^-). Модель взаимодействия между поверхностью CsI и молекулами воды приведена на Рис. 14.

Слой играет роль экранирующей корки, резко снижающей сцинтилляционную эффективность для квантов низких энергий [39–43]. Известно, что механическая обработка (шлифовка и полировка) всегда создает нарушенный приповерхностный слой. Кристаллы

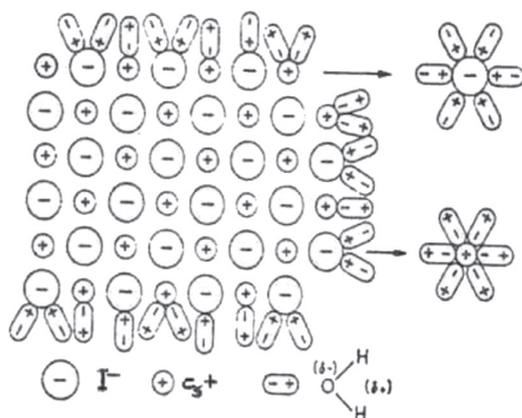


Рис. 14 Модель взаимодействия между поверхностью CsI и молекулами воды [38].

CsI не имеют плоскостей спайности, поэтому стандартный способ исследования поверхности в виде скола без дефектов, вызванных обработкой, неприемлем. Изучение влияния условий обработки поверхности на собственную люминесценцию кристаллов CsI показало, что стандартная полировка приводит к образованию нестабильных во времени центров свечения, сосредоточенных преимущественно в приповерхностном слое [43]. Процесс релаксации затрагивает не только вакансионную, но дислокационную подсистему приповерхностного слоя. Если свободная поверхность является стоком для вакансий, то это означает, что при релаксации создаются благоприятные условия для проникновения центров тушения в приповерхностный слой кристаллов. Типичным центром тушения для йодидов щелочных металлов является ион OH^- .

Следует отметить, что пластическая деформация на воздухе влияет на состав центров свечения в кристаллах CsI [44]. Так, в спектрах радиолуминесценции возникают перекрывающиеся полосы свечения в области 440 – 580 нм, интенсивность которых возрастает с ростом степени сжатия (Рис. 15). Появление дополнительных центров люминесценции может быть связано не только с ростом концентрации вакансий и вакансионных кластеров, но

и с облегчением диффузии продуктов гидролиза (гидроксила и воды) по границам зерен из приповерхностного слоя в объем кристалла. Число примесных дефектов в приповерхностном слое CsI удаётся минимизировать с помощью специально разработанных методов химической полировки [43].

Кристаллы NaI (в отличие от CsI) гигроскопичны, но при этом обладают совершенной спайностью, поэтому исследования влияния поверхности могут быть проведены на свежих сколах. Для монокристаллических сцинтилляторов NaI:Tl характерно заметное, до 20%, снижение светового выхода приповерхностных слоев. Зависимость удельного выхода

(L/E) от энергии квантов для кристаллов NaI:Tl с зеркальным сколом и с полированной поверхностью представлена на Рис. 16. Причиной снижения свечения является обогащение поверхности продуктами гидролиза – водой и ионами OH^- [40, 41]. Образующийся неактивный «мертвый» слой может влиять на степень непропорциональности энергетического фотонного отклика сцинтилляторов. Вообще говоря, влияние поверхности важно учитывать при изучении фундаментальных ограничений светового выхода, разрешения и энергетической пропорциональности сцинтилляторов, и особенно гигроскопичных материалов.

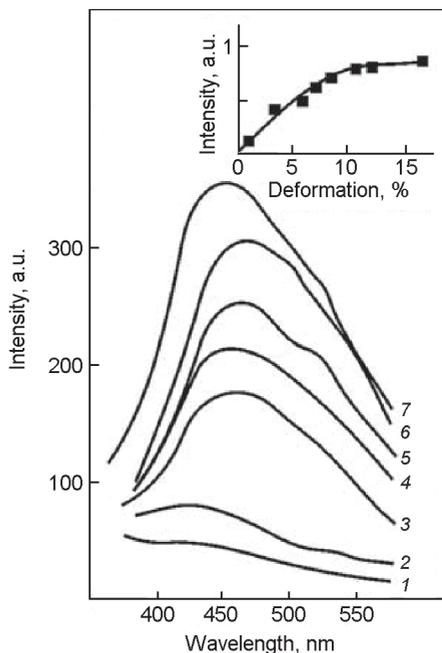


Рис. 15 Гамма-люминесценция исходных (1) и деформированных на воздухе кристаллов CsI при 297 К [44].

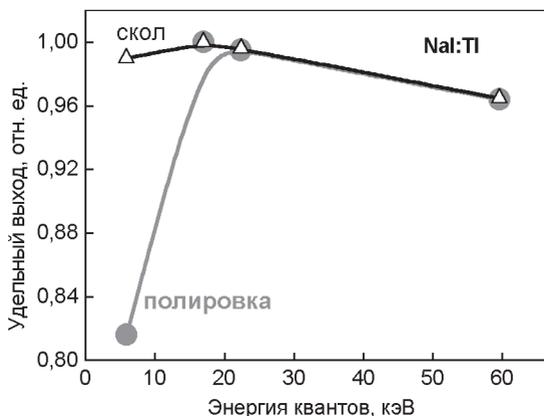


Рис. 16 Зависимость удельного выхода (L/E) от энергии квантов для кристаллов NaI:Tl с зеркальным сколом и с полированной поверхностью [41].

Следует отметить, что пластическая деформация применяется на практике при изготовлении из монокристаллических буль NaI:Tl диаметром 250 мм поликристаллических пластин большой площади (до 600 мм) и толщиной 6 – 10 мм для гамма-камер. При этом используется деформирование кристаллов сжатием при температурах $0,5 T_{пл} < T < T_{пл}$ [45]. Толщина нарушенного слоя в пластинах не превышает 100 – 300 мкм. Для исключения гидролиза, а также диффузии гидроксидов и воды по границам зерен, жестко соблюдаются режимы сухой атмосферы при деформации, обработке поверхности и герметизации. Получаемые плоские экраны не уступают исходным монокристаллам NaI:Tl по оптическим и сцинтилляционным параметрам.

3.3 Гидролиз пленок и колончатых структур щелочных галогенидов.

Переходя к рассмотрению порошковых и пленочных детекторов, прежде всего надо отметить, что в них из-за высоко развитой поверхности гидролиз происходит более интенсивно, чем в монокристаллах. В пленочных сцинтилляционных детекторах на основе чистых и легированных галогенидов щелочных металлов имеет место

диффузия воды по границам зерен, что должно сказываться на их оптических параметрах. Это касается в первую очередь напыленных в вакууме пленок CsI, которые благодаря высокой квантовой эффективности применяются в качестве фотокатодов для детектирования вакуумного ультрафиолетового излучения (ВУФ). Схема диффузии воды по границам зерен в пленке показана на Рис. 17.

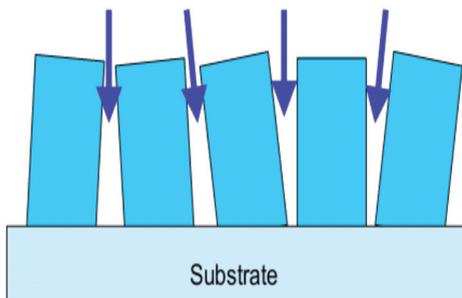


Рис. 17 Схема проникновения воды по границам зерен в пленке CsI [38].

Поверхность пленки деградирует на воздухе и её прозрачность существенно ухудшается в результате образования и диффузии химических дефектов. В качестве примера на Рис. 18 приведены спектры оптического пропускания пленки CsI до и после хранения 24 часа во влажной атмосфере [38].

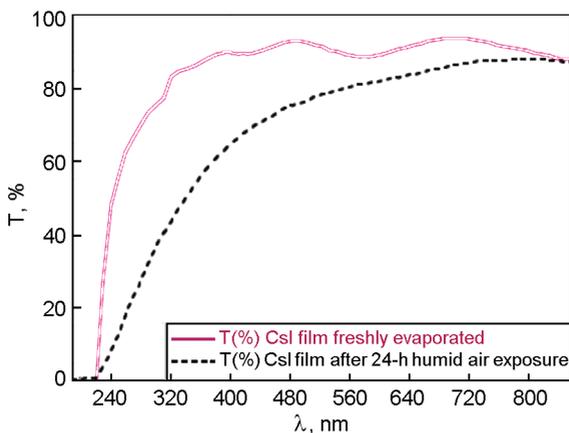


Рис. 18 Спектры пропускания пленки CsI до и после хранения 24 часа на воздухе [38].

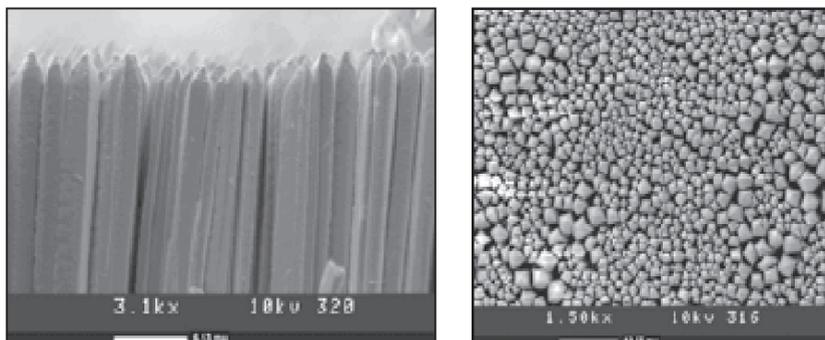


Рис.19 Электронно-микроскопическое изображение толстой (200 μm) колончатой пленки CsI(Tl) [46].

Структурированные (колончатые) пленки галогенидов щелочных металлов, активированных таллием и европием, обладают высоким пространственным разрешением, необходимым для визуализации изображения в медицине и технике [46-49].

CsI:Tl. Электронно-микроскопическое изображение колончатой пленки CsI:Tl, представлено на Рис. 19 [46]. Исследования показали, что спектрально-кинетические люминесцентные параметры пленок и монокристаллов CsI:Tl практически не отличаются, однако, в пленках усиливается нежелательный вклад фосфоресценции, т.е. запасаения энергии, что обусловлено увеличением миграционных потерь, связанных с кислородными примесями [48, 49]. Отмечено, что сцинтилляционная эффективность экранов, изготовленных из колончатых пленок, при контакте с окружающей атмосферой снижается, несмотря на то, что гигроскопичность CsI:Tl не высока. Поэтому для сохранения высокой эффективности и пространственного разрешения структурированных экранов применяется их тщательная герметизация.

CsBr:Eu и CsI:Eu. Излучательная рекомбинация электронных возбуждений наиболее эффективна в легированных европием щелочноземельных иодидов (см. Таблица 1), однако, детальные данные для них ограничены, поэтому полезными могут быть ре-

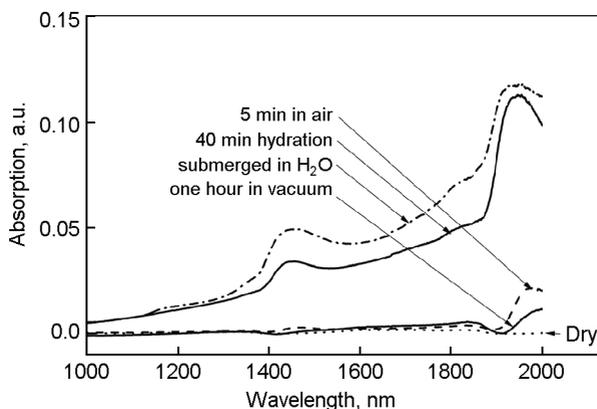


Рис. 20. Спектры поглощения пленок CsBr:Eu^{2+} , подвергнутых гидролизу. 300 К [51].

зультаты, полученные для Eu -содержащих щелочных галогенидов. С этой точки зрения, в частности, представляет интерес сравнение свойств колончатых пленок и монокристаллов.

Структурированные слои CsBr:Eu применяются в медицинской компьютерной радиографии для получения цифрового изображения [50]. Для выяснения природы центров свечения были изучены чистые и легированные европием образцы пленок и монокристаллов с помощью разнообразных абсорбционных и люминесцентных методов [51]. На Рис. 20 представлено поглощение в ближнем ИК-диапазоне пленок CsBr:Eu^{2+} , подвергнутых гидролизу. Установлено появление характерных для молекул воды полос поглощения при 1440 и 1930 нм, которые свидетельствуют о том, что пребывание во влажной атмосфере приводит к их вхождению в твердый раствор. Свободные молекулы воды могут быть частично устранены вакуумной откачкой, тогда как сильно связанные молекулы образуют активаторные центры свечения типа $(\text{Eu}^{2+} - \text{H}_2\text{O}^- - \nu_c^-)$. При этом радиационная чувствительность и, соответственно, интенсивность свечения CsBr:Eu многократно усиливается. Примечательно, что в гидролизованных пленках чистого бромида цезия присутствие молекул воды не выявлено.

Детальное изучение структуры центров люминесценции в кристаллах и колончатых пленках CsBr:Eu было проведено также с использованием оптической спектроскопии и методов ЭПР и ДЯМР [52]. Анализ полученных результатов подтвердил, что в состав доминирующих центров свечения входят ионы Eu^{2+} и радикалы H_2O^- (или OH^-). На этом основании была предложена модель такого рода комплексов, включающих Eu^{2+} , $\text{H}_2\text{O}^-/\text{OH}^-$ и катионные вакансии (Рис. 21).

CsI:Eu. Изучение свойств структурированных пленок CsI:Eu [53] и сопоставление полученных данных с результатами для CsBr:Eu [52] показывает, что их спектрально-кинетические параметры люминесценции подобны, что говорит о возможной общности структуры активаторных центров. В спектрах ИК-пропускания колончатых структур CsI:Eu отчетливо проявляются пики, соответствующие колебаниям кристаллизационной воды и гидроокиси (Рис. 22). По-видимому, в игольчатых пленках CsI:Eu (как и в CsBr:Eu) радикалы $\text{H}_2\text{O}^-/\text{OH}^-$ входят в состав активаторных центров свечения.

Анализ результатов, полученных для чистых и легированных Европием монокристаллов CsI, показал, что введение в слабо гигроскопичную матрицу CsI чрезвычайно гигроскопичной добавки EuI_2 вызывает появление примесных анионов. Так, в спектрах ИК-поглощения CsI:Eu интенсивность пиков, соответствующих ионам CO_3^{2-} , HCO_3^- , H_2O^- , OH^- и CH_3^- , многократно увеличена (Рис. 23) [54].

Люминесцентные характеристики монокристаллов и структурированных пленок CsI:Eu подобны и на основании полученных

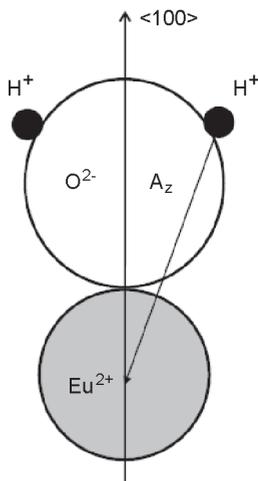


Рис. 21 Модель активаторного центра свечения в колончатой пленке CsBr:Eu [52].

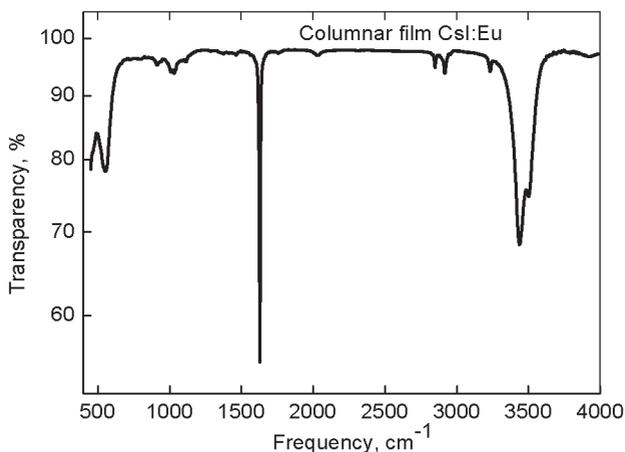


Рис. 22 Спектр ИК-пропускания колончатой пленки CsI:Eu [53].

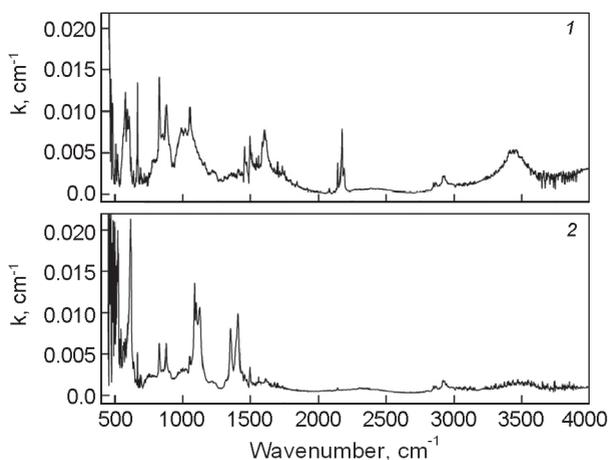


Рис. 23 Спектры ИК-поглощения кристаллов CsI:Eu (1) и CsI (2) [54].

данных можно полагать, что их свечение обусловлено наличием комплексов, в состав которых входят ионы Eu^{2+} и $\text{H}_2\text{O}^-/\text{OH}^-$.

NaI:Eu. При рассмотрении роли кислородных соединений в создании центров свечения в Eu-содержащих щелочных галогенидах, следует обратить внимание на кристаллы NaI:Eu. Харак-

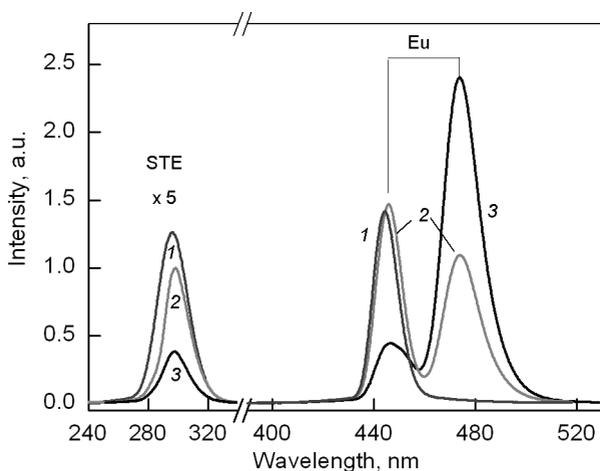


Рис. 24 Спектры люминесценции кристаллов NaI:Eu, содержащих 0.03(1); 0.1(2) и 0.5 (2) % Eu^{2+} . $E_{\text{exc}} = 15$ эВ. 10 К [56].

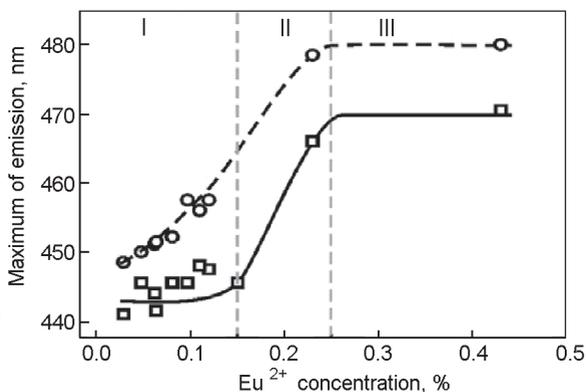


Рис. 25 Зависимость пика активаторной люминесценции от содержания европия в кристаллах NaI:Eu при возбуждениях 340 нм (сплошная кривая) и гамма (пунктир). 297 К [55].

терная люминесценция центров, играющих определяющую роль в сцинтилляционном процессе, проявляется в виде узкой полосы с максимумом 474 нм Рис. 24 и 25 [55, 56]. С ростом концентрации

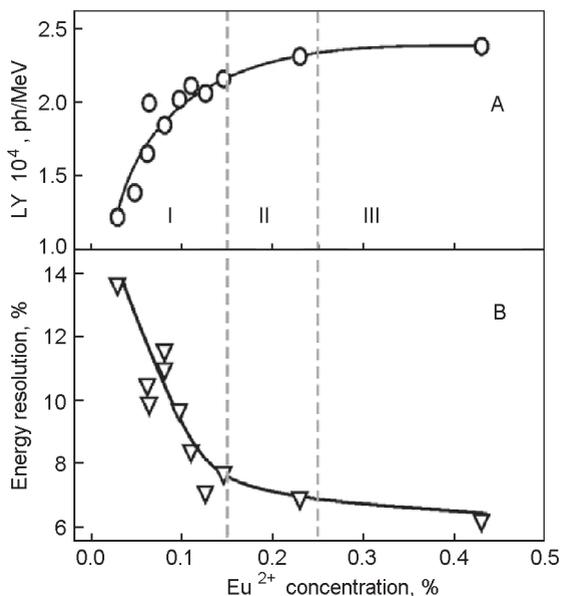


Рис. 26 Зависимость световыхода (А) и энергетического разрешения (В) кристаллов NaI:Eu от концентрации европия. RC 12 мкс, 662 keV, ¹³⁷Cs

активатора происходит увеличение световыхода и улучшение энергетического разрешения (Рис. 26). При этом в ИК-спектрах усиливаются пики, соответствующие поглощению ионов воды и гидроксила. Аналогично CsI:Eu и CsBr:Eu, свечение NaI:Eu может быть обусловлено комплексами, включающими ионы Eu^{2+} , $\text{H}_2\text{O}^-/\text{OH}^-$ и вакансии.

Приведенные данные показывают, что структура центров люминесценции в NaI:Eu определяется гигроскопичностью базовой матрицы и активирующей добавки. Сцинтилляционная пригодность кристаллов NaI:Eu связана с активаторными центрами свечения, в состав которых входит вода, гидроксил и катионные вакансии [56].

В целом отметим, что представленный анализ показывает, что кислородсодержащие примеси в щелочных галогенидах создают не только нежелательные ловушки носителей заряда, но и активные центры излучательной рекомбинации (в частности, в матрицах, легированных европием).

5 Сцинтилляторы на базе щелочноземельных иодидов.

Эффективные сцинтилляторы на основе активированных европием щелочноземельных иодидов обладают высокой гигроскопичностью (см. Таблица 1). Спектротрические свойства этих кристаллов в последние годы достаточно активно изучаются, однако данные об основных физико-химических свойствах, механизме сцинтилляционного процесса, и структуре центров свечения пока ограничены. Это связано с отсутствием системных спектрально-кинетических люминесцентных исследований в широком температурном и энергетическом диапазонах. Кроме того, нет достоверных значений энергии межзонных и экситонных переходов. Недостаток информации во многом определяется высокой гигроскопической способностью кристаллов, что делает проведение даже элементарных спектральных измерений достаточно проблематичной задачей. Наиболее полные данные на сегодняшний день есть лишь для кристаллов $\text{SrI}_2:\text{Eu}$, поэтому в данном обзоре мы ограничимся представлением имеющихся для них результатов.

В последнее время сцинтиллятор на основе $\text{SrI}_2:\text{Eu}$ привлекает к себе особое внимание в связи с достигнутыми выдающимися сцинтилляционными свойствами. Высокий световыход и энергетическое разрешение в сочетании с исключительно высокой линейностью амплитудных характеристик в широком энергетическом диапазоне делает его перспективным сцинтилляционным материалом.

Кристаллы SrI_2 имеют орторомбическую симметрию с пространственной группой $Pbca$. Величина ионного радиуса европия незначительно меньше ($R = 1.1696 \text{ \AA}$ для моноклинной сингонии и $R = 1.1107 \text{ \AA}$ для ромбической сингонии), чем ионов стронция

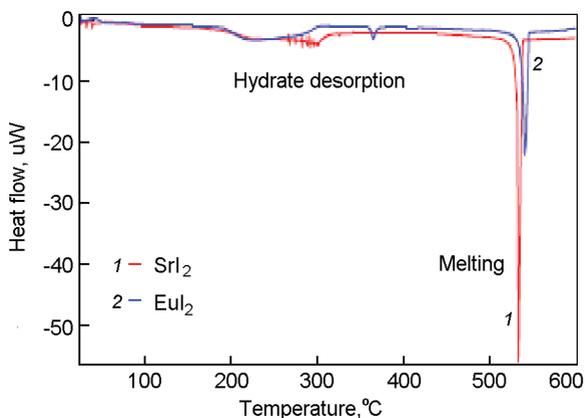


Рис. 27 Температурные зависимости десорбции гидратов в SrI_2 и EuI_2 .

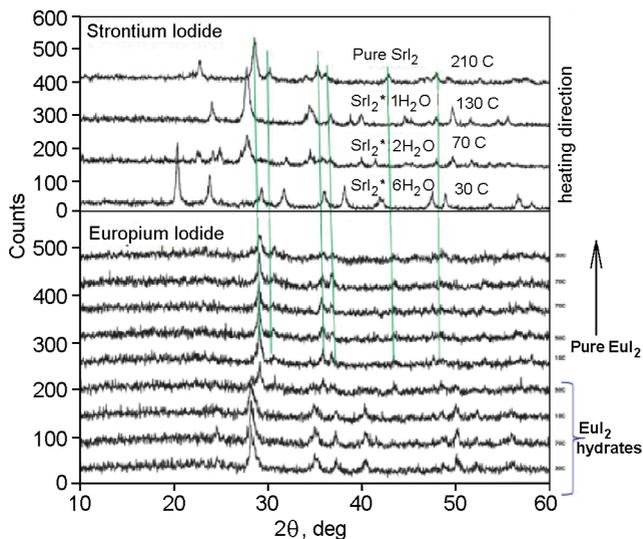


Рис. 28 Спектры рентгеновской дифракции при дегидратации SrI_2 и EuI_2 . [3].

($R = 1.2434 \text{ \AA}$). Ион Eu^{2+} изовалентно замещает Sr^{2+} , расположенный в 8 эквивалентных позициях элементарной ячейки кристалла.

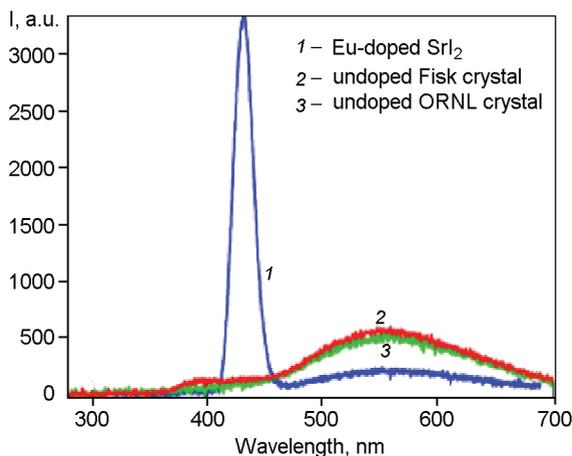


Рис. 29 Радиолюминесценция кристаллов SrI₂: 3% Eu и SrI₂ при 295 К [59].

Из-за высокой гигроскопичности особую роль при получении монокристаллов играет обезвоживание исходной соли. Температурные зависимости десорбции гидратов в SrI₂ и EuI₂ и спектры рентгеновской дифракции, соответствующие дегидратации, представлены на Рис. 27 и 28 [3].

Ширина запрещенной зоны SrI₂ составляет ≈ 5.5 эВ при 300 К и ≈ 5.85 эВ при 10 К [58]. Спектры радиолюминесценции кристаллов SrI₂:Eu и SrI₂ представлены на Рис. 29. Свечение SrI₂:Eu характеризуется полосой с максимумом 435 нм и плечом в области 520-570 нм при 295 К, что позволяет работать в сочетании с современными «синими» фотодиодами. Доминирующая полоса 435 нм с моноэкспоненциальной кинетикой затухания ($\tau=1.2$ мс) соответствует интерконфигурационным излучательным $d \rightarrow f$ переходам в ионах Eu²⁺. Линейчатое $f \rightarrow f$ свечение в красном диапазоне, характерное для ионов Eu³⁺, не наблюдается, что свидетельствует об отсутствии трехзарядных ионов европия в твердом растворе.

Следует отметить, что в спектрах фото- и радиолюминесценции номинально чистых кристаллов SrI₂ доминирует широкая сложная

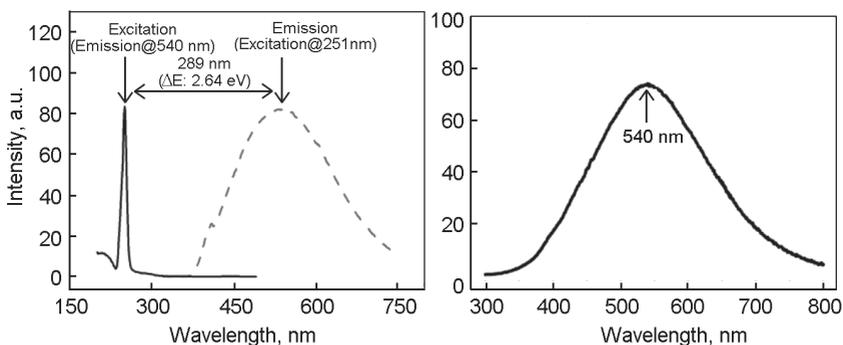


Рис. 30 Нормированные спектры возбуждения и фотолюминесценции (слева) и радиолюминесценции (справа) кристалла SrI_2 . 300 К [60].

полоса в диапазоне 540-575 нм Рис. 29 [59, 60]. Полоса возбуждения «зеленого» свечения лежит на спаде фундаментального поглощения (4.94 эВ) (Рис. 30). Природа наблюдаемого излучения пока не выяснена, но предполагается, что она может быть либо собственной [60] либо связанной с кислородом или другими продуктами гидролиза [59]. Последнее предположение подтверждается тем, что интенсивность полосы заметно возрастает при выдерживании кристалла в атмосфере со следами влаги [61]. Кроме того следует учесть тот факт, что, несмотря на тщательное обезвоживание исходного сырья и использование контролируемой атмосферы при выращивании, в полученных кристаллах практически не удается избежать присутствия продуктов гидролиза. Об этом свидетельствует наличие в спектрах ИК-поглощения полос, характерного для ионов H_2O^- узкого пика 1591см^{-1} и интенсивных пиков 584, 3412 и 3453см^{-1} предположительно связанных с ионами гидроксидов, локализованными вблизи стронция. (Рис. 31). Как показали последние исследования, специальные технологии дегидратации исходного сырья и многократной перекристаллизации позволяют снизить концентрацию кислородсодержащих примесей в кристаллах $\text{SrI}_2:\text{Eu}$ [62].

Исходя из полученных данных, природу сложной полосы свечения в области 540 – 575 нм можно предположительно связать с

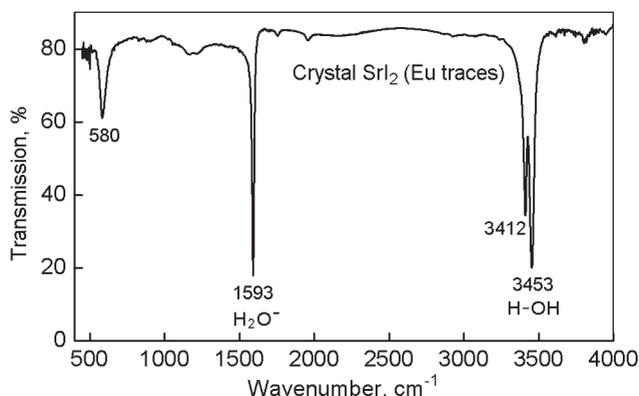


Рис. 31 Спектр пропускания кристалла SrI_2 в ИК-диапазоне [62].

наличием продуктов, появляющихся в кристалле в результате гидролиза. Это могут быть центры, связанные с кислородом (O_2^{2-} , O^{2-}), окси-йодидом (SrOI) и гидроксидом $\text{Sr}(\text{OH})_2$ и кристаллизационной водой H_2O^- . Заметим, что в иодидах натрия и цезия полосы люминесценции с аналогичными параметрами являются показателями наличия кислородсодержащих анионов [14, 36].

Таким образом, контроль присутствия примесных анионов в кристалле SrI_2 может осуществляться по наличию характерной люминесценции в области 540 – 575 нм и пиков в спектрах ИК поглощения, соответствующих ионам CO_3^{2-} , HCO_3^- , H_2O^- и OH^- . Снижение концентрации кислородсодержащих примесей позволяет существенно улучшить сцинтилляционные характеристики кристалла $\text{SrI}_2:\text{Eu}$ [62].

Для снижения уровня загрязнений перспективна дальнейшая оптимизация процессов обработки сырья, выращивания и обработки образцов.

Заклучение.

Настоящий обзор не претендует на полноту описания всех явлений, имеющих место при непреднамеренном загрязнении

галоидных сцинтилляторов молекулярными анионами. Известно множество физических и химических способов контроля такого рода примесей в кристаллах, но здесь мы сконцентрировали внимание на данных, полученных при использовании лишь двух основных методов: абсорбционной спектроскопии и люминесценции. При этом следует иметь ввиду, что оптическое пропускание в диапазоне от УФ до ИК-области позволяет выявить и идентифицировать примеси лишь при сравнительно высоком их содержании ($\geq 10^{-3}$ %). В то же время, спектрально-кинетический люминесцентный анализ на несколько порядков более чувствителен, но, к сожалению, не может претендовать на прямое выявление структуры центров свечения.

Методики получения и контроля коммерческих детекторов на основе чистых и активированных таллием кристаллов NaI и CsI в настоящее время надежно разработаны. Анализ абсорбционных и люминесцентных данных для традиционных сцинтилляторов NaI, NaI:Tl, CsI, CsI:Tl, и CsI:Na показывает, что в случаях нарушения условий выращивания происходит гидролиз, приводящий к появлению в объёме кристаллов анионных радикалов CO_3^{2-} , HCO_3^- , SO_4^{2-} , CNO^- , OH^- и H_2O^- . Установлено, что даже следовое содержание молекулярных анионов ($\sim 10^{-3}$ %) оказывает существенное влияние на эффективность детектирования и радиационную стойкость. При этом степень ухудшения сцинтилляционных характеристик зависит от содержания и состава анионных радикалов в объёме кристалла, а также от гидратация его поверхности.

В тех случаях, когда в качестве активатора и/или со-допирующей добавки используется европий (NaI:Eu и NaI:Tl, Eu, CsI:Eu и CsI:Tl, Eu) совершенство кристалла и структура центров свечения определяется гигроскопичностью не только матрицы, но и добавки EuI_2 . Как правило, европий в следовых содержаниях ($\sim 10^{-4}$ %) играет роль скавангера, т.е. связывает и выводит из расплава кислород [35, 36.]. Этот эффект используется для получения кристаллов CsI:Tl с пониженным послесвечением. В то же время при концентрациях выше 0.1% Eu такие кристаллы, как NaI:Eu, NaI:Tl, Eu и CsI:Eu становятся сцинтилляторами. Предполагается, что в таких

детекторах активными центрами свечения являются комплексы, включающие ионы Eu^{2+} , $\text{OH}^- / \text{H}_2\text{O}^-$ и вакансию ν_c^- . Заметим, что в сцинтилляторах на основе гигроскопичных щёлочноземельных иодидов (SrI_2 , CaI_2 , BaI_2 , CsBa_2I_5 , BaBrI и др.) используется высокая концентрация европия (1–10%), поэтому возрастает вероятность образования комплексов, содержащих кислородные соединения.

Оценки показали, что щёлочноземельные галогениды обладают лучшими условиями для реализации излучательной рекомбинации электронных возбуждений [3.]. Поэтому и экспериментальные измерения сцинтилляционной эффективности дают результаты, близкие к теоретическим оценкам максимально возможного выхода и энергетического разрешения. Это справедливо для достаточно широкого круга как бинарных, так и смешанных ШЗ иодидов, бромидов и даже хлоридов. К сожалению, при достаточно полных спектрометрических сцинтилляционных данных люминесцентные свойства этих кристаллов изучены пока недостаточно.

Приведенные данные могут служить основой для выявления ключевых аспектов влияния кислород- и водород содержащих примесей на свойства эффективных сцинтилляторов, характерной чертой которых является высокая гигроскопичность.

Опираясь на имеющийся опыт в выращивании крупногабаритных кристаллов на основе NaI и CsI , можно заключить, что совершенствование сцинтилляторов на основе щёлочноземельных иодидов может быть достигнуто путем дегидратации исходной соли, многократной перекристаллизации расплава, выращивания в реактивной атмосфере, а также тщательной герметизации полученных кристаллов.

Литература

1. R. Hofstadter, E.W. O'Dell, C.T. Schmidt, Rev. Sci. Instrum, 35 (1964) 246-247.
2. R. Hofstadter, Europium activated strontium iodide scintillator. U.S. Patent No. 3,373,279. 1968.

3. N.J. Cherepy, S.A. Payne, S.J. Asztalos, et al., IEEE TNS 56 (2009) 873–880.
4. S.E. Derenzo Properties of Scintillators <http://scintillator.lbl.gov/>
5. A. Gektin, N. Shiran, A. Vasil'ev, A. Belsky, Development of high efficient scintillators generation. Theory and practice of scintillator production, in *Funct. mater. for scint. technique and biomedicine*, Kharkov: ISMA, 2012, p. 52-71 (in Russian)..
6. A. Gektin, Scintillators: crystals growth and performance, in *Bulk Crystal Growth*, ed. by P.Capper, WILEY, England , 2006, p. 357-386.
7. P. Lecoq, A. Annenkov, A. Gektin, M. Korzhik, C. Pedr ini, *Inorganic Scintillators for Detector Systems*, Springer, 2006, 287 p.
7. N.S. Kostenko, E.P. Mokhir, and R.Kh. Mustafina, *J. Appl. Spectroscopy*, 3 (1965) 573-575.
8. R.Kh. Mustafina and A.N. Panova, *J. Appl. Spectroscopy*, 6 (1967) 370-375.
9. L. P. Smolskaya and T. A. Kolesnikova, *Zhurn. Prikl. Spektroskopii* 38, N1 (1983) 150-154.
10. G. Gundiah, Z.Yan, G. Bizarri, et al. *J. Luminescence* 138 (2013) 143–149.
11. M. Zhuravleva, L. Stand, H. Wei et al., *NSS/ MIC Conf.*, Seoul, 2013, DOI:10.1109/NSSMIC.2013.6829669.
12. M. Moszynski, W. Czarnacki, M. Kapusta et al., *NIM A486* (2002) 13-17, *IEEE TNS* 50, 4 (2003).
13. M. Moszynski, W. Czarnacki, , Syntfeld-Kazuch et al. *IEEE TNS* 56 (2009) 1655.
14. N. Shiran, I. Boiaryntseva, A. Gektin et al. *Materials Research Bulletin* 59 (2014) 13– 17.
15. G.P. Baldacchini, U.M. Gallerano, Grassano and F. Luty, *Phys. Rev. B* 27 (1983) 5039-5045.
16. D. Bauerle and B. Fritz, *Phys. Stat. Sol.* 24 (1967) 207-215.
17. Л. П. Смольская, *Изв. АН СССР сер. физ.* 50, 3 (1986) 547-550.
18. K. Kudin, A. Kolesnikov, B. Zaslavsky et al., *Funct. Materials*, 18 (2011) 254-258.
19. К. А. Кудин, А. В. Шкоропатенко, А. Ю. Волошко et al., *ФИП*, 9, 3 (2011) 256-261.
20. I. Hud, I. Garapyn, B. Pavlyk, *Rad. Eff. Def. Sol.* 158 (2003) 151–156.

21. I. Garapyn, I. Hud, B. Pavlyk, *Rad. Meas.* 38 (2004) 475–479.
22. E.L. Still, J.J. Martin, *Material Research Bulletin*, 12, N2 (1977) 127-132.
23. M.A. Nitti, A.Tinti, A.Valentini et al. *NIM, A* 610 (2009) 234 – 237.
24. A. Gektin, N. Shiran, A. Belsky, A. Vas iliev, *Nucl. Tracks Rad. Meas.*, 21 (1993) 11 – 13.
25. A. Gektin, N. Shiran, *Proceed. Int. Conf . SCINT'97, Shanghai, China* (1997) 115 - 120.
26. D. Pooley and W.A. Runciman, *J. Phys. C: Solid State Phys.* 3 (1970) 1815-1824.
27. Gektin AV, Shiran NV, Charkina TA et al. *Heavy Scintillators for Scientific and Industr. Appl. Frontieres, France* (1992) pp. 493–498.
28. N. Shiran, T. Charkina, S. Vasetsky et al., *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* 21, 1 (1993) 107-108.
29. A. Gektin, S. Gridin, S. Vasyukov et al., *Phys. Stat. Sol. B*, 1–6 (2014) / DOI 10.1002/pssb.201451399.
30. А.В. Гектин, В. Н. Жилич, З.А. Крумштейн и др., сб . «Тенденции развития сцинтилляционной техники » (ред. А.В. Гектин) – Харьков: «ИСМА», 2013. с.16–29.
31. L.N. Trefilova, B.V. Grinyov, V. Alekseev et al. *Rad. Meas.* 42 (2007) 839 – 842.
32. L.N. Trefilova, A.M. Kudin, L.V. Kovaleva и др., *Rad. Meas.* 33 (2001) 687–692.
33. C. Brecher, A. Lempicki, S.R. Miller et al. *NIM, A* 558, N2 (2006) 450 - 457.
34. L.A.Kappers, R.H.Bartram, D.S.Hamilton et al., *Rad. Meas.*, 42 (2007) 537 – 540.
35. A.M. Kudin, A. I. Mitichkin, T. A. Charkina et al. *J. Opt. Technol.*, 74, N9 (2007) 633 - 635.
36. N. Shiran, A. Gektin, S. Vasyukov et al., *Funct. Mater*, 18, 4 (2011) 438-441.
37. А.Б. Александров, Э.Д. Алукер, И.А. Васильев и др. *Введение в радиационную физикохимию поверхности щелочногалоидных кристаллов* – Рига: Зинатне, 1989, 244 с.
38. B.K. Singh, M.A. Nitti, A. Valentini et al., *NIM A* 523 (2004) 323–333;

- A 581 (2007) 651 – 655.
39. L.A. Andryushenko, A.Yu. Boyarintsev, B.V. Grinyov et al., *Funct. Mater.* 13, 3 (2006) 534-537.
 40. K. Kudin, A. Kolesnikov, B. Zaslavsky et al. *Funct. Materials* 18, 2 (2011) 254–258.
 41. К.А. Кудин, А.В. Шкоропатенко, А.Ю. Волошко и др., *PSE*, 9, № 3 (2011) 256-261.
 43. А.М. Кудин, Л.А. Андрищенко, В.Ю. Гресь и др., *Оптический журнал*, 77, 5 (2010) 7-10.
 44. А.В. Гектин, Н.В. Ширан, В.Я. Серебряный и др., *Опт. и Спектр.* 72, 5 (1992) 1061-1063.
 45. V.V. Shlyakhturov, A.V. Gektin, A.Yu. Boyarintsev, V.I. Taranyuk, *Funct. Mater.* 20 (2013) 434-437.
 46. S.C. Thacker, B. Singh, V. Gaysinskiy et al. *NIM A* 604 (2009) 89–92.
 47. A. Fedorov, A. Gektin, A. Lebedynskiy, P. Mateychenko et al. *Rad. Meas.*, 56 (2013) 163-166.
 48. A.N. Belsky, N. Garnier, C. Dujardin et al. *Electrochem Soc. Proceed.* 98- 24 (1998) 195 – 200.
 49. V. Babin, A. Krasnikov, H. Wiczorek et al. *NIM A* 486 (2002) 486–489.
 50. P. Leblans, D. Vandenbroucke, P. Willems, *Review.* 4 (2011) 1034-1086.
 51. G.A. Appleby, J. Zimmermann, S. Hesse et al., *J. Appl. Phys.* 105, (2009) 073511; 109 (2011) 073510.
 52. H. Vrielinck, F. Loncke, J.-P. Tahon et al. *Phys. Rev. B* 83, (2011) 054102; *B* 85, (2012) 144119.
 53. A.M. Lebedynskiy, N.V. Shiran, A.V. Gektin et al., *J. Appl. Spectroscopy.* 79, 4, (2012) 583-588.
 54. A. Gektin, N. Shiran, S. Vasyukov et al. *Optical Materials*, 35, 12 (2013) 2613-2617.
 55. N. Shiran, A. Gektin, Y. Boyarintseva et al. *Optical Materials* 32 (2010) 1345–1348.
 56. N. Shiran, A. Gektin, Ia. Boiaryntseva et al. , *J. Lumin*, 2014 in press.
 57. N.V. Shiran, A.V. Gektin, Y. Boyarintseva et al., *IEEE TNS*, 57, 3 (2010) 1233-1235.

58. V. Pankratov, A. I. Popov, L. Shirmane et al. *Rad. Meas.* 56 (2013) 13-17.
59. B.W. Sturm, N.J. Cherepy et al. *IEEE NSS Conf. Record*, N1-4, 2011.
60. Ju. Chen, Sh. Wang, Y. Du, L. Chen, *J. Alloys and Compounds* 568 (2013) 49–54.
61. V.A. Pustovarov, I.N. Ogorodnikov, Goloshumova et al., *Opt. Mater.* 34 (2012) 926-930.
62. Е. Галенин, *Инженерия гигроскопичных сцинтилляторов с высоким световым выходом, ИСМАРТ-2014 Минск, Беларусь.*

ЭФФЕКТЫ ПОВРЕЖДЕНИЯ НЕОРГАНИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ В УСЛОВИЯХ ЭКСПЕРИМЕНТОВ НА КОЛЛАЙДЕРАХ

М. Коржик

*Научно-исследовательский институт ядерных проблем
Белорусского государственного университета*

1 Введение.

Недавно был опубликован достаточно подробный обзор [1] по технике эксперимента в современной физике частиц и высоких энергий. Представив подробный анализ современных методов исследований, авторы оставили за пределами рассмотрения эффекты в детекторах, обусловленные радиационным фоном, образующимся при столкновении пучков или взаимодействии пучков и мишеней в ходе экспериментов. Уже первые годы эксплуатации экспериментальных установок на ЛНС показали настоятельную необходимость замены отдельных их частей, вследствие радиационного повреждения элементов и материалов детекторов.

Вместе с тем, для выполнения программы экспериментов на ЛНС потребуется увеличить светимость ускорителя – по 300 фбн^{-1} в год, начиная с 2020 г, с тем чтобы к 2030 году светимость достигла 3000 фбн^{-1} [2]. При такой светимости заряженные адроны с интегральным потоком свыше 10^{14} частиц/см² в год будут оказывать безусловное повреждение материалов. Аналогичные эффекты будут возникать в экспериментальных установках на FAIR (GSI, Darmstadt) [3], и широко обсуждаемом в настоящее время ILC[4].

Более того, с возрастанием активации экспериментальных установок остается все меньше возможностей для периодической замены и обслуживанию элементов детекторов, что неизбежно приводит к требованию более обоснованной оценки рисков потери работоспособности детекторов вследствие их радиационного повреждения. Такая оценка может быть сформирована на основе понимания механизмов повреждения ионизирующим излучением тех или иных компонентов детекторов.

Основной частью детектора ионизирующего излучения является среда, где происходит, собственно, взаимодействие с регистрируемым ионизирующим излучением. В калориметрических детекторах среда выносится как можно ближе к точке взаимодействия, что предопределяет как ее взаимодействие с регистрируемым излучением, так и нагруженность фоновым ионизирующим излучением. Компактность таких детекторов диктуется, с одной стороны, способом построения многослойных детекторных систем, использующих магниты, с другой стороны, доминирующим фактором все же является цена детектора, к сожалению, растущая нелинейно с возрастанием его объема.

В последние 40 лет применение кристаллических материалов в детекторах ионизирующего излучения стало решающим фактором в открытии радиационных свойств материалов и обусловило поступательное развитие методик и способов их измерений. За это время ученые-экспериментаторы прошли путь от небольших детекторов на основе NaI(Tl), CsI(Na), BaF₂, PbF₂ и Bi₄Ge₃O₁₂ до гигантского электромагнитного калориметра СМС коллаборации на LHC [2], состоящего из 11 м³ сцинтилляционных кристаллов PbWO₄. Высокое качество электромагнитного калориметра на основе CMSPWO и отличные рабочие характеристики позволили открыть новый бозон предсказанный Хиггсом [5].

Систематические исследования радиационной стойкости сцинтилляционных неорганических материалов начались параллельно с разработкой проектов коллайдеров. В середине 80-х гг. прошлого века в рамках программы Superconducting Super Collider (SSC, США)

проводились широкие поисковые работы по разработке новых сцинтилляционных материалов, а в ЦЕРНе ведется научно-исследовательская работа RD18 при участии экспертов из 15 стран. В результате были проведены достаточно подробные исследования широкого круга как активированных, так и самоактивированных люминесцентных неорганических соединений. Аналогичные работы проводились в КЕК (Япония) и в рамках программы UNK (Протвино, Россия). Повышенный интерес к радиационному повреждению кристаллических сцинтилляционных материалов снова появился с анонсированием проекта по модернизации ЛНС с целью существенного повышения его светимости [6]. В 2004–2012 гг. различными исследовательскими группами в ЦЕРНе был выполнен цикл работ, позволивший вскрыть основные закономерности в повреждении свойств кристаллических соединений протонами высоких энергий [7–17]. Прогрессу в исследованиях способствовала возможность облучения образцов кристаллов 24 ГэВ протонами на ускорителе PS с потоком до 10^9 частиц/см² с.

Вместе с тем, недавно было экспериментально установлено, что эффекты повреждения, аналогичные эффектам, измеренным после облучения протонами с энергией 24 ГэВ, могут быть получены при сравнительно низких энергиях протонов (150 МэВ) [18] и сопоставимых интегральных потоках. На первый взгляд, взаимодействие релятивистских частиц с кристаллической матрицей сильно отличается от подобного взаимодействия протонов низких энергий. Действительно, дебройлевская длина волны для протонов с энергией 24 ГэВ меньше 0,01 фм и протон взаимодействует с отдельным нуклоном в ядре. В результате упругого столкновения налетающая частица сообщает кинетическую энергию нуклону, и происходит каскад нуклон-нуклонных соударений. При низких энергиях падающих частиц (~ 100 МэВ) взаимодействие происходит одновременно со всеми нуклонами ядра [19]. Однако, известно [20], что сечение деления тяжелых ядер под действием протонов σ_f сильно зависит от энергии падающей частицы. Например, для ядра ^{208}Pb сечение деления быстро увеличивается от 10^{-7} до 0.1 бн при

энергиях падающих частиц от 20 до 90 МэВ и достигает 1 бн при 1 ГэВ. Плавное изменение зависимости σ_f от энергии в диапазоне энергий выше 100 МэВ позволяет экстраполировать кривую зависимости σ_f от энергии на диапазон до нескольких десятков ГэВ. Таким образом, при интегральных потоках одного порядка, эффект облучения протонами с энергией 150 МэВ будет аналогичным, но меньшим по величине, поскольку $\sigma_f(150 \text{ МэВ}) < \sigma_f(24 \text{ ГэВ})$. Обнаруженная идентичность эффектов повреждения при облучении протонами низких энергий существенно упрощает проведение дальнейших исследований по радиационной стойкости материалов.

Принимая участие в многочисленных дискуссиях по совершенствованию электромагнитных калориметров различных экспериментальных установок я, к своему удивлению, обнаружил присутствие схематичности в описании повреждения свойств кристаллических сцинтилляционных материалов ионизирующим излучением. По-видимому, такая ситуация возникла вследствие учета только основного требования, предъявляемого к эксплуатации электромагнитных калориметров – способности сохранять энергетическое разрешение на высоком уровне в течение срока их использования. Поскольку ухудшение энергетического разрешения напрямую связано с ухудшением светосбора в детекторных кристаллах, то традиционно повреждение рассматривается как повреждение их оптического пропускания, с этой точки зрения рассматриваются сцинтилляционные кристаллы, например, в недавно опубликованном обзоре [21]. Однако, взаимодействие детекторных кристаллов с ионизирующим излучением выливается в целый ряд эффектов, время жизни которых сопоставимо, либо много больше времени образования и распространения сцинтилляций в них.

Изменение оптического пропускания вследствие образования центров окраски под действием ионизирующего излучения составляет лишь небольшую долю эффектов, обусловленных повреждением и нарушением регулярности кристаллической структуры детекторных кристаллов.

К традиционно рассматриваемым метастабильным центрам окраски следует добавить короткоживущие центры окраски, а также эффекты взаимодействия детекторных материалов с радиоизотопами, генерируемыми в детекторах вследствие ядерных реакций. Сложение только этих эффектов в процессе эксплуатации может привести к неприемлемой деградации детекторов, которая выражается в уменьшении статистического члена и возрастании значения и доли константного члена в энергетическом разрешении, появлении нелинейности отклика детектора и существенном ухудшении временного разрешения как индивидуальных детекторных модулей, так и детектора в целом. Комбинация этих эффектов и формирует по существу границу радиационной нагрузки при эксплуатации кристаллических детекторных материалов в интенсивных полях ионизирующего излучения. Очевидно, такая граница есть индивидуальный параметр для каждого материала. Однако, поскольку свойства кристаллов систематизированы, не в последнюю очередь благодаря свойствам симметрии, их зависимость от атомного состава достаточно хорошо изучена и может быть учтена при его изменении, то полученные данные для отдельных кристаллических соединений могут быть экстраполированы на их классы, что позволяет выявить основные тенденции при развитии эффектов повреждения.

Например, результаты, полученные для кристалла Lu_2SiO_5 могут быть применимы и к его структурному аналогу Y_2SiO_5 , но с учетом существенной разницы в атомном номере первого катиона. Аналогично экстраполяция может быть использована для кристаллов перовскита YAlO_3 и LuAlO_3 , граната $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, оливина $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ и $\text{Bi}_4\text{Si}_3\text{O}_{12}$ и др., либо их твердых растворов. Таким образом, ограничения по применению в интенсивных полях ионизирующего излучения могут быть выяснены при анализе свойств лишь отдельных представителей кристаллических семейств. Такой подход является вполне обоснованным и с той точки зрения, что измерение образцов кристаллов после облучения высокоэнергетическими заряженными частицами может проводиться лишь на нескольких ускорителях в мире, более того, исследовательский цикл

непрерывно включает стадию остывания радиоактивных образцов до безопасного уровня, позволяющего манипуляции с ними. Образцы становятся доступными для измерений спустя месяцы, т.е. цикл исследования одного материала существенно растягивается во времени и, по-видимому, подобные исследования в обозримом будущем не превратятся в рутинные.

2. Эффекты радиационного повреждения.

Большинство синтетических кристаллов имеют только несколько типов дефектов, которые, по крайней мере, отчасти обусловлены флуктуациями на фронте кристаллизации в процессе роста кристалла и примесями в исходном материале. Эти дефекты можно разделить на три группы: внутренние точечные дефекты, примеси и линейные дефекты [22]. Первые два вида дефектов под действием ионизирующего излучения могут образовывать ловушки свободных носителей в кристалле. Заряженные частицы, даже такие легкие как электрон, создают дополнительные дефекты в кристаллах. Более тяжелые заряженные частицы, такие как адроны или фрагменты ядер теряют намного больше энергии и создают ливень смещенных ионов в кристалле. По этой причине повреждение кристаллов, вызванное заряженными частицами больших энергий, представляет собой более сложное явление, однако оно включает один и тот же набор эффектов, которые проявляются одновременно в любых кристаллах, при этом вклад каждого эффекта зависит от химического состава кристаллического соединения. Очевидно, повреждения кристалла, вызванные адронами высокой энергии, проходящими через кристалл, возникают вследствие совместного действия первичных частиц и фрагментов ядерных взаимодействий. Атомы отдачи, образованные первичными частицами и фрагментами образуют точечные вакансии (V), атомы в междоузлиях, дефекты Френкеля и каскады вторичных атомов отдачи вдоль своей траектории. Вторичные атомы отдачи также образуют вакансии, однако, когда их энергия достигает 4–6 кэВ,

концентрация вакансий и дефектов Френкеля в конце траектории становится настолько большой, что они образуют кластер дефектов [23]. В результате этого вдоль траектории образуется возмущенная структура и появляется сравнительно долгоживущее изменение макроскопических свойств кристалла.

Сравним характерное время образования дефектов и центров окраски в кристалле с временем возникновения фотонов под действием ионизирующего излучения.

При облучении γ - квантами ионизация приводит к образованию горячих носителей, термализация которых и захват дефектами структуры с образованием центров окраски происходят за характерное время 10^{-11} – 10^{-9} с [22].

Скорости вторичных ионов в каскаде, образованном в кристалле в результате взаимодействия с высокоэнергетическими заряженными частицами значительно меньше скорости света, однако длина их пробега в кристаллической среде также мала и не превышает нескольких микрон, поэтому время образования новых дефектов в среде сопоставимо с временем образования центров окраски, т. е. меньше 10^{-9} с.

Световые фотоны появляются в кристаллическом материале при взаимодействии с частицами ионизирующего излучения в виде излучения Черенкова и сцинтилляций. Излучение Черенкова возникает в среде вследствие ее поляризации при прохождении заряженных частиц. Характерное время возникновения таких фотонов соответствует времени прохождения частицей нескольких элементарных ячеек и лежит в фемтосекундном или даже более коротком диапазоне. Далее фотоны распространяются в кристаллической среде с конечной скоростью c/n , где c – скорость света, а n – показатель преломления среды. Таким образом, характерное время образования черенковских фотонов значительно меньше характерного времени дефектообразования, иными словами, дефекты и центры окраски в среде могут влиять только на распространение черенковского излучения в среде, но не на его образование.

Таблица 1. Стадии развития сцинтилляций

	Фаза	Характерное время, секунды
1	Выделение и преобразование энергии: начальная энергия высвобождается с образованием «горячих» электронов и дыр	$10^{-18} - 10^{-9}$
2	Термализация: неупругие процессы взаимодействия «горячих» носителей с матрицей	$10^{-16} - 10^{-12}$
3	Перенос к центрам люминесценции: захват термализованных носителей	$10^{-12} - 10^{-8}$
4	Эмиссия люминесценции: релаксация возбужденных центров люминесценции и эмиссия света сцинтилляций	$> 10^{-10}$

Появление сцинтилляции – многостадийный процесс. В отличие от черенковского излучения сцинтилляции происходят в результате цепи процессов, которые характеризуются разными постоянными времени. Развитие сцинтилляций описано в работах [25,26]. Четыре ключевые стадии процесса приведены в Таблице 1.

Первоначальное энерговыделение в среде происходит в широком временном диапазоне, но не может быть менее $2R/c$ ($R \sim 10^{-10} \text{ м}$ – порядок атомного радиуса) или превышать время пролета частицы или γ -кванта в сцинтилляторе, а в случае неорганических кристаллических соединений это время ограничивается несколькими наносекундами. Образование экситонных состояний и перенос их возбуждения к центрам люминесценции в общем случае имеет характерные постоянные времени в диапазоне до долей наносекунды. Этот процесс заканчивается релаксацией возбужденных центров люминесценции и соответствующим излучением света и характеризуется постоянными времени в широком временном диапазоне, в зависимости от излучательного времени возбужденного уровня.

Таким образом, хотя три начальные стадии образования центров окраски и развития сцинтилляции совпадают, наличие в сцинтилляции относительно длительной четвертой стадии делает механизм люминесценции зависимым от появления, либо наличия центров окраски в кристаллах. В отличие от черенковского излучения, как возникновение сцинтилляций, так и распространение их в веществе могут быть подвержены влиянию дефектов и центров окраски на их основе. Тот факт, что сцинтилляция есть люминесценция, в появление которой вовлечен перенос энергии электронных возбуждений (стадия 3 в Табл.1) указывает на возможность «удлинения» процесса сцинтилляции во времени в присутствии дефектов и центров окраски. Действительно, центры окраски могут не только тушить люминесценцию но и сенсбилизировать ее как за счет мультипольного взаимодействия, так и туннелирования, перераспределяя, тем самым, кинетику высвечивания люминесценции в пользу медленных и сверхмедленных компонент, амплитуда которых непропорциональна поглощенной энергии измеряемых частиц либо γ -квантов.

3. Простые дефекты и центры окраски в кристаллических материалах.

Синтетические кристаллы априори имеют дефекты структуры, и концентрация этих дефектов не может быть меньше термодинамического предела при данной температуре. В условиях термодинамического равновесия в кристалле всегда присутствует некоторая концентрация анионных и катионных вакансий и их кластеров. Наиболее близкая к идеальной кристаллическая структура получается в простых химических соединениях типа алмазов, оксидов (SiO_2), фторидов (CeF_3) и им подобных соединений. В случае двойных и более сложных систем, при выращивании кристалла из стехиометрического исходного материала с помощью различных методов (Чохральского или Бриджмана) в кристалл преимущественно испаряется из тигля какой-либо один компонент, что приводит к

созданию катионных V_c и анионных V_a вакансий в выращенном кристалле. Поэтому реальные концентрации дефектов могут быть значительно больше при комнатной температуре. В отдельных случаях отжиг кристалла при высокой температуре также может привести к росту концентрации вакансий. Например, вакуумный отжиг приводит к преимущественному образованию анионных вакансий вследствие испарения анионов с поверхности и проникновения вакансий внутрь кристалла. Отжиг в газах, например в смеси H_2 -Ar или чистом кислороде, позволяет уменьшить количество анионных вакансий благодаря диффузии атомов газа внутри кристаллов. Чрезмерное увеличение концентрации вакансий ведет к образованию кластеров из двух-, трех- и более вакансий. Как правило, незанятые узлы решетки не влияют на прозрачность кристалла, за исключением случая, когда разрешен переход с переносом заряда (ППЗ), при котором электроны валентной зоны переносятся в незаполненные дефекты. Как и ионизирующее излучение, ППЗ может создавать центры окраски и инициировать механизмы захвата заряда и накопления энергии в кристалле. Использование ППЗ – простой и надежный способ, позволяющий создавать и изучать центры окраски во многих неорганических соединениях без применения радиоактивных источников для облучения образцов[27].

В ионных кристаллах на основе галогеновых лигандов (F^- , Cl^- , Br^- , I^-), содержащих анионы и катионы, можно наблюдать 4 типа простых точечных дефектов: анионная вакансия V_a , катионная вакансия V_c , атомы в междоузлиях и дефекты Френкеля (анионы или катионы в междоузлиях вблизи вакансий). В галогидных кристаллах электроны, захваченные анионной вакансией, образуют электронные F-центры ($V_a + e^-$).

Кислород образует ковалентные кристаллы. Простейшие дефекты в оксидах такие же, как и в галогенидах. Однако в зависимости от энергетического уровня соответствующих электронных ловушек в запрещенной зоне, кислородные вакансии в оксидных соединениях захватывают один или два электрона, избыток ко-

торых имеется в зоне проводимости после облучения, и образуют $F^+(V_a + e^-)$ и $F(V_a + 2e^-)$ электронные центры, а катионные вакансии захватывают избыточные дыры в валентной зоне и образуют одно-, двухдырочные центры.

Примеси в кристалле также являются точечными дефектами структуры, но они гораздо более разнообразны по сравнению с внутренними точечными дефектами. Ионы примесей, с параметрами, близкими к некоторым параметрам ионов решетки, могут образовать твердые растворы, т.е., соединения, где они замещают ионы матрицы в определенных узлах регулярной кристаллической решетки. Это, в частности, имеет место при изовалентном замещении с ионным радиусом, близким к ионному радиусу некоторых ионов кристаллической решетки. В кристаллическую решетку могут включаться и гетеровалентные примеси, а их конечное зарядовое состояние можно регулировать. К сожалению, известные активизирующие ионы, такие как Ce, Pr, и Eu, используемые для создания сцинтилляторов, являются гетеровалентными и могут изменять свое валентное состояние под действием облучения вследствие ионизации или захвата свободных носителей.

При захвате электронов или дыр дефекты изменяют свое зарядовое состояние и во многих случаях оказываются в стабильном или метастабильном состоянии. Основное свойство многих перезаряженных дефектов – способность создавать полосы поглощения в ультрафиолетовом-инфракрасном диапазоне вследствие внутрицентровых переходов, ППЗ и фото-ионизации. Поэтому такие дефекты называют центрами окраски [28]. Естественно, вследствие метастабильных центров эффект наведенного поглощения является временным. Обычно такие центры распадаясь способствуют спонтанному восстановлению прозрачности кристалла, кинетика такого процесса определяется температурой [29].

4 Облучение γ -квантами.

Обычно исследование эффектов повреждения под действием γ -квантов проводится при использовании источников ^{60}Co (средняя энергия 1,2 МэВ) либо ^{137}Cs (0,662 МэВ), наиболее широко используемых и доступных в промышленности и научных исследованиях. При таких энергиях образованием дефектов за счет фотоядерных реакций следует пренебречь. В реальных экспериментальных установках γ -фон простирается до энергий в области ГэВ, поэтому фотоядерные реакции могут приводить к образованию новых дефектов в кристаллах при их длительной эксплуатации. В зависимости от энергии γ -квантов энергетическую зависимость полного сечения их поглощения различными ядрами принято разбивать на четыре области, в зависимости от доминирующего механизма поглощения γ -квантов [30].

Первая – область гигантского дипольного резонанса (ГР). Основной механизм поглощения γ -квантов в этой области связан с поглощением γ -кванта одним нуклоном, приводящим к возбуждению собственных дипольных колебаний протонов относительно нейтронов. В лёгких ядрах максимум ГР приходится на область энергий от 20 до 25 МэВ. С ростом атомного числа элемента максимум сдвигается в сторону меньших энергий. В тяжёлых ядрах он расположен в районе 13 МэВ. Процесс дипольных колебаний завершается вылетом нуклонов с определенной кинетической энергией. В случае вылета заряженных частиц происходит дефектообразование в кристалле по механизму, описанному выше.

Вторая область начинается на “хвосте” гигантского резонанса и простирается до порога рождения пионов. Однонуклонный механизм поглощения γ -квантов постепенно переходит в двухнуклонный, когда гамма кванты начинают поглощаться преимущественно нейтрон-протонной парой. При энергиях выше 100 МэВ основной вклад в полное сечение приходится на канал с вылетом двух быстрых нуклонов.

В третьей области энергий за порогом образования пионов и до 2 ГэВ длина волны γ -кванта становится порядка размеров нуклона, и взаимодей-

ствие происходит в основном с одним нуклоном. Когда энергия γ -кванта превышает 2 ГэВ (четвёртая область), энергетическая зависимость сечения становится гладкой функцией, слабо зависящей от энергии, то есть подобной функции для полного сечения взаимодействия адронов с ядрами. Существенное различие состоит в том, что сечение поглощения γ -квантов меньше адронного на постоянную величину, пропорциональную константе электромагнитного взаимодействия [31]. Таким образом, высокоэнергетические фотоны приводят к образованию новых дефектов в кристаллах с интенсивностью примерно в 100 раз меньшей, чем заряженные адроны, например протоны.

Вместе с тем, облучение с помощью традиционно используемых источников низкоэнергетических γ -квантов с энергией значительно меньшей энергии гигантского резонанса может приводить к образованию новых дефектов и соответственно увеличению концентрации центров окраски.

Такой эффект, во-первых, обнаруживается при высоких интенсивностях ионизирующего излучения. В работе [32] показано, как происходит образование дефектов и центров окраски на их основе в кристаллах вольфрамата свинца с различной начальной дефектностью. Кристаллы $PbWO_4$ с изоморфным и неизоморфным легированием облучались источником ^{60}Co . Измерялся коэффициент наведенного поглощения в кристаллах на $\lambda = 420$ нм. Для накопленных доз 10^4 – 10^8 рад мощность дозы облучения варьировалась в диапазоне 10^4 – 10^6 рад/ч. Кристаллы с небольшим числом вакансий вследствие легирования ионами La [33] характеризуются невысоким наведенным поглощением при мощности дозы облучения в пределах 10^5 рад/ч, а это значит, что в кристаллах с небольшим количеством перезаряжаемых центров, даже при сравнительно небольшой дозе облучения, происходит насыщение формирования центров окраски электронного и дырочного типов. С другой стороны, у кристаллов, легированных ионами Sb и Zr наблюдается постоянное увеличение вынужденного поглощения, что, по всей вероятности, происходит в результате значительной концентрации дефектов. При увеличении дозы облучения выше

10^5 рад/ч наблюдается дополнительное увеличение наведенного поглощения при $\lambda = 420$ нм, которое продолжает увеличиваться с ростом мощности дозы облучения. Данный эффект вызван сильной поляризацией кристаллической среды благодаря центрам окраски и свободным носителям при высокой мощности дозы. При высоких дозах облучения большинство дефектов преобразуются в центры окраски, и их электрическое поле вызывает сдвиг атомов. По этой причине образуются пары Френкеля. Отличительной особенностью дефектов Френкеля в вольфрамате свинца является полоса поглощения около 350 нм. При облучении дефектом Френкеля захватываются два электрона и они образуют глубокие электронные центры. Захват электронов приводит к преобразованию центра окраски и конверсии полосы 350 нм в полосу с максимумом при 410 нм. Подобные эффекты и агрегация дефектов наблюдались и в щелочно-галоидных кристаллах под действием гамма излучения с высокой мощностью дозы [34,35]. Агрегация такого рода дефектов может привести даже к образованию коллоидных частиц металла в кристалле [36,37].

Во-вторых, эффект роста концентрации дефектов наблюдается в случае облучения малыми дозами гамма-квантов низкой энергии в течение длительного времени. Например, кристаллы вольфрамата свинца содержат мелкие электронный центры, связанные с кислородными вакансиями. Было обнаружено, что их воздействие практически не влияет на радиационное повреждение пропускания при кратковременном облучении [38]. Это предположение было основано на том, что мелкие центры захвата создают также мелкие электронные центры, высвобождающие электроны в зону проводимости за очень короткое время при комнатной температуре и поэтому не вносят вклад в квазистационарное наведенное поглощение. Однако, облучение кристалла в постоянном режиме в течение длительного времени создает условия для диффузии нейтральных мелких электронных центров, что значительно увеличивает возможность их соединения в пары и образования более сложных дефектов. Пары имеют более глубокие уровни захвата,

чем одиночные вакансии, и могут создавать метастабильные центры окраски, увеличивая оптическое поглощение в видимом спектральном диапазоне под действием ионизирующего излучения. В кристалле вольфрамата свинца этот эффект обусловлен преобразованием одиночных кислородных вакансий V_o в дивакансии ($WO_3 - WO_3$). Появление центров окраски на основе дивакансий приводят к образованию широкой полосы наведенного поглощения в красной и ближней ИК областях спектра с максимумом около 670 – 700 нм [38], которая частично перекрывает полосу сцинтилляций. Это приводит к отсутствию динамического насыщения наведенного поглощения при низкой мощности дозы при долговременном облучении и к медленному, но устойчивому снижению количества света, регистрируемого фотодетекторами.

Образование кластеров происходит и за счет спонтанного переноса ионов кислорода к пустым узлам решетки, что приводит к миграции вакансий [39,40]. Некоторые вакансии рекомбинируют с кислородом на поверхности кристалла и макродефектов, однако большинство из них агрегируют в процессе миграции. В результате этого процесса появляются дивакансии. Могут также образовываться кластеры на основе трех и четырех вакансий, однако вероятность их образования мала. Спонтанный процесс агрегирования идет медленно, поскольку незаряженные вакансии имеют положительный некомпенсированный заряд и стремятся оттолкнуться друг от друга.

Процесс агрегирования значительно ускоряется, если, часть вакансий нейтрализована путем захвата носителей и если в кристалле создан градиент концентрации вакансий. Профиль дозы облучения в кристалле и неоднородное распределение вакансий в процессе роста кристалла создают градиент концентрации нейтральных и заряженных вакансий. В ходе этого процесса постепенно нарастает и концентрация глубоких электронных центров в кристалле с большими постоянными времени релаксации, что ведет к постоянному медленному уменьшению пропускания кристалла а, следовательно, светосбора.

Описанный процесс можно проанализировать с помощью простой модели. Для этой модели необходима предварительная информация о дефектах и центрах окраски в кристалле. Рассмотрим случай длительного облучения РВО. В результате действия ионизирующего излучения в зоне проводимости кристалла со скоростью V в см^3 образуются n_e электронов. Концентрация незаряженных и заряженных вакансий, а также дивакансий в кристалле – n , n^* и y , соответственно. Пусть Ω – скорость захвата двух электронов мелкой вакансией; b – полная скорость рекомбинации (излучательной и безызлучательной) электронов зоны проводимости кристалла, близкая по значению к $1/\tau_{\text{sc}}$ для вольфрамата свинца (10^8 с^{-1}); Ω_1 – скорость релаксации электронов от мелких центров на основе моновакансий; D – параметр диффузии моновакансии; r_0 – радиус захвата незаряженной вакансии заряженной; ω_{TA} – скорость термостимулированной релаксации центров дивакансий. Для простоты предположим, что коэффициенты диффузии заряженных и незаряженных вакансий одинаковы.

Кинетические уравнения, описывающие систему, выглядят следующим образом (1):

$$\begin{aligned} \frac{dn_e}{dt} &= -n_e \cdot \Omega - n_e \cdot b + V + n^* \cdot \Omega_1 \\ \frac{dn_e}{dt} &= -n_e \cdot \Omega + n^* \cdot \Omega_1 - 4\pi r_0 \cdot Dnn^* \left(1 - \frac{r_0}{\sqrt{4\pi Dt}}\right) \\ \frac{dn^*}{dt} &= n_e \cdot \Omega - n^* \cdot \Omega_1 - 4\pi r_0 \cdot Dnn^* \left(1 - \frac{r_0}{\sqrt{4\pi Dt}}\right) \\ \frac{dy}{dt} &= 4\pi r_0 \cdot Dnn^* \left(1 - \frac{r_0}{\sqrt{4\pi Dt}}\right) - y\omega_{TA} \end{aligned} \quad (1)$$

Для моделирования использовались следующие параметры. Радиус диффузии r_0 , 10^{-9}м , – типичный размер элементарной ячейки. К сожалению, пока нет надежных методов для определения концентрации V_0 в кристалле вольфрамата свинца. Даже метод электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) позволяет получить лишь косвенную оценку путем измерения центров $\text{Pb}^+ - V_0$.

Реальная концентрация может быть даже выше, поскольку не все анионные вакансии образуют такие центры. Тем не менее, наше исследование показало, что оба типа вакансий – катионные и анионные – в вольфрамите свинца хорошо подавляются легированием трехвалентным La или Y с концентрацией порядка 10^{24} м^{-3} [33]. Полученное значение может считаться вполне корректной оценкой для начальной концентрации n_0 . Мы также использовали значение V равным 10^{17} частиц/(см³), что соответствует мощности дозы 1 Гр/ч для вольфрамата свинца. Время захвата электрона оценивалось исходя из следующих соображений. Время нарастания сцинтилляций в вольфрамите свинца менее 100 пс и соответствует высокой скорости захвата электронов (10^{10} с^{-1}). Вероятность одновременного захвата двух электронов кислородной вакансией невысокая, поскольку для этого требуется наличие вблизи вакансии как минимум двух электронов. Тем не менее, эта скорость должна быть больше скорости освобождения мелкой ловушки при комнатной температуре, которая составляет порядка 10^6 с^{-1} [33]. С другой стороны, ее максимальное значение ограничивается кинетикой сцинтилляций ($2 \times 10^{-8} \text{ с}$), поскольку тушения сцинтилляций не наблюдается даже при высокой плотности возбуждения в пучке. По этой причине, мы оценили величину Ω как 10^7 с^{-1} . Оценка $\Omega_1 = 10^5 \text{ с}^{-1}$ получена с использованием данных термостимулированной люминесценции на центрах, представленных в работе [33]. Были выбраны следующие начальные условия: $n_e(0) = n^*(0) = 0$. Наибольшая неопределенность существует для параметра диффузии D . Однако его значение можно оценить на основе простых соображений. Разумно предположить, что D зависит от массы диффундирующих частиц. Поэтому можно оценить диапазон реалистичных значений D для диффундирующей нейтральной вакансии в структуре PWO. Самым легким нейтральным элементом в кристалле является экситон (связанное состояние электрона проводимости и дырки), типичный коэффициент диффузии которого порядка $10^{-4} - 10^{-6} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$ в идеальной оксидной кристаллической среде. У кислородных вакансий значения коэффициента диффузии на несколько порядков меньше, будучи сильно

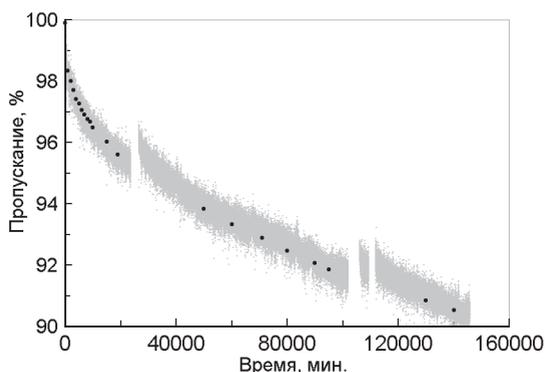


Рис. 1. Изменение световыход кристалла PWO, размером $3 \times 3 \times 23 \text{ см}^3$, облучение источником ^{60}Co мощностью дозы $0,15 \text{ Гр/ч}$, облучение направлено на площадь $3 \times 3 \text{ см}^2$. Точками отмечены данные, выбранные для моделирования (см. Рис. 2).

ограничены массой (которая в 10^4 раза больше массы электрона) и междоузельным потенциальным барьером, они не превышают $10^{-8} - 10^{-10} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$.

На Рис. 1 и 2 приведено сравнение экспериментальных данных и результатов моделирования для кристалла PWO длиной 23 см, который непрерывно облучался источником ^{60}Co , как описано в [41] при мощности дозы $0,15 \text{ Гр/ч}$. Измерения проводились в условиях стабилизации температуры кристалла с точностью до $0,1^\circ\text{C}$, позволяющей пренебречь колебаниями световыхода в зависимости от температуры. Кроме того, вводилась поправка к данным, связанная с распадом источника облучения.

Очевидно, что описанная модель демонстрирует зависимость явлений агрегирования как от концентрации вакансий, так и их способности к диффузии в кристалле. Хорошее согласие между результатами моделирования и экспериментальными данными подтверждает, что кислородные вакансии, при появлении мелких электронных центров могут привести к появлению гораздо более глубоких ловушек путем агрегации вакансий под действием излучения. Из результатов моделирования видно, что этот эффект должен

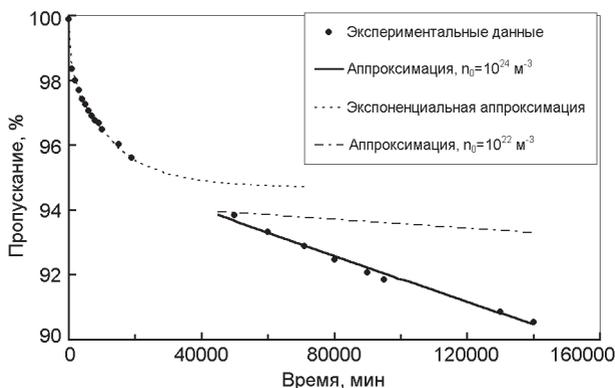


Рис. 2. Сравнение экспериментальных данных (точки) и результатов моделирования: двухэкспоненциальное приближение повреждения пропускания кристалла для начальной стадии и модель агрегации вакансий для длительного процесса повреждения при двух начальных концентрациях кислородных вакансий.

наблюдаться даже при малых концентрациях мелких центров, а коэффициент пропускания будет медленно уменьшаться даже при концентрации вакансий $n_0 = 10^{22} \text{ м}^{-3}$.

Еще один эффект, связанный с мелкими ловушками – образование короткоживущих центров окраски, которые вносят вклад в нестационарные полосы наведенного поглощения и уменьшают количество света, регистрируемого фотодетектором в короткой временной шкале [42]. Это имеет место при сравнительно высокой мощности дозы излучения, когда значительная часть мелких ловушек оказывается заселенной. Модель, описывающая данное явление и некоторые численные оценки даны в [22].

Несмотря на долгую историю исследований сцинтилляторов [43], дефекты кристаллов подробно исследованы лишь для нескольких сцинтилляционных материалов: оксидов и галогенов, которые изучались для применений в области физики высоких энергий. В последние 20 лет исследования в этой области были направлены на разработку сцинтилляторов на основе BaF_2 [44] и на основе кристаллов CeF_3 , PWO [22, 28, 45–47] и CsI(Tl) [48–53].

Для таких сцинтилляторов важнейшим требованием является сведение к минимуму радиационного повреждения, вызванного гамма облучением [22].

Подводя итог описанию радиационных повреждений в кристаллах под действием γ -излучения, отметим, что мелкие ловушки также вносят вклад в ухудшение оптического пропускания. В общем, идеальность кристаллической структуры является наиболее существенным требованием к сцинтилляционным кристаллам, выполнение которого обеспечивает их надежную работу в условиях облучения высокими дозами γ -излучения.

5 Компенсация дефектов при производстве кристаллических материалов.

Как следует из предыдущего рассмотрения, повреждение оптического пропускания в кристаллах напрямую зависит от их структурного совершенства, то есть от того, насколько идеальными и свободными от дефектов выращены кристаллы. Идеальность кристаллов, однако имеет термодинамический предел, то есть точечные дефекты в кристаллах, полученных при выращивании из расплава, существуют всегда. Задача технологов – вырастить кристаллы, в которых отклонение от термодинамический предела не превышает несколько порядков величины.

Выращивание высококачественных кристаллических сцинтилляционных материалов обычно осуществляется с помощью метода Чохральского или различных модификаций метода Бриджмена [54]. Основное преимущество синтетических монокристаллических материалов состоит в возможности контролировать их свойства, регулируя условия синтеза. Однако, сравнительно большая скорость трансформации расплава в кристаллическую массу в процессе роста кристалла и недостаточная чистота сырья приводят к образованию специфических дефектов в кристалле, влияющих на сцинтилляционные свойства. Помимо образования центров окраски, облучение может изменить валентное состояние ионов в кристалле. Такое

специфическое повреждение зависит от типа сцинтилляционного материала. Известные самоактивированные сцинтилляционные кристаллы $\text{Bi}_3\text{Ge}_4\text{O}_{12}$, $\text{Bi}_3\text{Si}_4\text{O}_{12}$, PbWO_4 и CeF_3 обладают люминесцентными центрами, являющимися частью матрицы [55–59]. Это регулярные анионные комплексы на основе ионов вольфрама, висмута и церия, которые не перезаряжаются под действием гамма облучения. Благодаря их близкому взаимному расположению в матрице обеспечивается очень быстрая рекуперация валентного состояния катиона, если он ионизируется или захватывает электрон на короткое время. В анионных комплексах электронные переходы осуществляются только внутри центра или с переносом заряда, так что происходит очень быстрая релаксация возбужденных матричных состояний через излучательные и безизлучательные каналы. Таким образом, большинство самоактивированных сцинтилляторов под действием гамма излучения обнаруживают преимущественно центры окраски, а повреждение центров люминесценции отсутствует. И наоборот, сцинтилляторы, легированные Ce, Eu и Pr, могут демонстрировать при облучении как образование центров окраски, так и изменение валентного состояния активаторов. В зависимости от условий синтеза и соединения ион церия локализуется в кристалле с валентными состояниями 2+, 4+, а Eu и Pr – в кристалле с валентными состояниями 2+ и 3+. Изменение равновесия между фракциями под действием излучения, особенно перезарядка ионов Ce^{3+} , вызывает изменения в концентрации центров люминесценции, что приводит к уменьшению световыхода под действием облучения. В кристаллах оксидов возможным механизмом этого эффекта является непосредственная ионизация ионов Ce^{3+} падающим ионизирующим излучением. После ионизации ионов Ce^{3+} часть электронов захватывается соседними кислородными вакансиями. Если концентрация вакансий в кристалле высокая, вероятность захвата электрона увеличивается, и следовательно увеличивается концентрация метастабильных ионов Ce^{4+} . Очевидно, что образование кислородных вакансий в процессе роста оксидных кристаллов неизбежно ведет к увеличению в них концентрации

Ce^{4+} под действием гамма излучения, а следовательно, к уменьшению световыхода.

Одним из наиболее действенных способов минимизации концентрации точечных дефектов является дополнительное легирование кристаллов. Различные вопросы, касающиеся положительного влияния добавочных легирующих ионов на сцинтилляционные свойства и радиационную стойкость самоактивированных и легированных церием сцинтилляторов, обсуждались во многих работах. Тем не менее, общие требования к примесям, необходимым для компенсации точечных дефектов структуры в процессе роста кристаллов были предложены лишь недавно [60]. Они основаны на простом учете компенсации заряда в кристаллах, имеющих точечные дефекты структуры и легирующие ионы. Предположим, что сцинтилляционный кристалл с общей формулой $(A_i B_j C_k D_l \dots) O_x$, где A, B, C, и D – катионы, O – кислород, а i, j, k, l и x – их содержание в кристалле, выращивается из очищенного сырья и тщательно подготовленной стехиометрической смеси соответствующих оксидов. Однако, даже при конгруэнтном плавлении, в процессе роста кристалла происходит преимущественная утечка из расплава катионов какого-то одного типа. Это приводит к преобладанию одного вида катионных вакансий V_c и, как следствие, появлению анионных вакансий V_o и их ассоциатов. При такой модели образования дефектов основной задачей становится компенсация недостатка катионов при одновременном подавлении кислородных вакансий. Этого можно добиться дополнительным легированием кристалла ионами примеси, имеющими стабильное валентное состояние $(n+1)$ (n – валентное состояние недостающего иона) и локализующимся в том же кислородном полиэдре, либо ионами, имеющими стабильное валентное состояние $(n-1)$ в кислородном полиэдре, в котором недостающий в матрице ион не может занять место. Кроме того, коэффициент их распределения в кристалле должен быть близким к единице, а их испарение из расплава должно быть меньше, чем испарение A-D катионов. Вышеописанные легирующие ионы уменьшают количество катионных вакансий в кристалле, а также

вносят дополнительные некомпенсированные положительные заряды, препятствуя образованию V_0 вакансий.

Рассмотрим для примера, как легирующий ион с такими свойствами работает в реальном синтетическом кристалле вольфрамата свинца. Результаты, опубликованные в работе [60–63], показывают, насколько сильно уменьшилась интенсивность спектров наведенного поглощения благодаря легированию кристалла иттрием. Трехвалентный ион иттрия, замещает двухвалентный в матрице и удовлетворяет указанным требованиям. Но для ионов иттрия коэффициент распределения в кристалле немного меньше единицы, они оказываются сосредоточенными преимущественно в нижней части выращенного кристалла. Чтобы компенсация вакансий, образующихся в выращенном кристалле, была более равномерной, при выращивании кристаллов $PbWO_4$ используется двойное легирование Y и La. Легирование La удовлетворяет тем же требованиям, однако коэффициент распределения La в кристалле больше и равен 1,3. Ионы La оказываются сосредоточенными в верхней части выращенного кристалла $PbWO_4$, там, где наблюдается дефицит ионов Y. Эта технология была разработана для использования кристаллов вольфрамата свинца, позднее названных PWO-II, для использования в эксперименте PANDA при -25 C [47].

Описанный эффект компенсации дефектов зависит от атмосферы, в которой выращивается кристалл. Кристаллы PWO, рассматриваемые в данной работе, выращивались в атмосфере инертного газа, где утечка кислорода из расплава невелика. Некоторые сцинтилляционные кристаллы, например YAP:Ce, выращиваются в вакууме [64] при температурах, близких к 1900°C . В таких условиях дополнительно происходит интенсивное накопление кислородных вакансий. На Рис. 3 показаны начальные спектры поглощения и спектры наведенного γ -излучением поглощения, полученные для различных кристаллов $YAlO_3:Ce$ (YAP), выращенных с помощью горизонтального метода Бриджмана в вакууме. Спектр поглощения кристаллов, легированных церием, вблизи 300 нм вызван межконфигурационным переходом из основного состояния $4f^1 5d^0$ в

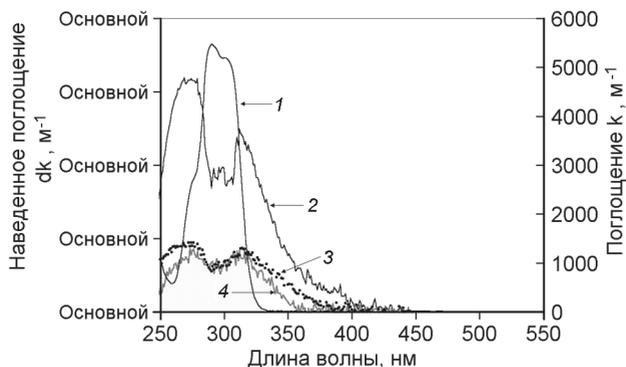


Рис. 3. Спектры начального (1) и наведенного (2) поглощения в кристалле $\text{YAlO}_3:\text{Ce}$, спектры наведенного поглощения в выращенных (3) и отожженных в смеси Ag/H_2 (4) кристаллах $\text{YAlO}_3:\text{Ce}$, Zr. Облучение источником ^{60}Co (1,2 МэВ), мощность дозы 7 Гр/ч, накопленная доза 90 Гр.

триплетное $5d^1$ состояние, которое расщепляется кристаллическим полем. В диапазоне от 220 до 400 нм наблюдается коэффициент наведенного облучением поглощения на уровне нескольких сот обратных метров. Кроме того, наблюдаемый на графике около 300 нм минимум спектра означает, что происходит перезарядка зарядового состояния иона Ce^{3+} . Простое сравнение начального и наведенного спектров поглощения показывает, что как минимум 5% трехвалентных ионов Ce перезаряжаются при указанной поглощенной дозе. Ситуация улучшается при дополнительном легировании Zr. Пунктирная кривая (3) на Рис. 3 соответствует кристаллу с такой же концентрацией Ce, как и в предыдущем случае, но на этот раз кристалл дополнительно легирован цирконием на уровне 100 ppm. Кривая 4 соответствует кристаллу, легированному Zr и затем отожженному в восстановительной атмосфере. В отожженных кристаллах с дополнительным легированием наведенное облучением поглощение полностью подавляется в диапазоне сцинтилляций (350–450 нм). Кроме того, эффект перезарядки ионов Ce^{3+} не превышает 2%. Положительное воздействие дополнительного легирования цирконием связано с тем, что в процессе роста кристалла YAlO_3

преобладает утечка из расплава Al. Дефицит Al компенсируется Zr, локализованном в кислородном октаэдре. Механизм подавления эффектов, возникающих под действием облучения, аналогичен описанному для кристалла вольфрамата свинца, легированному иттрием. И хотя примесь циркония уменьшает концентрацию V_c в кристалле, одновременно подавляя кислородные вакансии, коэффициент распределения в YAP для него значительно больше единицы, и поэтому использование такой примеси эффективно только в затравочной части кристалла. Более того, значительная часть V_0 обусловлена наличием вакуума в ростовой камере, и таким образом, концентрация ионов циркония оказывается недостаточной для их компенсации. Поэтому наведенное поглощение в кристаллах YAP:Ce, Zr уменьшается, но остаточное поглощение все же оказывается значительно выше, чем в кристаллах PWO:La, Y. Уменьшение концентрации V_0 также подтверждается сильным подавлением красной люминесценции в кристаллах, дополнительно легированных Zr, ее наличие коррелирует с присутствием кислородных вакансий. Эффект дополнительного легирования кристаллов YAP:Ce ионами Zr^{4+} также подтверждается в работе [66]. Этот метод не очень подходит для комплексных оксидов, где один катион располагается в узлах с несколькими координациями, например, в кристаллах $Y_3Al_5O_{12}$, и $Lu_3Al_5O_{12}$ со структурой граната, когда ионы алюминия локализованы в узлах с октаэдрической и тетраэдрической координацией. В этом случае дополнительное легирование Si^{4+} оказывается более эффективным, чем легирование Zr [66]. Ион циркония попадает преимущественно в узлы с октаэдрической координацией в структуре граната, а катионные вакансии в тетраэдрических узлах остаются некомпенсированными. И наоборот, ионы Si могут занимать узлы с тетраэдрической координацией. Если в кристалле разрешены несколько анионных координаций для одинаковых катионов, то может потребоваться совместное легирование ионами двух различных примесей – по одному для каждого координационного узла.

Еще один удачный пример – дополнительное легирование кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ (LSO) ионами Ca^{2+} . Кристаллы ортосиликатов обычно выращиваются в атмосфере с концентрацией кислорода от нуля до доли процента. В кристалле такого состава преобладает утечка Si из расплава. Таким образом, двухвалентный ион в структуре ортосиликата должен соответствовать вышеуказанным требованиям. Двухвалентный ион, замещающий ион Lu^{3+} в матрице может возместить некомпенсированный положительный заряд, обусловленный кислородными вакансиями в кристалле. Как следствие, все высокотемпературные полосы ТСЛ, соотносящиеся с центрами окраски на основе кислородных вакансий [67], при дополнительном легировании кристалла двухвалентным Ca оказываются сильно подавленными [68].

Еще один способ минимизации концентрации дефектов заключается в отжиге выращенных кристаллов в различных атмосферах при температурах ниже точки плавления кристалла. Хотя кристаллы $\text{LSO}:\text{Ce}$ исследовались уже более 20 лет [69–71], лишь недавно было признано, что концентрацию дефектов в них можно уменьшить с помощью отжига в атмосфере кислорода [72].

6 Центры окраски в кристаллических материалах PbWO_4 и $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$.

В качестве примера рассмотрим центры окраски, возникающие при облучении γ -квантами, в двух сцинтилляционных кристаллах, PWO и $\text{LSO}:\text{Ce}$. Кристаллы, PWO в настоящее время широко применяются в электромагнитной калориметрии экспериментов CMS, ALICE (LHC), PriMex (JeffersonLab) и будут использоваться в PANDA (FAIR). Кристаллы $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ и их твердые растворы с $\text{Y}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ уже используются в эксперименте KLOE и предлагаются к использованию в экспериментах на LHC с увеличенной светимостью [73]. Более того, PWO является типичным представителем самоактивированных сцинтилляторов, в то время как $\text{LSO}:\text{Ce}$ – типичный представитель активированных материалов. Для оценки параметров центров окраски в кристаллах использует-

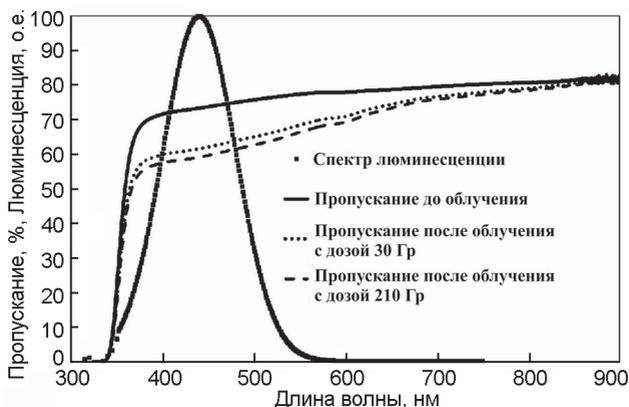


Рис. 4. Спектры люминесценции и пропускания до и после γ -облучения дозами 30 Гр 210 Гр кристалла PWO длиной 20 см.

ся коэффициент наведенного поглощения $dk(\lambda)$, который определяется по изменению оптической плотности образца после поглощения известной дозы облучения. Обычно спектры пропускания образцов до и после облучения измеряются с помощью традиционных двухлучевых спектрофотометров, а коэффициент наведенного излучением поглощения вычисляется по формуле

$$dk(\lambda) = (1/l) \times \ln (T_0(\lambda) / T(\lambda)),$$

где l , T_0 , и T – толщина образца, начальный коэффициент пропускания и коэффициент пропускания после облучения соответственно.

На Рис. 4 показано изменение спектров пропускания кристаллов вольфрамата свинца $PbWO_4:La, Y$ для двух поглощенных доз. Для оценки влияния ухудшения пропускания на выход сцинтилляций также приведен спектр радиолуминесценции кристаллов при комнатной температуре. Видно, что уже при поглощенной дозе 30 Гр ухудшение пропускания практически насыщается. На Рис.5 приведен спектр наведенного поглощения подобного кристалла и разложение спектра на компоненты спектра гауссовой формы.

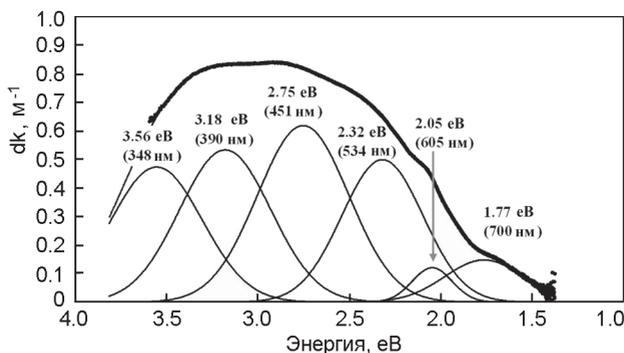


Рис. 5. Спектр наведенного поглощения для кристалла PWO, измеренный при комнатной температуре через 1 минуту после облучения источником ^{60}Co (30 Гр) и его аппроксимация.

Для аппроксимации спектр, измеренный в шкале длин волн должен быть преобразован в спектр в шкале энергий, желательно eV, поскольку рассматриваемые полосы имеют максимумы от долей до единиц eV.

Спектр наведенного поглощения в кристаллах вольфрамата свинца после облучения состоит из нескольких полос с максимумами, расположенными вблизи 348 нм (3,56 эВ), 390 нм (3,18 эВ), 470 нм (2,66 эВ), 520 нм (2,4 эВ), 600 нм (2,08 эВ) и 700 нм (1,77 эВ). Происхождение этих полос в спектрах поглощения описано в [33]. Заметим, что интенсивность полос с 3,56 эВ и 3,18 эВ в спектре, обусловленных дефектами типа Френкеля и соответствующими центрами окраски на их основе довольно слабая. Это означает, что выращенный кристалл обладает достаточно совершенной структурой. После обработки при 200°C в течение 2 часов наблюдалось практически полное восстановление пропускания. Спектр наведенного γ -излучением поглощения в кристаллах вольфрамата свинца, если же конечно кристалл не выращен с существенными нарушениями технологии, формируется указанными полосами, причем их парциальный вклад определяется особенностями применяемого способа получения монокристаллов.

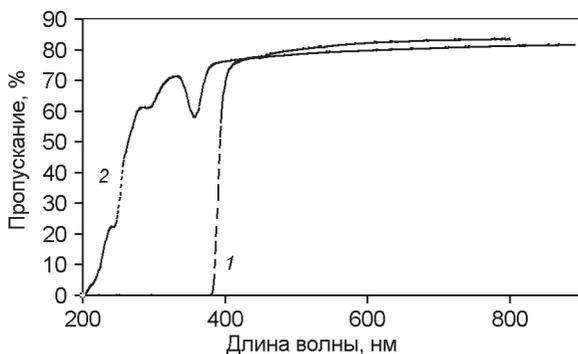


Рис. 6. Спектры оптического пропускания 1 – кристалл LSO:Ce (толщина 1 см), 2 – легированный примесью в низкой концентрации кристалл LSO:Ce (1.29 см).

Доступные сегодня на рынке кристаллы LSO, легированные Ce (LSO:Ce), считаются устойчивыми к воздействию гамма излучения [74]. Они обычно выращиваются из расплава с концентрацией активирующих ионов по отношению к ионам редкоземельных элементов, равной 0,1-0,5 %. Активирующие ионы обладают высоким уровнем поглощения в УФ диапазоне благодаря $5f \rightarrow 4d$ межконфигурационным электронным переходам Ce^{3+} . По этой причине большая часть спектра пропускания от границы фундаментального поглощения кристалла (200 нм) до длиноволнового плеча полосы перехода активатора на самый низкий энергетический уровень (370 нм) заблокирована для однофотонных измерений. Поэтому, несмотря на более чем 20-летнюю историю исследований кристаллов LSO:Ce, наведенное облучением поглощение в УФ диапазонах лишь недавно стало предметом исследования [15]. Измерения проводились на кристаллах LSO:Ce с низкой концентрацией легирующей примеси. На Рис. 6 приведено сравнение спектров оптического пропускания доступных на рынке кристаллов LSO:Ce и кристаллов с низкой степенью легирования. Использование нелегированных кристаллов или кристаллов с очень низкой степенью легирования позволяет наблюдать спектры пропускания вплоть до края фундаментального поглощения, и таким образом появляется возможность наблюдать

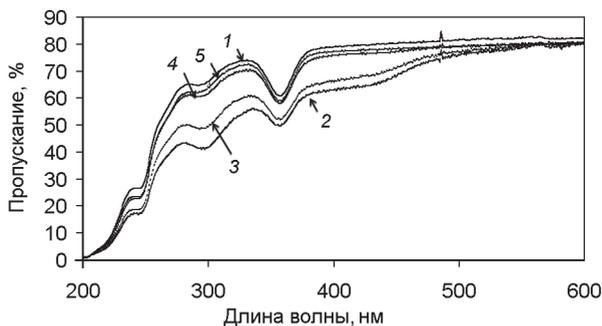


Рис. 7. Оптическое пропускание легированного примесью с низкой концентрацией кристалла LSO:Ce: 1- до облучения, 2- после облучения источником ^{60}Co (1, 22 МэВ, поглощенная доза – 2000 Гр) и после отжига облученного кристалла в течение 3 часов 3 – при 100°C , 4 – при 200°C , 5 – при 300°C .

вероятные изменения параметров пропускания кристалла под действием облучения.

На Рис 7 показаны спектры оптического пропускания кристалла с низкой концентрацией легирующей примеси до и после облучения и отжига при различных температурах. В спектральном диапазоне от 270 до 600 нм наблюдалось практически полное восстановление поврежденных после отжига при температуре 300°C . На Рис. 8 показан спектр наведенного поглощения образца после облучения гамма в шкале эВ. Хвост спектра поглощения низкой интенсивности и большой длины волны не учитывался в деконволюции спектров, поскольку он образован широкой неразрешенной линией низкой интенсивности с максимумом вблизи 500 нм. Спектр поглощения, полученный после гамма облучения, достаточно хорошо аппроксимируется 5 пиками, с максимумами 5,2 эВ (240 нм); 4,08 эВ (306 нм); 3,64 эВ (343 нм); 3,32 эВ (376 нм); и 3 эВ (416 нм).

Таким образом, можно считать установленным, что в LSO:Ce также возникают несколько центров окраски, которые появляются за счет перезарядки ростовых точечных дефектов. Отметим чрезвычайно важное обстоятельство: практически все центры

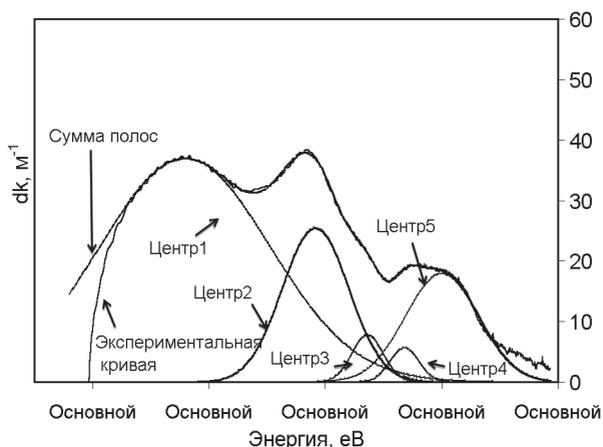


Рис. 8. Спектр наведенного γ -облучением поглощения для кристалла LSO, легированного небольшим количеством Se при комнатной температуре и его аппроксимация набором полос гауссовой формы.

окраски лежат в спектральной области, не перекрывающей полосу люминесценции ионов Ce^{3+} . Это выгодно отличает широкозонные, активированные ионами Ce^{3+} и самоактивированные, на основе ионов Ce^{3+} , кристаллы от большинства самоактивированных сцинтилляторов с точки зрения величины наведенного поглощения в спектральном диапазоне сцинтилляций.

7 *Вынужденное восстановление наведенного облучением поглощения в кристаллах PbWO_4 .*

Поскольку образование центров окраски переводит кристалл в неравновесное состояние за счет локализации части электронов выше уровня Ферми по отношению к статистическому распределению по энергии, то, естественно, происходит спонтанная релаксация центров окраски за счет термоактивации.

Фактически, это термодинамический процесс в открытой системе, так что его вполне можно ускорить введением энергии в определенной форме. В ситуации, когда большинство носителей, высвобождающихся из центров окраски, рекомбинируют и больше

не захватываются, процесс релаксации центров окраски можно описать простой формулой

$$n_i = n_0 \exp \left(-\omega_T^i - \sum_j b_j I_j \right) t, \quad (2)$$

где n_0 , и n – начальная и текущая концентрации центров окраски i – типа, соответственно, $\omega_T^i = \exp(-E_{TA} / kT)$ – вероятность спонтанной релаксации, E_{TA} – энергия термоактивации центра окраски, k – постоянная Больцмана, T – температура, I_j – интенсивность энерговыделения в единице объема, b_j – постоянная взаимодействия между центром окраски и потоком энергии. Хотя степенная зависимость ω_T^i от температуры позволяет сделать весьма заманчивое предположение о том, что ускорить процесс релаксации можно просто нагревая кристалл, на деле оказывается, что нагревание экспериментальной установки, состоящей из тысяч кристаллов, между периодами сбора данных потребует огромных затрат энергии, и может разрушить элементы конструкции и даже весь калориметр. Вместо этого энергия может вводиться в кристалл с помощью фотонов с определенной длиной волны, соответствующей высоким коэффициентам b_j центров окраски. Фотоны инициируют два процесса: 1) ионизацию центров окраски и 2) перенос захваченных электронов из основного состояния центра окраски на более высокий, излучающий уровень. Первый процесс (иногда его называют оптическое обесцвечивание, см, например, [75]) зависит от ширины энергетического уровня зоны проводимости и положения основного состояния центра окраски в запрещенной зоне и может быть инициирован в широком спектральном диапазоне от УФ до видимого. Однако, ионизация – процесс весьма затратный, поскольку энергия инжектируемых фотонов E_f должна быть намного больше, чем E_{TA} . Второй процесс (называемый вынужденное восстановление) представляет собой резонансный переход внутри центра и требует фотонов меньшей энергии $E_f \sim E_{TA}$, так что он может инициироваться даже инфракрасными (ИК) фотонами. Условия эффективности вынужденного восстановления описаны в работе [76]: 1) хотя бы

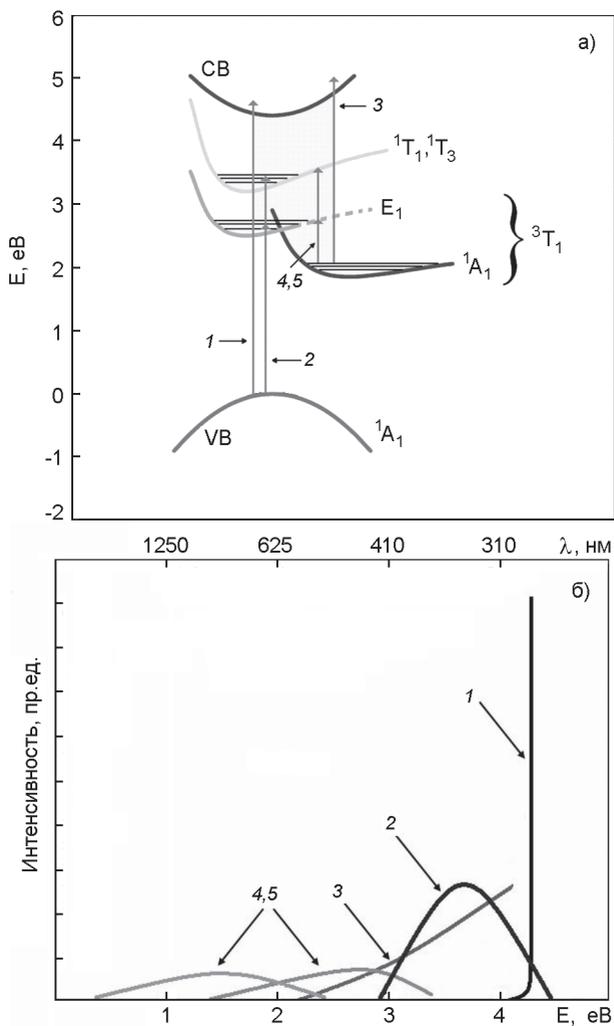


Рис. 9. Схематическое изображение электронных переходов и их спектральный диапазон в центрах окраски на основе дефектов типа Френкеля в кристалле PWO:La, Y.

один энергетический уровень в центре расположен немного выше излучающего состояния и обеспечивает рекомбинационную люминесценцию; 2) процессы повторного захвата носителей в кристалле сильно подавлены.

Второе условие обеспечивается минимизацией типов центров окраски в кристалле (в идеальном случае $j=1$), перекрывающих полосу люминесценции. В этом случае стимулирование процесса может осуществляться параллельно с облучением, и уровень динамического насыщения наведенного оптического поглощения в кристалле понизится. Изменяя интенсивность света или ИК, можно контролировать скорость вынужденного восстановления. На Рис. 9 схематически показаны процессы взаимодействия между центрами окраски и фотонами с различной длиной волны в кристалле PWO : La, Y. Как мы уже отмечали ранее, такое легирование кристаллов PWO подавляет V_0 , но не может помешать появлению в кристалле дефектов типа Френкеля, которые вызывают образование глубокого электронного центра захвата и соответствующего центра окраски ($E_{TA}=0,7$ эВ) и отвечают за величину коэффициента наведенного облучением поглощения, равную $0,6 - 1 \text{ м}^{-1}$ в спектральном диапазоне сцинтилляций при комнатной температуре. Этот центр доминирует в спектре наведенного поглощения в спектральном диапазоне сцинтилляций, поэтому частично выполняется второе условие ($j = 1$) (см. выше). Более того, переходы между электронными уровнями в дефектах типа Френкеля удовлетворяют первому требованию, и поглощение между самой низкой штарковской компонентой расщепленного уровня 3T_1 , являющегося основным состоянием электронной ловушки, и уровнем 1T_1 можно использовать для транспорта электронов в излучательное состояние центра окраски. Энергия фотонов, необходимая для ионизации дефектов типа Френкеля, была оценена на основании данных спектроскопического анализа кристаллов PWO и лежит в диапазоне от 3,3 до 1,8 эВ (380–700 нм). Минимальная энергия фотона, необходимая для вынужденного восстановления, составляет $\sim 0,7$ эВ, а верхний предел определяется порогом ионизации дефектов типа Френкеля,

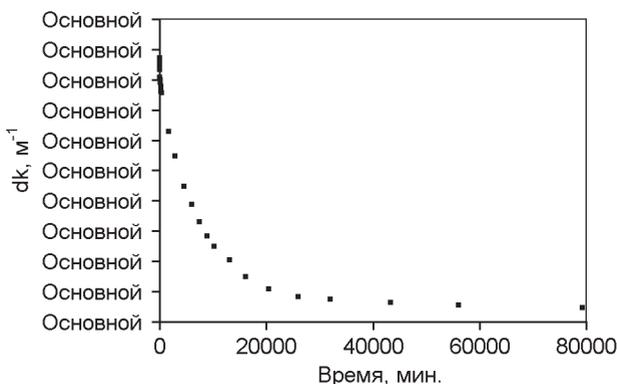


Рис. 10. Стимулированное восстановление наведенного поглощения на 420 нм для кристалла PWO:La, Y при комнатной температуре.

равным 1,8 эВ (700 нм) [24]. Конечно, ионизация более эффективна для высвобождения электронов из центров окраски, однако она запускает процесс повторного захвата носителей и повторного их появления.

Спонтанное восстановление коэффициента наведенного поглощения на 420 нм облученного кристалла PWO : La, Y при мощности дозы 30 Гр/ч показано на Рис. 10. Кривая восстановления практически не зависит от начального значения коэффициента наведенного поглощения, а постоянные распада слабо зависят от длины волны [22,76]. Впечатляющее ускорение восстановления наведенного поглощения наблюдается при ионизации дефектов по типу Френкеля светом при 464 нм и стимулировании путем возбуждения переходов внутри центров под действием ИК в диапазоне 860–1300 нм, как показано на Рис. 11.

Постоянные времени процесса восстановления постепенно увеличиваются, сдвигаясь к ИК диапазону, что предполагает уменьшение постоянных b_j при переходе от ионизации к переходам внутри центров. Наличие двух участков в кривой восстановления означает, что кроме дефектов типа Френкеля, в процессе, возможно, участвует еще один центр, для которого постоянная b_j меньше, чем для

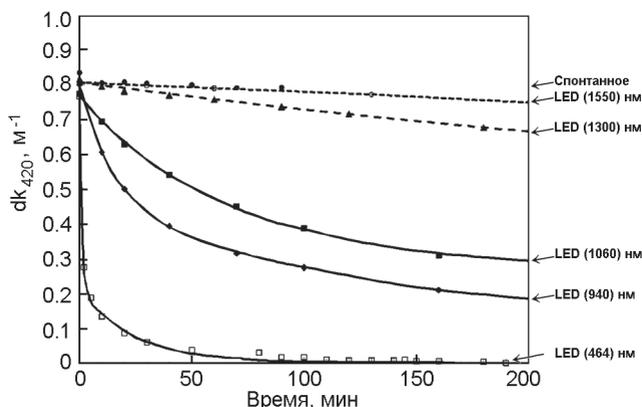


Рис. 11. Изменение dk_{420} для кристалла PWO при комнатной температуре вследствие спонтанной релаксации и в условиях стимулированного восстановления под действием фотонов различной длины волны.

дефектов типа Френкеля. Стимуляция релаксации обеспечивает одновременное уменьшение наведенного поглощения в широком спектральном диапазоне. Более того, графики восстановления световых выходов и релаксации наведенного поглощения зеркально симметричны. Очевидно, что стимулированная релаксация может положительно влиять на снижение уровня фосфоресценции в облученных кристаллах.

8 Общие характеристики повреждений, вызванных в кристаллических материалах протонами высоких энергий.

Хотя исследование радиационного повреждения в неорганических сцинтилляционных материалах под действием протонов проводилось с девяностых годов [77,78], впервые внимание на кумулятивный характер повреждения оптического пропускания различных кристаллов было обращено в работе [80]. Было установлено, что спонтанная релаксация наведенного поглощения в сравнении с релаксацией после облучения γ -квантами проходит почти на два порядка медленней. В дальнейшем научным кол-

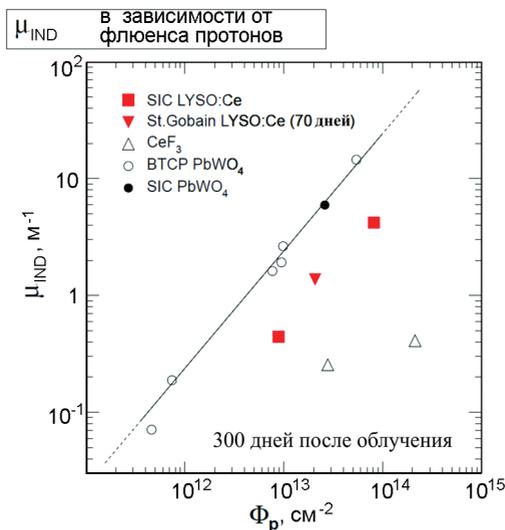


Рис. 12. Зависимость коэффициента наведенного поглощения от интегрального потока протонов с энергией 24 ГэВ для различных кристаллов. (Предоставлено ЕТН (Zurich)).

лективом ЕТН (Цюрих) в результате целенаправленных исследований было установлено, что кумулятивный характер повреждения пропускания присущ всем исследованным кристаллам, причем зависимость наведенного поглощения изменяется по закону, близкому к линейному в широком диапазоне интегральных потоков. На Рис.12 приведены зависимости для исследованных к настоящему времени кристаллов.

Авторы работ [15–17] сравнили ухудшение оптического пропускания под действием протонов высоких энергий для четырех разных тяжелых кристаллических материалов PWO, BSO и PbF₂, LSO:Ce. Общим свойством этих кристаллов является то, что их матрицеобразующие элементы тяжелые. Кроме того, у трех из этих кристаллов имеются атомы, у которых $Z = 82$ (Pb) и $Z = 83$ (Bi), так что можно ожидать увеличения вклада продуктов взаимодействия в повреждение матрицы под действием протонов. Помимо процессов отдачи, когда атомы выталкиваются из узлов решетки,

протоны могут вызывать два вида адронно-ядерных реакций: деления и расщепления. Сечение этих взаимодействий зависит от энергии. Измерения, проведенные для протонов с энергией 1 ГэВ и ^{208}Pb , показали, что сечение взаимодействий, связанных с расщеплением, в 10 раз превышает аналогичное сечение, связанное с делением [80], и позволили предположить, что во взаимодействиях протонов высоких энергий с ядрами с большим зарядовым числом Z доминирует расщепление. Это подтверждается и первыми наблюдениями за продуктами взаимодействия протонов с самыми тяжелыми элементами [81]. Для реакции расщепления характерно образование легких осколков (фрагментов) с высокой кинетической энергией и тяжелых ядер отдачи с низкой энергией [80,82]. Благодаря большой кинетической энергии вклад этих легких осколков в повреждение матрицы доминирует, поскольку тяжелые ядра отдачи имеют малую длину пробега и теряют большую часть своей энергии на ионизацию. Легкие осколки и ядра отдачи создают похожие дефекты. Вместо случайно распределенных дефектов, которые практически не взаимодействуют друг с другом, возникают новые дефекты в кластерах с высокой концентрацией вакансий, междоузлий и дефектов типа Френкеля. В кристаллах PWO, например, появляются дополнительные эффекты в кластерах, в связи с локальным изменением симметрии и величины кристаллического поля. Поэтому деформация окси-комплексов WO_4^{2-} , формирующих кристалл, происходит в кластерах из-за высокой концентрации окружающих дефектов. Поскольку нижняя часть зоны проводимости вольфрамата свинца образована d -орбиталями ионов W^{6+} , которые очень чувствительны к локальному кристаллическому полю, то деформация окси-комплексов матрицы вызывает расщепление d -уровней. На микроскопическом уровне эффект приводит к уменьшению запрещенной зоны вблизи кластеров. На макроскопическом уровне он приводит к сдвигу границы спектра образца, содержащего кластеры дефектов. Тоже самое происходит и с кристаллами LSO, в которых верхняя часть валентной зоны возникает в результате $2p$ -состояний атомов кислорода, ниже которых расположены

3p-состояния атомов Si и 4f-состояния атомов Lu. Нижняя часть зоны проводимости образована в основном 5d-состояниями атомов Lu.

Очевидно, что нет больших различий между вакансиями, образованными в процессе роста кристалла, и вакансиями, образованными под действием протонов, поэтому они должны создавать сходные центры окраски. Единственное различие состоит в том, что выбитые ионы кислорода остаются в кристалле и после облучения, особенно в кластерах дефектов. Они приводят к высокой концентрации дефектов типа Френкеля и атомов в междоузлиях, вызывающих возмущение кристаллической решетки. Однако в целом спектроскопические свойства центров окраски, измеренные в кристаллах после облучения γ -излучением и протонами, должны быть весьма похожими. С этой точки зрения механизм повреждения в тяжелых кристаллах также должен быть аналогичным. На Рис. 13–16 показаны спектры наведенного поглощения для кристаллов PWO и LSO:Ce после облучения протонами и отжига при 300 С.

Сравнение спектров наведенного поглощения при γ - и протонном облучении показывает, что при облучении протонами и в PWO и в LSO образуются совокупности дефектов, похожие на образующиеся в матрице в процессе роста кристалла. Отжиг уничтожает кластеры, восстанавливая регулярную кристаллическую решетку.

И хотя от кластеров можно избавиться с помощью отжига, температура восстановления регулярной кристаллической структуры слишком высока, для того, чтобы использовать ее в детекторах *insitu*. Медленное спонтанное восстановление кластеров при комнатной температуре обусловлено активным повторным захватом свободных носителей в кластерах, более глубокие ловушки немедленно снова захватывают носители, поддерживая равновесие зарядов внутри кластеров.

Сдвиг границы спектра пропускания вблизи фундаментального поглощения по описанным выше причинам наблюдался в кристаллах PWO, BSO, PbF₂, LSO и BGO [83], так что мы можем отметить, что это общее свойство повреждения тяжелых кристал-

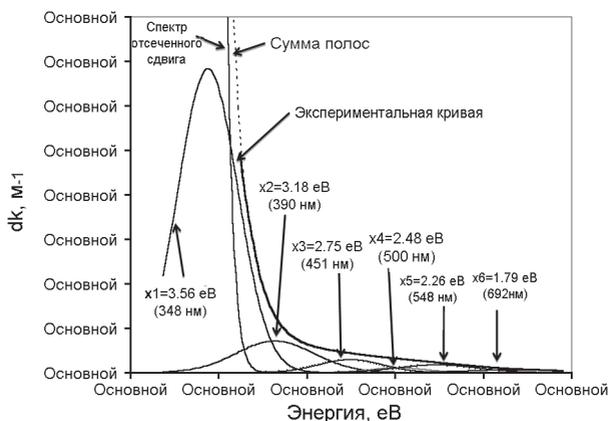


Рис. 13. Спектр наведенного поглощения в кристалле PWO, измеренный через три месяца после облучения протонами: и его аппроксимация.

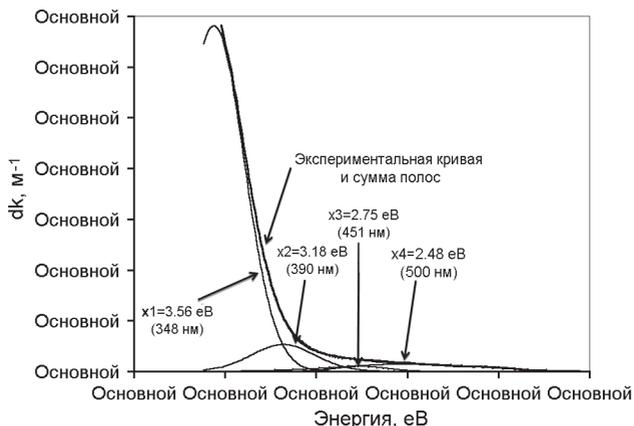


Рис. 14. Спектр наведенного поглощения в кристалле PWO, измеренный через 3 месяца после облучения протонами и отжига при 300С (5 часов).

лических материалов под действием протонов. Возникающий в результате сдвиг границы спектра поглощения в направлении большей длины волны приводит к уменьшению выхода света в обоих режимах – сцинтилляционном и черенковском.

Стимулированное восстановление повреждения оптического пропускания наблюдалось в кристаллах PWO, как после облучения

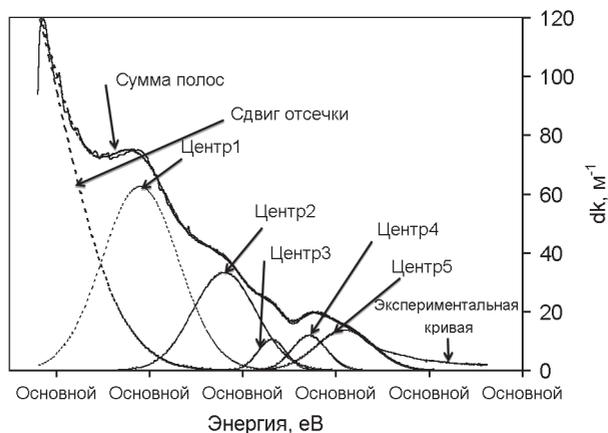


Рис. 15. Спектр поглощения, наведенного облучением протонов образца кристалла LSO:Ce и его аппроксимация набором полос гауссовой формы.

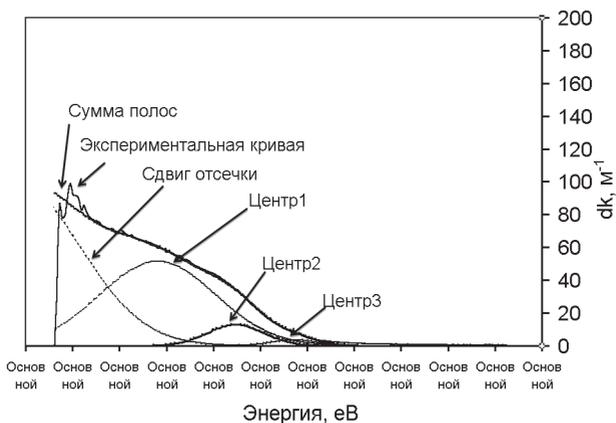


Рис. 16. Спектр наведенного поглощения образца кристалла LSO:Ce после облучения протонами, отжига при 300Св течение 5 часов, и его аппроксимация набором полос гауссовой формы.

протонами, так и после гамма облучения [13,84]. Было показано, что под действием света ускоряется рекомбинация центров окраски в поврежденных кристаллах, однако на сдвиг границы такое облучение влияния не оказывает. Если кристаллы при этом еще и

нагревать до 75°C , то центры окраски разрушаются и в кластерах, при этом происходит сдвиг границы спектра в направлении спектра необлученного кристалла.

9 Фосфоресценция.

Напомним, что сцинтилляция – это люминесценция, вызванная ионизирующим излучением в прозрачной диэлектрической среде. Ионизирующее излучение также взаимодействует с дефектами, образуя центры окраски. Центры окраски, в свою очередь, взаимодействуют с люминесцентными центрами, причем вероятность такого взаимодействия, очевидно, зависит от среднего расстояния между взаимодействующими центрами. Посредством туннелирования или кулоновского взаимодействия центры окраски доставляют электроны к излучающим центрам и приводят к появлению медленной части в кинетике высвечивания с постоянными времени в диапазоне от микросекунд до часов.

Люминесценция, которая излучается после затухания импульса сцинтилляции, называется фосфоресценцией. Для ее возбуждения нужно не только ионизирующее излучение, но и дополнительный механизм передачи возбуждений излучающим центрам после того, как вещество сцинтиллятора провзаимодействовало с ионизирующим излучением. Такая же люминесценция возникает и при любом другом виде возбуждения, которое, помимо люминесцентных центров, возбуждает и другие центры, захватывающие электроны или дырки. Параметр, позволяющий описывать фосфоресценцию, называется послесвечением и является отношением амплитуды отклика детектора в определенный момент времени к максимальной амплитуде. Этот момент времени зависит от метода, использованного для регистрации импульса сцинтилляций, например, для метода рентгенографии с помощью фотоприемников, работающих в токовом режиме, это время обычно выбирается в пределах эффектов, сопровождающих сцинтилляции во многих неорганических материалах. Ее присутствие в кинетике излучения света зависит от многих факторов, особенно тех, которые играют заметную роль

в появлении ловушек и центров окраски в кристаллических соединениях. Таким образом, нарушения технологии производства кристаллов и повреждение материала, вызванное ионизирующим излучением, являются существенными причинами образования фосфоресценции в сцинтилляционных материалах детекторов.

В настоящее время нет достаточной информации о фосфоресценции в сцинтилляторах, однако анализ опубликованных данных показывает, что в самоактивированных сцинтилляторах фосфоресценция имеет меньше шансов на появление ввиду следующего очевидного факта. Поскольку люминесцентными центрами в таких кристаллах являются непосредственно анионные комплексы металлов, формирующие каркас кристалла, то вблизи центра окраски всегда найдётся люминесцентный центр, который обеспечит быструю релаксацию центра окраски. Вот почему CdWO_4 [85] является одним из наиболее используемых материалов в рентгеновских сканерах, использующих интенсивные потоки рентгеновского излучения. При своей относительно медленной кинетике сцинтилляций он обеспечивает наименьший уровень послесвечения через 20 мс. В физике высоких энергий малым уровнем послесвечения обладает кристалл вольфрамата свинца [86], причем по двум причинам: кристалл является самоактивированным сцинтиллятором, более того обладает сильно потушенной люминесценцией.

В активированных кристаллах, где уровень концентрации активатора не превышает более 1 ат.% по замещаемому элементу в кристаллической решетке и, следовательно, среднее расстояние между центрами окраски и центрами люминесценции как минимум превышает размер элементарной ячейки, возникают весьма благоприятные условия для возникновения фосфоресценции. В работах [86,87] обнаружено сильное послесвечение в кристаллах $\text{LSO}:\text{Ce}$. Установлено, что кристаллы LSO , LYSO , LaBr_3 , активированные церием обладают значительно более высоким уровнем послесвечения, чем кристаллы BGO либо $\text{Gd}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ (GSO).

В работах [89–92] рассматривается механизм возникновения фосфоресценции в кристаллах силикатов. Установлено, что как

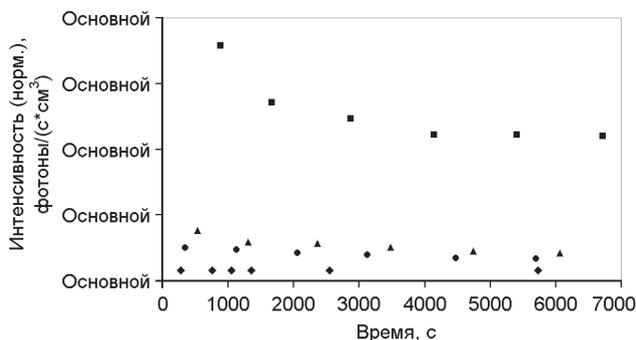


Рис. 17. Скорость счета фосфоресценции нормализованная к 1 см^3 образцов: (●) контрольный образец кристалла LSO:Ce, не облучавшийся только γ -излучением, (■) LSO:Ce, (▲) LSO:Ce с очень низким содержанием Ce и (◆) YSO:Ce.

туннелирование, так и перенос через зону проводимости участвуют в процессе появления фосфоресценции. Таким образом, в кристаллах ортосиликатов, облученных протонами, следует ожидать существенного увеличения эффекта фосфоресценции за счет наработки дополнительных дефектов. Этот факт подтвержден исследованиями фосфоресценции в облученных кристаллах LSO и YSO [93].

На Рис. 17 показана фосфоресценция в кристаллах LSO и YSO, легированных Ce после облучения протонами с интегральным потоком $3,6 \cdot 10^{13}$ частиц/ см^2 после отжига при 300 С и повторного облучения γ -излучением при мощности дозы 0,15 Гр/ч в течение 24 часов. Подробности, касающиеся образцов и механизмов фосфоресценции приведены в [94]. Уровень фосфоресценции облученного кристалла YSO:Ce сравним с фосфоресценцией необлученного контрольного образца кристалла LSO:Ce и в 10 раз меньше чем у облученного образца LSO:Ce. Кристаллы LSO с низкой концентрацией Ce^{3+} демонстрируют низкий уровень фосфоресценции. Этот эффект можно объяснить снижением вероятности туннелирования в кристаллах с низкой концентрацией Ce^{3+} . С ростом концентрации Ce^{3+} в кристалле поток фотонов фосфоресценции достигает 5 МГц/ см^3 сразу же после облучения при мощности дозы 0,15 Гр/ч, но, очевидно, может быть намного выше при более высокой мощности

дозы. Фосфоресценция является фактором, сильно ограничивающим использование легированных материалов в однородных электромагнитных калориметрах в экспериментах на LHC с повышенной светимостью. Одна детектирующая ячейка LSO:Ce, размером $25X_0 \cdot (1.5R_M)^2$, которая поглощает более 90% электромагнитного ливня, содержит 275 см^3 материала. Таким образом, можно ожидать, что общий поток фотонов фосфоресценции будет более 1,3 ГГц. Значительная часть этих фотонов достигнет фотодетектора, что сильно увеличит темновой ток фотоприемников – лавинных фотодиодов, увеличивая энергопотребление детектора в целом.

10 Радиолюминесценция, обусловленная изотопами, образованными в тяжелых и легких сцинтилляционных кристаллических материалах.

Под действием адронов протекают ядерные реакции, в процессе которых генерируются радиоизотопы. Радиоизотопы излучают α -, β - и γ -излучение, возбуждая сцинтилляции в сцинтилляционных кристаллах, создавая тем самым световой фон в кристалле.

Очевидно, что чем больше световой выход сцинтиллятора, тем больше световой фон при одинаковой поглощенной дозе от радиоизотопов. Например, в PWO, где выход сцинтилляций в 100 раз меньше чем в LSO:Ce, световой фон будет также в 100 раз меньше при одинаковой поглощенной мощности дозы от радионуклидов. Список измеренных нами радиоизотопов в некоторых сцинтилляционных кристаллах после облучения протонами с интегральным потоком $3 \cdot 10^{13}$ частиц/см² приведен в Таблице 2. Эффективности в таблице нормированы на 1 см³ вещества.

Измерение состава радиоизотопов проводилось через 30 дней после облучения в ЦЕРНЕ Службой радиационной безопасности с помощью германиевого спектрометра. Таким образом, в списке обнаруженных изотопов находятся относительно долгоживущие изотопы. Примечательно увеличение количества радиоизотопов по мере увеличения атомного номера элементов, формирующих

кристаллическое соединение. Также часть радиоизотопов может быть обусловлена неконтролируемыми примесями в кристаллах, например, в $Gd_2SiO_5:Ce$. Таким образом, использование списка приведенных в Таблице 2 изотопов для расчета светового фона в сцинтилляторе дает нижнюю оценку, поскольку не учитываются короткоживущие радиоизотопы.

Знание состава изотопов и времен их распада позволяет рассчитывать их активности на момент окончания облучения, либо на любой другой момент времени. Поглощенная энергия излучения радиоизотопов, образованных в кристалле, может быть рассчитана с помощью компьютерной программы GEANT4. Сравним для примера поглощенную энергию излучения измеряемых изотопов в кристаллах с одинаковым выходом сцинтилляций (30000 ph/МэВ): LSO:Ce ($\rho = 7.4 \text{ г/см}^3$) и YSO:Ce ($\rho = 4.45 \text{ г/см}^3$), имеющих одинаковые размеры $25 \times 25 \times 3 \text{ мм}^3$ и объем $1,9 \text{ см}^3$, соответственно. Такие пластины сцинтилляторов могут использоваться в детекторных модулях типа «шашлык» с чередованием пластин сцинтиллятора и поглотителя.

Полная энергия, выделенная в монокристаллической пластине LSO радиоизотопами, образованными в LSO:Ce, составляет 0,9 ГэВ/с. Соответствующий фон фотонов в пластине LSO:Ce составляет $2,4 \cdot 10^9$ фотонов/с, или $1,3 \text{ ГГц/см}^3$. Полная энергия, выделенная в монокристаллической пластине YSO радиоизотопами, образованными в YSO:Ce, составляет 0,12 ГэВ/с. Поток фотонов от одной пластины YSO:Ce, облученной протонами, оценивается на уровне $0,34 \cdot 10^9$ фотонов/с, или 180 МГц/см^3 .

Видно, что фон, вследствие образованных радиоизотопов, значительно выше в LSO:Ce, чем в YSO:Ce. Это обусловлено как меньшей плотностью YSO:Ce, так и меньшим количеством радионуклидов, образованных в более легком кристалле. Вместе с тем, фон фотонов от радиоизотопов значительно превосходит вклад в фон от фосфоресценции. Если фосфоресценция создает существенный фон в объёмных кристаллах, то радиоизотопы становятся серьезным фактором, ограничивающим использование тяжелых материалов с

высоким световыходом в электромагнитных калориметрах. Таким образом, минимизация фона фотонов вследствие радиоизотопов, образуемых в сцинтилляторах, предполагает использование легких кристаллических сцинтилляционных кристаллов с малым выходом сцинтилляций.

11 Влияние образования радиоизотопов на конструкцию детектирующей ячейки.

Радиоизотопы образуются не только в кристаллах сцинтилляторов, но и в конструкционных материалах детектора. Важность представляют те элементы конструкции, которые находятся в непосредственной близости от сцинтилляционных элементов. Например, из Таблицы 2 видно, что уже в кристаллах $Y_3Al_5O_{12}$ and $YAlO_3$, содержащих Al, в сравнении с Y_2SiO_5 , в списке изотопов появляется β^+ изотоп ^{22}Na , при распаде которого и аннигиляции позитронов излучаются две γ -линии: 0,511 и 1,270 МэВ. Очевидно, что такой изотоп нарабатывается в сплавах, содержащих алюминий. Использование таких сплавов в элементах конструкций вблизи сцинтилляторов с высоким выходом может создать дополнительный фон фотонов к фону, описанному в предыдущем параграфе. Ситуация значительно усугубляется в случае использования в конструкциях сцинтилляторов с высоким выходом и пластин тяжелых металлов. В работе [95] выполнены измерения радиоизотопов, образуемых в пластинах вольфрама и свинца при облучении протонами с энергией 24 ГэВ. С помощью GEANT 4 рассчитана энергия излучения радиоизотопов, образованных в металлических пластинах, и поглощенная пластинами сцинтилляторов $LSO:Ce$ и $YSO:Ce$ с одинаковыми размерами $25 \times 25 \times 3 \text{ mm}^3$. При расчетах пластина сцинтиллятора помещалась между двумя металлическими пластинами, имитируя элемент конструкции детекторного модуля типа «шашлык».

Активация пластин Pb и W измерялась через 6 месяцев после облучения протонами, и поэтому в металлических пластинах

Таблица 2. Набор радиоизотопов, образованных в некоторых неорганических кристаллических сцинтилляторах после облучения 24 ГэВ протонами с интегральным потоком $3 \cdot 10^{13}$ ч/см².

Y ₃ Al ₅ O ₁₂ :Ce(1 at. %)			YAlO ₃ :Ce (0.5 at. %)		
Изотоп	Период полураспада, дни	Активность, Бк/ед	Изотоп	Период полураспада, дни	Активность, Бк/ед
Be-7	5,31E+01	6,78E+02	Be-7	5,31E+01	6,82E+04
Na-22	926,2604	2,12E+03	Na-22	926,2604	1,88E+03
			Sc-46	8,38E+01	3,36E+03
			V-48	1,60E+01	2,96E+03
			Cr-51	2,77E+01	1,12E+04
			Mn-54	3,12E+02	3,10E+03
			Co-56	7,73E+01	1,59E+03
			Co-57	2,72E+02	4,05E+03
Co-58	7,09E+01	9,64E+01	Co-58	7,09E+01	8,45E+03
			Fe-59	4,45E+01	9,96E+02
			Co-60	1,92E+03	1,00E+02
			Zn-65	2,44E+02	4,91E+03
			As-74	1,78E+01	5,30E+03
Se-75	1,20E+02	2,70E+02	Se-75	1,20E+02	1,70E+04
Rb-83	8,62E+01	1,06E+03	Rb-83	8,62E+01	5,25E+04
Rb-84	3,28E+01	5,62E+02	Rb-84	3,28E+01	2,52E+04
			Sr-85	6,48E+01	7,99E+04
Y-88	1,07E+02	3,74E+03	Y-88	1,07E+02	1,18E+05
Zr-88	8,34E+01	1,87E+02	Zr-88	8,34E+01	9,59E+03
			Ce-139	1,38E+02	7,51E+02

$Y_2SiO_5:Ce$ (1 at. %)			$(Lu_{0.8}Y_{0.2})_2SiO_5:Ce$ (1at. %)		
Изотоп	Период полураспада, дни	Активность, Бк/ед	Изотоп	Период полураспада, дни	Активность, Бк/ед
Rb-83	8,62E+01	7,67E+02	Rb-83	8,62E+01	4,85E+01
Rb-84	3,28E+01	3,57E+02			
Sr-85	6,48E+01	8,50E+02	Sr-85	6,48E+01	1,25E+02
Y-88	1,07E+02	3,33E+03	Y-88	1,07E+02	3,55E+02
Zr-88	8,34E+01	1,32E+02			
			Eu-146	4,59	1,27E+02
			Tm-158	9,31E+01	1,47E+02
			Yb-169	3,20E+01	6,81E+02
			Lu-171	8,24E+00	4,43E+02
			Lu-172	6,70E+00	2,63E+02
			Lu-173	5,00E+02	4,97E+02
			Lu176 (присутствует всегда)	1,38E+13	1,39E+02
$GdSiO_5:Ce$ (1 at. %)			$Lu_2SiO_5:Ce$ (1 at. %)		
Изотоп	Период полураспада, дни	Активность, Бк/ед	Изотоп	Период полураспада, дни	Активность, Бк/ед
Be-7	5,31E+01	5,25E+04	Y-88	1,07E+02	1,07E+02
Na-22	949,6604	1,38E+03			
K-40	4,67525E+11	1,78E+03			
Sc-46	8,38E+01	1,95E+03			
Ca-47	4,54	5,29E+02			
V-48	1,60E+01	7,81E+02			
Cr-51	2,77E+01	6,24E+03			
Mn-54	3,12E+02	8,15E+02			
Co-58	7,09E+01	2,17E+03			
Fe-59	4,45E+01	7,18E+02			
Zn-65	2,44E+02	7,95E+02			
As-74	1,78E+01	1,23E+03			
Se-75	1,20E+02	3,00E+03			
Rb-84	3,28E+01	1,00E+03			
Nb-95	3,50E+01	3,52E+02			
Pm-143	2,65E+02	9,47E+03			
Pm-144	3,63E+02	2,51E+03			

Eu-145	5,93E+00	8,23E+02			
Eu-146	4,59E+00	8,10E+03	Eu-146	4,59E+00	2,14E+02
Gd-146	4,83E+01	1,68E+04			
Eu-148	5,45E+01	2,61E+04			
Pm-148	5,37E+00	3,76E+03			
Eu-149	9,31E+01	5,21E+04			
Gd-149	9,28E+00	5,95E+03			
Gd-151	1,24E+02	2,54E+04			
Gd-153	2,42E+02	4,52E+04			
			Tm-167	9,25E+00	9,16E+02
			Tm-168	9,31E+01	2,85E+02
			Yb-169	3,2E+01	2,21E+03
			Lu-171	8,24E+00	4,27E+02
			Lu-172	6,70E+00	3,70E+02
			Lu-173	5,00E+02	8,32E+02
			Lu-176 (naturally present)	3,6E+10	2,52E+02
PbF ₂			PbWO ₄		
Изотоп	Период полураспада, дни	Активность, Бк/ед	Изотоп	Период полураспада, дни	Активность, Бк/ед
Be-7	5,31E+01	3,12E+05	Be-7	5,31E+01	1,17E+04
Sc-46	8,38E+01	1,29E+04	Sc-46	8,38E+01	5,30E+02
			Ca-47	4,54	1,70E+02
V-48	1,60E+01	4,36E+03	V-48	1,60E+01	1,74E+02
Mn-54	3,13E+02	4,61E+03	Mn-54	3,12E+02	1,83E+02
Co-56	7,71E+01	1,57E+03			
Co-58	7,08E+01	1,37E+04	Co-58	7,09E+01	4,36E+02
Fe-59	4,46E+01	1,21E+04	Fe-59	4,45E+01	3,13E+02
Co-60	1924,889	8,80E+02			
Zn-65	2,44E+02	5,40E+03	Zn-65	2,44E+02	2,33E+02
As-74	1,78E+01	2,10E+04	As-74	1,78E+01	3,50E+02
Se-75	1,20E+02	3,99E+04	Se-75	1,20E+02	1,12E+03
Rb-83	8,62E+01	4,11E+04	Rb-83	8,62E+01	8,77E+02
			Rb-84	3,28E+01	2,21E+02
Sr-85	6,48E+01	4,85E+04	Sr-85	6,48E+01	1,38E+03
Y-88	1,07E+02	2,27E+04	Y-88	1,07E+02	5,39E+02
Zr-88	8,34E+01	3,72E+04	Zr-88	8,34E+01	1,22E+03

Nb-95	3,50E+01	4,24E+04	Nb-95	3,50E+01	4,80E+02
Zr-95	6,40E+01	1,50E+04	Zr-95	6,40E+01	2,29E+02
Ru-103	3,93E+01	4,26E+04			
Ag-105	4,13E+01	3,27E+04			
Ag-110	2,50E+02	3,15E+03			
Te-121	1,68E+01	4,32E+04	Te-121	1,68E+01	1,40E+03
Xe-127	3,64E+01	6,27E+04	Xe-127	3,64E+01	1,96E+03
			Ba-131	1,15E+01	1,56E+03
Ce-139	1,38E+02	2,14E+04	Ce-139	1,38E+02	1,77E+03
Pm-143	2,65E+02	1,70E+04	Pm-143	2,65E+02	6,75E+02
Eu-146	4,59E+00	1,01E+06	Eu-146	4,59E+00	3,76E+03
			Gd-146	4,83E+01	5,15E+03
Eu-147	2,40E+01	8,02E+04	Eu-147	2,40E+01	2,95E+03
			Eu-148	5,45E+01	2,46E+02
Yb-169	3,20E+01	1,71E+05	Yb-169	3,20E+01	9,77E+03
Lu-171	8,24E+00	2,81E+04	Lu-171	8,24E+00	2,07E+03
Lu-172	6,83E+02	1,57E+04	Lu-172	6,83E+00	1,62E+03
Lu-173	5,00E+02	3,46E+04	Lu-173	5,00E+02	3,06E+03
Hf-175	7,00E+01	1,43E+05	Hf-175	7,00E+01	1,62E+04
Ta-182	1,14E+02	1,26E+04	Ta-182	1,14E+02	2,80E+03
Re-183	7,00E+01	2,05E+05			
			Re-184	3,80E+01	8,02E+02
Os-185	9,36E+01	1,78E+05	Os-185	9,36E+01	2,09E+03
Tl-202	1,22E+01	2,86E+05	Tl-202	1,22E+01	3,61E+03
Bi-205	1,53E+01	1,51E+05	Bi-205	1,53E+01	1,95E+03
			Bi-206	6,24E+00	4,30E+02

В ₄ Si ₃ O ₁₂					
Изотоп	Период полураспада, дни	Активность, Бк/ед			
Be-7	5,31E+01	5,81E+03			
Na-22	949,6604	1,68E+02			
Sc-46	8,38E+01	3,08E+02			
V-48	1,60E+01	1,42E+02			
Mn-54	3,12E+02	8,36E+01			
Co-58	7,09E+01	1,56E+02			
As-74	1,78E+01	2,73E+02			
Rb-84	3,28E+01	2,06E+03			
Y-88	1,07E+02	2,88E+02			
Zr-88	8,34E+01	2,94E+02			
Nb-95	3,50E+01	5,74E+02			
Zr-95	6,40E+01	2,63E+02			
Ru-103	3,93E+01	7,72E+02			
Eu-146	4,59E+00	9,24E+02			
Hf-175	7,00E+01	9,72E+02			
Tl-202	1,22E+01	7,38E+02			
Bi-205	1,53E+01	9,64E+02			
Bi-206	6,24E+00	8,42E+02			
Bi-207	11505,5	1,83E+02			

обнаруживались только долгоживущие изотопы. Тем не менее, измерения, которые можно считать низкой оценкой уровня активации, показали, что полная энергия, выделенная в пластине из монокристалла LSO долгоживущими изотопами, образованными в пластинах W и Pb составила 5,92 ГэВ/с и 12,14 ГэВ/с, соответственно. При пересчете времени на конец процесса облучения протонами полная энергия, выделяющаяся в кристаллической пластине LSO между двумя металлическими пластинами, составляет 86,8 ГэВ/с для W и 93 ГэВ/с для Pb.

Учет короткоживущих изотопов осуществлялся для пластины монокристалла, расположенной между двумя пластинами Pb. Концентрации короткоживущих изотопов в Pb оценивались с помощью отношения концентрации накопленных изотопов к концентрации ^{121}Te – наиболее активного изотопа, наработанного в процессе облучения. Использовалось сечение процесса образования радиоизотопов, полученное в [80]. Анализ проведен с учетом 50 самых активных изотопов из порядка 800. Эти 50 изотопов дают около 50% активности всех образованных изотопов. Полная энергия, выделившаяся в кристаллической пластине LSO коротко- и долгоживущими изотопами, образованными в пластинах Pb, составила 755 ГэВ/с, т.е., в 63 раза больше, чем энергия, выделившаяся только вследствие долгоживущих радиоизотопов. Энергия, выделившаяся в пластине YSO оказалась в 3 раза меньше – 257 ГэВ/с. Поэтому пластинки кристаллов LSO и YSO должны демонстрировать поток фотонов на уровне 12 и 4 ГГц/см³ вследствие возбуждения кристалла излучением металлических пластин, облученных протонами. Видно, образование радиоизотопов в пластинах тяжелых металлов, используемых для структуры детектирующих блоков типа «шашлык», представляется фактором ограничивающим возможности применения модулей детектора такого типа в условиях мощного потока адронов.

Таким образом, фон фотонов, образуемый в сцинтилляторе за счет поглощения ионизирующего излучения от конструкционных материалов, особенно тяжелых металлов, может значительно

превосходить фон, обусловленный радиоизотопами, образованными в сцинтилляторах. Следовательно, сочетание в детекторных модулях тяжелых металлов и сцинтилляторов с высоким выходом приведет к неизбежному появлению фона фотонов при эксплуатации таких детекторов в поле ионизирующего излучения с мощной адронной компонентой. Помимо существенной фоновой нагрузки на фотоприемники, существование интенсивного фона фотонов существенно ухудшает временное разрешение таких детекторов. Как и в предыдущем случае, минимизация фона фотонов предполагает использование легких материалов конструкций в сочетании с легкими сцинтилляционными кристаллами с малым выходом сцинтилляций.

12 Заключение.

Сказанное выше позволяет сделать выводы о возможности использования сцинтилляционных кристаллов в детекторах ионизирующего излучения при сильных радиационных нагрузках. По-видимому, электромагнитная компонента ионизирующего излучения не является ограничивающим фактором для использования неорганических сцинтилляционных материалов в экспериментальных установках. Даже при длительном облучении в условиях больших мощностей доз γ -излучения, в кристалле может происходить преобразование дефектов за счет диффузии, вызываемой излучением, однако такие изменения не приводят к увеличению концентрации дефектов, а только к их преобразованию. Такие изменения могут быть учтены при мониторинговании спектров пропускания кристаллов, как это сделано в Коллаборации CMS [96].

Высокоэнергетические протоны приводят к наработке дефектов и радиоизотопов в сцинтилляционных материалах, тем самым формируя ограничения по их использованию. В Таблице 3 дано сравнение различных эффектов, индуцируемых в кристаллах высокоэнергетическими протонами в различных сцинтилляторах.

Таблица 3. Ожидаемый вклад различных эффектов повреждения в ухудшение свойств сцинтилляционного материала при эксплуатации в условиях высокой мощности дозы облучения с сильной адронной компонентой.

Сцинтилляционный материал	Средний атомный номер	Свето-выход	Ожидаемые эффекты повреждения		
			Повреждение оптического пропускания	Фосфоресценция	Фон фотонов вследствие образованных радионуклидов
Кросс-люминесцентный	Низкий	Низкий	Сильное	Слабая	Низкий
	Средний	Низкий	Сильное	Слабая	Низкий
	Высокий	Низкий	Сильное	Слабая	Низкий
Легированный	Низкий	Средний	Умеренное	Слабая	Низкий
		Высокий	Умеренное	Сильная	Умеренный
		Низкий	Умеренное	Слабая	Умеренный
	Средний	Средний	Умеренное	Умеренная	Умеренный
		Высокий	Умеренное	Сильная	Высокий
		Низкий	Сильное	Сильная	Умеренный
Само-активный	Высокий	Средний	Сильное	Умеренная	Высокий
		Высокий	Сильное	Сильная	Высокий
		Низкий	Умеренное	Слабая	Низкий
	Низкий	Средний	Умеренное	Слабая	Низкий
		Высокий	Умеренное	Умеренная	Умеренный
		Низкий	Умеренное	Слабая	Низкий
Средний	Средний	Умеренное	Умеренная	Умеренный	
	Высокий	Умеренное	Сильная	Умеренный	
	Низкий	Сильное	Слабая	Умеренный	
	Высокий	Сильное	Умеренная	Высокий	

Здесь использована классификация сцинтилляционных материалов, предложенная в [22].

Очевидно, что кросс-люминесцентные материалы, имеют серьезное ограничение для использования в рассматриваемых условиях в силу сильного перекрыwania полос люминесценции и фундаментального поглощения в кристаллах. Несмотря на то, что в кристаллах, вследствие малости выхода кросс-люминесценции, не будут существенными фосфоресценция и фон фотонов от радиоизотопов, наработка дефектов в них приведет к быстрому снижению выхода сцинтилляций. В некоторых кросс-люминесцентных материалах, например в BaF_2 , наряду с кросс-люминесценцией, наблюдается относительно медленная рекомбинационная люминесценция, которая может усиливать эффекты фосфоресценции и свечения материала вследствие излучения радиоизотопов.

Только относительно легкие, содержащие атомы с малыми атомными номерами, активированные материалы с малым выходом сцинтилляций имеют удовлетворительную комбинацию параметров для эксплуатации в рассматриваемом радиационном окружении. Идеальным материалом мог бы стать активированный кристаллический кварц SiO_2 . Вместе с тем, количество активаторов, которые могут изovalентно заменять ионы кремния в решетке, ограничено ионами группы железа, способными локализоваться в тетраэдрической координации. Такие ионы могут быть ответственны за медленные сцинтилляции с временами высвечивания в микросекундном диапазоне [24]. Попытка внедрения редкоземельных ионов в кварц требует разрыхления решетки кварца, например ионами гафния. Внедрение даже нескольких атомарных процентов ионов гафния неизбежно ведет к потере радиационной стойкости материала, даже при облучении γ -квантами.

Еще один подходящий материал – монокристалл Al_2O_3 . Сапфир, в отличие от кварца, является сцинтилляционным материалом [24]. Сцинтилляция сапфира обусловлена люминесценцией автолокализованных экситонов и рекомбинацией автолокализованных дырок. Таким образом, параметры этой люминесценции зависят от

мощности дозы. Можно также использовать легирование ионами группы железа с небольшим содержанием ионов редкоземельных элементов [97]. Легирование редкоземельными элементами активно изучается с точки зрения применения в интегральной оптике, однако, технология получения высококачественного $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Ce}$ пока отсутствует. Для указанных целей могут также подойти другие простые оксиды типа ZnO , Sc_2O_3 , ZrO_2 и др. Однако, технология получения объемных кристаллов высокого качества на основе оксидов пока не разработана.

Тяжелые самоактивированные материалы, ранее активно разрабатывавшиеся для электромагнитной калориметрии в физике высоких энергий, являются наиболее уязвимыми по совокупности эффектов повреждения высокоэнергетическими протонами. Интегральный поток порядка $5 \cdot 10^{13}$ частиц/см², по-видимому, является предельным для использования таких кристаллов, как PWO, в гомогенных калориметрах. Кристаллы BGO и BSO имеют несколько больший запас прочности, вследствие большого сдвига Стокса люминесценции, однако, также, как и черенковский радиатор с PbF_2 , демонстрируют быстро прогрессирующее с флюенсом сокращение полосы оптического пропускания за счет индуцированного поглощения вблизи края фундаментального поглощения. Таким образом, происходит сокращение оптического окна для черенковского света, что делает эти кристаллы малопригодными для калориметрии с одновременным считыванием сцинтилляций и Черенковского излучения [98] в интенсивных полях ионизирующего излучения с сильной адронной компонентой.

Легкие и средне тяжелые самоактивированные материалы, напротив, имеют весьма благоприятное сочетание эффектов повреждения. Самым исследованным из этой группы материалов является CeF_3 , который к настоящему времени показал наименьшее повреждение оптического пропускания под действием протонов с энергией 24 ГэВ среди исследованных кристаллов [12]. Малость эффектов радиационного повреждения кристалла CeF_3 при взаимодействии с высокоэнергетическими протонами достаточно

легко объяснить, если принять во внимание особенность структуры электронных состояний в кристалле вблизи зоны проводимости: 5d орбитали ионов Ce^{3+} , как видно из спектров оптического пропускания в кристаллах микронной толщины [99], образуют в кристалле ряд узких субзон, отделенных от основной части зоны проводимости энергетическим зазором более 2 эВ. Большинство центров окраски, которые возникают на основе анионной вакансии в позиции фтора, имеют стационарные состояния именно в этом зазоре. По этой причине наведенное поглощение в полосе сцинтилляций ионов Ce^{3+} слабо зависит от накопления дефектов, а центры окраски быстро отдают электроны ионам Ce^{3+} , предотвращая фосфоресценцию в кристаллах. Поскольку выход сцинтилляций в кристалле невысок, менее 3000 ф/МэВ, то следует ожидать значительно меньшего фона фотонов от возбуждения радиоизотопами, чем, например, в $\text{LSO}:\text{Ce}$. CeF_3 не единственный самоактивированный материал на основе церия. Среди многообразия соединений на основе церия можно подыскать двух-, трех- катионный кристаллический материал, легче CeF_3 , возможно имеющий больший выход сцинтилляций и более технологичный.

Соединения на основе Gd не являются самоактивированными сцинтилляторами и используются как активированные ионами Ce^{3+} . Более того ионы Gd имеют большое сечение захвата термальных и эпитептермальных нейтронов, что делает их использование в экспериментальных исследованиях в физике высоких энергий проблематичным. Однако, они имеют особенность, схожую с самоактивированными кристаллами на основе Ce^{3+} . Дело в том, что ионы Gd^{3+} образуют субзоны с помощью более низких возбужденных 4f-состояний $\{^6I_J, ^6P_J, J = 7/2\}\text{Gd}^{3+}$ с энергией около 4 эВ от верха валентной зоны [100]. Эта энергия слабо зависит от структуры кристалла. Для всех кристаллов на основе Gd^{3+} запрещенная зона между этими субзонами и нижней частью зоны проводимости составляет 2–3 эВ. Таким образом, следует ожидать что кристаллы на основе Gd^{3+} будут также демонстрировать приемлемое наведенное поглощение в полосе сцинтилляций при облучении высокоэнер-

гетическими протонами. Такое свойство кристаллов $Gd_2SiO_5:Ce$ было подтверждено нами после их облучения 24 ГэВ протонами с флюенсом $3 \cdot 10^{13}$ ч/см².

Анализ показывает, что в дальнейших экспериментах на коллайдере с высокой светимостью компактные гомогенные калориметры, особенно работающие в части детектора возле пучка частиц, уступят место детекторным модулям со встроенными легкими сцинтилляционными элементами небольшого размера. Такие структуры значительно уменьшат зависимость светосбора от образования дефектов в кристаллах и ослабят эффекты, связанные с фосфоресценцией и возбуждением радиолуминесценции изотопами, образованными в сцинтилляционных элементах и близлежащих конструкционных элементах.

13 Благодарности.

Автор выражает благодарность своим коллегам CMS Collaboration, ЦЕРН CERN и PANDA Collaboration, FAIR (GSI), а особенно Т. Кампореси, за то, что он инициировал изучение вопроса о границах применимости неорганических сцинтилляционных материалов в условиях интенсивного облучения; Е.Аффри А. Федорову, Р. Новотному за многие годы совместных исследований радиационного повреждения неорганических сцинтилляционных материалов; В. Дорменеву, В. Мечинскому, Р. Лекоку, М. Луччини, Ф. Неси-Тедалди за плодотворные совместные исследования и полезные обсуждения, А. Синьговскому, М. Гласеру, А. Мачарду, В. Панову, Р.Зуевскому, и А. Борисевичу за помощь в проведении измерений.

Литература

1. R.M. Brown, D.J.A. Cockerill, Electromagnetic calorimetry // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 666(2012), PP. 47–79.
2. The CERN Large Hadron Collider: Accelerator and Experiments, Vol. 1–2, CERN, Geneva, 2009.

3. FAIR - Baseline Technical Report, Vol.1, Sept. 2006.
4. International Linear Collider Technical Design Report, Tokyo, Geneva, Chicago – 12 June 2013.
5. CMS Collaboration, Search for the standard model Higgs boson decaying into two photons in pp collisions at $\sqrt{s} = 7$ TeV // Phys. Lett. B, Vol. 710 (2012), PP. 403–425.
6. Towards a Roadmap for the Upgrade of the CERN&GSI Accelerator Complexes, Proceedings of the LHC LUMI 2006 Workshop, Valencia, Spain, 16–20 October 2006.
7. M.Huhtinen, P.Lecomte, D. Luckey, F. Nessi-Tedaldi, F. Pauss, High-energy proton induced damage in PbWO_4 calorimeter crystals // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 545 (2005), PP. 63–87.
8. P. Lecomte, D. Luckey, F. Nessi-Tedaldi, F. Pauss, High-energy proton induced damage study of scintillation light output from PbWO_4 calorimeter crystals // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 564 (2006), PP. 164–168.
9. P. Lecomte, D. Luckey, F. Nessi-Tedaldi, F. Pauss, D. Renker, Comparison between high-energy proton and charged pion induced damage in PbWO_4 calorimeter crystals // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 587 (2008), PP. 266–271.
10. G. Dissertori, P. Lecomte, D. Luckey, F. Nessi-Tedaldi, F. Pauss, Th. Otto, S. Roesler, Ch. Urscheler, A study of high-energy proton induced damage in cerium fluoride in comparison with measurements in lead tungstate calorimeter crystals // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 622 (2010), PP. 41–48.
11. G. Dissertori, D. Luckey, F. Nessi-Tedaldi, F. Pauss, R. Wallny, R. Spikings, R. Van der Lelij, G. Arnau Izquierdo et al., A visualization of the damage in Lead Tungstate calorimeter crystals after exposure to high-energy hadrons // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 684 (2012), PP. 57–62.
12. G. Dissertori, D. Luckey, M. Glaser, F. Nessi-Tedaldi, F. Pauss, R. Wallny, IEEE Nuclear Science Symposium 2011, Knowville, USA, NP5.S–228.
13. A.E.Borisevitch, V.I Dormenev, M.V.Korjik et al., Stimulation of Radiation Damage Recovery of Lead Tungstate Scintillation Crystals Operating in a High Dose-Rate Radiation Environment// IEEE Trans. on Nuc. Sci.Vol. 60(2013), PP. 1368 - 1372

14. E. Auffray, Experimental Study of the Lead Tungstate Scintillator Proton-Induced Damage and Recovery // Proceedings International Conference “Inorganic Scintillators and Their Applications”, SCINNT 2011, Giessen, Germany, 11–16 September 2011.
15. E. Auffray, A. Barysevich, A. Fedorov, M. Korjik, M. Koschan, M. Lucchini, V. Mechinski, C. L. Melcher, A. Voitovich, Radiation damage of LSO crystals under γ - and 24 GeV protons irradiation // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 721(2013), PP. 76–82.
16. A. Barysevich, M. Korjik, A. Singovski et al., Radiation damage of heavy crystalline detector materials by 24 GeV protons // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 701(2013), PP. 231–234.
17. M. Korzhik, A. Barusevich, V. Dormenev, V. Mechinski, O. Missevitch, A. Fedorov, On the radiation hardness of the optical properties of scintillation crystals under high energy protons // Proceedings of the National academy of sciences of Belarus, Vol. 54 (2010), PP. 53–57 (In Russian).
18. V. Dormenev, M. Korjik, T. Kuske, V. Mechinski, R. W. Novotny, Comparison of radiation damage effects in PWO crystals under 150 MeV and 24 GeV high fluence proton irradiation // Proceedings International Conference “Inorganic Scintillators and Their Applications”, SCINT 2013, Shanghai, China, 15–19 April 2013.
19. J. Cugnon, Cascade models and particle production: A comparison // Particle Production in Highly Excited Matter, Vol. 303 (1993), PP. 271–293.
20. V. P. Eismont., A. I. Obukhov, A. V. Prokofiev, A. N. Smirnov, An Experimental Database on Proton-Induced Fission Cross-Sections of Tantalum, Tungsten, Lead, Bismuth, Thorium and Uranium // Proceedings of 2nd International Conference on Accelerator-Driven Transmutation Technology and Applications, Kalmar, Sweden (1996), PP. 592–598.
21. R.-Y. Zhu, Handbook of Particle Detection and Imaging // Springer, 2012, PP. 535–555.
22. P. Lecoq, A. Annenkov, A. Gektin, M. Korzhik, C. Pedrini, Inorganic Scintillators for Detector Systems // Springer, 2006.
23. V. A. J. Van Lint, The physics of radiation damage in particle detection // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 253 (1987), PP. 453–459.
24. M. Korzhik, Physics of scintillators on a base of oxide single crystals, Minsk, BSU, 2003 (in Russian).

25. A.Vasiliev, Relaxation of hot electronic excitations in scintillators: account for scattering, track effects, complicated electronic structure //Proceedings of the 5th International Conference "Inorganic Scintillators and Their Applications", SCINT99. Moscow State University, Moscow, 2000, PP. 43–52.
26. A. Khruchinski, M. Korzhik, P.Lecoq, The phenomenon of scintillation in solids //Nucl.Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 486(2002), PP. 381–384.
27. Tungstate Crystals //Proceedings of International Workshop on Tungstate Crystals. Rome, Italy, 12–14 Oct., 1998.
28. N. F. Mott, R. W. Gurney, Electronic Process in Ionic Crystals, Oxford, 1948.
29. M.V.Fok, An introducing in the luminescence kinetics of crystallophosphors, Moscow, 1964(in Russian).
30. B.S.Barashenkov, V.D.Toneev, An interaction of high energy particles and nuclei with nuclei, Moscow, 1972 (In Russian).
31. V.G.Nedoresov, Yu.N.Ranyk, Photofission of nuclei above the giant resonance, Kharkov, 1989.
32. M. Kobayashi, Y. Usuki, M. Ishii et al., Radiation hardness of doped PbWO₄ //Proceedings of the 5th International Conference "Inorganic Scintillators and Their Applications", SCINT99. Moscow State University, Moscow, 2000, PP. 137–146.
33. A. Annenkov, M.Korzhik, P.Lecoq, Lead tungstate scintillation material // Nucl.Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 490(2002), PP. 30–50.
34. A. V. Gektin, V. Ya. Serebrynniy, N. V. Shiran, Color centers accumulation model for ionic crystals // Ukrainian Journal of Physics, Vol. 33(1988), PP. 590–592(in Russian).
35. F. Aquillo-Lopez, F. Jaque, Unified model for all stages of F-coloring of NaCl //J. Phys. Chem. Solids, Vol. 34(1973), PP. 1949–1960.
36. A. E. Hughes, S. C. Jain, Metal Colloids in Ionic Crystals //Adv. Phys., Vol. 28(1979), PP. 717–828.
37. A. E. Hughes, Colloid Formation in irradiated insulators //Radiat. Eff., Vol. 74(1983), PP. 57–76.
38. A.N.Annenkov, E.Auffray, A.E.Borisevich, G.Yu.Drobychev, A.A.Fedorov, A.Inyakin, M.V.Korzhik, A.R.Lopatik, P.Lecoq, J.-P.Mendiburu, P.Nedelec, J.P.Peigneux, P. Rebecchi, D.Sillou, On the mechanism of radiation damage in lead tungstate crystal optical transmission //Physica Status Solidi A Appl. Res., Vol. 191(2002), PP. 277–290.

39. F. A. Kröger, The chemistry of imperfect crystals, Netherlands, Amsterdam, 1964.
40. M.P.Gilevich, I.I.Pokrovsky, Solid State Chemistry, Minsk, 1985 (In Russian).
41. C. D'Ambrosio et al., Low dose rate irradiation set-up for scintillating crystals //Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 388 (1997), PP. 119–126.
42. M. Korjik, A. Khrutchinsky, O. Missevitch et al., On the response Linearity of Scintillation Detectors in Irradiation Environment // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 523 (2004), PP. 271–274.
43. S.E.Derenzo, M.J.Weber, E. Bourret-Courchesne, M.K.Klintonberg // The quest for the ideal inorganic scintillator, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 505(2003), PP.111–117
44. R.-Y. Zhu, D.-A. Ma, H. Newman, Barium fluoride crystals for future hadron colliders // Proceedings of Scintillator and Phosphor Materials Symposium, Vol.348(1994), PP.91–98.
45. P. Lecoq, Progress on scintillator research by the Crystal Clear Collaboration // Proceedings of Scintillator and Phosphor Materials Symposium, Vol.348(1994), PP. 51–64.
46. The CMS Electromagnetic Calorimeter Group, Radiation hardness qualification of PbWO_4 scintillation crystals for the CMS Electromagnetic Calorimeter // CMS NOTE 2009/016,September, 2009.
47. Technical Design Report for PANDA Electromagnetic Calorimeter (EMC), GSI, Darmstadt, Germany, 2008.
48. BELLE Collaboration, Technical Design Report, KEK Report 95–1, 1995.
49. M. Kobayashi, Radiation Hardness of UndopedCsI Crystals Against High Energy Protons // KEK preprint series, Vol .92, National Laboratory for High Energy Physics, 1992.
50. K. Kazui, Study of the Radiation Hardness of CsI(Tl) Crystals for the Belle Detector // KEK preprint series, Vol .97, National Laboratory for High Energy Physics, 1997.
51. BaBar Collaboration, Technical Design Report, SLAC-R–95–457, 1995.
52. B.Grinyov, V.Ryzhikov, J. K. Kim, M. Jae, Scintillator Crystals, Radiation Detectors & Instruments On Their Base, Ukraine, Kharkiv, 2004.

53. B.Grinyov, M.Globus, J. K. Kim, *Inorganic Scintillators for Modern and Traditional Applications*, Ukraine, Kharkiv, 2005.
54. K.-Th. Wilke, *Kristallzüchtung*, Berlin, 1973.
55. A.A. Fedorov, V.B. Pavlenko, M.V. Korzhik et al., *Stability of scintillation light yield under small radiation doses //Radiat. Meas., Vol. 26 (1996), PP. 215–219.*
56. M.V. Korzhik, V.B. Pavlenko, T.N. Timoshchenko, V.A. Kachanov, A.V. Singovskii, A.N. Annenkov, V.A. Ligun, I.M. Solskii, J.-P. Peigneux, *Spectroscopy and origin of radiation centers and scintillation in PbWO₄ single crystals //Physica Status Solidi A Appl. Res., Vol. 154 (1996), PP. 779–788.*
57. M.Kobayashi, K.Harada, Y.Hirose, M.Ishii, I.Yamaga, *Large size bithmuth silicate (Bi₄Si₃O₁₂) scintillating crystals of good quality //Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 400(1997), PP. 392–400.*
58. *The L3 Collaboration, The L3 BGO electromagnetic calorimeter //Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 265 (1988), PP. 252–257.*
59. E. Auffray, S. Baccaro, T. Beckers, Y. Benhammou, A.N. Belsky, B. Borgia, D. Boutet, R. Chipaux, I. Dafinei, F. de Notaristefani, P. Depasse, C. Dujardin, H. El Mamouni, J.L. Faure, J. Fay, M. Goyot, S.K. Gupta, A. Gurtu, H. Hillemanns, B. Ille, et al, *Extensive studies on CeF₃ crystals, a good candidate for electromagnetic calorimetry at future accelerators // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 383(1996), PP. 367–390.*
60. M.V.Korzhik, *A general approach to increasing the radiation hardness of complex strucutre oxide scintillation crystals //Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 500(2003), PP. 116–120.*
61. A. Annenkov, E. Auffray, M. Korzhik, P. Lecoq, J.-P. Peigneux et. al., *On the origin of the transmission damage in lead tungstate crystals under irradiation // Physica Status Solidi A Appl. Res., Vol. 170 (1998), PP. 47–62.*
62. E. Auffray, P. Lecoq, M. Korzhik, A. Annenkov, O. Jarolimek, M. Nikl, S. Baccaro, A.Cecilia, M. Diemoz, *Improvement of several properties of lead tungstate crystals with different doping ions // CMS NOTE 97/54, CERN, Geneva, 1997.*
63. M. Kobayashi, Y. Usuki, M. Ishi, Y. Yazava, K. Hara, M. Tanaka, M. Nikl, S. Baccaro, A. Cecilia, M. Diemoz, I. Dafinei, *Improvement in radiation hardness of PbWO₄ scintillating crystals by La-doping // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 404 (1998), PP. 149–156.*

64. S. A. Smirnova, M. V. Korzhik, Inorganic scintillators and their applications, Eds. P.Dorenbos, and Carel W.E. van Eijk, Delft University Press, 1995 PP. 495–499
65. V. G. Baryshevsky, B. I. Minkov, P. Dorenbos, C. W. E. van Eijk, M. V. Korzhik et al., Spectroscopy and scintillation properties of cerium doped YAlO_3 single crystals // *J. Phys. Condens. Matter*, Vol. 5 (1993), PP. 7893–7902.
66. M. Nikl, E. Mihokova, V. Laguta, J. Pejchal, S. Baccaro, A. Vedda, Radiation damage processes in complex-oxide scintillators // *Proceedings of SPIE*, Vol. 6586 (2007).
67. P. Dorenbos, C. W. E. van Eijk, A. J. J. Bos, C. L. Melcher, Afterglow and thermoluminescence properties of $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ scintillation crystals // *J. Phys. Condens. Matter*, Vol. 6 (1994), PP.4167–4180.
68. K. Yang, C. L. Melcher, P. D. Rack, L. A. Eriksson, Effects of calcium codoping on Charge traps in LSO:Ce crystals // *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, Vol. 56 (2009), PP.2960–2965.
69. M. Kobayashi, M. Ishii, C. L. Melcher, Radiation damage of a cerium-doped lutetium oxyorthosilicate single crystal // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, Vol. 335 (1993), PP. 509–512.
70. M.Kobayashi, M.Ishii, C.L.Melcher, Radiation Hardness Of LSO:Ce // Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, 1993 IEEE Conference Record, PP. 151–155.
71. P. Kozma, P. Kozma Jr., Radiation sensitivity of GSO and LSO scintillation detectors // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, Vol.539 (2005), PP.132–136.
72. S. Blahuta, A. Bessiere, B. Viana, V. Ouspenski, E. Mattman, J. Lejay, D. Gourier, Defects identification and effects of annealing on $\text{Lu}_{2(1-x)}\text{Y}_{2x}\text{SiO}_5$ (LYSO) single crystals for scintillation application, // *Materials*, Vol. 4 (2011), PP. 1224–1237.
73. R. Mao, L. Zhang, R.-Y. Zhu, Crystals for the HHCAL Detector Concept // *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, Vol. 59 (2012), PP. 2229–2236.
74. R. Mao, L. Zhang, R.-Y. Zhu, LSO/LYSO Crystals for Future HEP Experiments // *J. Phys. Conf. Ser.*, Vol. 293 (2011), PP. 012004.
75. R.-Y. Zhu, On optical bleaching of barium fluoride crystals // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, Vol.332 (1993), PP.113–120.

76. V. Dormenev et al., Stimulated recovery of the optical transmission of PbWO_4 scintillation crystals for electromagnetic calorimeter after radiation damage // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol.623 (2010), PP. 1082–1085.
77. M. Kobayashi et.al., Radiation damage of BGO crystals due to low energy γ rays, high energy protons and fast neutrons // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Vol. 206 (1983), PP. 107–117.
78. M. Kobayashi et.al., Radiation hardness of undoped CsI crystals against high energy protons // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol.328 (1993), PP. 501–505.
79. F. Nessi-Tedaldi, Crystals for high-energy calorimetry in extreme environments // Int. J. Mod. Phys. A, Vol. 20 (2005), PP. 3826–3829.
80. T. Enquist, W. Wlazole, P. Armbruster et al, Isotopic yields and kinetic energies of primary residues in 1 A GeV $^{208}\text{Pb}+p$ reactions // Nucl. Phys. A, Vol. 686 (2001), PP. 481–524.
81. W. Wade, J. Gonzales-Vidal, R. Glass, G. Seaborg, Spallation-Fission Competition in Heaviest Elements: Triton Production, UCRL3640, March 1955, P.1–14.
82. D. J. Morrissey, Systematics of momentum distributions from reactions with relativistic ions // Phys. Rev. C Nucl. Phys., Vol. 39 (1989), PP. 460–470.
83. M.Kobayashi, Private communication.
84. E.Auffray, M. Korjik, A. Singovski, Experimental Study of Lead Tungstate Scintillator Proton-Induced Damage and Recovery // IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. 59 (2012), PP. 2219–2223.
85. Ph. Burachas, F. A. Danevich, A. Sh. Georgadze, H. V. Klapdor-Kleingrothaus, V. V. Kobychiev, B. N. Kropivnyansky, V. N. Kuts, A. Muller, V. V. Muzalevsky, A. S. Nikolaiko, O. A. Ponkratenko, V. D. Ryzhikov, A. S. Sai, I. M. Solsky, V. I. Tretyak, Yu. G. Zdesenko, Large volume CdWO_4 crystal scintillators // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol. 369 (1996), PP. 164–168.
86. Y. Hofer, P. Leocmte, F. Nessi-Tedaldi, Afterglow measurements of lead tungstate crystals // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, Vol.433 (1999), PP. 630–636.
87. J.G. Rogers, C. J. Batty, Afterglow in LSO and its possible effect on energy resolution // IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. 47 (2000), PP. 438–445.

88. A. Douraghy, D. L. Prout, R. W. Silverman, A. F. Chatziioannou, Evaluation of scintillator afterglow for use in a combined optical and PET imaging tomograph // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.A, Vol.569 (2006), PP. 557–562.
89. A. Vedda, M. Nikl, M. Fasoli, E. Mihokova, J. Pejchal, M. Dusek, G. Ren, C. R. Stanek, K. J. McClellan, D. D. Byler, Thermally stimulated tunneling in rare-earth-doped oxyorthosilicates // Phys. Rev. B Condens. Matter. Mater. Phys., Vol. 78 (2008), PP. 195123–1/195123–8.
90. E. Mihokova, K. Vavru, P. Horodysky, W. Chewpraditkul, V. Jary, M. Nikl, Thermally Stimulated Luminescence in Ce-Doped Yttrium Oxyorthosilicate // IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. 59 (2012), PP. 2085–2088.
91. E. G. Yukihara, L. G. Jacobsohn, M. W. Blair, B. L. Bennett, S. C. Tornga, R. E. Muenchausen, Luminescence properties of Ce-doped oxyorthosilicate nanophosphors and single crystals // J. Lumin., Vol. 130 (2010), 2309–2316.
92. T. Aitasalo, J. Hölsä, M. Lastusaari, J. Legendziewicz, J. Niittykoski, F. Pellé, Delayed luminescence of Ce³⁺ doped Y₂SiO₅ // Opt. Mater. (Amst.), Vol. 26 (2004), PP. 107–112.
93. M. Lucchini, E. Auffray, A. Fedorov, M. Korjik, V. Mechinski, N. Naumenko, A. Voitovich // Proceedings International Conference “Inorganic Scintillators and Their Applications”, SCINT 2013, Shanghai, China, 15–19 April 2013.
94. E. Auffray, A. Fedorov, M. Korjik, M. Lucchini, V. Mechinski, N. Naumenko, A. Voitovich, Radiation damage of Lu₂SiO₅:Ce and Y₂SiO₅:Ce scintillation crystals under gamma and high energy proton irradiation // IEEE Trans. Nucl. Sci., In press in 2013.
95. E. Auffray, A. Fedorov, M. Korjik, D. Kozlov, M. Lucchini, V. Mechinski, The impact of proton induced radioactivity on the Lu₂SiO₅:Ce, Y₂SiO₅:Ce scintillation detectors // Approved for oral presentation at Nucl. Sci. Sump. and Med. Imag. Conf., Seoul, Korea, 27 Oct. 2013.
96. L. Zhang, A Diode-Pumped Solid State Blue Laser for Monitoring the CMS Lead Tungstate Crystal Calorimeter at the LHC // J. Phys. Conf. Ser., Vol.404 (2012), PP. 012042.
97. N. Kristianpoller, A. Rehavi, A. Shmilevich, D. Weiss, R. Chen, Radiation effects in pure and doped Al₂O₃ crystals // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, Vol.141 (1998), PP. 343–346.

98. N. Akchurin, F. Bedeschi, A. Cardini, M. Cascella et al., A comparison of BGO and BSO crystals used in the dual-readout mode // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, Vol. 640 (2011), PP. 91–98.
99. C. Dujardin et al., Spectroscopic properties of CeF_3 and $\text{LuF}_3:\text{Ce}^{3+}$ thin films grown by molecular beam epitaxy // *Opt. Mater. (Amst.)*, Vol. 16 (2001), PP. 69–76.
100. V. G. Baryshevsky, D. M. Kondratiev, M. V. Korzhik et al., Mechanism of scintillations in cerium-doped gadolinium orthosilicate $\text{Gd}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ crystals // *J. Lumin.*, Vol. 60–61 (1994), PP. 956–959.

ИССЛЕДОВАНИЕ ДЛИННЫХ КРИСТАЛЛОВ GSO И LYSO ДЛЯ СОЗДАНИЯ СЕГМЕНТИРОВАННЫХ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ КАЛОРИМЕТРОВ

В. Калинин¹, Е. Величева¹, А. Лобко²

¹Объединенный институт ядерных исследований 141980 Дубна, Россия

²Институт ядерных проблем Белорусский государственный
университет, 220030 Минск, Беларусь

1 Введение.

При изучении элементарных частиц в физике высоких и сверхвысоких энергий требуется не просто узнать, какие частицы родились, но и с большой точностью измерить их характеристики, прежде всего траекторию, импульс и энергию. Всё это выполняется с помощью детекторов. Трековые детекторы измеряют траекторию и импульс частиц, не внося при этом никаких искажений, а калориметры, которые полностью поглощают частицу (спектрометры полного поглощения), измеряют ее энергию.

В экспериментах электромагнитные калориметры используются для измерения полной энергии и идентификации частиц (в том числе нейтральных). Преимущества калориметров состоят в следующем: 1) измерение энергии частиц в диапазоне от нескольких МэВ до максимально достижимой; 2) относительное энергетическое разрешение калориметров увеличивается с ростом энергии как \sqrt{E} , где E - энергия падающей частицы; 3) детектирование как заряженных, так и нейтральных частиц в сегментированном калориметре позволяет получить информацию о координатах частиц и ливней;

4) возможность идентифицировать частицы, например, разделять фотоны, электроны, протоны, пионы и др.; 5) возможность создания триггерных систем селективного отбора событий.

Высокоэнергичные электроны и фотоны, проходя через вещество сцинтиллятора, сталкиваясь в основном с электронными оболочками атомов, порождают электромагнитный ливень электронов, позитронов и фотонов. Количество частиц в ливне будет быстро расти, пока средняя энергия частицы не понизится до критической. Требуемая длина калориметра зависит от типа и максимальной энергии первичной частицы и определяется радиационной длиной (X_0) используемого типа сцинтиллятора. Так, например, длина калориметра, где поглощается 95 % энергии падающей частицы равна $L_{95\%} \approx L_{\max} + 0.08Z + 9.6$, где L_{\max} – длина сцинтиллятора, на которой образуется максимальное количество вторичных частиц ($L_{\max} \approx \ln(E_0 / E_c)$). Поперечный размер сцинтиллятора зависит от электромагнитного ливня, который создается многократным рассеянием электронов и позитронов в веществе сцинтиллятора. Поэтому поперечный размер кристалла по всей глубине ливня определяется радиусом Мольера (R_M). Например, в кристалле с радиусом $2R_M$ поглощается 95% энергии ливня.

Энергетическое разрешение идеального однородного электромагнитного калориметра бесконечных размеров пропорционально \sqrt{E} и зависит только от статистических флуктуаций числа частиц. На практике энергетическое разрешение электромагнитного калориметра зависит от флуктуаций различного типа с различными энергетическими зависимостями и определяется, как

$$\frac{\sigma}{E} = \frac{a}{\sqrt{E}} \oplus \frac{b}{E} \oplus c,$$

где a – статистические флуктуации числа фотоэлектронов в электромагнитном ливне; b – шумы электроники; c – флуктуации утечки ливня из объема калориметра, структурные неоднородности сцинтиллятора, неоднородности сигнала и температуры и неопределен-

ности калибровок. Как правило, эти эффекты нескоррелированы, и, поэтому, они должны быть добавлены в квадратуре.

Таким образом, выбор сцинтиллятора определяется типом и энергией регистрируемых частиц и требованиями к параметрам и задачам, решаемым данным калориметром. Например, калориметр для эксперимента COMET (по поиску процесса электрон-мюонной конверсии в атоме алюминия [1]) должен: во-первых, иметь энергетическое разрешение не хуже 5% (так как события, регистрируемые в нем лежат в узкой энергетической области 105 ± 0.5 МэВ) и координатное разрешение не хуже 1 см (rms), и, во-вторых, должен решать следующие задачи: 1) измерение энергии электрона с высокой точностью; 2) выработку временного сигнала триггера для системы регистрации событий; 3) корреляцию положения трека электрона и его энергии; 4) достоверно разделять электроны, нейтроны и низкоэнергетические гамма кванты [2]. Исходя из этого, для данного калориметра в качестве сцинтиллятора были выбраны два кандидата – LYSO и GSO кристаллы, которые имеют близкие оптические параметры и удовлетворяют требованиям и задачам, решаемым в эксперименте COMET. Причем, кристаллы LYSO и GSO должны иметь длину не менее 12 см, что следует из значений их радиационных длин $X_{0-LYSO} = 1.14$ и $X_{0-GSO} = 1.39$ см [3]. При этом поперечные размеры кристаллов должна быть больше 4 см для полного поглощения энергии электромагнитного ливня, т.к. радиусы Мольера для LYSO и GSO кристаллов имеют значения $R_{M-LYSO} = 2.03$ и $R_{M-GSO} = 2.3$ см [3]

Необходимо отметить, что стоимость кристаллов с такими геометрическими размерами ($4 \times 4 \times 12$ см³ для LYSO и $5 \times 5 \times 15$ см³ для GSO) очень высока и, при общем количестве (~2000) кристаллов в калориметре эксперимента COMET, может составить огромную сумму. В этой связи и, в соответствии с требованием к геометрическому разрешению в калориметре (не хуже 1 см), были выбраны кристаллы с геометрическими размерами $2 \times 2 \times 12$ см³ для LYSO и $2 \times 2 \times 15$ см³ для GSO кристаллов. Однако для кристаллов с такой геометрией не выполняется требование оптимальности размера,

позволяющее уменьшить потерю фотонов по длине кристалла: отношение длины к поперечному размеру должно быть меньше или равно 3 ($L/H \leq 3$) [4]. Поэтому, в этом случае будут значительные потери фотонов по длине кристалла, возникающие, как следствие многократного отражения и поглощения фотонов на границе поверхности кристалла, и за счет вытекания энергии из кристалла. И как следствие, это будет ухудшать параметры калориметра на данных типах кристаллов.

В связи с этим необходимы дополнительные исследования по поиску методов, позволяющих скомпенсировать ухудшение параметров калориметра с такой геометрией кристаллов, что и является целью данной работы. Для реализации этой цели решались следующие задачи:

- экспериментальное исследование оптических параметров кристаллов, связанных с потерей световых фотонов по длине и сбором фотонов в кристалле;

- моделирование на основе пакета SLitran1 для того чтобы:

- a) определить или уточнить оптические параметры кристаллов (разработать оптическую модель), необходимые для моделирования калориметра с использованием программы Geant4;

- b) определить тип и параметры светоотражающих оберток (тефлон, майлар, и др.), позволяющих получить требуемые энергетическое и пространственное разрешения калориметра и оптимальную структуру сегментированных модулей для триггерной системы;

- Geant4 моделирование электромагнитного (ECAL) калориметра с использованием полученных оптических параметров кристаллов и светоотражающих оберток.

2 Экспериментальное исследование оптических параметров LYSO и GSO кристаллов.

Кристаллы для COMET калориметра должны иметь высокое энергетическое разрешение, хороший световой выход, быстрое время высвечивания и высокую радиационную стойкость. Этим требованиям удовлетворяют кристаллы LYSO и GSO [3,5].

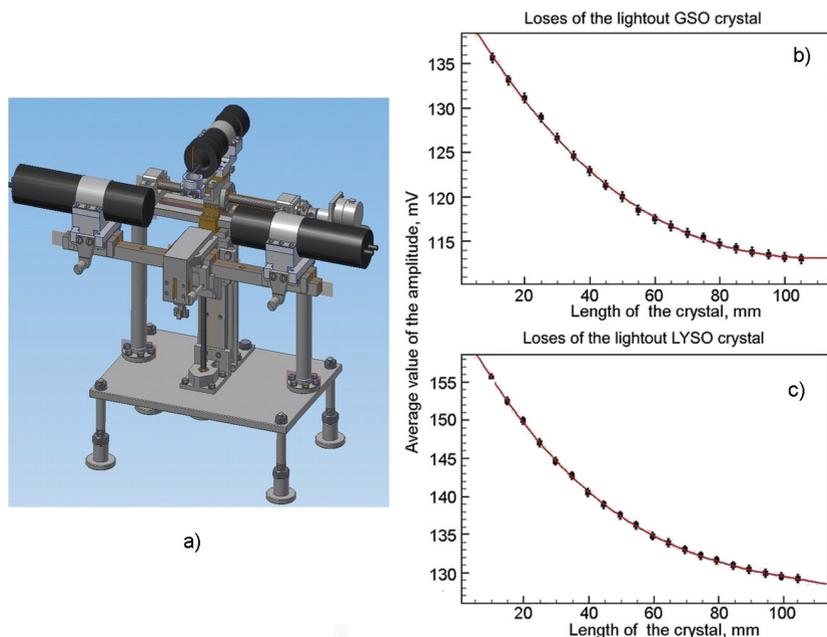


Рис.1. *a* – общий вид прецизионного измерительного стенда; *b* – зависимость потерь световыхода по длине кристалла GSO; *c* – LYSO.

Для изучения потерь фотонов по длине и оптических параметров, влияющих на улучшение светосбора в сцинтилляторе с геометрией $L/H > 3$, было проведено экспериментальное исследование и измерение параметров LYSO и GSO кристаллов. Экспериментально измерялись потери световыхода по длине кристалла, неоднородность, энергетическое разрешение и была получена сравнительная оценка световыхода для этих кристаллов. Данные исследования выполнялись на разработанном авторами прецизионном измерительном стенде (рис.1), полученные результаты опубликованы в [6].

На рисунке 1а представлен общий вид стенда, состоящего из: оптической системы, собранной на двух малошумящих быстродействующих фотоумножителях (PMT) H1949-50 (HAMAMATSU), со временем нарастания фронта не более 3 нс; прецизионной ме-

ханической системы с точностью перемещения позиции радиоактивного источника по длине не хуже одного микрона; триггерной системы, состоящей из быстрого сцинтиллятора и модулей NIM; быстрых широкополосных усилителей; 5 ГГц 14-ти разрядного диджитайзера. Этот стенд позволил провести точные измерения в заданных позициях вдоль поверхности кристалла и гарантировал стабильность и повторяемость результатов измерений на партии кристаллов.

На рисунках 1в, 1с показаны зависимости потерь световыхода по длине для кристаллов GSO и LYSO, измеренные на энергии 1274.5 КэВ (^{22}Na). Как видно из рисунков, для данной геометрии кристаллов, значительная часть фотонов (~ 20%) не доходит до PMT, вследствие чего, уменьшается точность определения энерговыделения в кристалле и ухудшается энергетическое разрешение.

Уменьшение потерь световыхода по длине может быть достигнуто за счет изменения коэффициента отражения на границе поверхности кристалла (применения светоотражающих пленок, уменьшающих утечку фотонов ливня из объема кристалла и потери на рассеяния и поглощения фотонов на границе поверхности). В этой связи, было выполнено экспериментальное исследование влияния различных типов светоотражающих материалов на величину потерь световыхода, энергетического разрешения и энерговыделения в кристалле. Так как процессы, проходящие в обертках светоотражающих материалов, не зависят от типа сцинтиллятора, а определяются только оптическими свойствами пленок, далее все результаты исследований приведены для кристалла GSO. В качестве светоотражающих материалов использовались тефлон (AF1601, один слой толщиной 60 мкм) и майлар (лавсан толщиной 20 мкм с двух сторонним напылением алюминия толщиной 10 нм).

На рисунке 2 представлены результаты экспериментальных исследований влияния материалов тефлона и майлара на оптические параметры кристалла GSO. А именно, показана зависимость потерь световыхода по длине кристалла GSO для материала тефлона и майлара (рис.2а, б), соответственно. Коэффициент потерь световыхо-

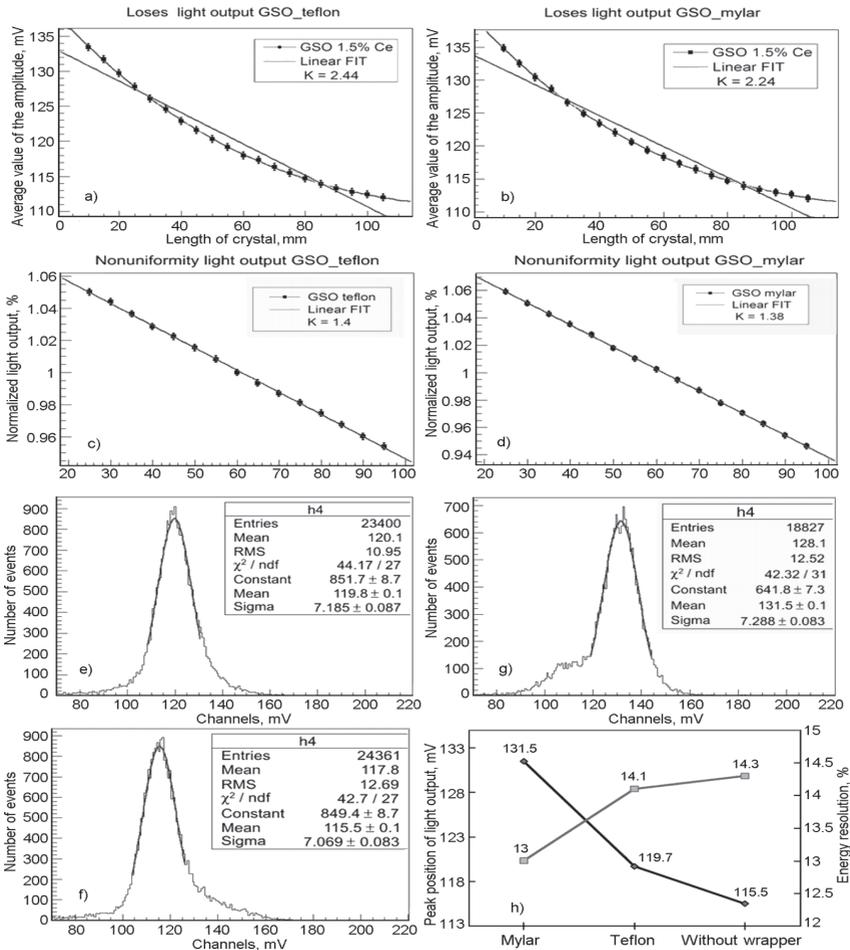


Рис.2. Экспериментальное исследование влияния светоотражающих материалов на оптические параметры GSO кристалла: *a* – зависимость потери световыхода по длине кристалла при обертывании тefлоном, *b* – майларом; *c* – коэффициент неоднородности световыхода при обертывании тefлоном; *d* – майларом; *e* – энергетические спектры, полученные для кристаллов обернутых тefлоном; *g* – майларом, *f*– майларом и без обертки; *h* – максимальные значения световыхода и энергетического разрешения для кристаллов, обернутых майларом, тefлоном и без обертки.

хода по длине кристалла для материала тефлона равен $\sim 2.4\%/см$ (рис.2а), а для майлара $\sim 2.2\%/см$ (рис.2б). На рисунке 2е, ф, г даны энергетические спектры GSO кристалла для разных типов материала обертки, а именно: е) – тефлона, г) – майлара и ф) – не обернутого кристалла. На рисунке 2h даны максимальные значения величины световыхода для GSO кристалла, обернутого майларом, тефлоном и кристалла без обертки, а также энергетические разрешения для этих случаев, полученные из анализа спектров (рис. 2е, ф, г).

Из анализа этих результатов видно, что при использовании пленки майлара потери фотонов в кристалле немного меньше, хотя его коэффициент отражения $Refl.Coeff_{Al} \cong 0.78$, а тефлона $Refl.Coeff_{TF} \cong 0.98$ [7]. Это объясняется тем, что материал тефлона имеет относительно высокий коэффициент пропускания генерируемых фотонов, и при толщине пленки 60 мкм часть электромагнитного ливня выходит из кристалла [8].

В то же время из анализа коэффициентов неоднородности световыхода по длине следует, что он мало зависит от материала обертки (при обертке как тефлоном, так и майларом примерно одинаковый и равен $\sim 1.4\%/см$) и определяется, главным образом, свойствами самого кристалла (рис.2с, д). Поэтому, когда кристалл обернут в майларовую пленку, утечка фотонов из объема кристалла уменьшается, и энергетическое разрешение на энергии 1274.5 КэВ (^{22}Na) будет иметь наилучшее значение – 13%. Значения энергетического разрешения при тех же условиях для кристалла, обернутого тефлоновой пленкой и кристалла без обертки – 14.1% и 14.3%, соответственно.

Таким образом, для длинных кристаллов с геометрией $L/H > 3$ и $H \leq R_M$, необходимо использовать светоотражающие обертки с минимальными утечками фотонов из кристалла. Это позволит в сегментированном калориметре на длинных кристаллах повысить точность регистрации энерговыделения и улучшить энергетическое разрешение.

3 Исследование оптических параметров длинных кристаллов с использованием пакетов SLitrani.

Детальное изучение оптических параметров длинных кристаллов было проведено на базе моделирования кристаллов в пакете SLitrani (Super Light Ray Tracing in ANIsotropic media). Пакет SLitrani – пакет Монте-Карло моделирования процессов распространения света в изотропных и анизотропных средах [9]. В этой программе оптические параметры среды задаются как функции, зависящие от длины волны, энергии фотона и других величин, что позволяет более точно описывать процессы внутри исследуемых сред.

Для совпадения результатов моделирования с реальными экспериментальными измерениями необходимо, чтобы оптическая модель, включенная в моделирование, хорошо описывала исследуемые типы кристаллов. Моделирование с использованием пакета SLitrani решало следующие основные задачи:

- изучение ливня и зависимости потерь фотонов по длине в кристаллах с неоптимальной геометрией;
- уточнение оптических параметров, необходимых для Geant4 моделирования ECAL калориметра;
- оценка достоверности оптической модели (сравнение результатов моделирования с экспериментальными данными).
- исследование потерь фотонов в материалах светоотражающих оберток.

3.1 Оптическая модель длинных GSO кристаллов

Спектр излучения является одним из основных оптических параметров кристалла. Он зависит от содержания церия в объеме вещества и определяется испусканием света при переходах возбужденных электронов в ионе Ce^{3+} в зону проводимости. Поэтому, спектр GSO кристалла содержит два основных пика с максимумами на длине волны 423 и 452 нм, которые связаны с $5d-4f$ (${}^2F_{5/2}$) и $5d-4f$ (${}^2F_{7/2}$) переходами Ce^{3+} , соответственно [5]. В зависимости от концентрации церия в кристалле этих пиков в спектре излучения

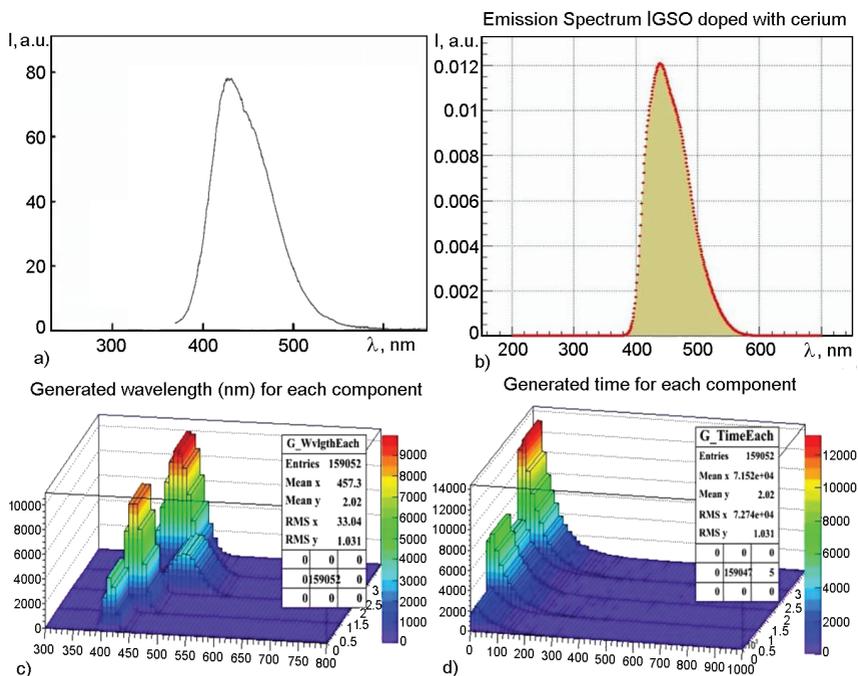


Рис. 3 *a)* – эмиссионный спектр реального кристалла, *b)* – оптической модели GSO кристалла, допированного 1.5% церием; *c)* – амплитудное и *d)* – временное распределения этих компонент разложения.

может быть больше и каждый отдельный вклад этих максимумов в полный спектр может сильно отличаться друг от друга, что изменяет величину световыхода и длительность высвечивания кристалла и т.д.

Для моделирования эмиссионный спектр реального GSO кристалла с содержанием церия 1.5% (рис. 3а) [5] был разложен на четыре компоненты, имеющие форму Гаусса, композиция которых, хорошо описывает данный спектр (рис. 3б). В таблице 1 приведены параметры декомпозиции этих гауссиан. На рисунке. 3с, 3д показаны амплитудное и временное распределения компонент разложения спектра GSO кристалла, допированного 1.5% церием, полученные в результате моделирования в пакете SLitrani.

Таблица 1. Параметры декомпозиции эмиссионного спектра реального GSO кристалла

Пик	Длина волны (λ , нм)	Среднеквадратичное отклонение (σ)	Среднее значение
1	414.77	9.12	84495.23
2	433.03	14.46	273950.94
3	499.45	28.32	187494.84
4	462.05	22.37	461845.79

Данные этих распределений были использованы при получении реальных оптических параметров: быстрой (FastTime) и медленной (SlowTime) компонент времени высвечивания, световых выхода (LightOutput) как функций от длины волны (энергии) для моделирования GSO кристалла и ECAL калориметра в пакете Geant4. Кроме того, при моделировании в оптическую модель GSO кристалла были включены: поперечное сечение фотоэлектрического поглощения; длина поглощения; показатели преломления и отражения, которые также были заданы как функции от длины волны.

Поперечное сечение фотоэлектрического поглощения характеризует вероятность фотоэффекта, рассчитанную на один электрон. Эффективное сечение фотоэффекта зависит от энергии, длины волны и атомного номера вещества. Расчет сечения фотоэффекта GSO кристалла (Gd_2SiO_5), допированного 1.5% церием (Ce), для модели был сделан на основе веб-программы «XCOM», которая выполняет данный тип вычислений, как для любого отдельного элемента, так и для их соединений или смеси [10]. В данных вычислениях GSO кристалл рассматривался как соединение (смесь), а результат (рис. 4а) был получен в виде сумм соответствующих величин для атомарных составляющих. Весовые коэффициенты, т.е. фракции по массе компонентов GSO и Ce, вычислены в «XCOM» по химическим формулам, а для всего соединения – по массе составляющих компонентов. Так же были вычислены длина поглощения и показатель преломления GSO:1.5% Ce кристалла как функции от энергии.

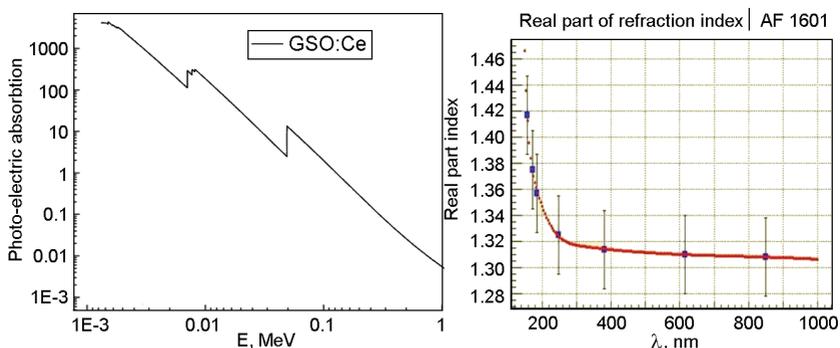


Рис.4 а) – поперечное сечение фотоэлектрического поглощения; б) – показатель преломления для материала обертки Teflon AF1601.

В результате SLitrani моделирования были получены: энергетический спектр и спектр сцинтилляции кристаллов как функции от энергии фотона; время высвечивания, потери фотонов по длине кристалла, потери фотонов в светоотражающих обертках, общие потери фотонов, квантовая эффективность регистрации как функции длины волны. Эти значения параметров были использованы для моделирования ECAL калориметра с помощью программы Geant4.

Моделирование потерь фотонов вдоль длины кристалла в пакете SLitrani проводилось при условии, что энергия радиационного источника, его перемещение по длине кристалла и расстояние до его поверхности были такими же, как и в аналогичных экспериментальных измерениях [6]. На рисунке 5 и в таблице 2 представлены значения основных параметров GSO кристалла, полученные при

Таблица 2. Сравнение значений оптических параметров GSO кристалла промоделированных и измеренных экспериментально

Оптический параметр	Измеренное значение	Промоделированное значение
Время высвечивания, нс	420 ± 0.5	430
Длительность переднего фронта, нс	17 ± 0.03	15
Потери световых выходов вдоль длины, %	17.9 ± 1.2	16.4

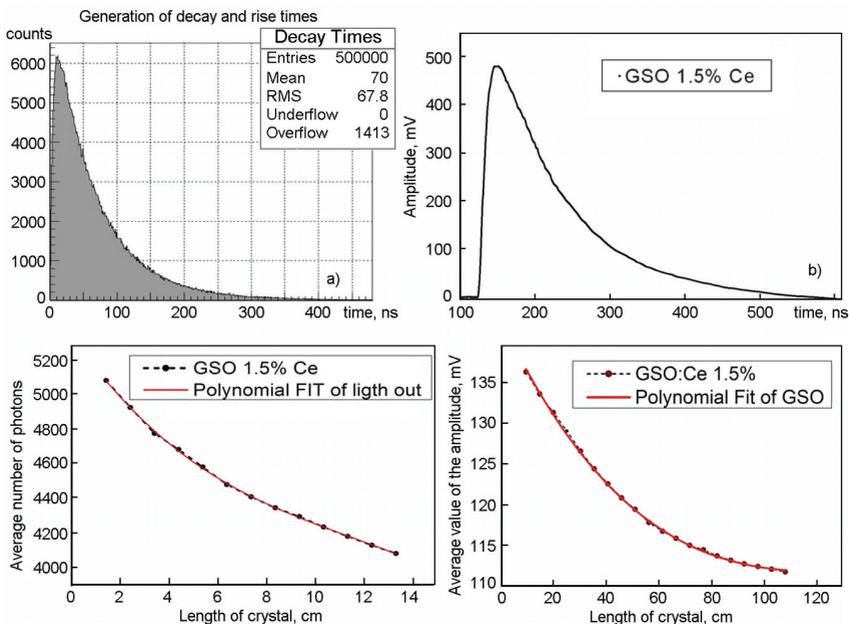


Рис.5. Значения оптических параметров GSO кристалла, полученные при моделировании (SLitrani) и в результате экспериментальных измерений: *a)* – временной спектр сигнала промоделированный, *b)* – экспериментально измеренный; *c)* – зависимость потерь фотонов по длине кристалла промоделированные и *d)* – экспериментально измеренные.

моделировании на базе пакета SLitrani и в результате экспериментальных измерений [6, 11]. Анализ результатов (табл.2, рис.5) показал, что разница промоделированной и измеренной величины потерь световых выходов по длине кристалла составляет $\sim 3\%$. Также получено хорошее соответствие между промоделированными и измеренными значениями времени высвечивания, длительности переднего фронта (рис. 5*a, b*), а также эмиссионными спектрами (рис. 3*a, b*). Все это подтверждает адекватность оптической модели и параметров реального GSO кристалла.

2.2 Исследование параметров светоотражающих оберток

Определение типа и параметров светоотражающих оберток для достижения заданного пространственного разрешения калориметра и оптимальной структуры сегментированных модулей для триггерной системы и исследование оптических свойств светоотражающих оберток (Teflon, Tyvek, Mylar и др.) было выполнено с использованием пакета SLitrani. Основные параметры светоотражающих оберток (Tyvek, Mylar) как функции от энергии, были взяты из базы данных программы SLitrani [9]. Распределение коэффициентов отражения (рис. 4b) и поглощения в зависимости от длины волны для корректного описания материала тефлона (AF1601) и майлара были вычислены, используя параметры, приведенные в [12,13].

На рисунке 6 представлен результат моделирования в пакете SLitrani потерь фотонов по длине для GSO кристалла, обернутого тефлоном, из которого следует, что большая часть фотонов теряется внутри объема материала кристалла ($\sim 70\%$). В материале светоотражающей пленки потери составляют $\sim 7\%$, а потери на отражение и поглощение между оберткой и кристаллом $\sim 8\%$. Результаты SLitrani моделирования потерь фотонов для различных

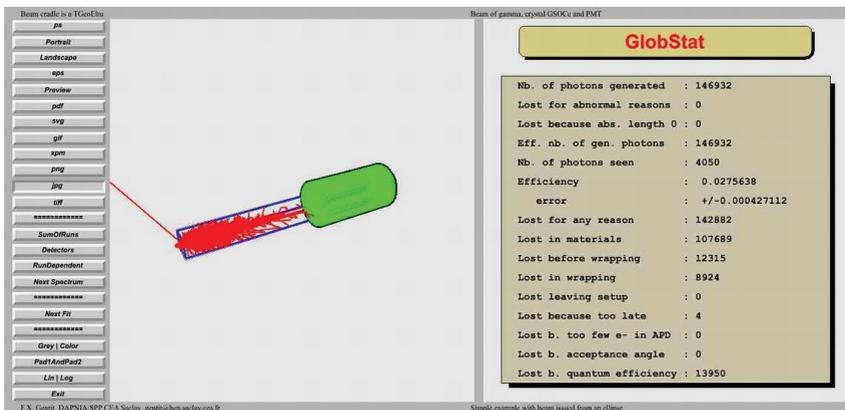


Рис. 6. Визуализация моделирования в пакете SLitrani для GSO кристалла.

Таблица. 3. Потери фотонов в светоотражающем материале

Материал светоотражающей пленки	Потери фотонов, %
Тефлон (AF1601)	7
Алюминизированный лавсан (коэффициент диффузии 0.5)	9
Алюминизированный лавсан (коэффициент диффузии 0.1)	9.9
Полированная сталь (коэффициент отражения 95%)	8.7

светоотражающих материалов оберток кристаллов приведены в таблице 3.

Вытекание электромагнитного ливня может привести к перекрестным оптическим помехам между кристаллами, т.е. к более высокой вероятности неправильной идентификации кристалла и тем самым к ухудшению пространственного разрешения калориметра. С другой стороны, зеркальное отражение имеет тенденцию уменьшать эффективность светосбора в кристалле [14]. Это связано с тем, что перенос световой энергии в кристалле, в этом случае, сопровождается многократным отражением фотонов от его поверхности. Поэтому световой выход кристалла сильно зависит от углового распределения отраженного света. В этой связи, необходимо учитывать степень диффузности отражателя, от которого зависит доля отражающихся под малыми углами фотонов [4]. Считается, что диффузный отражатель дает лучшую эффективность накопления фотонов по сравнению с зеркальной поверхностью [4, 14].

3 Geant4 моделирование ECAL калориметра

Исследование параметров длинных GSO и LYSO кристаллов и ECAL калориметра, выполненного на этих типах кристаллов, с использованием светоотражающих оберток, было выполнено на основе Geant4 моделирования [15].

В моделировании были использованы разработанная оптическая модель и оптические параметры кристаллов, которые были получены в результате экспериментальных измерений и моделирования в пакете SLitranі (табл.4). Также в таблице 4 даны основные

Таблица 4. Параметры кристаллов и процессы, включенные Geant4 моделирование ECAL калориметра

Кристалл Параметр	LYSO (Ce:1.5%)		GSO (Ce:1.5%)	
	справочный	померенный	справочный	померенный
Геометрические размеры [мм]	20 x 20 x 120			
Время высвечивания: быстрая/медленная компонента [нс]	40-60/300-600	60/470	40-60	47
Коэффициент отражения	1.85	SLitranil	1.81	SLitranil
Световыход [фотоны/МэВ]	25000-32000	31000	8000-11500	8400
Длина задержания [см]	20.8	SLitranil	30.3	SLitranil
Спектр сцинтилляции		SLitranil		SLitranil
Длина поглощения [см]	–	SLitranil	–	SLitranil
Коэффициент преломления	–	SLitranil	–	SLitranil
Физические процессы	photoelectric effect, Compton and multiply scattering, gamma conversion, Bremsstrahlung, pair production			
Оптические процессы	optical absorption, Rayleigh scattering, optical scattering reflection, reflection on the interaction between surfaces			

Примечание: SLitranil¹ означает, что соответствующий параметр, получен при моделировании в пакете SLitranil, и является некоторой функцией.

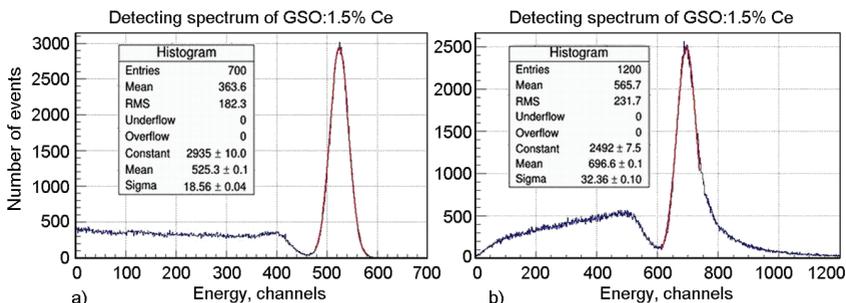


Рис.7 Моделирование энергетического спектра оптической модели GSO кристалла для положения источника гамма квантов *a)* – в центре над кристаллом и *b)* – на переднем торце кристалла.

физические и оптические процессы, включенные в Geant4 моделирование. Остальные параметры кристаллов, такие как плотность, радиационная длина, радиус Мольера, эффективный атомный номер и др., необходимые для Geant4 моделирования, были взяты из литературы [3, 5].

3.1 Geant4 моделирование длинных кристаллов.

На рисунке 7 представлены промоделированные энергетические спектры оптической модели GSO кристалла, для двух случаев, когда источник гамма излучения находился в центре над кристаллом (рис. 7*a*) и расположен на переднем торце кристалла (рис. 7*b*). Полученные при этом энергетические разрешения 8.3% (рис. 7*a*) и 10.8% (рис. 7*b*) совпадают со значениями экспериментальных измерений, выполненных в аналогичных условиях [6]. При моделировании сбора сгенерированных в модели GSO кристалла фотонов был выполнен с помощью разработанной модели матричного лавинного фотодиода (APD), в которой была использована вычисленная по параметрам реального APD S8664-1010 (Hamamatsu) [16] зависимость квантовой эффективности регистрации фотонов от длины волны.

3.2 Geant4 моделирование ECAL калориметра

Как уже было отмечено ранее, диффузный отражатель (тефлон) дает лучшую эффективность накопления фотонов по сравнению с зеркальным отражателем (майлар, миллипор, Тувек и др.). Поэтому, моделирование калориметра для эксперимента СОМЕТ было проведено с использованием оптической модели, полученной в SLitran1, с диффузным отражателем тефлон.

При моделировании калориметр был помещен в однородное магнитное поле 1 Тл (как это будет в эксперименте); «размытость» по энергии электронного пучка составляла 105 ± 0.5 МэВ, а по геометрии ± 1 см. Моделирование калориметра проводилось для 2-х случаев:

- 1) каждый кристалл обернут двумя слоями тефлона (AF1601) толщиной 60 мкм;
- 2) каждый кристалл обернут тефлоном, и они были сгруппированы в модули из 4 (2×2) кристаллов, обернутые майларом, чтобы определить оптимальную структуру сегментации кристаллов для выработки сигнала триггера.

Результат моделирования калориметра на кристаллах, обернутых тефлоном, представлен на рисунке 8. Энергетическое разрешение калориметра, выполненного на GSO кристаллах, составило $\sim 6\%$ (рис. 8 *d*), а LYSO кристаллах $\sim 4.8\%$ (рис. 8 *c*), что совпадает с экспериментально измеренными значениями на 105 МэВ электронном пучке прототипов калориметра [17]. На рисунке 8 *a* показан промоделированный спектр энерговыделения в калориметре на GSO кристаллах, обернутых тефлоном (при размытии электронного пучка по геометрии ± 1 см), а на рисунке 8 *b* – энергетический спектр калориметра при сегментации GSO кристаллов в “майларовые” модули по 4 (2×2) кристалла (при размытии электронного пучка по геометрии ± 6 см).

Как следует из анализа результатов (рис. 8 *a*, *b*), объединение кристаллов в модули по 4 (2×2) кристалла, обернутые майларом, ухудшает энергетическое разрешение калориметра. В этом случае структура калориметра становится неоднородной, а величина по-

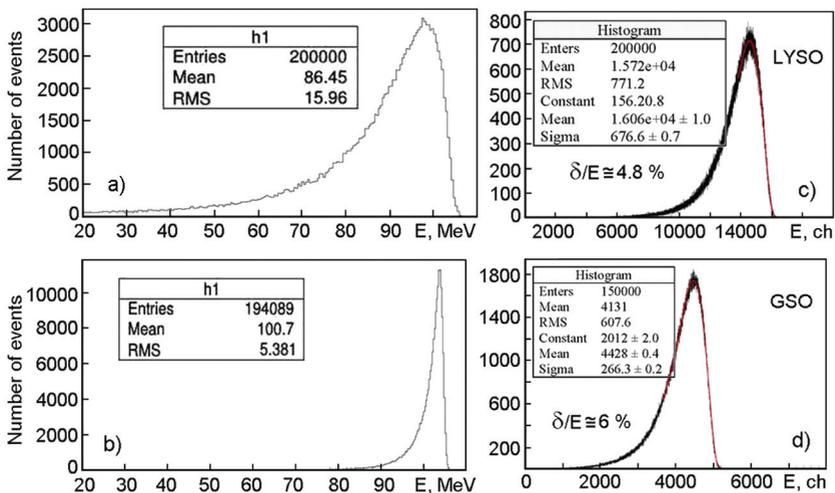


Рис.8. Моделирование ECAL калориметра в однородном магнитном поле 1 Тл на пучке электронов с энергией 105 МэВ: *a)* – энерговыделение в калориметре при сегментации GSO кристаллов в “майларовые” модули; *b)* – энерговыделение в калориметре на GSO кристаллах, обернутых тефлоном; *c)* – энергетический спектр калориметра на LYSO кристаллах; *d)* – энергетический спектр калориметра на GSO кристаллах

терь энергии (фотонов) внутри калориметра зависит не только от процессов рассеяния и поглощения на материале кристалла и обочек, но и от траектории электронного пучка. Учитывая, что в калориметре эксперимента COMET все треки электронов, падающих на поперечную поверхность калориметра, являются криволинейными, эта неоднородность будет приводить к ошибкам регистрации энерговыделения электронов в калориметре, и, как следствие, ухудшать энергетическое разрешение. Поэтому сегментирование кристаллов в модули для выработки триггера целесообразно выполнить на уровне логических сигналов, т.е. объединением в модули из 4 (2×2) кристаллов без обертки в майларовую пленку.

Таким образом, оптимальная структура калориметра может быть следующей:

- боковые поверхности кристаллов должны иметь диффузное отражение, т.е. должны быть обернуты тефлоном для улучшения эффективности накопления фотонов за счет диффузного отражения и для поперечной однородности калориметра;
- передняя торцевая поверхность кристаллов должна иметь зеркальное отражение, т.е. может быть обернута пленкой майлара, миллипора, Tyvek и др. для улучшения светосбора.

Это существенно улучшит сбор фотонов в калориметре и, следовательно, энергетическое разрешение.

4. Выводы.

Так как кристаллы, выбранные в качестве кандидатов для создания калориметра СОМЕТ эксперимента, имеют неоптимальную геометрию, были проведены исследования методов, позволяющих скомпенсировать ухудшение параметров калориметра. А именно, экспериментальное и с помощью программ SLitrani и Geant4 изучение потерь фотонов по длине кристалла; изучение параметров и типов светоотражающей обертки, для достижения заданного энергетического и пространственного разрешения калориметра, а также, оптимальной структуры сегментированных модулей для триггерной системы.

Как следует из анализа результатов, требуемые значения энергетического и координатного разрешения в эксперименте СОМЕТ, могут быть достигнуты, когда боковые поверхности кристаллов обернуты тефлоном, а передняя торцевая поверхность имеет зеркальное отражение. Сегментирование кристаллов в модули для выработки триггера лучше выполнить на уровне логических сигналов без обертывания в майларовую пленку.

Литература

1. Y.Kuno, Y. Okada, Rev Mod. Phys., 73, 151 (2001).
2. Y.G. Cui (Brookhaven) et al. (СОМЕТ Collaboration), KEK-2009-10, 208 (2009).

3. http://www.omegapiezo.com/crystal_scintillators.html;
<http://www.vniia.ru/rgamo/literat/obzor/doc/obzorrus.pdf>;
http://www.greenstar.ru/articles/cpektrometruchekue_komplekcs.pdf;
<http://www.isma.kharkov.ua/eng/>
4. М.Е. Глобус, Б.В. Гринев. Неорганические сцинтилляторы. Новые и традиционные материалы. – Харьков: АКТА, 2000, 408 с.
5. Woo Gyo Lee et al., J. of Nucl. Science and Technology, Supp. 5, 572 (2008).
6. V. Kalinnikov, E. Velicheva, Physics of Elementary Particles and Atomic Nuclei, Letters, 11, 418, (2014).
7. Janeczek M. IEEE Transactions on Nuclear Science 59(3), 490 (2012).
8. G. Graham, H. Yamamoto. NIM A307, 240 (1991).
9. F.X. Gentit, CMS-NOTE-2001-044, (Oct. 2001); <http://gentitfx.fr/SLitrani/>
10. <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1-t.html>
11. V. Kalinnikov, E. Velicheva, COMET-doc-108-v1.
12. Min K. Yang, Roger H. French, Edward W. Tokarsky, Optical properties of Teflon® AF amorphous Fluoropolymers, - J. Micro/Nanolith. MEMS MOEMS 7 (3), 033010 (Jul–Sep 2008)
13. Андреев С.В., Губанова Л.А. Исследование оптических постоянных металлов // Оптические и лазерные технологии, сборник статей, Санкт-Петербург, 2001,-С. 74-83
14. Шульц Ф. Дегенхардт К., Грисмер Д., Стивен И., Патент на изобретение №: 2476906. (Steven E , Carsten D., Volkmar Schulz V. Patent WO2009024895 A3).
15. Agostinelli S. et al. GEAN4 Collaboration, Nucl. Instr. and Meth, A506, 250 (2003)
16. <http://www.hamamatsu.com/jp/en/product/category/3100/3002/H1949/>
17. Kou Oishi, 14th COMET International CM, September 22-26, 2014, Tbilisi, Georgia.

МЕТОДЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ ДИФФУЗИИ ЧАСТИЦ
В ОБЛАСТЬ ГАЛО И ИХ ПРИМЕНЕНИЕ ДЛЯ
МОДЕЛИРОВАНИЯ СИСТЕМЫ КОЛЛИМАЦИИ
БОЛЬШОГО АДРОННОГО КОЛЛАЙДЕРА

А.И. Сытов^{1,2,3}, И.В. Сафронов²

¹*НИИ ЯП Белорусского государственного университета,
г. Минск, Беларусь*

²*Белорусский государственный университет, г. Минск, Беларусь*

³*Национальный институт ядерной физики,
Университет г. Феррары, Италия*

1 Введение.

Работа посвящена моделированию системы коллимации на основе изогнутых кристаллов на Большом адронном коллайдере (БАК) [1]. При коллимации изогнутый кристалл становится дефлектором частиц, достигших опасно высокой амплитуды бетатронных или синхротронных колебаний и угрожающих стабильной работе всего ускорителя (гало частиц). Преимуществом кристалла является большой угол отклонения частиц и значительно меньшие их потери по сравнению с аморфным коллиматором. Это может стать основой для проекта модернизации Большого адронного коллайдера, в ходе которой светимость пучков возрастет в несколько раз по сравнению с проектной. В этом случае вследствие ядерных реакций внутри аморфного коллиматора использование последнего может стать недостаточным из-за низкой эффективности отклонения частиц и их значительных потерь. Незахваченные коллиматором частицы

и поток вторичных частиц представляют угрозу для стабильной работы сверхпроводящих магнитов и создают дополнительные шумы в детекторах. Изогнутые кристаллы позволяют отклонять большинство частиц непосредственно в поглотитель за одно прохождение кристалла.

В данной работе предлагаются методы моделирования входного распределения пучка при падении на кристалл и проводится моделирование эффективности системы коллимации. Моделирование проводится при помощи программы CRYSTAL [2,3], в которой реализуется Монте-Карло моделирование траекторий частиц в усредненном межплоскостном потенциале с учетом рассеяния на ядрах и электронах, неупругих и ионизационных потерь энергии частиц.

2 Аналитическая модель диффузии гало в области коллимации на БАК.

Движение частиц в ускорителе в поперечной плоскости можно определить как комбинацию бетатронных и синхротронных колебаний. Бетатронные колебания возникают благодаря магнитному полю фокусирующих и дефокусирующих квадруполов. Поперечные координаты и углы частиц, изменяющиеся за счет бетатронных колебаний, можно записать в виде [4]:

$$x = x_b \cos \psi_b, \quad (1)$$

$$\theta = \frac{dx}{ds} = -\frac{x_b}{\beta} \left(\sin \psi_b - \frac{1}{2} \frac{d\beta}{ds} \cos \psi_b \right) = -\frac{x_b}{\beta} (\sin \psi_b + \alpha \cos \psi_b), \quad (2)$$

где $x_b = \sqrt{\beta \varepsilon}$ и ψ_b – соответственно амплитуда и фаза бетатронных колебаний, ε – эмиттанс, α и β -функции – так называемые параметры Твисса, s – продольная координата в ускорителе, $d\psi_b/ds = 1/\beta$.

Физическая причина синхротронных колебаний заключается в отклонении траекторий частиц от оптимальной фазы высокочастотных резонаторов и, следовательно, отклонение импульсов частиц

от заданного значения $\Delta p/p = \delta_p \neq 0$. Образующееся отклонение частицы в поперечном направлении можно выразить, используя дисперсию D и ее первую производную $D' = dD/ds$ [5]:

$$x = x_s \cos \psi_s = D \delta_p \cos \psi_s, \quad (3)$$

$$\theta = \frac{dx}{ds} = D' \delta_p \cos \psi_s, \quad (4)$$

где x_s – амплитуда синхротронных колебаний.

Комбинация бетатронных и синхротронных колебаний может быть записана как:

$$x = x_b \cos \psi_b + x_s \cos \psi_s, \quad (5)$$

$$\theta = \frac{dx}{ds} = -\frac{x_b}{\beta} (\sin \psi_b + \alpha \cos \psi_b) + D' \delta_p \cos \psi_s. \quad (6)$$

Частицы со слишком большими значениями амплитуд x_b или x_s (или обеих) называются гало пучка.

Чтобы построить модель диффузии, мы должны определить диффузионный шаг λ , как средний рост амплитуды колебаний за один оборот по ускорителю. Будем рассматривать только коллимацию бетатронного гало. Моделирование динамики гало пучка в ускорителе можно начать с момента попадания частицы в область коллимации, т.е. когда ее амплитуда бетатронных колебаний достигает значения $x_0 = x_c - x_s$, и частица уже может попасть на край кристалла при координате x_c . Средний рост амплитуды бетатронных колебаний x_b после n оборотов в ускорителе составит:

$$\Delta x_b = x_n - x_0 = n\lambda. \quad (7)$$

Условие попадания частицы на кристалл: $x > x_c$. Это условие можно достичь при различных комбинациях фаз ψ_b и ψ_s около 0 (благодаря малому значению $n\lambda$). Их максимальное абсолютное значение можно соответственно найти из условий:

$$(x_0 + n\lambda) \cos \psi_b + x_s - x_c = 0; \psi_s = 0, \quad (8)$$

$$x_0 + n\lambda + x_s \cos \psi_s - x_c = 0; \psi_b = 0. \quad (9)$$

Раскладывая $\cos \psi_{b,s}$ в ряд и пренебрегая слагаемыми третьего порядка малости, получаем:

$$|\psi_b|_{\max} = \sqrt{\frac{2n\lambda}{x_0 + n\lambda}}, \quad |\psi_s|_{\max} = \sqrt{\frac{2n\lambda}{x_s}}. \quad (10)$$

В соответствии с соотношением (5), которое является суммой двух независимых гармонических колебаний, можно заметить, что область попадания частиц на кристалл – эллипс, заключенный между линиями $\psi_b = \pm |\psi_b|_{\max}$ и $\psi_s = \pm |\psi_s|_{\max}$. Площадь эллипса равна $\pi |\psi_b|_{\max} |\psi_s|_{\max}$. Интервал изменения фаз: $(-\pi, \pi)$. Следовательно, площадь области всевозможных фаз ψ_b и ψ_s равна $4\pi^2$. Таким образом, вероятность попадания на кристалл на n -ном обороте при фиксированной амплитуде синхротронных колебаний запишется как отношение между двумя полученными площадями:

$$p_n = \frac{\pi |\psi_b|_{\max} |\psi_s|_{\max}}{4\pi^2} = \frac{1}{2\pi} \frac{n\lambda}{\sqrt{(x_0 + n\lambda)x_s}} \approx \frac{n\lambda}{2\pi} \frac{1}{\sqrt{x_0 x_s}}. \quad (11)$$

При этом необходимо усреднить величину $1/\sqrt{x_0 x_s}$. Распределение амплитуд колебаний x_0 и x_s было принято гауссовым. Эта величина может быть рассчитана один раз численно. Для нашей модели важно только, что это значение является константой. Таким образом, вероятность попадания частицы на кристалл на n -ном обороте может быть записана как:

$$p_n = \frac{n\lambda}{2\pi} \left\langle \frac{1}{\sqrt{x_0 x_s}} \right\rangle = an, \quad (12)$$

где a – константа. Вероятность непопадания частицы на кристалл на n -ном обороте в ускорителе, следовательно, равна $1 - p_n$. Вероятность попадания частицы на кристалл после n оборотов, т.е. вероятность $n-1$ непопаданий и попадания на n -ном обороте равно:

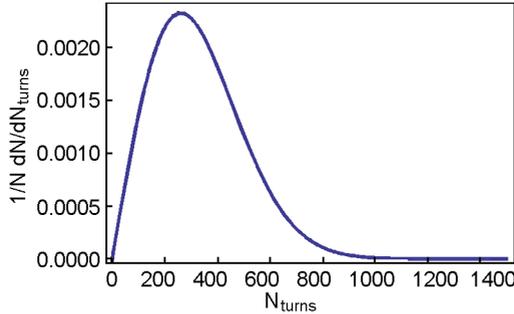


Рис. 1. Распределение количества оборотов частицы, необходимого для попадания на кристалл в планируемом эксперименте по коллимации на Большом адронном коллайдере.

$$P_n = p_n \prod_{i=0}^{n-1} (1 - p_i) = an \prod_{i=0}^{n-1} (1 - ai), \quad (13)$$

что при разложении на множители и замене интегралов на суммы дает:

$$P_n \approx ane^{-\frac{1}{2}an^2}. \quad (14)$$

Важно отметить, что предположение о большом количестве оборотов является правильным, поскольку его среднее значение превышает 200 для планируемого эксперимента на Большом адронном коллайдере [1], как показано на рисунке 1.

Распределение роста амплитуды бетатронных колебаний на входе в кристалл может быть записано в виде:

$$p_{\Delta x_b}(\Delta x_b) = \sum_{n=0}^{\infty} P_n p_{n\Delta x_b}(\Delta x_b) = \sum_{n=0}^{\infty} ane^{-\frac{1}{2}an^2} p_{n\Delta x_b}(\Delta x_b), \quad (15)$$

где $p_{n\Delta x_b}(\Delta x_b)$ – распределение роста амплитуды на n -ном обороте. Поскольку при возрастании амплитуды имеет место сложение большого количества малых случайных возмущений, логично предположить, что распределение $p_{n\Delta x_b}(\Delta x_b)$ может быть определено как распределение Пуассона:

$$p_{n\Delta x_b}(\Delta x_b) = \frac{(\Delta x_b / \lambda)^n}{n!} e^{-\Delta x_b / \lambda}. \quad (16)$$

Так как мы определяем это как распределение количества оборотов по ускорителю, необходимого для достижения частицей амплитуды бетатронных колебаний, равной $x_0 + \Delta x_b$, то распределение роста амплитуды бетатронных колебаний при попадании на кристалл запишется в виде:

$$p_{\Delta x_b}(\Delta x_b) = \sum_{n=0}^{\infty} a n e^{-\frac{1}{2} a n^2} \frac{(\Delta x_b / \lambda)^n}{n!} e^{-\Delta x_b / \lambda}. \quad (17)$$

Важно подчеркнуть, что это распределение не зависит от физической природы возмущения частиц. Необходимо знать только диффузионный шаг λ в области коллимации и среднеквадратичные амплитуды бетатронных и синхротронных колебаний σ_0 и σ_s как входные параметры. Чтобы смоделировать прицельный параметр (по формуле (5)):

$$\Delta = x - x_c = x_b \cos \psi_b + x_s \cos \psi_s - x_c \quad (18)$$

и угол падения частицы на кристалл (6), необходимо получить четыре независимые случайные величины: Δx_b , x_s , ψ_b and ψ_s . Первые две из них можно получить как обратные функции распределений – $F_{x_s}^{-1}$, $F_{\Delta x_b}^{-1}$ соответственно. Эти функции были рассчитаны численно и проинтерполированы. Фазы ψ_b и ψ_s – равномерно распределенные величины в области попадания на кристалл (см. (8-9)). Таким образом, амплитуды и фазы могут быть получены как:

$$x_s = F_{x_s}^{-1}(\xi_1); \quad (19)$$

$$x_b = x_c - x_s + F_{\Delta x_b}^{-1}(\xi_2); \quad (20)$$

$$\psi_s = \left| \psi_s \right|_{\max} \sqrt{\xi_3} \cos(2\pi\xi_4); \quad (21)$$

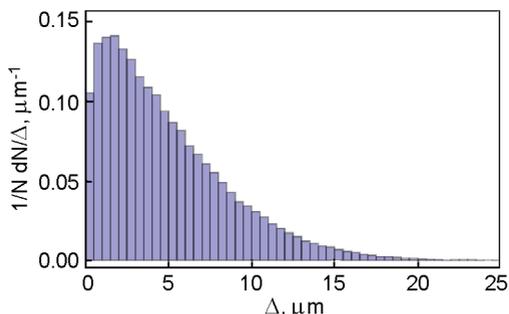


Рис. 2. Распределение прицельного параметра падения частиц на кристалл в планируемом эксперименте по коллимации на Большом адронном коллайдере.

$$\psi_b = |\psi_b|_{\max} \sqrt{\xi_3} \sin(2\pi\xi_4), \quad (22)$$

где ξ_1 , ξ_2 , ξ_3 и ξ_4 – независимые случайные величины, равномерно распределенные в интервале $(0,1)$. $|\psi_b|_{\max}$ и $|\psi_s|_{\max}$ могут быть получены из (8-9) при замене $n\lambda$ на Δx_b . Этот метод позволяет моделировать входное распределение на несколько порядков быстрее, чем в явном численном эксперименте. Компьютерное время генерации входного распределения по формулам (19-22) пренебрежимо мало по сравнению со временем, требуемым для расчета траектории частицы в кристалле и ускорителе. Полученные этим методом распределения прицельного параметра и входного угла приведены на рисунках 2, 3. Это распределение использовалось при моделировании системы коллимации Большого адронного коллайдера.

3 Моделирование динамики пучка в ускорителе и кристалле.

Для моделирования траекторий заряженных частиц в кристалле была разработана программа CRYSTAL [2,3]. Она включает 1D и 2D модели. Первая модель была разработана для моделирования движения заряженных частиц в поле кристаллических плоскостей

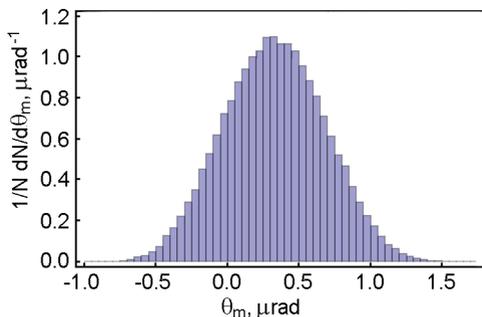


Рис. 3. Распределение угла падения частиц на кристалл в планируемом эксперименте по коллимации на Большом адронном коллайдере.

и использовалась для расчета отклонения частиц посредством плоскостного каналирования в изогнутом кристалле. 2D модель позволяет рассчитывать траектории частиц в поле кристаллических плоскостей и может применяться для моделирования осевого каналирования или многократного объемного отражения в одном кристалле [6-8]. В данной работе использовалась только одномерная модель.

Главное преимущество данной программы заключается в универсальности алгоритма. Это достигается благодаря сплайн-интерполяции всех основных функций: межплоскостного (осевого) потенциала, электростатического поля, ядерной и электронной плотности. Коэффициенты интерполяции содержатся во входных файлах, позволяя использовать тот же алгоритм для различных кристаллов и их ориентации.

Другое преимущество сплайн интерполяции – скорость вычислений. Например, для расчета любой функции в одномерной модели требуется только 10 математических операций.

В простейшем случае для Большого адронного коллайдера (протоны энергией 7 ТэВ, проходящие через кристалл длиной в несколько мм, в ориентации каналирования) скорость вычисления достигала 100 000 траекторий в кристалле в минуту на ядро процессора Intel Core i7. Программа также имеет возможность расчета

в параллельном режиме на суперкомпьютере. В программу включена процедура перебора начальных данных, благодаря которой за один расчет можно смоделировать траектории частиц для таблицы начальных параметров таких, как длина, угол изгиба кристалла, его ориентации и т.д.

Для моделирования динамики пучка в ускорителе была разработана специальная программа, учитывающая бетатронные и синхротронные колебания. Бетатронные колебания рассчитываются по формулам (1-2). Последний эффект моделируется путем решения системы дифференциальных уравнений [9], в качестве зависимых переменных в которых выступают энергия и фаза частицы при прохождении высокочастотных резонаторов. Ионизационные потери [10], как и потери энергии при квазиупругом рассеянии на ядрах [11], моделируемые в кристалле, являются источниками потерь энергии.

Все необходимые параметры для Большого адронного коллайдера были взяты из официальных источников [12-13]. Полученная программа проверяет последовательно возможные столкновения частиц со всеми коллиматорами. Также моделируется смещение тьюна благодаря объемному заряду в точках взаимодействия [14] и хроматичность [15]. Кроме этого включена опция модифицированного метода Монте-Карло [16]. Этот метод рассматривает статистический вес каждой частицы, который равен 1 в начале траектории и уменьшается в зависимости от вероятности ядерного взаимодействия в кристалле. Эта вероятность рассчитывается вдоль моделируемой траектории и мала для каналирующих частиц.

Таким образом, полученная программа позволяет смоделировать систему коллимации Большого адронного коллайдера в планируемом на 2015 г. эксперименте по коллимации на основе изогнутых кристаллов [1].

Экспериментальная конфигурация системы коллимации БАК на основе изогнутых кристаллов [1] представляет собой кристалл как первичный коллиматор, помещенный на расстоянии 6σ от центра пучка (σ – среднеквадратичная амплитуда бетатронных

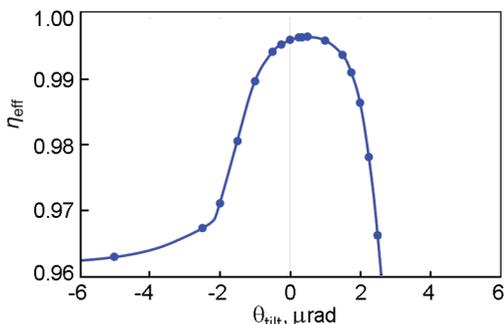


Рис. 4. Зависимость эффективности коллимации от ориентации кристалла.

колебаний), и вторичный коллиматор TCSG.6R7.B1, установленный ниже по пучку на расстоянии 7σ [1], а также ряд коллиматоров, установленных в различных точках Большого адронного коллайдера, предназначенных для перехвата как бетатронного, так и синхротронного гало, расположенных на $7.5\sigma - 900\sigma$ [1,13]. Эксперимент по коллимации на БАК – эксперимент по выводу бетатронного гало. Коллиматоры на Большом адронном коллайдере расположены симметрично с обеих сторон относительно пучка.

В эксперименте по выводу [1] горизонтального гало планируется использовать кристалл кремния длиной 4 мм и изогнутый на 50 мкрад вдоль плоскостей (110). Входное распределение гало частиц при падении на кристалл было получено в разделе 1 [3], изображенное на рисунках 2-3.

Зависимость эффективности коллимации от ориентации кристалла изображена на рисунке 4 [3]. Полученные точки были рассчитаны со статистикой от 10^5 до 10^7 частиц. Максимальная эффективность коллимации достигает 99.66%.

4 Выводы.

Разработана модель диффузии гало пучка в области коллимации. Эта модель позволяет быстро смоделировать входное распределение гало частиц при падении на кристалл с учетом бетатронных

и синхротронных колебаний. Она не зависит от природы увеличения амплитуды колебаний при условии медленной диффузии, что делает ее универсальной.

Также разработана программа моделирования динамики пучка в ускорителе с учетом бетатронных и синхротронных колебаний. При помощи разработанных программ был смоделирован планируемый эксперимент по системе коллимации Большого адронного коллайдера на основе изогнутых кристаллов. Была рассчитана эффективность коллимации в зависимости от угла наклона кристалла. Максимальная эффективность достигает 99.66%. Таким образом система коллимации на основе изогнутых кристаллов является перспективным методом для удаления гало из Большого адронного коллайдера и других ускорителей.

Работа поддерживается грантом Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований и Министерства образования Республики Беларусь Ф14МВ-010.

Список литературы

- 1 Mirarchi D. Final layout and expected cleaning for the first crystal-assisted collimation test at the LHC / D. Mirarchi et al. // Proc. of International Particle Accelerator Conference, Dresden, Germany, June 15-20, 2014. – MOPRI110.
- 2 Сытов А.И. Применение изогнутого кристалла для вывода протонного пучка из накопительного кольца / А.И. Сытов // Вестник БГУ. – 2014. – Сер. 1. №2. – С. 48-52.
- 3 Sytov A.I., CRYSTAL simulation code and new coherent effects in bent crystal at the LHC / A.I. Sytov, V.V. Tikhomirov // Submitted to Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. – Preprint: arXiv: 1412.0110 [physics.acc-ph]. – 2014. – 18 p. – Mode of access: <http://arxiv.org/abs/1412.0110> – Date of access: 29.11.2014.
- 4 Tikhomirov V.V. The miscut angle influence on the future LHC crystal based collimation system / V.V. Tikhomirov, A.I. Sytov // Problems of Atomic Science and Technology (Kharkov, Ukraine). – 2012. – Vol. 57 N1. – P. 88-92.
- 5 Previtali V. Performance evaluation of a crystal-enhanced collimation

- system for the LHC / V. Previtali // EPFL Thesis, No. 4794, Lausanne, 2010. – 203 p.
- 6 Tikhomirov V.V. Multiple volume reflection from different planes inside one bent crystal / V.V. Tikhomirov // Phys. Lett. B – 2007. – Vol. 655. – P. 217–222.
 - 7 Guidi V. On the observation of multiple volume reflection from different planes inside one bent crystal / V. Guidi, A. Mazzolari, V.V. Tikhomirov // J. Appl. Phys. – 2010. – Vol. 107, Issue 11. – P.114908.
 - 8 Tikhomirov V.V. Multiple volume reflection as an origin of significant scattering intensity and radiation power increase/ V.V. Tikhomirov, A.I. Sytov // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. – 2013. – Vol. 309. – P. 109-114.
 - 9 Коломенский А.А. Теория циклических ускорителей / А.А. Коломенский, А.Н. Лебедев // М.: Гос. изд-во физ.-мат. литературы, 1962. – 352 с.
 - 10 Biryukov V. Crystal channeling and its application at high energy accelerators / V. Biryukov, Y. Chesnokov, V. Kotov // Springer–Verlag, 1997. – 219 p.
 - 11 Baishev I.S., The STRUCT program user’s reference manual / I.S. Baishev et al // Mode of access: <http://www-ap.fnal.gov/users/drozhdin/>. – Date of access: 31.08.2012. – 43 p.
 - 12 LHC Optics Web Home // CERN [Electronic resource]. – Mode of access: <http://lhcoptics.web.cern.ch/lhc-optics/www/>. – Date of access: 05.12.2014.
 - 13 Crystal Collimation // CERN [Electronic resource]. – Mode of access: <http://lhcoptics.web.cern.ch/lhc-optics/www/>. – Date of access: 01.08.2014.
 - 14 Brüning O.S. What do we need to understand and optimize the LHC? / O.S. Brüning // Proc. of 2nd Evian 2010 Workshop on LHC Beam Operation, Evian-les-bains, France, December 7-9, 2010. – P. 85-89.
 - 15 Steinhagen R.J. Tune and chromaticity diagnostics / R.J. Steinhagen // CERN, Geneva, Switzerland. – Mode of access: <http://cds.cern.ch/record/1213281/files/p317.pdf>. – Date of access: 04.03.2014. – 43 p.
 - 16 Соболев И.М. Метод Монте-Карло / И.М. Соболев // М.: Наука, 1968. – 64 с.

МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ
УРАНА В МИШЕНЯХ ДЛЯ НАРАБОТКИ ^{99}Mo
НЕРАЗРУШАЮЩИМ МЕТОДОМ ГАММА-
ПЛОТНОМЕТРИИ

А.В. Кремер, Ю.А. Кушнир, А.А. Леоненко, Д.А. Леоненко,
Ю.И. Лещенко, А.П. Малков, В.С. Романовский, А.И. Теллин

*Открытое акционерное общество «Государственный научный центр –
Научно-исследовательский институт атомных реакторов»
г. Димитровград, Ульяновская обл., Россия, 433510*

1 Введение.

Целевые радионуклиды для нужд медицины, науки и промышленности получают облучением в ядерных реакторах сырьевых материалов. Эти материалы размещают в мишенях, загружаемых в экспериментальные устройства. Такие мишени должны проходить один из этапов проверки выполнения требований безопасности – контроль неравномерности распределения стартового ядерного материала (ЯМ) или смеси в сердечнике мишени.

В частности, для наработки ^{99}Mo изготавливают сердечники из сплава урана и алюминия. В этих мишенях распределение локальной массы урана по длине сердечника определяют с помощью установки УИРУМ-С и оригинальной методики измерений, также разработанной в ОАО «ГНЦ НИИАР». Установка состоит из гамма-спектрометра на базе сцинтилляционного детектора, шагового двигателя в системе перемещения мишени и радиоизотопного источника на основе изотопа ^{55}Fe .

2 Метод измерения.

Метод измерения локальной массы урана основан на измерении коэффициента пропускания внешнего рентгеновского излучения от изотопа ^{55}Fe с широким энергетическим спектром в диапазоне (30 – 220) кэВ. Локальная масса урана (ЛМУ) в просвечиваемом участке сердечника определяется по измеренному спектру пропускания, который определяется как отношение потока квантов, прошедшего через образец, к потоку без образца (опорному). Поскольку опорный спектр излучения непрерывный, в результате измерения образца получается набор (спектр) значений коэффициентов пропускания, вычисленных для каждого канала анализатора (канал соответствует энергии 1,4 кэВ.) Каждому каналному значению коэффициента пропускания соответствует вычисленное значение ЛМУ на просвечиваемом участке сердечника. Результатом измерения является среднее по спектру масс в определённом диапазоне каналов (энергий) значение ЛМУ. Усреднение по нескольким десяткам каналных значений, измеренных одновременно, обеспечивает надежность и точность результатов измерения.

3 Алгоритм вычисления локальной массы урана.

Интенсивность моноэнергетического пучка излучения I , прошедшего через слой поглощающего материала толщиной x , уменьшается по сравнению с начальной интенсивностью пучка I_0 в соответствии с уравнением [1]

$$I = I_0 \cdot \exp(-\mu \cdot x) = I_0 \cdot \exp\left(-\frac{\mu}{\rho} \cdot m\right), \quad (1)$$

где μ – линейный коэффициент ослабления, см^{-1} , который учитывает эффекты когерентного и некогерентного рассеяния и истинного поглощения в материале; x – толщина материала, см; ρ – плотность вещества, $\text{г}/\text{см}^3$; m – поверхностная плотность, т.е. масса, прихо-

дящаяся на единицу площади, г/см^2 ; $\frac{\mu}{\rho}$ – массовый коэффициент ослабления, $\text{см}^2/\text{г}$.

Для сложных веществ, состоящих из нескольких элементов, коэффициент $\frac{\mu}{\rho}$ определяется через массовые коэффициенты составляющих элементов. Это возможно потому, что поглощение и рассеяние рентгеновских квантов осуществляется в основном внутренними электронами, состояние которых не зависит от агрегатного состояния вещества и его химических связей.

Суть метода заключается в измерении коэффициента пропускания $T(E)$ сердечника из двухэлементного сплава UAl_x , для которого при определенной энергии E_i справедливо выражение:

$$\ln T(\diamond) = -\left(m_U * \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_U(E) + m_{Al} * \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{Al}(E)\right), \quad (2),$$

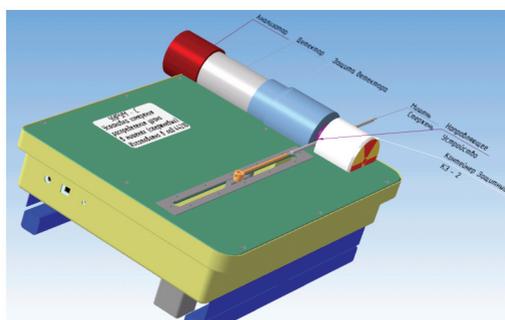
где m_U и m_{Al} – поверхностные плотности урана и алюминия на площади S (площадь сердечника, просвечиваемая пучком) соответственно.

При известной геометрии пучка поверхностная плотность урана находится из выражения (2). При этом параметры $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_U(E)$ и $m_{Al} * \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{Al}(E)$ определяют экспериментально с использованием контрольных образцов урана и алюминия.

Алгоритм определения спектра масс в просвечиваемых объемах исследуемого образца опирается на паспортные данные по его диаметру и справочные данные по плотности алюминия, урана и основного интерметаллида UAl_3 в сплаве.

4 Описание измерительной установки.

Установка УИРУМ-С позволяет измерять распределение локальной массы урана в стержневых сердечниках в форме цилиндра диаметром $\sim 4,8$ мм и длиной до 200 мм. Основной целью установки является измерение и анализ характеристик распределения локальной массы урана (ЛМУ) по длине сердечника с последующей



Измерительный блок в сборе

Рис. 1. Измерительный блок в сборе.

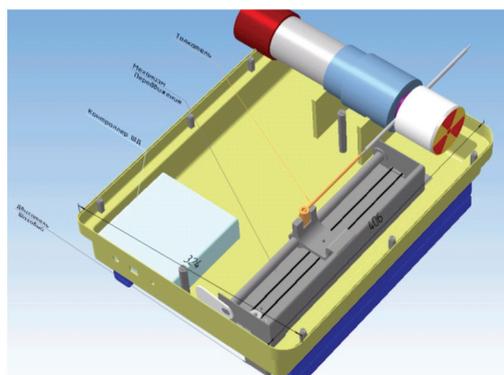


Рис. 2. Размещение блоков измерительного узла установки УИРУМ-С.

отбраковкой сердечников с критическими значениями неоднородностей.

Основу установки составляют: источник рентгеновского излучения типа РЖ55-03 на основе изотопа ^{55}Fe , сцинтилляционный детектор с многоканальным анализатором спектра гамма излучений, а также устройство перемещения сердечника на базе шагового двигателя и контроллера.

На рис. 1 показано расположение привода и измерительного узла, а на рис. 2 показано относительное размещение блоков измерительного узла.

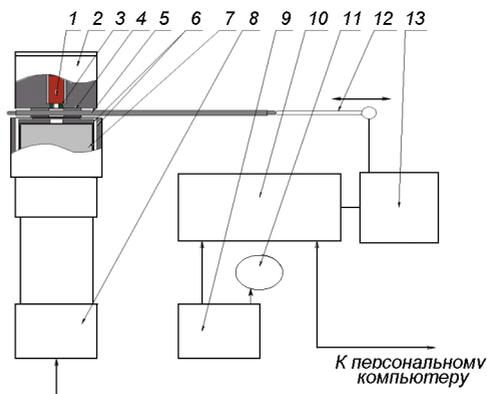


Рис. 3 - Блок-схема установки: 1 – источник РИ; 2 – контейнер защитный; 3 – коллиматор вольфрамовый; 4 – направляющая втулка; 5 – сердечник UAl_x ; 6 – защита детектора; 7 – сцинтиллятор $NaI(Tl)$; 8 – анализатор digiBASE; 9 – блок питания контроллера ШД; 10 – контроллер ШД; 11 – вентилятор; 12 – толкатель; 13 – привод толкателя с ШД.

Блок-схема управления шаговыми двигателями и анализатором излучений источника приведена на рис. 3.

5 Спектрометр.

Прошедший через образец пучок рентгеновского и гамма-излучения регистрируется спектрометром, состоящим из двух блоков:

- сцинтилляционный детектор ORTEC 905-3 с кристаллом $NaI(Tl)$ размером 2×2 дюйма, помещенный в защитный свинцовый корпус;
- многоканальный анализатор спектра ORTEC digiBASE, включающий предусилитель, источник высокого напряжения (0–1200 В) и многоканальный анализатор (1024 каналов) в одном компактном корпусе с выходом USB для соединения с компьютером.

Анализатор работает в комплекте с программой MAESTRO-32, входящей в семейство программных продуктов CONNECTION, поставляемых в комплекте с анализатором. На базе этих продуктов было разработано прикладное специальное программное обеспе-

чение SPCU, в котором реализованы управление установкой и методика измерений (МИ) локальной массы урана [2].

6 Система перемещения образцов.

Привод, предназначенный для перемещения сердечников, состоит из следующих узлов:

- модуль привода горизонтального перемещения толкателя с шаговым двигателем типа KE56HM2-X58;
- контроллер управления шаговыми двигателями (ШД) типа TSMC №0031;
- вентилятор для охлаждения контроллера.

Горизонтальное перемещение сердечника осуществляется вдоль одной оси с помощью толкателя модуля привода с шаговым двигателем. Шаговый двигатель управляется программой SPCU с помощью контроллера. Привод обеспечивает перемещение толкателя на длине до 200 мм. В начальное положение сердечник устанавливается вручную так, что он упирается в толкатель. Начальное положение толкателя и координаты последующих положений сердечника задаются программным путём. Калибровка привода и определение коэффициентов преобразования осуществляется автоматически после запуска программы.

7 Источник рентгеновского излучения.

Источник размещён в защитном контейнере (ЗК), в выходном отверстии которого установлен вольфрамовый коллиматор с отверстием прямоугольной формы с размерами 5×2 мм. Коллиматор формирует рентгеновский луч квазипрямоугольной формы (в сечении). Луч проходит через направляющую втулку, в которой размещается измеряемый сердечник.

Источник РЖ55-03-06 имеет диаметр 12 мм и длину 20 мм и позволяет получить луч рентгеновского излучения с энергией фотонов до 200 кэВ. Он сконструирован в соответствии с требованиями документации [3-11].

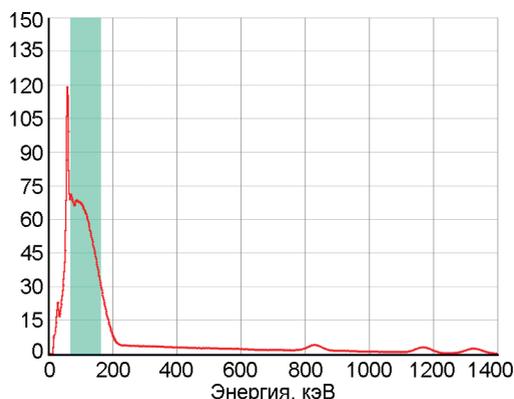


Рис. 4. Спектр излучений источника РЖ55-03-06 в отсутствии сердечника в направляющей втулке (опорный спектр).

Активная часть источника (хлорид железа-⁵⁵) находится внутри полости (диаметром 5 мм и глубиной 6 мм) в вольфрамовой подложке диаметром 10 мм. Подложка устанавливается в капсулу с “окном” из нержавеющей стали толщиной 0,3 мм. “Окно” и крышка приварены к корпусу аргонодуговой сваркой.

Источник излучения соответствует классу прочности ИСО «/99/ В2 11111» по ГОСТ Р 52241-2004. Основная особенность этого источника заключается в том, что вольфрамовая втулка обеспечивает формирование коллимированного луча рентгеновского излучения требуемой формы, выходящего в направлении открытого отверстия подложки, и проходящего через окно капсулы.

Изотоп ⁵⁵Fe с периодом полураспада 2,73 года (999 дней) [12] известен в основном как источник очень мягких (5,9 и 6,1 кэВ) рентгеновских фотонов дочернего марганца, образующегося по реакции К-захвата. В редких случаях при распаде наблюдается гамма-переход ($1,3 \cdot 10^{-7}$ %). Однако распад всегда сопровождается внутренним тормозным излучением (с интенсивностью относительно К захвата около $3,24 \cdot 10^{-5}$ фотонов), формирующим РИ с непрерывным спектром квантов в диапазоне до 231,21 кэВ.

Реальный препарат, который использован для изготовления источника, кроме изотопа ^{55}Fe , содержит примеси радиоактивных изотопов, в основном ^{54}Mn и ^{60}Co . Несмотря на малое содержание примесей ^{60}Co и ^{54}Mn в препарате, гамма-излучение этих изотопов создаёт значительную подложку в области энергий рентгеновского излучения (10-220 кэВ). Этот спектр подложки имеет сложную структуру, которая обусловлена комптоновским рассеянием жёсткого гамма-излучения нескольких энергий (рис. 4). Форма подложки от примесей учитывается в методике.

8 Стандартные образцы и специальные источники.

В метрологическое обеспечение методики измерений входят специальные изотопные источники и стандартные образцы.

Набор из 4 источников гамма излучения включает три источника одной конструкции: основной источник генератора луча РИ типа РЖ55-03, вспомогательные источники ГМн54-03 и ГКО60-03, которые используются для определения формы спектров комптоновского рассеяния для гамма излучения изотопов ^{54}Mn и ^{60}Co . Четвёртый источник с ^{241}Am типа ОСГИ встроено в защиту детектора и служит для стабилизации энергетической шкалы всех измеряемых спектров.

Для градуировки и периодической поверки установки изготовлен и аттестован комплект стандартных образцов предприятия (СОП).

Разработаны два типа стандартных образцов:

- СОП поверхностной плотности урана (СОПппу) металлического с обогащением 90% по ^{235}U ;
- Комплект образцовых сердечников из сплава UAl_x , которые аттестованы как контрольные образцы предприятия (КОП) штатной локальной массы урана (КОПС41), неоднородности урана (КОПС700) и диапазона ЛМУ (КОПС701).

Комплект из 6 СОПппу содержит урановые образцы в виде дисков диаметром примерно 10 мм из металлического урана в

полиэтиленовом корпусе типа АКН или АКН-Т-10. Основной метрологической характеристикой образцов является поверхностная плотность урана. Комплект перекрывает диапазон поверхностных плотностей урана металлического 0,05 – 0,5 г/см². Эти образцы использованы для измерения спектра коэффициента массового ослабления (μ/ρ) урана – основного параметра, необходимого для вычисления массы урана по результатам измерения коэффициента пропускания.

Три КОП используются для проведения метрологических исследований и аттестации МИ.

9 Измерение спектра коэффициента пропускания.

Источник рентгеновского излучения на основе изотопа ⁵⁵Fe испускает рентгеновские фотоны с непрерывным спектром в диапазоне энергий 30 – 220 кэВ. Это позволяет реализовать процедуру определения непрерывного спектра коэффициента пропускания $K_n(E)$ в этом диапазоне энергий путём поканального деления скоростей счета двух измеряемых спектров

$$\diamond_{\diamond}(E_i) = \frac{S(E_i)}{R(E_i)},$$

где $S(E_i)$ – скорость счета в i -ом канале спектра рентгеновского излучения, прошедшего через образец; $R(E_i)$ – скорость счета в i -ом канале опорного спектра рентгеновского излучения, измеренная без образца; E_i – энергия.

В сцинтилляционном детекторе фотонов с кристаллом NaI(Tl) при регистрации рентгеновских и гамма- излучений реального источника РЖ55-03-06 аппаратурный спектр в энергетическом диапазоне действия рентгеновских лучей является суперпозицией нескольких спектров следующего происхождения:

- спектр рентгеновского излучения изотопа ⁵⁵Fe, $R_0(E_i)$;
- спектр комптоновского рассеяния гамма излучения линии 835 кэВ основной (по содержанию в препарате с ⁵⁵Fe) примеси ⁵⁴Mn, $M_{Mn}(E_i)$;

- спектр комптоновского рассеяния гамма излучения линий 1172 и 1334 кэВ второй (по содержанию в препарате с ^{55}Fe) примеси ^{60}Co , $M_{Co}(E_i)$;
- спектр фонового гамма излучения в помещении, $B(E_i)$;
- спектр собственного гамма излучения сердечника (^{235}U), $B_U(E_i)$.

Фоновые спектры должны вычитаться из аппаратурных измеренных спектров при вычислении спектра пропускания. Вклад спектров комптоновского рассеивания гамма излучения ^{54}Mn и ^{60}Co определяется экспериментально с помощью двух специальных источников, содержащих чистые излучатели ^{54}Mn и ^{60}Co .

При расчёте коэффициента пропускания учитывается и распад изотопов ^{55}Fe , ^{54}Mn и ^{60}Co .

В итоге, вычисление спектров коэффициента пропускания в процессе сканирования сердечника в программе SPCU проводится по формуле

$$K_n(E_i) = \frac{\left(S(E_i) - B_U(E_i) - \frac{A_S^{Mn}}{A_{Mn}} \cdot M_{Mn}(E_i) - \frac{A_S^{Co}}{A_{Co}} \cdot M_{Co}(E_i) \right) \cdot \exp\left(-\frac{Ln(2)}{T_{1/2}^{Fe55}} \cdot (\tau_S - \tau_R)\right)}{R(E_i) - B(E_i) - \frac{A_R^{Mn}}{A_{Mn}} \cdot M_{Mn}(E_i) - \frac{A_R^{Co}}{A_{Co}} \cdot M_{Co}(E_i)},$$

где A_S^{Mn} – площадь фотопика примеси ^{54}Mn в спектре образца;

A_S^{Co} – площадь фотопика примеси ^{60}Co в спектре образца;

A_R^{Mn} – площадь фотопика примеси ^{54}Mn в опорном спектре;

A_R^{Co} – площадь фотопика примеси ^{60}Co в опорном спектре;

A_{Mn} – площадь фотопика ^{54}Mn в примесном спектре;

A_{Co} – площадь фотопика ^{60}Co в примесном спектре;

$T_{1/2}^{Fe55}$ – период полураспада изотопа ^{55}Fe ;

τ_S и τ_R – даты измерения опорного спектра и спектра образца.

Для стандартных образцов урана и алюминия формулы для вычисления спектров коэффициента пропускания аналогичны.

10 Результаты измерений.

На рис. 5 приведен спектр локальной массы урана и среднее значение ЛМУ в области интереса, полученной при обработке гам-

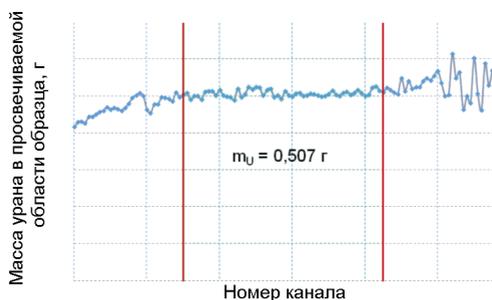


Рис. 5. Спектр локальной массы урана в одной позиции контрольного образца КОПС41.



Рис. 6. Распределение урана по длине сердечника КОПС41.

ма-спектров просвечивания сердечника КОПС41 с содержанием урана около 18%.

Испытание одного сердечника составляет около 16 минут (32 позиции через 5 мм по 30 с в каждой). По окончании сканирования выдаётся отчёт в EXCEL, в котором указаны общие сведения о сердечнике, распределение ЛМУ в цифровом виде, измеренные характеристики распределения (среднее ЛМУ, СКО ЛМУ, максимальное ЛМУ, относительная неоднородность, доля урана, общая масса урана). Также выдаётся график распределения ЛМУ по длине сердечника (рис. 6).

11 Метрологические испытания и аттестация МИ.

При испытании и аттестации МИ установлению подлежали границы погрешности (для доверительной вероятности $P=0,95$) при

однократном измерении на участке сканирования для следующих величин:

- Локальная масса урана;
- Значение неоднородности распределения локальной массы урана;
- Суммарная масса урана в сердечнике.

Суть метода состоит в том, что средствами аттестуемой методики проводили сканирования (при различных экспозициях) контрольных образцов (КОП) сердечников, изготовленных из тех же материалов (сплавов UAl_x), что и сердечники реальных накопительных мишеней. По набранной статистике измерений оценивали характеристики погрешностей, применяя методы математической статистики.

При метрологических исследованиях методики проведена проверка нормальности распределения в выборках для значений канальной локальной массы урана в спектре масс (в области интереса), а также значений локальной массы урана в выборках результатов параллельных измерений. С помощью программы "Проверка критерия нормальности", в которой используется критерий согласия Пирсона, установлено, что и каналные массы m , и локальные массы МУ, подчиняются нормальному закону.

Характеристики погрешности измерения локальной массы урана на участке сканирования закономерно зависят от статистики счета при измерениях, т.е. от длительности экспозиции. Доверительные границы полной относительной погрешности значений МУ, погрешности значений максимальной инструментальной неоднородности и погрешности суммарной массы урана в сердечнике при доверительной вероятности $P = 0,95$ приведены в табл. 1.

Измеренное значение суммарной массы урана по длине сердечника имеет систематическое смещение порядка 8%, не зависящее от длительности экспозиции, обусловленное неточным знанием апертуры коллиматора излучения. Указанное систематическое смещение устранено введением поправочного множителя $K_{см} = 1,081$. Проведенные измерения опытных партий мишеней и стержней из уран-алюминиевого сплава подтвердили работоспособность разработанной

Табл. 1. Основные характеристики погрешности методики в зависимости от длительности экспозиции, $t_{\text{эксп}}$. $P=0,95$ (на 01.08.12).

$t_{\text{эксп}}, \text{с}$	$\delta(\text{МУ}), \%$	$\delta(\text{H}_{\text{II}}), \%$	$\delta(\text{M}_{\text{U}}), \%$
20	$\pm 4,5$	4,5	± 1
40	$\pm 3,2$	3,2	$\pm 0,8$
90	± 2	2	$\pm 0,7$

методики и установки, и позволили выявить и отбраковать образцы с неоднородным содержанием урана.

Опытная установка УИРУМ-С прошла производственные испытания более 2 месяцев в технологическом режиме 100 % контроля более 1000 произведённых сердечников. В 2012 г проведены процедуры метрологического исследования и метрологической аттестации установки и МИ, а метрологическая служба института выдала Свидетельство об аттестации МИ.

12 Варианты использования.

Установка типа УИРУМ может быть использована при измерениях мишеней с сердечниками других диаметров, длин и геометрических форм. Программное обеспечение позволяет вести расчет локальной массы также для любых форм измерительного узла и может работать с двухкоординатной системой перемещения в случае сканирования мишеней, например, с плоским сердечником.

В настоящее время на базе УИРУМ разработаны две установки измерения урана в плоских и кольцевых мишенях.

Заключение.

Проведенные метрологические испытания и аттестация МИ подтвердили работоспособность методики и установки.

МИ обеспечивает НРА измерения массы контролируемого нуклида с требуемой точностью. Результат измерения получают в абсолютных единицах – граммах делящегося вещества.

Список литературы

1. D. Reilly et al., "Passive Non-destructive Assay of Nuclear Materials", NUREG /CR-5550, LA-UR-90-732, March 1991.
2. Измерение массы урана в сердечниках из сплава UAlx неразрушающим методом многоэнергетической плотнометрии / Ю.И. Лещенко и др. // Изв. Самарского НЦ РАН. – т.15. – №4(5). – 2013. – С. 1095.
3. ГОСТ 15484-81. Излучения ионизирующие и их измерения. Термины и определения.
4. ГОСТ 25504-82. Источники ионизирующего излучения радионуклидные закрытые. Термины и определения.
5. ГОСТ Р 51873-2002. Источники ионизирующего излучения радионуклидные закрытые. Общие технические требования.
6. ГОСТ Р 51919-2002. Источники ионизирующего излучения радионуклидные закрытые. Методы испытания на утечку.
7. ГОСТ Р 52125-2003. Источники ионизирующего излучения радионуклидные закрытые. Методы измерения параметров.
8. ГОСТ Р 52241-2004. Источники ионизирующего излучения радионуклидные закрытые. Классы прочности и методы испытаний.
9. Изотопный источник рентгеновского излучения РЖ55-03. Эскизный проект 12А737.100.00 ВО. ГНЦ РФ НИИАР, Димитровград, 2009.
10. Паспорт №2195 на закрытый радиоактивный источник. ГНЦ РФ НИИАР, Димитровград, 2009.
11. Table of Radioactive Isotopes, <http://ie.lbl.gov/toi/nuclide.asp?iZA=260055>.
12. Таблица радионуклидов (Table of radionuclides), Le Laboratoire National Henri Becquerel, http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm.
13. Nuclear Data Standards for Nuclear Measurements. 1991 NEAND/INDC Nuclear Standards File. Editor H. Conde, Uppsala University. 1992. OECD.

ИССЛЕДОВАНИЕ ПАРАМЕТРОВ И РАЗРАБОТКА АЛГОРИТМА ПРОСТРАНСТВЕННОЙ РЕКОНСТРУКЦИИ ДЛЯ КАЛОРИМЕТРА СОМЕТ ЭКСПЕРИМЕНТА

В. Калинин, Е. Величева

Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

Введение.

Открытие осцилляций нейтрино дало новый толчок экспериментам по поиску редких процессов, в которых происходит нарушение закона сохранения лептонного числа в секторе заряженных лептонов. К числу таких процессов относятся процессы $\mu \rightarrow e$ конверсии, $\mu \rightarrow e\gamma$, $\mu \rightarrow Ze$, безнейтринный двойной β распад и другие.

При торможении в веществе отрицательный мюон может быть захвачен ядром какого-нибудь атома и заместить один из электронов ядра, образовав мюонный атом. Этот мюонный атом находится возбужденном состоянии, затем, испуская гамма кванты или передавая энергию атомным электронам, мюонный атом распадается. В стандартной модели (СМ) существуют две основные моды распада - распад на орбите $\mu^- \rightarrow e^- \nu_\mu \bar{\nu}_e$ и захват ядром с испусканием нейтрино $\mu^- + N(A, Z) \rightarrow \nu_\mu + N(A, Z - 1)$. Кроме того, в рамках физики за пределами СМ, разрешен экзотический процесс безнейтринного захвата мюона $\mu^- + N(A, Z) \rightarrow e^- + N(A, Z)$. Этот процесс называется $\mu - e$ конверсией в мюонном атоме [1]. Чувствительность $R_{\mu e}$ процесса $\mu \rightarrow e$ конверсии определяется как отношение

$$R_{\mu e} = \frac{\Gamma(\mu^- + N(A, Z) \rightarrow e^- + N(A, Z))}{\Gamma(\mu^- + N(A, Z) \rightarrow \nu_\mu + N(A, Z - 1))}.$$

Процесс безнейтринной мюон-электронной конверсии - это один из наиболее чувствительных к поиску нарушения лептонного числа процессов. В настоящее время лучшее значение предела чувствительности для процесса $\mu - e$ конверсии получено коллаборацией SINDRUM-II и равно $R_{\mu e} \leq 7 \times 10^{-13}$ [2]. Повышение чувствительности эксперимента по поиску редкого процесса мюон-электронной конверсии, на несколько порядков ($10^2 - 10^4$) является главной целью эксперимента COMET [3].

Поиск этого процесса $\mu^- + Al \rightarrow e^- + Al$ в атоме алюминия будет осуществляться в эксперименте COMET на протонном пучке ускорительного комплекса (J-PARK, Токио). Экспериментальная установка COMET состоит из соленоидов сильного магнитного поля для захвата пионов, мюонной транспортной системы (С-образная форма которой, значительно улучшает отбор по импульсу) и электронной транспортной системы С-образной формы, которая подавляет низкоэнергетические фоновые события от процесса распада на орбите, что приводит к улучшению энергетического разрешения детектора. Детектирующая часть установки состоит из трекового детектора для определения импульса электрона, выполненного на дрейфовых камерах, и электромагнитного калориметра, выполненного на кристаллах.

Электромагнитный (ECAL) калориметр является одним из наиболее важных и определяющих узлов установки COMET, от параметров которого зависит возможность реализации поставленной задачи всего эксперимента. Поэтому к параметрам калориметра предъявляются высокие требования. Калориметр должен иметь энергетическое разрешение не хуже 5%, так как события, которые должны регистрироваться в данном эксперименте лежат в узкой энергетической области (вблизи 105 ± 0.5 МэВ) и координатное разрешение не хуже 1 см (rms) и должен решать следующие задачи: измерение энергии 105 МэВ электрона с высокой точностью;

выработку временного сигнала триггера для системы регистрации событий; корреляцию положения трека электрона и его энергии; достоверно разделять электроны, нейтроны и низкоэнергетические гамма кванты.

Основной целью проведенных исследований было определение ожидаемых параметров ECAL калориметра при использовании различных типов кристаллов (в COMET эксперименте рассматриваются два кандидата – GSO и LYSO кристаллы) и светоотражающих материалов; определение оптимальной структуры и геометрии калориметра, а также разработка и проверка алгоритма пространственной реконструкции событий в калориметре.

Исследования включали экспериментальные измерения кристаллов на измерительном стенде [4], тестовые измерения прототипов калориметра на электронном пучке ускорителя Тохоку (Япония, март 2014) [5], а также моделирование в пакетах SLitran1 [6] и Geant4 [7].

1 Экспериментальное исследование оптических параметров длинных GSO и LYSO кристаллов.

Кристаллы, используемые в калориметре, должны иметь высокое энергетическое разрешение, большой (при длине 12-15 см) световой выход, быстрое время высвечивания для надежного разделения «pile-up» событий и высокую радиационную стойкость. Этим требованиям отвечают два кандидата - LYSO и GSO кристаллы [8, 9]. Поэтому было проведено экспериментальное исследование и измерение оптических параметров LYSO и GSO кристаллов для сравнительной оценки рассматриваемых кандидатов и для уточнения их оптических свойств, результаты которых опубликованы в [4]. Было выполнено измерение потерь световых выходов по длине кристалла, определение однородности и энергетического разрешения, а также сравнительная оценка световых выходов для LYSO и GSO кристаллов. Кроме того, была сделана проверка и калибровка партии из 50-ти LYSO (20×20×120) мм³ кристаллов для прототипа

калориметра, который использовался в тестовых измерениях в Тохоку [10].

Таблица 1. Средние значения и стандартные отклонения для измеренных параметров партии из 50-ти LYSO кристаллов

Проверяемый параметр		Среднее значение
1	Коэффициент неоднородности, % cm^{-1}	1.44 ± 0.03
2	Коэффициент потерь световыхода, % cm^{-1}	1.82 ± 0.05
3	Энергетическое разрешение, %	8.85 ± 0.06
4	Относительный световыход, в мВ	158.5 ± 2.5

В таблице 1 приведены средние значения и стандартные отклонения измеренных оптических параметров для партии из 50-ти LYSO кристаллов, (производитель SAINT-GOBAIN, Франция), а в таблице 2 даны сравнительные результаты экспериментальных измерений оптических параметров GSO кристаллов, проведенных в ОИЯИ (Дубна) и в КЕК (Цукуба, Япония). Как видно из таблицы 2 полученные в ОИЯИ значения измеренных параметров GSO кристаллов хорошо согласуются с результатами измерений, проведенных в КЕК [11].

Таблица 2. Сравнение результатов экспериментальных измерений GSO кристаллов

Проверяемый параметр	ОИЯИ	КЕК
Энергетическое разрешение на 1274.5 КэВ, %	9,5	9,8
Время высвечивания быстрой компоненты, нс	60 ± 0.5	53
Время высвечивания медленной компоненты, нс	420 ± 0.5	400
Длительность переднего фронта, нс	17 ± 0.03	21
Потери световыхода по длине кристалла, %	17.9 ± 1.2	22

2 Моделирование GSO и LYSO кристаллов с использованием пакета SLitrani.

Для уточнения оптической модели калориметра были проведены исследования LYSO и GSO кристаллов с использованием пакета **SLitrani** (Super Light Ray Tracing in ANIsotropic media) [6]. Пакет **SLitrani** – пакет Монте-Карло моделирования процессов распространения света в изотропных и анизотропных средах. В этой программе оптические параметры среды задаются как функции, зависящие от длины волны, энергии фотона и других величин, что позволяет более точно описывать процессы внутри исследуемых сред.

Основные задачи моделирования с использованием пакета **SLitrani**:

- определение или уточнение оптических параметров LYSO и GSO кристаллов и светоотражающих материалов, необходимых для моделирования калориметра с использованием программы Geant4;
- исследование реальных потерь энергии (фотонов) по длине кристалла;
- исследование потерь фотонов в материалах светоотражающих обертток.

В результате моделирования были получены:

- энергетический спектр и спектр сцинтилляции кристаллов как функции от энергии фотона (длины волны);
- время высвечивания;
- потери фотонов по длине кристалла;
- потери фотонов в светоотражающих оберттках;
- общие потери фотонов;
- квантовая эффективность регистрации как функции длины волны.

Эти параметры использовались для моделирования ECAL калориметра с помощью программы Geant4.

На рисунке 1 показаны промоделированные (Рис.1а) и экспериментально измеренные (Рис.1б) значения временного «отклика»

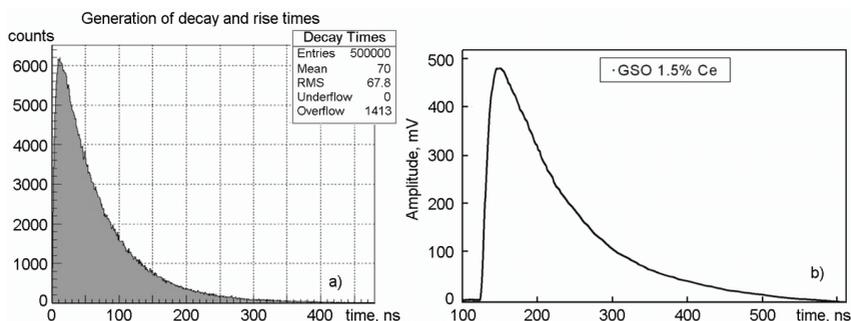


Рис. 1. Временной спектр сигнала GSO кристалла а) – полученный при моделировании в пакете SLitrani и б) – в результате экспериментальных измерений.

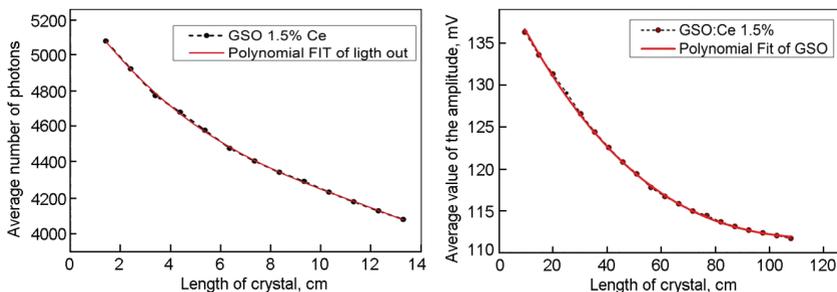


Рис.2. Зависимость потерь фотонов по длине кристалла GSO, полученных а) – при моделировании в пакете SLitrani и б) – в результате экспериментальных измерений.

(время высвечивания и фронт нарастания сигнала) для кристалла GSO.

На рисунке 2 показаны промоделированные (Рис.2а) и экспериментальные (Рис.2б) потери сгенерированных фотонов по длине кристалла GSO (световыхода), а в таблице 3 представлены значения основных оптических параметров, полученные при моделировании с использованием пакета SLitrani и в результате экспериментальных измерений.

Анализ результатов (Табл.3) показал, что разница промоделированной и измеренной величин потери световыхода по длине

Таблица 3. Сравнение значений промоделированных и измеренных экспериментально оптических параметров GSO кристалла.

Оптический параметр	Измеренное значение	Промоделированное значение
Время высвечивания, нс	420 ± 0.5	430
Длительность переднего фронта, нс	17 ± 0.03	15
Потери световыхода вдоль длины, %	17.9 ± 1.2	16.4

кристалла составляет около 3%. Также получено хорошее согласие между промоделированным и измеренным значениями времени высвечивания, длительности переднего фронта. Все это подтверждает адекватность параметров оптической модели и реальных параметров GSO кристалла.

3. Моделирование в пакете Geant4.

Исследование параметров ECAL калориметра для различных типов кристаллов и светоотражающих материалов было выполнено на основе моделирования с использованием программы Geant4 (Geant4 моделирование). В таблице 4 даны значения основных параметров кристаллов и физических процессов, включенных в Geant4 моделирование ECAL калориметра. Кроме того, в моделировании были использованы оптические параметры реальных кристаллов, полученные экспериментально, а именно, время высвечивания (FastTimeConstant и SlowTimeConstant), световыход (LightOutput), и результаты SLitrani моделирования: спектр сцинтилляции (ScintillationYield), длина поглощения (AbsLength), коэффициент преломления (Rindex) и др.

При моделировании калориметр был помещен в однородное магнитное поле 1 Тл (как это будет в эксперименте); «размытость» по энергии электронного пучка составляла 105 ± 0.5 МэВ, а по геометрии ± 1 см. Моделирование калориметра проводилось для случаев, когда:

Таблица 4. Параметры кристаллов и процессы, включенные в Geant4 моделирование ECAL калориметра.

Кристалл / Параметр	LYSO (C:1.5%)		GSO (C:1.5%)	
	справочный	померенный	справочный	померенный
Геометрические размеры [мм]	20 x 20 x 120			
Плотность [г/см ³]	6.71	–	7.4	–
Время высвечивания: быстрая/медленная компонента [нс]	40-60/300-600	60/470	40-60	47
Эффективный атомный номер (Z eff)	59	–	66	–
Коэффициент отражения	1.85	SLitrani ¹	1.81	SLitrani ¹
Максимум люминесценции [нм]	440	–	420	–
Световыход [фотоны/МэВ]	25000-32000	31000	8000-11500	8400
Длина затухания [см]	20.8	SLitrani ¹	30.3	SLitrani ¹
Радиационная длина [см]	1.14	–	1.38	–
Спектр сцинтилляции		SLitrani ¹		SLitrani ¹
Радиус Мольера [см]	2.03	–	2.3	–
Длина поглощения [см]	–	SLitrani ¹	–	SLitrani ¹
Коэффициент преломления	–	SLitrani ¹	–	SLitrani ¹
Материал обертки кристалла	тефлон AF1601, 60 мкм			
Материал обертки модуля кристаллов	майлар, 20 мкм			
Физические процессы	photoelectric effect, Compton and multiply scattering, gamma conversion, Bremsstrahlung, pair production			
Оптические процессы	optical absorption, Rayleigh scattering, optical scattering reflection, reflection on the interaction between surfaces			

Примечание: SLitrani¹ означает, что соответствующий параметр, получен при моделировании в пакете SLitrani, и является некоторой функцией.

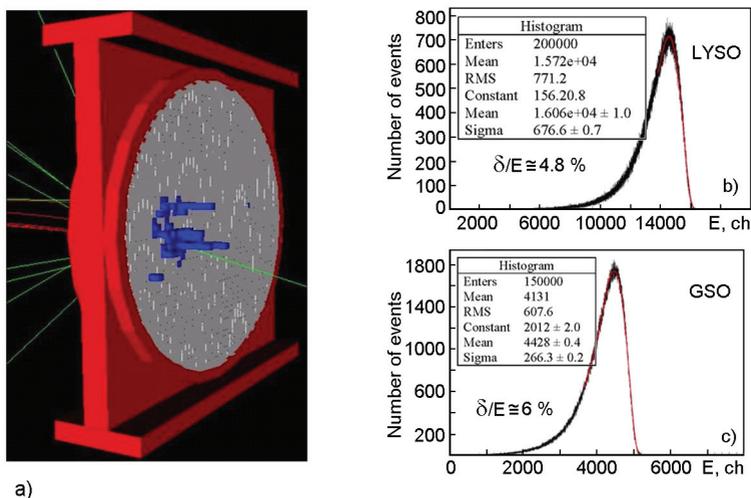


Рис.3. Моделирование ECAL калориметра в однородном магнитном поле 1Тл на пучке электронов с энергией 105 МэВ: а) – геометрия ECAL калориметра; б)– энергетический спектр калориметра на LYSO и с) – энергетический спектр калориметра на GSO кристаллах.

- все кристаллы были без светоотражающей обертки;
- каждый кристалл был обернут тефлоном;
- каждый кристалл был обернут тефлоном, и они были сгруппированы в модули по 2×2 или 3×3 кристалла, обернутые майларом.

Лучшее значение энергетического разрешения и энерговыделения было получено для калориметра на кристаллах без светоотражающей обертки, так как в этом случае учитывался весь спектр электромагнитного ливня без потерь фотонов в материале тефлона, но данный вариант не удовлетворяет требованию, предъявляемому к калориметру COMET эксперимента, по координатному разрешению.

На рисунке 3 представлен результат моделирования калориметра на GSO и LYSO кристаллах, обернутых тефлоном. В этом случае присутствуют потери фотонов в светоотражающей обертке. Эти потери включают в себя многократное отражение и рассеяние между кристаллом и материалом обертки, рассеяние и поглощение

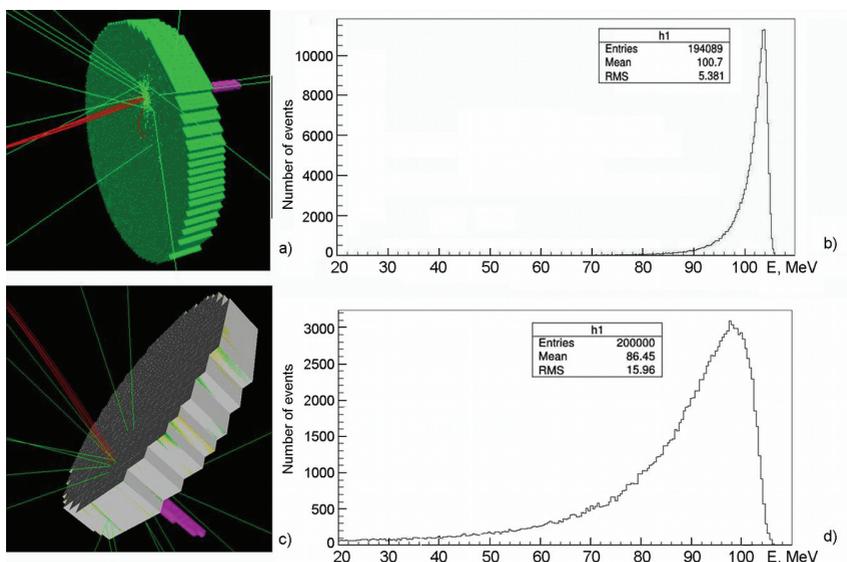


Рис.4. Моделирование ECAL калориметра в однородном магнитном поле 1Тл на пучке электронов с энергией 105 МэВ: а) –визуализация геометрии калориметра на кристаллах, обернутых тефлоном и б) – промоделированный спектр энерговыделения в этом случае; с) – визуализация геометрии калориметра на кристаллах, обернутых тефлоном, сгруппированных в модули по 2×2 кристалла и обернутые майларом и д) – промоделированный спектр энерговыделения в этом случае.

фотонов в материале тефлона. Энергетическое разрешение калориметра на GSO кристаллах (Рис.3-б) составило $\sim 6\%$, а на LYSO кристаллах (Рис.3с) $\sim 4.8\%$, что совпадает с экспериментально измеренным на 105 МэВ электронном пучке прототипа калориметра (4,6 % для прототипа калориметра на LYSO кристаллах и 5,7 % для прототипа на GSO кристаллах) [5].

На рисунках 4а,б представлены результаты моделирования (геометрия и спектр энерговыделения) калориметра на GSO и LYSO кристаллах, обернутых тефлоном, а на рисунке 4 с, d – калориметра выполненного на кристаллах, обернутых тефлоном, сгруппированных в модули по 2×2 кристалла и обернутые майларом. Объединение кристаллов в модули по 4 (2×2) кристалла,

обернутые майларом, существенно ухудшает энергетическое разрешение калориметра (Рис. 4d). В этом случае структура калориметра становится неоднородной, а величина потерь энергии (фотонов) внутри калориметра зависит не только от процессов рассеяния и поглощения на материале кристалла и оболочек, но и от траектории электронного пучка.

4 Пространственная реконструкция событий внутри кристаллов в сегментированном ЕСАL калориметре.

Для оценки энергетического разрешения, которое может быть получено для ЕСАL калориметра на LYSO и GSO кристаллах, были проведены экспериментальные тестовые измерения прототипов калориметра на электронном пучке ускорителя в Тохоку. Прототипы были выполнены в виде сегментированных матриц, состоящих из 49 (7×7) LYSO и GSO кристаллов. Одиночные кристаллы были обернуты двумя слоями тефлоновой пленки (AF1601, толщина 60 мкм) и помещены в майларовые модули. Толщина майлара 20 мкм. Прототипы имели следующую сегментацию: майларовый модуль из 9 (3×3) кристаллов в центре, майларовые модули из 6 (2×3) и 4 (2×2) кристаллов по краям матрицы.

Исследования энергетического разрешения и энерговыделения прототипов проводились на электронном пучке с энергиями 65, 85, 105, 125 и 145 МэВ без внешнего магнитного поля. По результатам обработки этих измерений было получено энергетическое разрешение, равное 4,6 % для прототипа калориметра на LYSO кристаллах и 5,7 % для прототипа на GSO кристаллах [5]. В результате Geant4 моделирования калориметра на электроном пучке с энергией 105 МэВ было получено энергетическое разрешение 4,8 % для LYSO (Рис.3-б) и 6 % для GSO кристаллов (Рис.3с). Необходимо отметить, что значение энергетического разрешения, полученного в экспериментальных измерениях, оказалось немного лучше, чем при моделировании. Это объясняется тем, что: во-первых, Geant4 моделирование калориметра проводилось с учетом однородного

магнитного поля 1 Тл на 105 МэВ «размытом» пучке электронов, а экспериментальный результат получен для случая, когда узкий 105 МэВ пучок падает под прямым углом в центральный кристалл прототипа; во-вторых, при обработке экспериментальных результатов не учитывались потери световыхода по длине кристалла. Потери световыхода по длине кристалла могут составлять до 17% (Табл.3), поэтому их необходимо учитывать.

При обработке результатов измерений без учета потерь световыхода, сигналы с выходов матричных лавинных фотодиодов (APD), пропорциональные энергии, выделившейся в кристаллах, просто суммируются, что приводит к ошибке измерения энергии. Так как «вытекание» энергии из одного кристалла в другой происходит на конкретных расстояниях от APD и без учета потерь по длине кристалла (фотоны проходят только часть длины кристалла) значение этих энергий при калибровке по пучку будет увеличено по сравнению с реальными значениями. И, как следствие, суммарное значение полной выделившейся энергии, полученное в калориметре, будет больше по сравнению с реальным, при том же самом среднеквадратичном отклонении σ , что приведет к «мнимому» улучшению энергетического разрешения калориметра:

$$R_{real} = \frac{\sigma}{\sum E_{real}} \% > R_{measur} = \frac{\sigma}{\sum E_{real} + \sum E_{error}} \% .$$

Значение этой ошибки E_{error} сильно зависит от положения трека внутри калориметра и может быть достаточно большим, особенно для криволинейных треков, когда калориметр находится в магнитном поле.

Так как в эксперименте СОМЕТ регистрируемые события лежат в узкой энергетической области (105 ± 0.5 МэВ), ЕСАL калориметр должен очень точно измерять энергию 105 МэВ электрона. Решение этой проблемы без учета потерь световыхода по длине кристалла невозможно при существующих методах измерений. Поэтому, для достижения заданной в эксперименте точности измерения энергии электронов, необходимо выполнять пространственную реконструк-

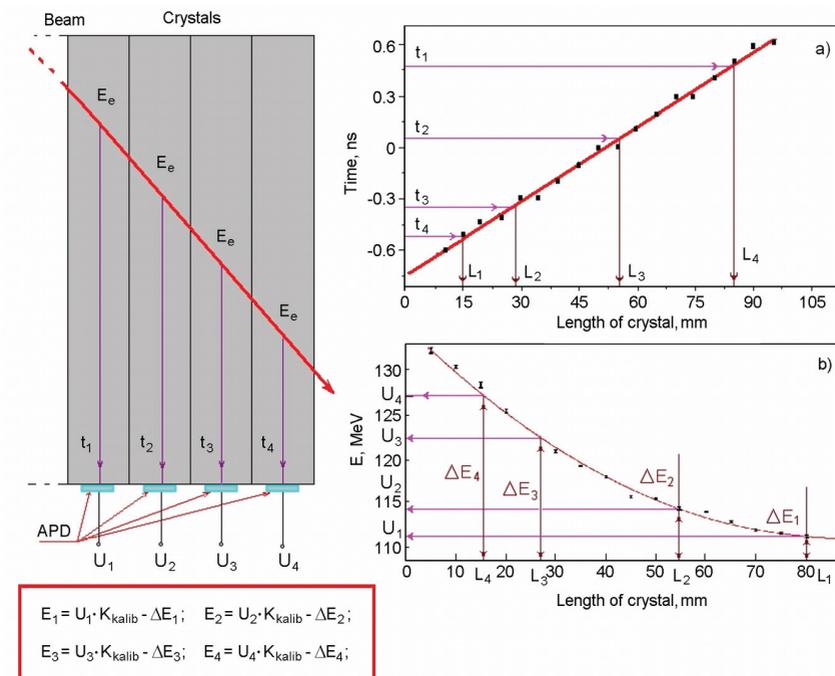


Рис.5. Алгоритм пространственной реконструкции событий внутри сегментированного калориметра на длинных кристаллах: а) зависимость времени распространения по длине кристалла; б) зависимость потерь по длине кристалла.

цию событий внутри сегментированного калориметра на длинных кристаллах.

Для пространственной реконструкции событий в сегментированных калориметрах авторами был разработан и экспериментально проверен алгоритм пространственного восстановления событий. Суть предложенной методики заключается в том, что при регистрации события в калориметре необходимо измерять два параметра с каждого кристалла: амплитудное распределение сигнала и время его прихода на вход APD. Зная время распространения сигнала в кристалле и время его прихода на APD, можно определить с какого расстояния в кристалле относительно APD пришел данный сигнал,

то есть определить положение трека внутри кристалла. Затем, зная зависимость распределения потерь световых выходов по длине кристалла, можно восстановить истинное значение энергии, выделенной в данном кристалле, с заданной точностью.

Рассмотрим предложенную методику более детально. На рисунке 5 показано положение трека электрона, проходящего под углом α через матрицу кристаллов. При таком положении трека электрона энергия E_e , выделившаяся во всех кристаллах по траектории будет одинакова, но сигналы $U_1 \div U_4$ с выходов APD (так как существуют потери по длине кристалла) будут иметь разную амплитуду. Сигнал U_4 будет иметь максимальное значение амплитуды, так как расстояние, которое проходят фотоны от положения траектории трека до APD, будет минимальным, а сигнал U_1 будет иметь минимальное значение по аналогичной причине (Рис.5-б). При предварительно проведенной энергетической калибровке (k_{kalibr}) матрицы на пучке, для рассматриваемого случая прохождения электрона через матрицу, четыре разных значения выделившейся энергии ($E_i \cdot k_{kalibr}$) на траектории трека будут регистрироваться с выходов APD, что не соответствует действительности.

При пространственной реконструкции, измеряя время прихода сигналов $t_1 \div t_4$ на выходах APD, по временной зависимости (Рис.5-а) определяются расстояния $L_1 \div L_4$ (положения трека) в каждом кристалле. Затем, учитывая зависимость потерь световых выходов по длине $\Delta E_1 \div \Delta E_4$ (Рис.5-б), определяются значения ошибок ΔE_i , которые должны быть учтены при вычислении энергии, выделившейся в кристаллах:

$$E_1 = U_1 \cdot k_{kalibr} - \Delta E_1; \quad E_2 = U_2 \cdot k_{kalibr} - \Delta E_2; \\ E_3 = U_3 \cdot k_{kalibr} - \Delta E_3; \quad E_4 = U_4 \cdot k_{kalibr} - \Delta E_4.$$

В этом случае ошибка регистрации энергии будет минимальна и будет зависеть от точности определения потерь и времени распространения сигнала по длине кристалла.

Экспериментальная проверка методики пространственной реконструкции событий проводилась на реальном прототипе.

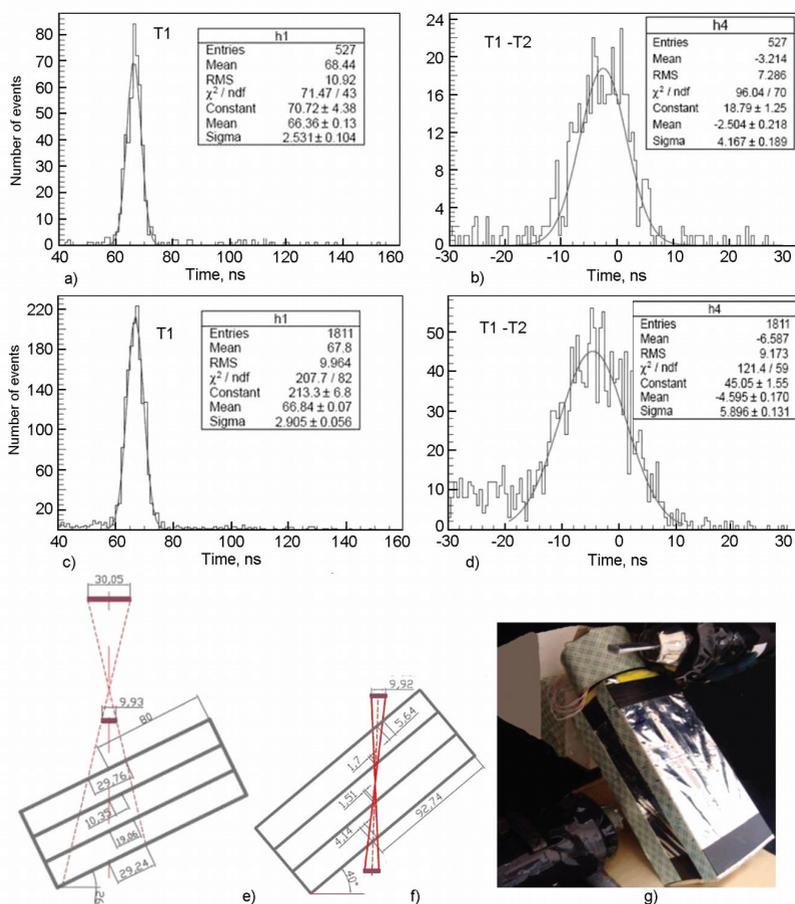


Рис.6. Экспериментальные измерения времени распространения сигнала для углов 26 и 40 градусов: а) – временной спектр прихода сигнала с кристалла 1; б) – разности времени прихода сигналов с кристаллов 1 и 2 на выходе диджитайзера для одного и того же события для угла 26 градусов; в) и д) – спектры аналогичные а) и б) для угла 40 градусов; е) и ф) – схема измерения прихода сигналов для углов 26 и 40, соответственно; г) – общий вид установки измерения для угла 40 градусов.

Прототип был выполнен в виде матрицы 3x3 LYSO кристаллов ($20 \times 20 \times 150 \text{ мм}^3$), обернутых двойным слоем тефлона (AF1601, толщина 60 мкм), помещенной в майларовый модуль (Рис.6-г).

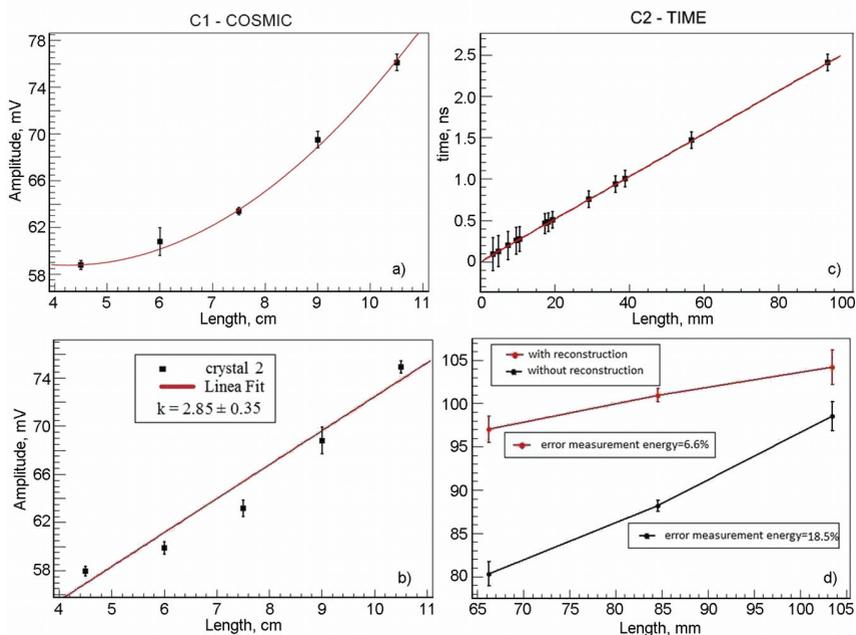


Рис. 7. Результат экспериментальной проверки метода пространственной реконструкции событий в калориметре: а) – зависимость потерь световыхода по длине и б) – соответствующий коэффициент потерь для кристалла 2; с) – зависимость времени распространения по длине кристалла; д) – результат сравнения измерения энергии без учета (черная) и с учетом (красная) пространственной реконструкции событий.

Толщина пленки майлара – 20 мкм. Считывание сигналов с кристаллов осуществлялось с использованием матричных лавинных фотодиодов S8664-1010 (Hamamatsu) [12].

Все экспериментальные измерения проводились на космических мюонах и на статистике 2000 событий. Измерения зависимости потерь световыхода по длине кристаллов LYSO в данном прототипе проводились в пяти точках на расстояниях 45, 60, 75, 90 и 105 см от APD. На рисунке 7а дана зависимость потерь световыхода по длины для кристалла 2. Измерения зависимости времени распространения сигналов по длины кристалла проводилось при углах поворота матрицы на 10, 26 и 40 градусов (Рис.6е, f, g). На данных углах, зная

Таблица 5. Статистические значения времени регистрации сигналов с кристаллов и временной разности сигналов на выходе.

Время, нс	Угол 10 град.	Угол 26 град.	Угол 40 град.
T_1	67.73 ± 0.16	66.36 ± 0.11	66.84 ± 0.06
T_2	68.65 ± 0.27	68.92 ± 0.29	71.64 ± 0.08
T_3	69.59 ± 0.17	71.48 ± 0.28	76.37 ± 0.07
$\Delta t_1 - \Delta t_2$	0.923 ± 0.32	-2.50 ± 0.19	-4.59 ± 0.17
$\Delta t_1 - \Delta t_3$	-1.83 ± 0.17	-5.11 ± 0.21	-9.367 ± 0.21

Таблица 6. Среднее значение времени распространения сигналов в зависимости от расстояния, измеренное при разных углах.

Угол, град.	L , см	t , нс	$t = \frac{\Delta t_1 - \Delta t_i}{L}, i = 2, 3$
10	L_1	3.5	0.263 ± 0.09
	L_2	7.0	0.260 ± 0.02
26	L_1	9.75	0.257 ± 0.02
	L_2	19.5	0.262 ± 0.01
40	L_1	18.4	0.249 ± 0.01
	L_2	36.9	0.254 ± 0.006
Среднее время			0.2575 ± 0.16

разницу времени прихода сигналов на APD и разницу расстояний, с которых пришли эти сигналы, была получена зависимость времени распространения сигнала по длине кристалла (Рис.7с).

На рисунке 6 приведены экспериментально измеренные временные спектры сигналов с кристалла 1 (Рис.6а) и 2 (Рис.6с) для углов 26 и 40 градусов и спектры разности времени распространения сигналов с этих кристаллов для одного и того же события (Рис.6b,d) на выходе диджитайзера (прямые измерения без учета

аппаратной задержки сигналов в каналах считывания) для углов 26 и 40, соответственно.

В таблицах 5 и 6 даны измеренные временные параметры, на основе которых с учетом аппаратной задержки в каналах регистрации, было вычислено среднее время распространения сигнала по длине кристалла. Здесь T_1, T_2, T_3 – время регистрации сигнала на соответствующих входах APD с кристаллов 1, 2, 3, соответственно. Величины $(\Delta t_1 - \Delta t_2)$ и $(\Delta t_1 - \Delta t_3)$ – разница времени прихода сигналов на входы APD для одного и того же события; $L_1 - L_2$ – расстояние в кристаллах от APD до положения трека, проходящего через матрицу (Рис.6е, ф).

Для корректировки потерь фотонов вдоль длины кристалла были вычислены коэффициенты потерь световыхода (Рис.7б). Используя эти коэффициенты и зная положение трека, определялась ошибка, которую необходимо компенсировать для результатов прямых измерений. По результатам проведенных измерений была построена зависимость времени распространения сигнала по длине кристалла (Рис.7с), используя которую было определено положение трека мюона, проходящего через кристаллы матрицы.

На рисунке 7д показан результат экспериментальной проверки предложенной пространственной реконструкции трека в рассматриваемом прототипе. Ошибка измерения энергии без пространственной реконструкции составляет 18.5 % и 6.6 % с учетом предложенной реконструкции.

Таким образом, было получено улучшение точности измерения энерговыделения в сегментированном прототипе (матрице) на космических мюонах в 2.8 раз, что очень важно исходя из требований, предъявляемых к калориметру эксперимента СОМЕТ.

Анализ данных экспериментальных тестовых измерений в Тохоку показал, что значения энерговыделения в прототипе калориметра для прямого и трека под углом 20 градусов отличаются примерно на 10% при энергии электронного пучка 105 МэВ. Это хорошо согласуется с результатами, представленными на рисунке 7д, и подтверждает правильность методики пространственной реконструкции треков в сегментированном калориметре.

Заключение.

В результате проведенных исследований, состоящих из экспериментальных измерений оптических свойств кристаллов и моделирования с использованием пакетов SLitrani и Geant4, получена реальная оптическая модель кристалла, промоделирована оптимальная структура и геометрия калориметра, изучено влияние электромагнитного ливня, определены значения энерговыделения и энергетическое разрешение калориметра COMET эксперимента. Полученное в результате моделирования энергетическое разрешение для калориметра на LYSO кристаллах имеет значение 4.8 %, а на GSO кристаллах – 6.0 %.

Предложен и экспериментально проверен алгоритм пространственной реконструкции событий в калориметре, позволяющий значительно улучшить результат прямых измерений энерговыделения в сегментированном калориметре, что является важным результатом для эксперимента COMET. Использование алгоритма пространственной реконструкции позволяет улучшить точность определения величины энерговыделения в калориметре примерно в 2,8 раз.

Литература

1. Y.Kuno, Y. Okada, Rev Mod. Phys., 73, 151 (2001).
2. W. Bertl et al. (SINDRUM II Collaboration), Eur. Phys. J., C47, 337 (2006).
3. Y.G. Cui (Brookhaven) et al. (COMET Collaboration), KEK-2009-10, 208 (2009).
4. V. Kalinnikov, E. Velicheva, Physics of Elementary Particles and Atomic Nuclei, Letters, 11, 418, (2014).
5. Kou Oishi, 14th COMET International CM, September 22-26, 2014, Tbilisi, Georgia.
6. F.X. Gentit, CMS-NOTE-2001-044, (Oct. 2001); <http://gentitfx.fr/SLitrani/>

7. Agostinelli S. et al. GEAN4 Collaboration, Nucl. Instr. and Meth, A506, 250 (2003)
8. http://www.omegapiezo.com/crystal_scintillators.html;
<http://www.vniia.ru/rgamo/literat/obzor/doc/obzorrus.pdf>;
http://www.greenstar.ru/articles/cpektrometruchekue_komplekcs.pdf;
<http://www.isma.kharkov.ua/eng/>
9. Woo Gyo Lee et al., J. of Nucl. Science and Technology, Supp. 5, 572 (2008).
10. V. Kalinnikov, E. Velicheva, COMET-doc-107-v2.
11. M. Tanaka et al., NIM A, 404, 283(1998).
12. <http://www.hamamatsu.com/jp/en/product/category/3100/3002/H1949/>

ПРИМЕНЕНИЕ ГРИД ДЛЯ РЕКОНСТРУКЦИИ КООРДИНАТ СЦИНТИЛЛЯЦИИ В ДИАГНОСТИЧЕСКОЙ РАДИОНУКЛИДНОЙ АППАРАТУРЫ

С.В. Баранник, А.В. Демин, В.А. Колбасин

Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины

1 Введение.

Суть метода ядерной медицины состоит в том, что больному вводится препарат, соединенный с радионуклидной меткой. В зависимости от введенного радиофармпрепарата (РФП) он накапливается в том или ином органе. Задачей гамма-камеры является зарегистрировать гамма кванты, испускаемые меткой, восстановить по этим данным распределение радиофармпрепарата в организме пациента, представить его в удобной форме на экране компьютера и предоставить врачу необходимый инструментарий для обработки медицинских изображений и постановки диагноза. Каждый гамма-квант регистрируется детектором камеры отдельно. При этом необходимо определить энергию гамма-кванта и координаты места его взаимодействия с сцинтилляционным кристаллом. Задача реконструкции координат сцинтилляции по набору сигналов с фотоэлектронных умножителей (ФЭУ) решается электроникой, расположенной внутри детектора. Ввиду ограниченного объема, мощность вычислительной электроники детектора невелика и не позволяет применять ресурсоемкие алгоритмы. В данной работе

обосновывается возможность и целесообразность использования Грид в качестве внешнего вычислительного элемента.

2. Задача реконструкции координат сцинтилляци.

Основная часть гамма-камеры это детектор, функцией которого является визуализация потока гамма-квантов. Гамма-кванты прошедшие сквозь отверстия коллиматора, попадают на сцинтилляционный кристалл и вызывают вспышки света, называемые сцинтилляциями, которые воспринимаются ФЭУ, преобразующими их в электрические сигналы.

Свет сцинтилляции распространяется в кристалле и выходит из детектора неравномерно. Распределение света (LSF – light spread function) регистрируется набором ФЭУ располагающихся в узлах гексагональной решетки и покрывающих всю поверхность кристалла (Рис. 1.)

До недавнего времени во всех производимых гамма-камерах задача восстановления координат решалась при помощи алгоритма, предложенного в 1958 Ангером [1]. Это обуславливалось простотой алгоритма, за счет которой его можно реализовать на аналоговой электронике, или на цифровых устройствах небольшой вычислительной мощности. Однако основным недостатком ангеровского алгоритма является то, что он обладает свойством увеличивать влияние погрешностей измерения на результат вычисления и, таким образом, снижать соотношение сигнал-шум. Переход к более точным алгоритмам требует катастрофического увеличения вычислительных ресурсов и вплоть до самого недавнего времени был невозможен в режиме реального времени. Неангеровские алгоритмы применялись в системах с постобработкой или небольшим количеством каналов, например в астрофизике

Наиболее перспективным является аппроксимационный алгоритм [2]. В нем функция распределения света (LSF) представляется в виде функции с некоторым количеством свободных параметров.

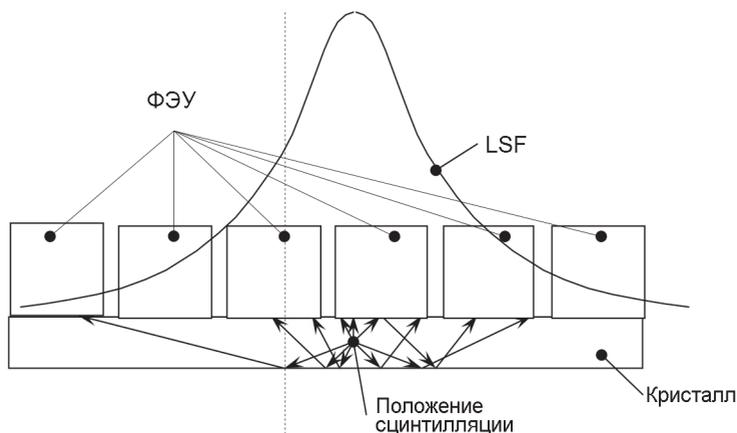


Рис. 1. Типичная функция распределения света LSF. Положение вспышки совпадает с максимумом функции.

В число этих параметров входят параметры сцинтилляции — ее координаты и интенсивность. После измерения детектором распределения света от конкретной сцинтилляции происходит аппроксимация, т.е. вычисление таких значений свободных параметров, при которых теоретическая функция наилучшим образом подходит к измеренным значениям. Это происходит путем минимизации соответствующего функционала. Таким образом определяются координаты и энергия сцинтилляции.

Вплоть до настоящего времени неангеровские алгоритмы не могли быть реализованы на однопроцессорных вычислительных системах в режиме реального времени из-за недостаточной скорости расчетов. Однако эти алгоритмы допускают эффективное распараллеливание. Ранее рассматривалась возможность реализации неангеровских алгоритмов при помощи многопроцессорных систем, которые устанавливаются в детектор гамма камеры. Однако такое решение заметно увеличивает стоимость гамма камеры. А в наше время экономические показатели являются одними из самых существенных при проектировании коммерческих устройств.

3 Грид-обработка медицинских данных.

В данной работе нами была рассмотрена возможность применения Грид в качестве внешней многопроцессорной вычислительной системы реального времени. Грид (англ. grid — решётка, сеть) представляет собой систему соединенных между собой вычислительных кластеров [3]. Грид является географически распределённой инфраструктурой, объединяющей множество ресурсов разных типов (процессоры, долговременная и оперативная память, хранилища и базы данных, сети), доступ к которым пользователь может получить из любой точки, независимо от места их расположения. Самый существенный толчок к развитию Грид в Европе и, в частности, в Украине дал проект Большого Адронного Коллайдера. В этом проекте Грид применяется для постобработки данных в параллельном, распределенном режиме. Таким же образом Грид используется и в подавляющем количестве других проектов.

Отметим, что при реконструкции параметров зарегистрированного гамма кванта в сцинтилляционном детекторе, данные ФЭУ для различных сцинтилляционных вспышек обрабатываются по одинаковому алгоритму независимо друг от друга. А это суть один из классических случаев алгоритма, допускающего эффективное распараллеливание.

В последние годы в Украине была создана виртуальная организация MedGrid, которая объединяет ресурсы нескольких Грид-кластеров (рис. 2) для решения задач практической медицины, прежде всего для хранения диагностических данных [4,5]. Авторы данной работы входили в группу проектировщиков структуры этой организации. До настоящего времени эта структура использовалась для хранения больших объемов медицинской информации, как то медицинские изображения с различных модальностей, электрокардиограммы, энцефалограммы и т.д.

В прошлом году к МедГрид были подключены несколько медицинских учреждений при помощи высокоскоростного оптоволокна на скорости 1 Гигабит [6,7]. Следует также отметить, что кластеры,

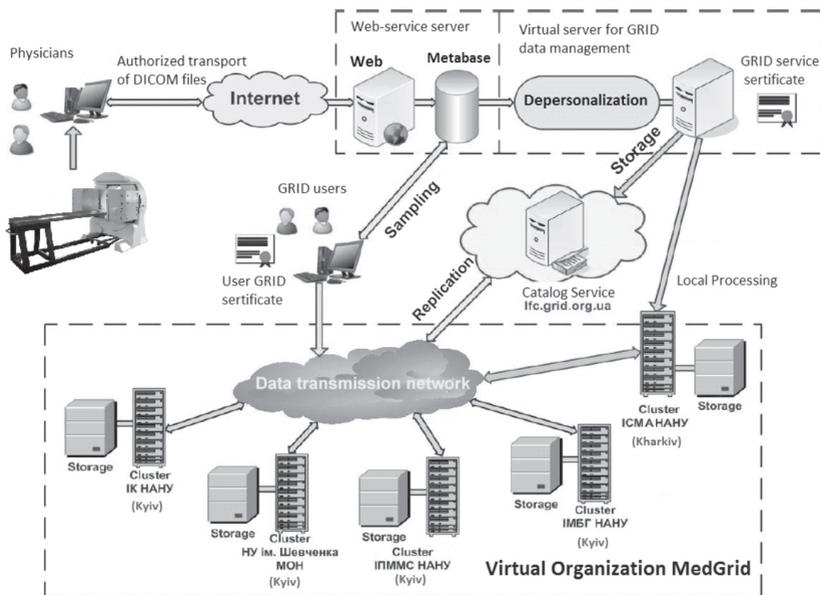


Рис. 2. Структура виртуальной организации MedGrid.

входящие в МедГрид, соединены между собой на скорости 10 Гигабит. Это позволило рассмотреть задачу о передаче в Грид на обработку не только готовых медицинских изображений, но и «сырых» данных от медицинских диагностических устройств в режиме реального времени.

Проведенные при помощи электроники сбора реального детектора гамма-камеры измерения показывают, что при максимальной загрузке, скорость передачи данных с блока оцифровки сигналов с ФЭУ составляет 3 – 8 Мегабайт в секунду.

Таким образом, для двухдетекторной гамма камеры должно быть достаточно канала в 1 Гигабит для передачи данных в Грид на параллельную обработку

На кластере ИСМА было запущено программное обеспечение реконструкции координат сцинтилляции. Было проведено модели

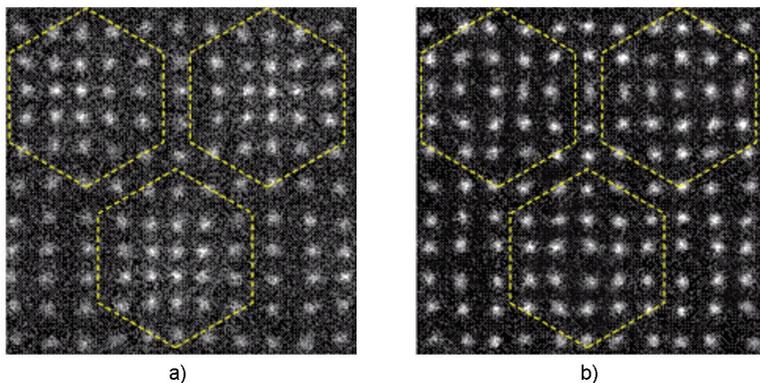


Рис. 3. Изображения калибровочного фантома, реконструированные ангеровским (а) и аппроксимационным (б) алгоритмами.

рование одновременной передачи двух реальных дампов данных с ФЭУ на кластер, обработки их и возврата координат сцинтилляций на детектор. Установлено, что скорости 1 Гб достаточно для проведения такой процедуры в режиме реального времени.

На рис. 3 представлены результаты обработки дампов, собранных при наборе от калибровочного фантома (прямоугольной решетки тонких отверстий в свинцовой пластине.) Источник излучения расположен за фантомом. Обработка производилась ангеровским и аппроксимационным методом. Видно, что шумовая составляющая при ангеровском методе заметно больше.

Выводы.

Развитие коммуникационных технологий делает возможным использование Грид в качестве вычислительного устройства реального времени для различной аппаратуры

На кластере ИСМА опробовано программное обеспечение для параллельной реконструкции координат сцинтилляций в детекторе гамма-камеры.

Проведенное моделирование позволяет утверждать, что скорости 1 Гигабит и вычислительной мощности Грид достаточно для real time обработки данных с двухдетекторной гамма-камеры в Грид.

Использование неангеровских алгоритмов позволяет увеличить разрешающую способность детектора.

Список литературы:

1. H.O. Anger Scintillation camera. // Rev. Sci. Instrum. 1958, vol. 29, p. 27-33.
2. В.П. Гаврилюк, А.В. Дёмин, В.А. Колбасин Алгоритмы восстановления изображений в гамма-камере // Сцинтилляционные материалы. Инженерия, устройства, применение. — Харьков. «ИСМА», 2009. — С. 193–224.
3. Grid Computing : Making the Global Infrastructure a Reality / edited by F. Berman, G. Fox, T. Hey – New York: J.Wiley, 2003.– 1012 p.
4. В. Авраменко, А. Загородний, Е. Мартынов Особенности применения ГРИД-технологий в медицине // Вестник НАН Украины. -N10.-2008.- С.5-15.
5. S. Barannik, A. Dyomin GRID as a Storage for Medical Information. // International Conference Nuclear Medicine: Physics, Engineering and Practice 2011, Kharkov, Ukraine, September 19-21 2011
6. Создание и внедрение Грид-системы в лечебно-диагностическое кардиохирургическое отделение / Г.В. Кнышов, А.С. Коваленко, Е.А. Настенко, С.О. Сиромаха, А.В. Демин, С.Я. Свистунов, А.А. Пезенцали, А.В. Яковенко, О.А. Романюк. // Клини. информат. и Телемед. – 2014. – Т.10. – Вып.11. С.45–53.
7. Подготовка медицинских изображений к обработке в больших информационных хранилищах / А.С. Коваленко, А.А. Пезенцали, А.В. Демин, М.А. Наджафиан, Е.К. Царенко // Кибернетика и вычислительная техника. – 2014. – Вып. 176. – С. 46-53.

ИССЛЕДОВАНИЕ СБОРКИ МОДУЛЕЙ
ЭЛЕКТРОМАГНИТНОГО КАЛОРИМЕТРА ESCALO ДЛЯ
ЭКСПЕРИМЕНТА COMPASS НА ЭЛЕКТРОННОМ
ПУЧКЕ УСКОРИТЕЛЯ ELSA

В. Аносов¹, Н. Анфимов¹, Й. Барт², А. Гуськов¹,
М. Дзиевицки², М. Жембицки², К. Заремба², Ф. Клейн³,
З. Крумштейн¹, Р. Курята², Я. Мажец, А. Нагайцев¹,
А. Ольшевский¹, И. Орлов¹, Т. Резинько¹, А. Рихтер,
А. Рыбников¹, А. Селюнин¹, В. Фролов¹, Ф. Фроммбергер³,
В. Хиллерт³, В. Чалышев¹, И. Чириков-Зорин¹, Д. Элснер³

¹*Объединённый институт ядерных исследований,
141980 Дубна, Россия*

²*Варшавский политехнический университет,
Институт радиоэлектроники, Нововойска 15/19,
Варшава 00-665, Польша*

³*Физический институт Боннского университета,
Нуссалле 12, Бонн 53115, Германия*

1 Введение.

Измерение обобщённых партонных распределений (GPD) в реакции глубоко-неупругого комптоновского рассеяния (DVCS)

$$\mu^+ p \rightarrow \mu^+ p \gamma \quad (1)$$

является одной из основных задач второй фазы эксперимента COMPASS [1]. Большинство фотонов, рождённых в реакции (1), регистрируется системой двух уже имеющихся на установке

COMPASS электромагнитных калориметров ECAL1 и ECAL2. В настоящее время в ОИЯИ создаётся дополнительный широкоапертурный электромагнитный калориметр ECAL0, в задачи которого входит расширение кинематической области регистрации фотона в реакции (1) и участие в эффективном подавлении фона от процессов с π^0 и η с большим поперечным импульсом в конечном состоянии. ECAL0 будет расположен после протяженной жидководородной мишени на выходе детектора протонов отдачи, и в его задачу будет входить регистрация гамма-квантов с энергией от 0,15 до 30 ГэВ в диапазоне полярных углов 0,15-0,6 радиан.

Конструкция калориметра ECAL0 была выбрана в результате ряда успешных испытаний различных прототипов электромагнитных калориметров типа “шашлык” со съемом света микропиксельными лавинными фотодиодами (МЛФД) на пучке Т9 PS (ЦЕРН) в 2008-2009 годах [2, 3]. ECAL0 представляет собой калориметр типа “шашлык” с высокой гранулярностью (размер ячейки $4 \times 4 \text{ см}^2$). Модуль калориметра (3×3 ячейки) состоит из активной части - 109 чередующихся слоёв свинца (0,8 мм) и сцинтиллятора (1,5 мм), и блока регистрации на МЛФД. Суммарная толщина активной части составляет 15,3 радиационных длин. Светосбор со сцинтилляционных пластин на МЛФД осуществляется спекросмещающими волокнами. Применение фотоумножителей в качестве фотодетекторов практически невозможно, так как калориметр будет расположен в области достаточно сильного рассеянного поля спектрометрического магнита установки COMPASS. В блоке регистрации используются фотодиоды типа MAPD-3N и MAPD-3A со сверхвысокой плотностью пикселей ($1.5 \times 10^4 \text{ мм}^{-2}$) и площадью в $3 \times 3 \text{ мм}^2$, имеющие широкий динамический диапазон, обеспечивающий хорошую линейность отклика [2]. Активные части модулей калориметра изготовлены в Институте Сцинтилляционных Материалов (г.Харьков). Детальное описание конструкции модуля калориметра представлено в работе [4]. Отметим, что модули аналогичной конструкции планируется использовать для электромагнитных калориметров коллайдера NICA.

В 2011 году на пучке Т9 (ЦЕРН) была успешно испытана сборка из 3×3 прототипов модулей ECAL0 [5]. В тестовом сеансе на установке COMPASS в 2012 году проводились испытания фрагмента калориметра ECAL0 из 56 модулей (примерно четверть от полного числа). Калибровка ячеек калориметра проводилась с помощью параллельного пучка мюонов и сигнала от распада π^0 . Исследования показали, что такие параметры, как энергетическое, пространственное, временное разрешения и линейность отклика - соответствовали ожидаемым и были стабильны во времени.

Однако, для дальнейшей оптимизации алгоритмов реконструкции событий, а также улучшения пространственного и энергетического разрешения и др. необходимо изучить зависимости характеристик калориметра от угла падения фотонов (или электронов). С этой целью в феврале 2014 года на электронном пучке ускорителя ELSA [6] в Бонне были проведены дополнительные исследования сборки из 3×3 модулей.

2 Исследование сборки модулей

2.1 Эксперимент

Исследование сборки 3×3 модулей (81 ячейка) проводилось на выведенном электронном пучке ускорителя ELSA с интенсивностью - 2×10^3 /с при трех значениях энергии электронов: 0,8 ГэВ, 1,6 ГэВ и 3,2 ГэВ. Сборка модулей размещалась на дистанционно управляемой подвижной платформе, позволяющей устанавливать вертикальное и горизонтальное положение модулей с точностью лучше 0,2 мм, а угол поворота в горизонтальной плоскости - с точностью 0,1°. Годоскоп, состоящий из двух плоскостей сцинтилляционных волокон диаметром 1,0 мм с шагом 0,7 мм, использовался для определения координат точки падения электронов на модули калориметра, мониторингования интенсивности пучка, а также в качестве триггера. Размер активной области годоскопа составлял 2,3×2,3 см². На Рис. 1(а) представлен типичный профиль пучка электронов с энергией 1,6 ГэВ, полученный с использованием

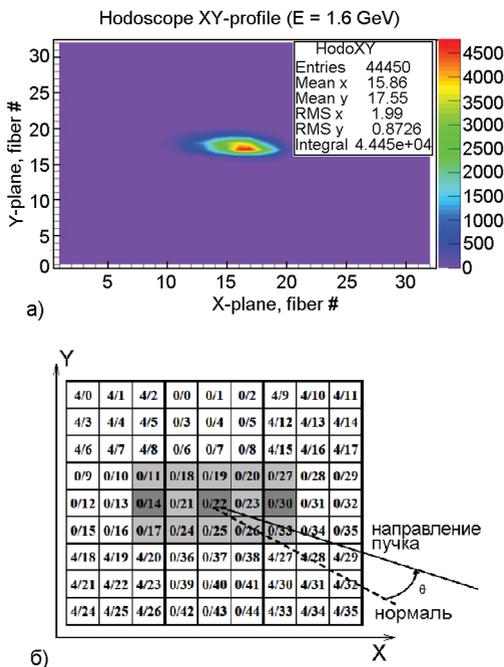


Рис. 1: (а) Типичный профиль пучка электронов с энергией 1,6 ГэВ: $\sigma_x = 1,4$ мм, $\sigma_y = 1,4$ мм. (б) Конфигурация сборки из 9 модулей. Серым цветом отмечены центральные ячейки, для которых измерялась энергетическая и угловая зависимости отклика. Темно-серым цветом отмечены ячейки, для которых проводилось Монте-Карло моделирование отклика.

годоскопа. Сигналы с фотодетекторов модулей калориметра подавались на усилители-формирователи и затем по скрученной паре на вход 12 разрядного 80 МГц аналого-цифрового преобразователя MSADC-COMPASS. Триггер для системы считывания вырабатывался при совпадении сигналов с двух плоскостей годоскопа. В системе считывания MSADC-COMPASS устанавливался цифровой порог 5 каналов АЦП (≈ 50 МэВ).

Исследование модулей калориметра проводилось в два этапа. На первом этапе выполнена калибровка отклика каждой ячейки

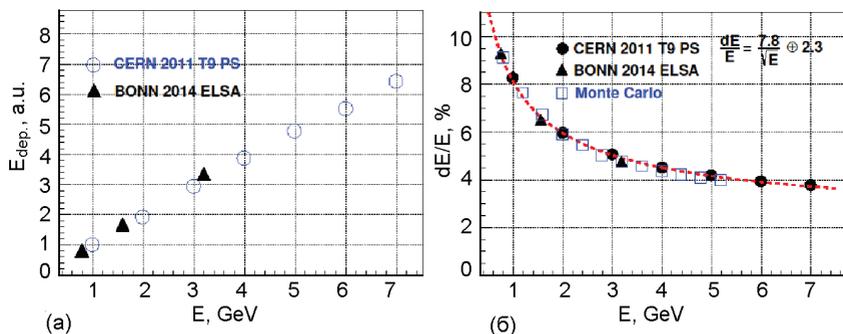


Рис. 2: Зависимость отклика (а) и энергетического разрешения σ_E/E (б) сборки модулей от энергии электронов, нормально падающих ($\Theta = 0^\circ$) в центр ячейки 0/22. Результаты измерений 2011 года в ЦЕРН показаны кружками, 2014 года на ELSA – треугольниками, а результаты Монте-Карло моделирования – квадратами.

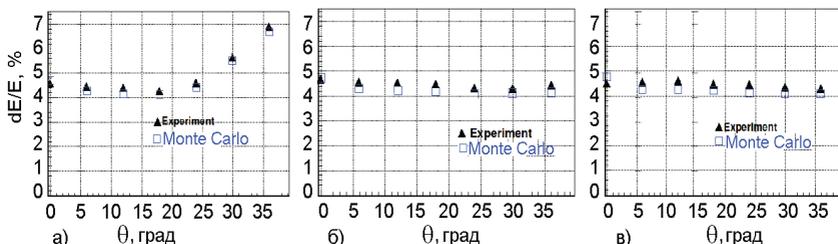


Рис. 3: Зависимости энергетического разрешения сборки σ_E от угла падения пучка электронов с энергией 3,2 ГэВ в центры ячеек: (а) 0/14, (б) 0/22, (в) 0/30. Результаты измерений показаны треугольниками, результаты моделирования – квадратами.

при энергии 3,2 ГэВ. На втором этапе исследована угловая зависимость отклика калориметра для 15 ячеек, расположенных в центральной области сборки.

Для осуществления энергетической калибровки ячеек платформа с установленной на ней сборкой перемещалась в вертикальном и горизонтальном направлении с шагом в 40 мм так, чтобы пучок электронов попадал в центр каждой ячейки. Для нескольких ячеек сканирование было проведено с шагом 10 мм с целью изучения

вариации отклика в зависимости от места попадания электрона в ячейку.

Для изучения угловых зависимостей характеристик калориметра сборка поворачивалась в горизонтальной плоскости на угол Θ от 0° до 36° относительно оси пучка с шагом в 6° . Направление поворота показано на Рис. 1(б). Измерения выполнялись при энергиях электронов 0,8 ГэВ, 1,6 ГэВ и 3,2 ГэВ для 15 центральных ячеек сборки, которые показаны серым цветом на Рис 1(б)).

2.2 Моделирование

Экспериментальные результаты сравнивались с результатами Монте-Карло моделирования, выполненного с использованием программного пакета Geant4 [7]. При описании конструкции калориметра в модели было учтено наличие отверстий в свинцовых и сцинтилляционных пластинах, зазоров, LEGO соединений и спектросмещающих волокон. Учитывались также размеры пучка электронов, измеренные сцинтилляционным годоскопом. При моделировании развития электромагнитного ливня в веществе использовался стандартный набор физических процессов QGSP_BERT. Отклик калориметра на прохождение электрона считался пропорциональным суммарному энерговыделению в слоях сцинтиллятора, при этом для каждой ячейки был установлен порог регистрации 43 МэВ, который соответствовал цифровому порогу электроники (5 каналов АЦП). Для корректного описания отклика калориметра дополнительно вводилось гауссовое размытие порога с $\sigma=15$ МэВ, определенной из экспериментальных данных. Также при моделировании учитывались затухание света в волокнах и статистические флуктуации числа фотоэлектронов, образующихся в МЛФД.

3 Результаты исследований

Результаты исследований представлены на Рис.2-5, ошибки измерений меньше размеров точек на графиках.

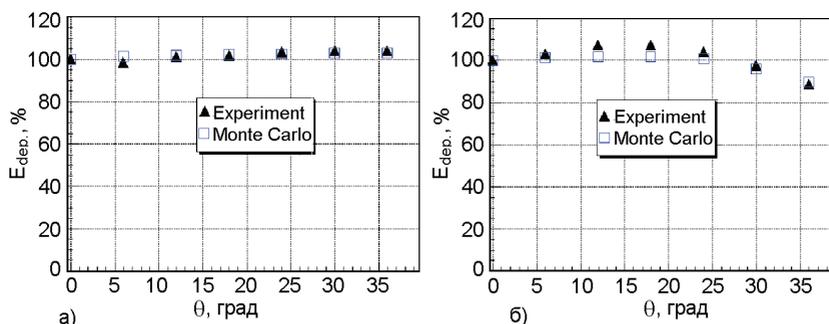


Рис. 4: Зависимости энергосвечения в сборке от угла падения пучка электронов с энергией 3,2 ГэВ в центральную 0/22 (а) и краевую 0/14 (б) ячейки. Результаты измерений показаны треугольниками, результаты моделирования – квадратами.

На Рис. 2(а, б) представлены результаты измерений отклика и энергетического разрешения калориметра для случая нормально падающего пучка. Для сравнения на рисунке также приведены результаты моделирования и данные, полученные в 2011 году на канале Т9 в ЦЕРН[5]. Видно, что результаты хорошо согласуются.

На Рис. 3 приведены измеренные и полученные в результате моделирования угловые зависимости энергетического разрешения σ_E/E при падении пучка электронов с энергией 3,2 ГэВ в центры ячеек 0/14, 0/22 и 0/30. Для ячеек 0/22 и 0/30 наблюдается ожидаемое незначительное улучшение разрешения с ростом угла, связанное с увеличением эффективной длины активной части калориметра. Тогда как для ячейки 0/14 при углах $\theta \geq 20^\circ$ разрешение ухудшается значительно, что обусловлено вытеканием электромагнитного ливня через боковую поверхность сборки. Зависимости энергосвечения от угла падения пучка для центральной ячейки 0/22 и краевой 0/14 при энергии 3,2 ГэВ представлены на Рис. 4 (а), (б) соответственно. Видно, что Монте-Карло моделирование описывает экспериментальные данные.

При моделировании использовалось экспериментально полученное значение порога на энергосвечение в одной ячейке – 43 МэВ. Для подтверждения правильности этого значения были

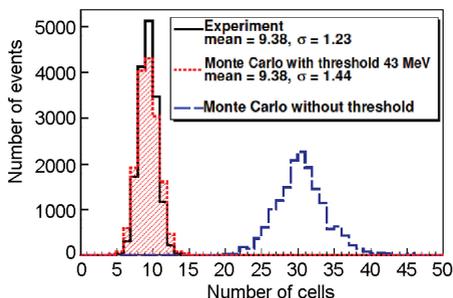


Рис. 5. Распределение числа ячеек в кластере энерговыделения при падении пучка электронов в ячейку 0/30 под углом $\Theta = 360$: экспериментальное, и полученные в результате моделирования - без порога на энерговыделение в ячейке и с порогом 43 МэВ.

построены экспериментальное и полученные при моделировании распределения числа ячеек в кластере энерговыделения в калориметре (Рис. 5). Как видно из представленных распределений, моделирование с использованием порога 43 МэВ хорошо согласуется с экспериментальными результатами.

4 Заключение.

Результаты выполненных исследований продемонстрировали способность калориметра ESCALO измерять энергию фотонов, падающих под большими углами (до 0,6 рад) с требуемой в эксперименте COMPASS точностью $\sigma_E/E \leq 10\%/\sqrt{E}$. Результаты Монте-Карло моделирования хорошо согласуются с экспериментальными данными. Результаты измерений и моделирования будут использованы для оптимизации алгоритмов реконструкции кластеров, в которых будут учтены как эффекты, связанные с углом падения, так и краевые эффекты.

Литература

- [1] COMPASS collaboration, COMPASS II proposal // CERN-SPSC-2010-014, SPSC-P-340, May 2010.

-
- [2] N. Anfimov et. al, Beam test of Shashlyk EM calorimeter prototypes readout by novel MAPD with super high linearity // NIM A. 2010. T617. C. 78-80.
 - [3] N. Anfimov et. al, Novel micropixel avalanche photodiodes (MAPD) with super high pixel density // NIM A. 2011. T628. C. 369-371.
 - [4] I. Chirikov-Zorin et. al, The design of a module of a new electromagnetic calorimeter for COMPASS II // ПИСЬМА В ЭЧАЯ. 2014. Т. 11, ВЫП. 3. С. 412-417. , препринт ОИЯИ Е13-2013-82 (2013).
 - [5] N. Anfimov et. al, Shashlyk EM calorimeter prototype readout by MAPD with superhigh pixel density for COMPASS II // NIM A. 2013. T718. C. 75-77.
 - [6] W. Hillert, The Bonn Electron Stretcher Accelerator ELSA: Past and future // Eur. Phys. J. A28 s01 (2006) 139-148.
 - [7] H. Agostinelli et. al., Geant4 - a simulation toolkit // Nucl. Instrum. Meth. A. 2003. Т. 506 ВЫП. 3. С. 250-303.

УСТАНОВКА ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ХАРАКТЕРИСТИК ПРОТЯЖЕННЫХ СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫХ КРИСТАЛЛОВ

Н.В.Анфимов, З.В.Крумштейн, А.А.Ноздрин, А.Г.Ольшевский,
Т.В.Резинько, А.В.Рыбников, А.С.Селюнин, Д.В.Федосеев

Объединённый институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия

1 Свойства кристаллов чистого йодида цезия.

Кристалл чистого йодида цезия представляет собой монокристалл (CsI), который обладает плотностью 4.51 г/см^3 , малой радиационной длиной 1.86 см и световыходом на уровне 5000 фотонов/МэВ (табл. 1). Спектр люминисценции чистого йодида цезия (рис. 1) состоит из быстрой ультрафиолетовой компоненты со временем затухания около 20 нс и длинноволновой компоненты, затухающей в течение 1 мкс [1]. На быструю компоненту приходится $70\text{-}80\%$ общего светового выхода кристалла чистого йодида цезия. Интенсивность медленной компоненты в значительной степени зависит от чистоты кристалла и в кристаллах хорошего качества медленная компонента может практически отсутствовать [2].

Интенсивность сцинтилляции кристалла CsI при комнатной температуре примерно в 10 раз меньше, чем для активированных кристаллов CsI(Tl) и CsI(Na) и довольно сильно зависит от температуры: уменьшается с ее увеличением приблизительно на $1.3\%/^{\circ}\text{C}$ [3].

Для проведения исследований в ИСМА были изготовлены 50 кристаллов двух типоразмеров (тип 9 и тип 21) по образцам

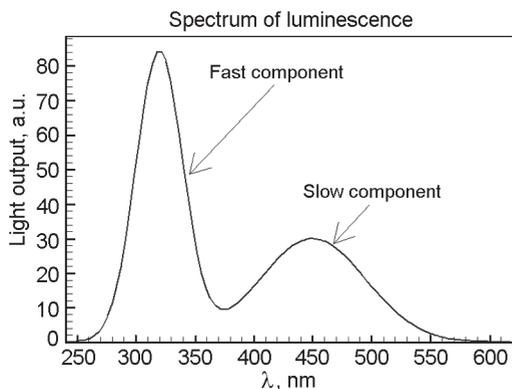


Рис. 1. Спектр люминесценции кристалла чистого йодида цезия.

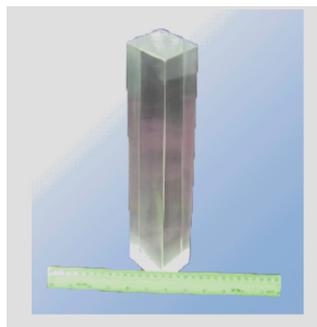


Рис. 2. Вид кристалла чистого йодида цезия.

калориметра Belle [3,6]. Каждый кристалл имеет форму усеченной четырехгранной пирамиды с основаниями около 60x60 мм и длиной 300 мм. Кристаллы разных типов отличаются только поперечными размерами. Вес кристалла 5-6 кг.

2 Методика измерения и экспериментальная установка.

Качество кристаллов можно оценить с помощью отношения величины световыхода, получаемого за время высвечивания быстрой компоненты (≈ 100 нс) к величине светового выхода получаемому за 1 мкс ($F/T = I_{Fast} / I_{Total}$). Для изучения однородности световыхода кристалла по объему необходимо измерить данное отношение по всей длине кристалла. Для измерения величин световыхода (I_{Fast} и I_{Total}) кристаллов чистого йодида цезия в ИСМА был разработан измерительный стенд (рис. 3). Стенд представляет собой светоизолированный контейнер, внутри которого находятся две платформы: фиксированная платформа с исследуемым кристаллом и подвижная платформа с радиоактивным источником, которая может перемещаться вдоль оси кристалла с точностью 0.1 мм. Кристалл облучается гамма-квантами от коллимированного радиоактивного

Таблица 1. Характеристики различных сцинтилляционных кристаллов.

Кристалл	ρ , г/см ³	X_0 , см	λ_{em} , нм	N_{ph} /МэВ	τ , нс
Pure CsI	4.51	1.86	310/450	5000	30/1000
CsI(Tl)	4.51	1.86	550	52000	1000
BaF ₂	4.89	2.03	220/310	2500/6500	0.6/620
CeF ₃	6.16	1.65	310	600	3
PbWO ₄	8.28	0.89	430	25	10
LuAlO ₃ (Ce)	8.34	1.08	365	20500	18

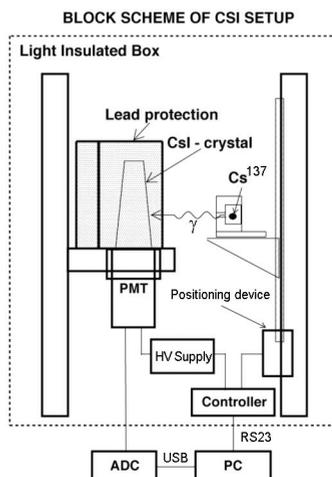


Рис. 3. Вид и схема установки.

источника ^{137}Cs (размер щели коллиматора 28x10 мм), расположенного на расстоянии 20 мм от поверхности кристалла. Гамма-кванты с энергией 662 КэВ, за счет комптоновского рассеяния и фотоэффекта, рождают в объеме кристалла электроны, которые теряют энергию за счет ионизационных потерь. Часть этой энергии

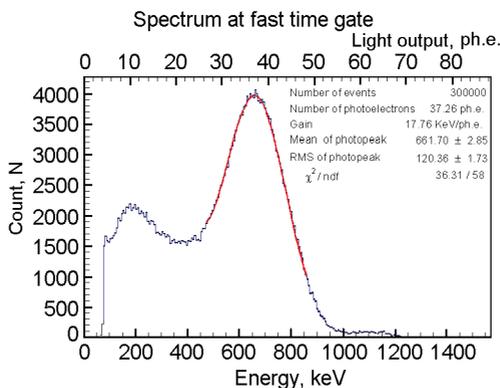


Рис. 4. Зарядовый спектр сигнала от источника ^{137}Cs .

выделяется в виде сцинтилляционных вспышек, которые регистрируются с помощью фотоэлектронного умножителя ET Enterprises 9821QB (ФЭУ).

Кристалл устанавливался на фотокатод ФЭУ. Сигнал с ФЭУ оцифровывался с помощью АЦП (DRS4 Evaluation board V4)[4] и сохранялся на жесткий диск ПК. Далее на основе полученные данных строились зарядовые спектры во временных интервалах интегрирования сигнала длительностью 100 и 1000 нс. Спектры набирались при 7 различных положениях источника ^{137}Cs , эквидистантно расположенных (40 мм) по длине кристалла. Типичный вид зарядового спектра представлен на рис. 4. На спектре видны: пик полного поглощения γ -квантов с энергией 662 КэВ, край комптоновского спектра и спектр шумовых импульсов. Спектр в области фотопика полного поглощения аппроксимировался функцией

$$f(x) = Ae^{-(x-x_0)^2/2\sigma^2} + Be^{-ax} \quad (1)$$

Второе слагаемое вводится для аппроксимации края комптоновского спектра. Световыход определялся по положению центра пика x_0 .

Для получения абсолютного значения световыхода проводилась калибровка ФЭУ. Калибровка основана на методе вспышек малой

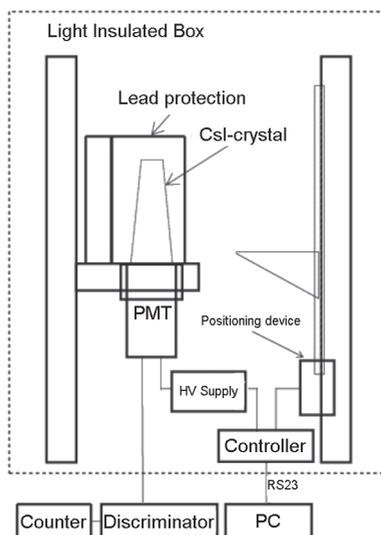


Рис. 5. Схема для изучения счетных характеристик ФЭУ с кристаллом.

интенсивности [5]. Во время калибровки ФЭУ кристалл и радиоактивный источник извлекались из установки и на ФЭУ подавался свет от светодиода, питание которого осуществлялось генератором коротких импульсов с частотой импульсов 1 кГц и длительностью 20 нс. Амплитуда импульсов генератора подбиралась, так чтобы отклик ФЭУ был на уровне одного фотоэлектрона. При калибровке и при облучении кристалла источником ^{137}Cs рабочее напряжение питания ФЭУ устанавливалось 1900 В.

3 Защита от радиационного фона.

Для обеспечения работы с малоинтенсивными источниками радиоактивного излучения (активностью менее 100 кБк) вокруг кристалла с трех сторон была установлена защита от радиационного фона состоящая из свинцовых кирпичей толщиной 50 мм. Для дополнительной светоизоляции использовалась черная бумага.

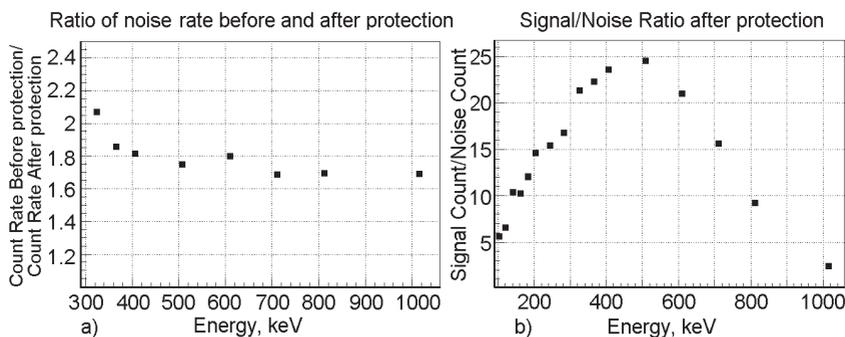


Рис. 6. а - отношение счетных характеристик ФЭУ ET Enterprises 9821QB с кристаллом CsI(Pure) до и после установки защиты, б - отношение сигнал фон после установки защиты.

Счетные характеристики измерялись по схеме, представленной на рис.5. Сигналы с ФЭУ подавались на дискриминатор с регулируемым порогом дискриминации от 10 до 500 мВ. Счетная характеристика снималась без источника до и после установки защиты. В результате защиты фон в области фотопика (662 КэВ) удалось снизить в ≈ 1.7 раза (рис. 6(а)). Отношение сигнал шум после установки защиты представлены на рис. 6(б). В области фотопика счет от радиоактивного источника превышает счет без источника в ≈ 18 раз.

4 Результаты.

Изучение неоднородности было проведено для 24 кристаллов чистого йодида цезия. Для каждого кристалла было получено отношение F/T и световыход в расчете на 1 МэВ в 7 эквидистантно расположенных точках/плоскостях (40 мм) по всей длине кристалла (типичные графики приведены на рис. 7 и рис. 8 для кристаллов № 22 и № 15 9 типа). На рис. 8 приведены графики для кристаллов с наименьшим (№ 22 тип 9) и наибольшим (№ 15 тип 9) световыходом. Одновременно с определением световыхода определялось и энергетическое разрешение пика полного поглощения ($\sigma_{E/E}$) при

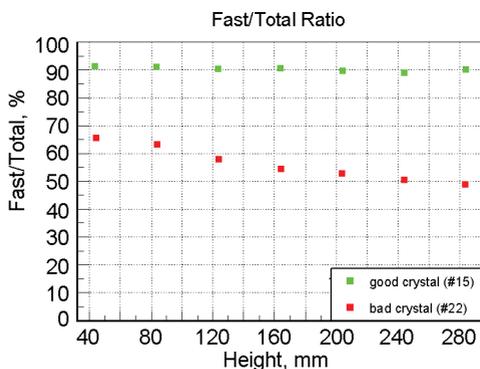


Рис. 7. F/T отношение по всей длине кристалла для кристаллов 15 и 22.

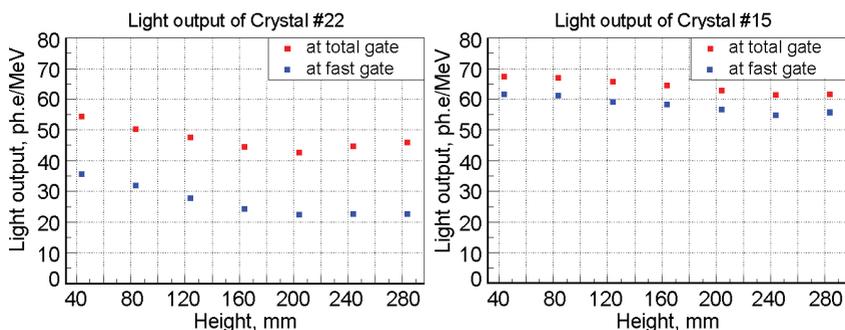


Рис. 8. Световыход кристаллов при интегрировании во временном интервале 100 и 1000 нс по всей длине кристалла.

временных интервалах интегрирования в 100 и 1000 нс. В данном случае энергетическое разрешение (рис. 9) для кристалла № 22 составило около 27%(100 нс) и 21%(1000 нс), для кристалла № 15 около 17% (100 нс) и 16% (1000 нс). Значение величины неоднородности световыхода для каждого кристалла оценивалось по формуле

$$D = (I_{\max} - I_{\min})/I_{\text{avr}},$$

где I_{\max} , I_{\min} , I_{avr} – максимальный, минимальный и средний световыход по высоте кристалла, соответственно. Чтобы неоднородность

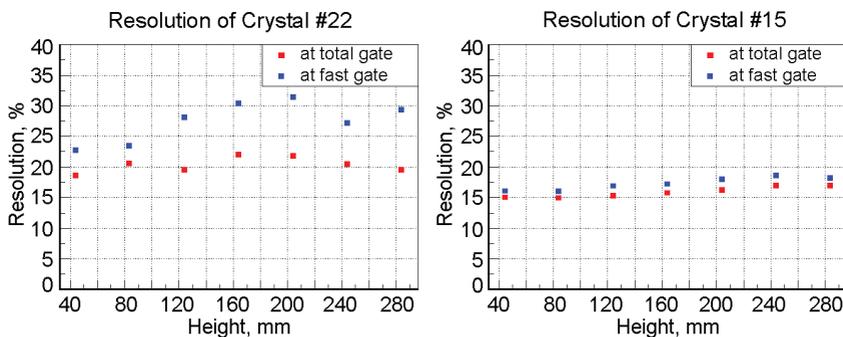


Рис. 9. Разрешение $\sigma E/E$ при интегрировании во временном интервале 100 и 1000 нс по всей длине кристалла.

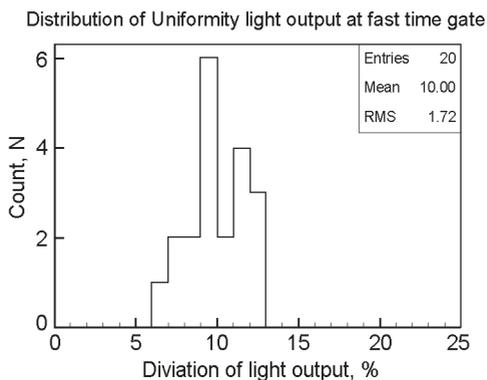


Рис. 10. Распределения неоднородности световыхода среди кристаллов с неоднородностью менее 15% при интегрировании во временном интервале длительностью 100 нс.

светосбора не давала существенного вклада в разрешение, она должна быть менее 15% [6]. Большинство кристаллов имеет неоднородность световыхода лежащую в пределах 15% (20 кристаллов) со средним значением неоднородности 10% при интегрировании сигнала во временном интервале 100 нс (рис. 10).

Список литературы

- [1] Schotanus P. et al. Scintillation characteristics of pure and Tl-doped CsI crystals. Trans. Nucl. Sci., 1990, NS-37, N2, p.177-182.
- [2] Akimov Y. «Photonic methods of radiation detection». Dubna, JINR, 2014, V.8.3, p.127.
- [3] Kuzmin A. Endcap calorimeter for SuperBelle based on pure CsI crystals. Nucl. Instr. and Meth., A623 (2010), p.252-254.
- [4] <http://www.psi.ch/drs/evaluation-board>. The Paul Scherrer Institute. DRS4 Evaluation Board.
- [5] Bellamy E. et al. Absolute calibration and monitoring of a spectrometric channel using a photomultiplier. Nucl. Instr. and Meth., A339 (1994), p.468-476.
- [6] В.Н.Жилич, З.А.Крумштейн, А.А.Ноздрин, А.Г.Ольшевский и др. Измерение радиационной стойкости кристаллов чистого CsI для детектора Belle-2. ИСМАРТ 2012.

ВЫСОКОТЕХНОЛОГИЧНЫЕ ИСТОЧНИКИ
ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ ПРОИЗВОДСТВА
ОАО «ГНЦ НИИАР» И ОСОБЕННОСТИ ИХ
ПРИМЕНЕНИЯ ДЛЯ ЦЕЛЕЙ КОНТРОЛЯ ЯДЕРНЫХ
МАТЕРИАЛОВ НЕРАЗРУШАЮЩИМИ МЕТОДАМИ

А.В. Кремер, Ю.А. Кушнир, А.А. Леоненко, Д.А. Леоненко,
Ю.И. Лещенко, А.П. Малков, В.С. Романовский, А.И. Теллин

*Открытое акционерное общество «Государственный научный центр –
Научно-исследовательский институт атомных реакторов»
г. Димитровград, Ульяновская обл., Россия, 433510*

1 Введение.

ОАО «ГНЦ НИИАР» является крупнейшим в России научно-исследовательским экспериментальным комплексом гражданской атомной энергетики. Одно из направлений деятельности института – наработка в пяти исследовательских ядерных реакторах различных радионуклидов; производство на основе этих радионуклидов высокотехнологичных источников ионизирующих излучений (ИИИ) для науки, промышленности и медицины; разработка технологий и систем измерений с использованием ИИИ.

В докладе представлен обзор ИИИ производства ОАО «ГНЦ НИИАР», применяемых в целях контроля неразрушающими методами характеристик различных материалов, в том числе ядерных.

Для целей учета и контроля ядерных материалов в топливе ядерных реакторов и контейнерах с сырьевыми материалами для

производства этого топлива необходимы средства измерения характеристик материалов неразрушающими методами анализа (НРА). Для измерений используют, как правило, гамма-спектрометрическую аппаратуру с полупроводниковыми или сцинтилляционными детекторами.

Для настройки, калибровки и поверки измерительного оборудования необходимы источники ионизирующего излучения в качестве стандартных образцов (СО) требуемого класса. В ОАО «ГНЦ НИИАР» (НИИАР) разработаны, изготовлены и аттестованы в качестве стандартных образцов для зарубежных и отечественных организаций, а также собственных нужд ИИИ, содержащие уран и плутоний различных композиций. Аттестация СО проведена от уровня рабочих образцов предприятия до государственных стандартных образцов (ГСО).

Для настройки и калибровки порталльных транспортных и пешеходных радиационных мониторов, устанавливаемых на проходах и проездах ядерно- и радиационно-опасных объектов, аэропортов, вокзалов и других сооружений разработаны и изготавливаются калибровочные источники с ураном и плутонием, а также альтернативные источники на основе ^{133}Ba , ^{252}Cf , ^{244}Cm с различной активностью.

Для контроля распределения материалов в цилиндрических, плоских и кольцевых изделиях разрабатываются методики и измерительные установки, включающие сцинтилляционные детекторы (NaI(Tl) и $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$), ИИИ на основе радионуклида ^{55}Fe с непрерывным рентгеновским спектром излучения в диапазоне 30 – 220 кэВ, и автоматизированные средства сканирования объекта и обработки регистрируемого спектра излучения.

1 Стандартные образцы для настройки и калибровки измерительной аппаратуры.

Для обеспечения единства измерений при определении характеристик ядерных материалов (ЯМ), а также при проверке, калибровке, поверке измерительной аппаратуры необходимы



Рис. 1. Комплект ГСО обогащения урана (металлического).

стандартные образцы. Они также нужны при проверках, настройках, поверках новой измерительной техники, для метрологических испытаний программного и методического обеспечения измерений характеристик ЯМ.

В рамках международных программ по совершенствованию системы учета и контроля (УиК) ЯМ в НИИАР были произведены и сертифицированы наборы стандартных образцов с ураном и плутонием [1]. Наиболее востребованы для целей учета и контроля ядерных материалов – СО обогащения урана по изотопу ^{235}U . Разработанные и изготовленные стандартные образцы являются эталонами изотопного состава и массы урана. Они изготовлены с выполнением требований, характерных для классического образца обогащения урана, который должен иметь урансодержащий слой “квази-бесконечной” толщины (для гамма излучения ^{235}U с энергией 185,7 кэВ) и тонкое “окно” для выхода этого гамма излучения.

В качестве рабочего материала в таких стандартных образцах использован как металлический уран, так и диоксид урана.

По заказу МАГАТЭ были изготовлены комплекты СО обогащения урана металлического (Uranium Enrichment Reference Material). Каждый комплект состоит из восьми стандартных образцов, которые условно скомпонованы в два набора по четыре СО (высокого и низкого обогащений) и упакованы в два носимых контейнера (рис 1).

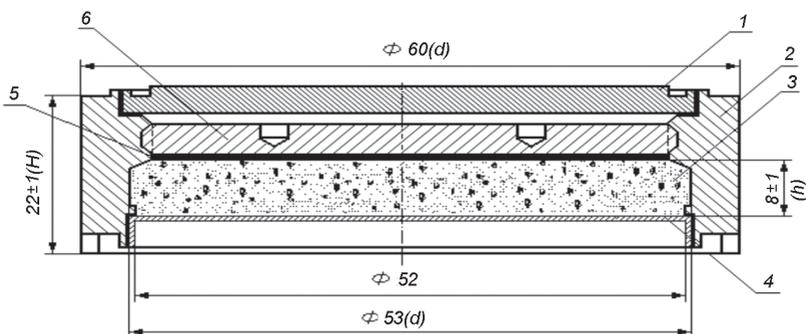


Рис. 2. Стандартный образец обогащения урана с диоксидом урана. 1 – крышка; 2 – корпус капсулы; 3 – диоксид урана; 4-окно; 5 – шайба; 6 – прижим.

Три таких комплекта прошли процедуру государственной аттестации и сертифицированы в качестве Государственных Стандартных Образцов (ГСО) изотопного состава и массы урана. Этим образцам присвоен тип ГСООУМ, и они включены в государственный реестр под номером ГСО 8433-2003. Основные характеристики этих образцов представлены в табл. 1.

Конструкция образцов с диоксидом урана показана на рис.2. Каждый комплект этих СО, аттестованных как Государственные Стандартные Образцы Обогащения Урана (ГСООУ) содержит пять образцов разного обогащения. Их характеристики приведены в табл.1, а внешний вид – на рис.3.

В качестве рабочего тела ГСООУ используется гранулированный диоксид урана. Диоксид урана требуемого обогащения готовится с использованием процесса электрохимического растворения



Рис. 3 Комплект ГСООУ (диоксид)

Таблица 1. Основные характеристики стандартных образцов изотопного состава и массы урана, изготовленных в НИИАР

№ п/п	Обозначение образца	Характеристики уранового материала			Капсула из нержавеющей стали, размеры, мм
		Материал	Форма, масса, г	Обогащение, масс. %	
1	ГСОУМ.00475	U (метал)	Диск с квази-бесконечной толщиной и массой 105 г	0.458 ±0.65	Диаметр 80 мм, Высота 8 мм. Окно: диаметр 52 мм, толщиной 0,48 мм
	ГСОУМ.00703			0.707 ±0.57	
	ГСОУМ.01840			1.839 ±0.24	
	ГСОУМ.04870			4.863 ±0.05	
	ГСОУМ.11899			11.894 ±0.06	
	ГСОУМ.26061			26.064 ±0.04	
	ГСОУМ.60041			60.067 ±0.03	
	ГСОУМ.89915			89.916 ±0.03	
2	ГСОУ.0043	Гранули-рованный UO ₂	Квази-бесконечной толщины слой массой 130 г	0,4263 ±0.0002	Диаметр 60 мм, Высота 23 мм. Окно: диаметр 52 мм, толщина 0,48 мм
	ГСОУ.0365			3,652 ±0.005	
	ГСОУ.2128			21,28 ±0.018	
	ГСОУ.4948			49,48 ±0.018	
	ГСОУ.8783			87,83 ±0.038	

диоксидов в солевом расплаве, и осаждения UO_2 на графитовом катоде. Эта технология позволяет получить диоксид урана (смеси) с максимальной насыпной плотностью и однородным заданным изотопным составом урана. Для подготовленных смесей в аналитической лаборатории проводятся аттестационные исследования основных характеристикам диоксидов урана таких, как:

- массовые доли изотопов урана и неоднородность их распределения в объёме гранулированного диоксида урана;
- массовая доля урана;
- массовые доли других элементов-примесей.

После герметизации смесей в корпусе источника для каждого образца проводится полный цикл подтверждающих неразрушающих измерений:

- гамма спектрометрия с Ge-детектором высокого разрешения для измерения выхода гамма излучения ^{235}U с $E = 185,7$ кэВ из окна образца и подтверждения изотопного состава урана и определения содержания ^{228}Th (с помощью программы PC/FRAM);
- просвечивание образца гамма излучением от источников ^{133}Ba с $E = 356$ кэВ или ^{55}Fe с $E = 30-220$ кэВ с целью определения неоднородности локальной поверхностной плотности и среднего значения поверхностной плотности для подтверждения квази-бесконечной толщины UO_2 ;
- выхода нейтронного излучения.

2 Наборы стандартных образцов изотопного состава и массы урана и плутония для радиационных мониторов.

В настоящее время общей практикой является обязательное использование радиационных мониторов для контроля проноса (провоза) ядерных и радиоактивных материалов на пешеходных и транспортных проходах ядерно- и радиационно-опасных объектах, а также вокзалах и аэропортах. Для контроля используют разнообразные (носимые, пешеходные, автомобильные, железнодорожные) радиационные мониторы (РМ) ядерных и радиоактивных материа-

Таблица 2. Категории и пороги обнаружения мониторов, и рекомендуемые массы урана, плутония для СО, и активности альтернативных источников с ^{133}Ba и ^{252}Cf (^{244}Cm) для транспортных (Т) и пешеходных мониторов (П) с органическими гамма детекторами

Категории мониторов		Пороги обнаружения			Выход нейтронов ^{252}Cf , и ^{244}Cm , нейтр./с
		Урана, г	Плутония, г	Активность ^{133}Ba , кБк	
1П		1	0,03	8	
2П	1Т	3	0,1	22	
3П	2Т	10	0,3	55	18
4П	3Т	64	1	140	60
	4Т	250	3	340	180
	5Т	1000	10	770	600
	6Т	2500	20	1360	
	7Т	4000	30	1920	1800

лов. Естественно, что из-за различия конструкций и детекторов излучений значения основной характеристики мониторов – порога детектирования ЯМ различаются на несколько порядков. Для проверки и настройки РМ в соответствии с документом [2] требуются наборы стандартных образцов с ЯМ, которые по массе ЯМ должны соответствовать определённой категории мониторов. В ГОСТ Р 51635-2000 приводятся данные по характеристикам таких радиационных источников, представленные в табл.2.

НИИАР имеет опыт изготовления источников для калибровки РМ, как для собственных нужд, так и для других организаций. Для собственных нужд изготовлены опытные наборы стандартных образцов предприятия (СОП) ЯМ, а также альтернативных источников гамма и нейтронного излучений (плутония). Для сторонних организаций изготовлены наборы государственных стандартных образцов ЯМ и альтернативные источники излучений.

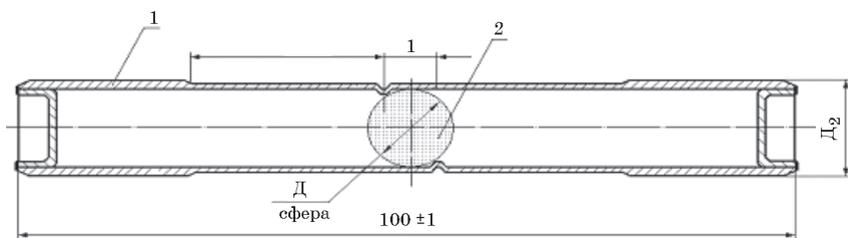
Характеристики СОП изотопного состава и массы урана и плутония (МУ и МП) представлены в табл. 3. Поскольку начало этих работ относится к 1995 г, когда национальные нормативные доку-

Таблица 3. Стандартные образцы массы урана и плутония, изготовленные для использования внутри института (СОПМУ и СОПМП), а также для других предприятий (ГСОМП и ГСОМУ)

Обозначение образца	Активная часть источника		
	Материал	Форма	Масса, г
СОМУ-10 СОМУ-3 СОМУ-1	^{235}U , металл (90 %)	Сфера	10,3 3,09 1,02
СОМП-0,30 СОМП-0,10 СОМП-0,03	^{239}Pu , металл (97 %)	Цилиндр, Высота = диаметру	0,292 0,0974 0,029
ГСОМУ-10 ГСОМУ-3	^{235}U металл, (90 %)	Сфера	10,3 3,09
ГСОМП-0,30 ГСОМП-0,10	^{239}Pu , металл, (97 %)	Цилиндр, Высота = диаметру	0,292 0,0974

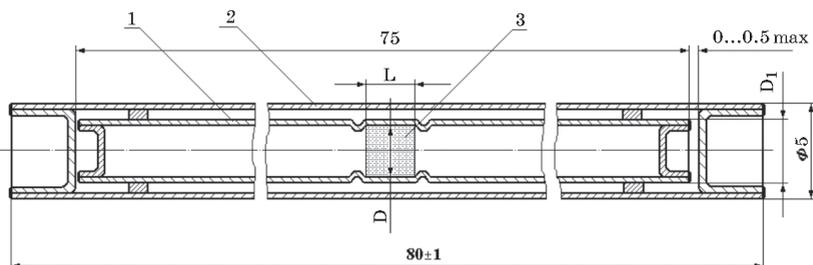
менты по калибровочным источникам для РМ отсутствовали, то при проектировании этих образцов в качестве основного руководящего документа был выбран сборник Стандартов ASTM [3]. В стандартах этого документа рекомендованы требования к источникам из ЯМ, которые пригодны для проверки радиационных мониторов. В этих стандартах рекомендуется излучатели СО с ураном или плутонием изготавливать в виде шаров или цилиндров (у которых высота примерно равна диаметру) из металла, поскольку в таком виде максимально самопоглощение гамма излучения, и образцы труднее обнаружить. Поскольку основная цель каждого монитора – обнаружение урана и плутония высокой пробы, поэтому для СОПМУ и МП целесообразно использовать плутоний с высоким содержанием ^{239}Pu и уран с высоким обогащением по ^{235}U .

В образцах НИИАР урановый шар герметизован в капсуле из нержавеющей стали (рис. 4а) с применением аргон-дуговой сварки, а плутониевый цилиндр заварен в две тонкостенные капсулы (рис. 4б). Все капсулы перед сваркой были заполнены аргоном, который предохраняет уран и плутоний от окисления.



Обозначение	Рис.	Керн КСУ D, мм	Масса урана, г	D ₂ , мм	L, мм ± 0.2	l, мм ± 0.2	Маркировка
12A 581.000.00СБ		10.5	11.10	12	22	6	СОПМУ _р -11-1(2)
-0.1СБ	1	7.08	3.33	9.2	22	6	СОПМУ _р -3.5-1(2)
-0.2СБ		4.80	1.11	6	22.8	4.4	СОПМУ _р -1,1-1(2)

а)



Обозначение	Стандарт массы			D1, мм	Масса, кг	Маркировка
	D, мм	L, мм	Масса, г			
12A 582.000.00СБ	2.5	3.2	0.3	3x0.15		СОПМПл-0.3-1(2)
-0.1СБ	1.9	1.9	0.1		СОПМПл-0.1-1(2)	
-0.2СБ	1.3	1.2	0.03		1.8x0.15	СОПМПл-0.03-1(2)

б)

Рис.4 Стандартный образец массы урана (а) и плутония (б).

Основные аттестуемые характеристики СО – масса и размеры плутониевых цилиндров и урановых шаров – измеряются непосредственно перед капсулированием. Изотопный состав каждого керна из ЯМ определялся с помощью гамма спектрометрии высокого разрешения (Ge-детектор, анализатор DSPEC^{plus} и программ Maestro и PC/FRAM).

После капсулирования образцов проведены повторные гамма-спектрометрические подтверждающие измерения изотопного состава урана и плутония, а также исследования анизотропии выхода гамма излучения из образцов. Проведены также измерения выхода нейтронов с помощью детектора PWCC и анализатора JSR-12. Повторный неразрушающий анализ позволяет гарантировать отсутствие посторонних радиоактивных загрязнений образцов.

Аттестация образцов массы урана и плутония проведена в уральском НИИ метрологии (УНИИМ) в соответствии с ГОСТ 8.315-97 [4]. Они внесены в Государственный реестр:

- государственный стандартный образец изотопного состава и массы урана (ГСОМУ) под номером ГСО8401-2003;
- государственный стандартный образец изотопного состава и массы плутония (ГСОМП) под номером ГСО8400-2003.

Из двух ГСОМУ с массами образцов 3 и 10 г. и двух ГСОМП с массами образцов 0,1 г и 0,3 г формируется комплект для измерения характеристик (или категоризации) радиационных мониторов.

Набор из четырёх ГСО упакован в миниатюрный контейнер (рис.5), вместе с калибровочным ^{137}Cs источником, который используется для энергетической калибровки детекторных каналов.

Опыт показал, что изготовленные образцы массы U и Pu пригодны только для калибровки и поверки пешеходных портальных и носимых мониторов, поскольку максимальные массы урана (10 г) и плутония (0,3 г) слишком малы, и не могут быть использованы для калибровки и поверки автомобильных и железнодорожных мониторов.



Рис. 5. Комплект ГСО массы урана и плутония.

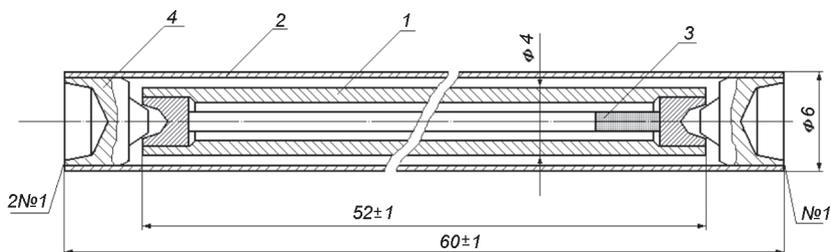


Рис.6. Альтернативный гамма (и нейтронный) источник. 1 – внутренняя ампула, 2 – внешняя ампула, 3 – активная часть, 4 – торцевая втулка.

У этих порталных мониторов, как правило, пороги детектирования находятся в диапазоне 10 – 20 г по урану и 1 – 3 г по плутонию.

При создании и использовании СО с массой урана превышающей 15 г и СО с массой плутония более 0,3 г возникают значительные проблемы, связанные с выполнением нормативных требований по безопасности при работе с образцами при использовании их в полевых условиях. Такие образцы относятся к ядерным материалам и на них распространяются специальные требования по учёту и контролю, охране и транспортировке ЯМ.

Более практичными в использовании являются радиационные источники, которые имитируют гамма и нейтронное излучение образцов с плутонием различной массы, и поэтому называются альтернативными. Альтернативные источники представляются хорошей заменой образцам с плутонием с массой 0,3 г и более. В НИИАР разработаны конструкции, технологии изготовления и процедуры аттестации двух типов альтернативных источников:

- альтернативных гамма источников (АГИ) с ^{133}Ba , активности которых перекрывают диапазон от 100 до 45000 кБк 14-ю парными значениями (спектр гамма излучения ^{133}Ba очень похож на спектр ^{239}Pu);
- альтернативных нейтронных источников (АНИ) с ^{252}Cf и ^{244}Cm , выходы нейтронов которых перекрывают диапазон от 100 до 20000 нейтр \cdot с $^{-1}$ десятью парными значениями.



Рис. 7. Комплект альтернативных источников.

Таблица 4. Альтернативные источники гамма излучения с ^{133}Ba и нейтронного излучения с ^{252}Cf и ^{244}Cm .

Обозначение образца	Активная часть источника		
	Материал	Форма	Выход, нейтр.*с ⁻¹
АНИ ^{252}Cf -(20-1)	^{252}Cf		20000-1000
АНИ ^{244}Cm -6 АНИ ^{244}Cm -3	^{244}Cm	Цилиндр, диаметр*высота, Ф2*15мм.	6000 3000
			Активность, кБк
АГИ ^{133}Ba -(45000-30)		Внешняя капсула Ф6*70мм	30-45000
АГИ ^{133}Ba -340 АГИ ^{133}Ba -140 АГИ ^{133}Ba -20	^{133}Ba	Внутренняя капсула Ф4*60мм	350 150 25
КаГИ ^{137}Cs	^{137}Cs		20

Конструкция двухкапсульных нейтронных и гамма источников показана на рис.6.

На базе разработанных технологий изготовления стандартов массы ЯМ и альтернативных радиационных источников в НИИАР изготовлены наборы средств аттестации радиационных мониторов для предприятий отрасли. Номенклатура и общее количество

альтернативных источников (АИ) приведены в табл. 4. На рис. 7 приведена фотография набора альтернативных источников.

3. Источники ионизирующего излучения для контроля распределения материала в изделиях.

В ОАО «ГНЦ НИИАР» постоянно совершенствуется производство различных типов реакторных мишеней, которые облучаются в высокопоточных реакторах. В зависимости от назначения мишени и материала сердечника мишени во время облучения появляются новые полезные радиоактивные вещества. Так, например, в результате деления ^{235}U в сердечнике из сплава UAl_3 накапливаются продукты деления, из которых после окончания облучения выделяют ^{99}Mo . Если же в реакторе облучать мишень с сердечником из смеси алюминия и оксида юрия, то в сердечнике появляются продукты синтеза тяжёлых элементов такие, как ^{252}Cf .

Одним из основных требований безопасности облучения мишени к качеству сердечника является пороговая допустимая неоднородность распределения локальной массы ядерного материала в сердечнике. Локальная масса ЯМ измеряется методом просвечивания сердечника рентгеновским излучением (РИ) источника с изотопом ^{55}Fe . Принцип, положенный в основу метода, заключается в измерении непрерывного спектра коэффициента пропускания для пучка РИ, проходящего через сердечник мишени. В качестве регистратора излучения используют полупроводниковый или сцинтилляционный детектор гамма-излучения. Массу ЯМ определяют с использованием данных массовых коэффициентов ослабления гамма излучения в ЯМ, элементах матрицы (алюминий и кислород), и элементах оболочки мишени (нержавеющей стали или алюминия), которые входят в состав мишени. Энергетические зависимости массовых коэффициентов ослабления измеряют с помощью контрольных образцов этих элементов. В качестве источника излучения используется радиоизотопный источник типа РЖ55-03 на основе изотопа ^{55}Fe , испускающий рентгеновское излучение с непрерывным спектром в диапазоне 30 – 220 кэВ.

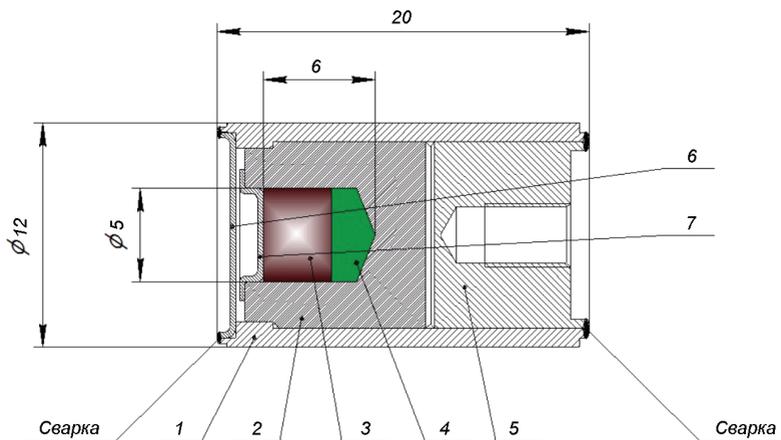


Рис. 8. Конструкция источника РЖ55-03 на основе изотопа ^{55}Fe .

Источник размещён в защитном контейнере (ЗК). В выходное отверстие ЗК установлен вольфрамовый коллиматор (ВК) с отверстием требуемой формы, например, прямоугольной формы размерами 5×2 мм. Сформированный коллиматором рентгеновский луч проходит через направляющий диск, в котором размещается испытуемый сердечник.

Активная часть источника (хлорид железа-55) находится внутри полости (диаметром 5 мм и глубиной 6 мм) в вольфрамовой подложке диаметром 10 мм. Подложка устанавливается в капсулу с «окном» из нержавеющей стали толщиной 0,3 мм. «Окно» и крышка приварены к корпусу аргонодуговой сваркой. Конструкция источника приведена на рис. 8.

Источник излучения соответствует классу прочности ИСО «/99/V2 1111» по ГОСТ Р 52241-2004. Основная особенность этого источника заключается в том, что вольфрамовая подложка обеспечивает первичное формирование луча рентгеновского излучения, выходящего в направлении открытого отверстия подложки и проходящего через окно капсулы.

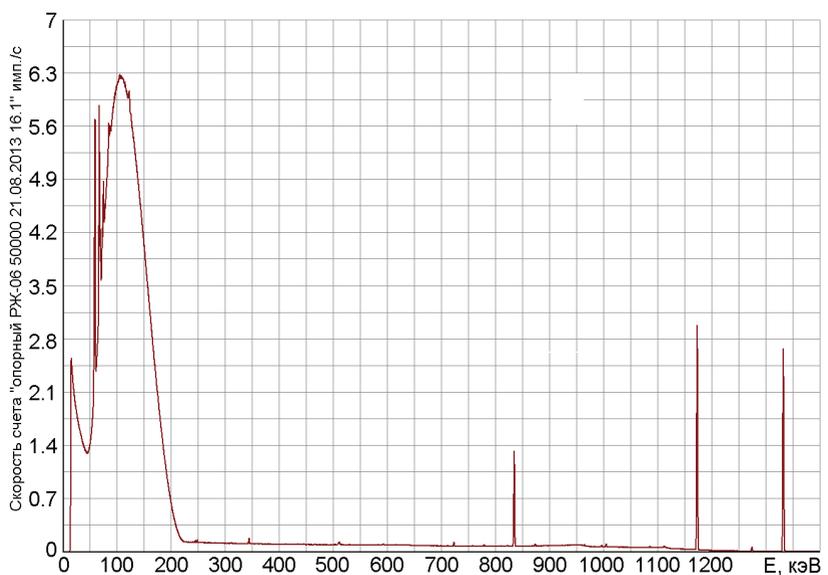


Рис. 9. Спектр излучения источника РЖ55-03-06.

Реальный препарат, который использован для изготовления источника, кроме изотопа ^{55}Fe содержит примеси радиоактивных изотопов в основном ^{54}Mn и ^{60}Co . Несмотря на малое содержание в препарате, гамма-излучение этих изотопов создаёт значительную подложку в области энергий рентгеновского излучения. Этот спектр подложки источника имеет сложную структуру, которая обусловлена комптоновским рассеянием жёсткого гамма-излучения примесей ^{60}Co и ^{54}Mn (рисунок 9). Форма подложки от примесей учитывается в методике, а для учёта используются эталонные измерения спектра от источников ГМн54-03 и ГКо60-03 с изотопами ^{54}Mn и ^{60}Co , соответственно. Конструкции трёх источников одинаковы.

Радиоизотопный источник на основе изотопа ^{55}Fe является универсальным средством для измерения масс ЯМ в диапазоне концентраций поверхностных плотностей до 1 г/см^2 , таким образом, избавляя от использования для каждого химического элемента индивидуального набора радиоактивных источников просветки при

измерении концентрации или поверхностной плотности ядерного материала по К-краю.

Для измерения масс ЯМ в изделиях с высоким содержанием ЯМ (более 1 г/см²) используются источники гамма излучения с более высокой энергией. В частности, для просвечивания ТВЭЛов или стандартных образцов с поверхностной плотностью (толщиной) более 1–2 г/см² используют источники на основе радиоизотопов ¹³³Ba с характеристической линией излучения 356 кэВ. Использование такого источника позволяет определить коэффициент пропускания образцом гамма-излучения для фотопика 356 кэВ. Распределение коэффициента пропускания позволяет оценить неоднородность ЯМ в изделии.

Представленные источники применяются в установках, контролирующих однородность распределения ЯМ в мишенях, твэлах и экспериментальных изделиях с ЯМ различного типа, разрабатываемых и используемых в НИИАР.

Список литературы

1. Горобец А.К., Лещенко Ю.И., Малков А.П. и др. Изготовление государственных стандартных образцов свойств и состава ядерных материалов для неразрушающего анализа. III Всероссийская научно-техническая конференция «Стандартные образцы в измерениях и технологиях», Сборник трудов. – Екатеринбург: ФГУП «Уральский научно-исследовательский институт метрологии», 2011. С.64-65.
2. ГОСТ Р 51635-2000. Мониторы радиационные ядерных материалов. Общие технические условия.
3. Сборник стандартов ASTM. “Selected ASTM Standards on The Application, Evaluation, and Maintenance of SNM Portal Monitors“, LA-UR-95-1770.
4. ГОСТ 8.315. Стандартные образцы состава и свойств веществ и материалов. Основные положения.
5. Лещенко Ю.И., Лещенко А.Ю., Романовский В.С., Леоненко Д.А., Леоненко А.А. Новая реализация старого метода просветки для измерения массы урана в мишенях. III Всероссийская научно-техническая конференция “Стандартные образцы в измерениях и технологиях“, сборник трудов. Екатеринбург, Российская Федерация, 2011 г.

ПЕРСПЕКТИВЫ ГЕНЕРАЦИИ СВЕРХКОРОТКИХ ИМПУЛЬСОВ ЖЕСТКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

А.С. Лобко

*НИУ «Институт ядерных проблем» БГУ
Ул. Бобруйская, д. 11, Минск 220030, Беларусь*

Введение.

Значение использования рентгеновского (гамма) излучения в современной науке, промышленности и медицине сложно переоценить. Логика развития источников жесткого излучения требует появления новых способов генерации для получения и дальнейшего использования (квази)монохроматического перестраиваемого по частоте, пространственно когерентного и, особенно, короткоимпульсного (десятки фемтосекунд) излучения повышенной интенсивности. Очевидно, востребованность применения таких источников будет тем шире, чем более компактными и доступными они будут, так как синхротронные световые источники и рентгеновские лазеры на свободных электронах на их основе при всех неоспоримых достоинствах являются все же уникальными установками. Наиболее перспективным методом генерации фемтосекундных импульсов рентгеновского излучения является генерация с использованием соответствующих пучков компактных (table-top – «настоельных») электронных ускорителей. Механизмов генерации излучения может быть в этом случае несколько: генерация коротких импульсов тормозного излучения, обратное комптоновское рассеяние коротких лазерных импульсов на релятивистских электронах, генерация

жестких излучений (параметрическое рентгеновское излучение, дифрагированное тормозное излучение, дифрагированное переходное излучение) в пространственно-периодических средах, таких как монокристаллические мишени, многослойные рентгеновские зеркала или периодические наноструктуры.

Впечатляющий прогресс, произошедший за последние годы в области создания мощных фемтосекундных лазеров, привел к тому, что в лабораториях стали доступны новые возможности генерации экстремальных состояний вещества [1,2]. В частности, генерация сверхинтенсивных полей в лазерной плазме позволила добиться ускорения заряженных частиц с темпом, на несколько порядков бóльшим, чем это удавалось ранее.

Традиционные методы и технологии ускорения (напр. [3,4]), которые стали разрабатываться еще с 1930-х годов, развивались и шлифовались многие десятилетия и достигли известных всем успехов (ускорители Tevatron, LEP, LHC) к настоящему времени практически исчерпали себя. Физические принципы, заложенные в их основу, позволяли продвигаться к бóльшим значениям энергии ускоренных частиц за счет наращивания размеров ускорительных установок, что выливается в итоге в их огромную стоимость при сооружении и существенные операционные расходы при эксплуатации. И если на сооружение уникальных установок типа Тэватрона или Большого адронного коллайдера LHC для изучения фундаментальных вопросов строения мироздания, человечество еще может пойти, то отсутствие линейки компактных («настошных») и относительно доступных по цене ускорителей (так наз. «дешевый пучок»), способных обеспечить интенсивные пучки ионов и спектрально-яркие пучки перестраиваемого по энергии квазимонохроматического рентгеновского излучения, пока существенно сдерживает развитие радиационных технологий и, в первую очередь, ядерной медицины.

Методы ускорения посредством коллективного взаимодействия заряженных частиц, реализуемого в лазерной плазме, свободны от многих принципиальных ограничений присущих традиционным

методам ускорения. Это связано прежде всего с тем фактом, что в плазме возможно создание ускоряющих полей с градиентами, которые на несколько порядков превышают ограниченные высоковольтным пробоем ускоряющие поля в традиционных ускорителях. Таким образом, если традиционные радиочастотные ускорители в каком-то смысле являются детищем радиофизики, то в новых условиях на авансцену выдвигаются лазерная физика и физика плазмы. Важным соображением является то, что лазерно-ускорительные установки могут базироваться на лазерах так называемого «университетского» класса, а не обязательно только на уникальных и самых передовых в мире по параметрам. Поскольку лазерно-плазменное ускорение прошло большой путь с 1979 года, когда оно было предложено Т. Таджимой и Дж. Доусоном [5] и, к настоящему времени уже накоплено очень большое количество результатов, в данном обзоре рассматриваются лишь основные физические принципы и наиболее, на наш взгляд, яркие достижения. Очевидно, далеко не все достойные обсуждения вопросы смогли быть упомянуты здесь в силу ограниченности объема публикации.

1 Современные мощные фемтосекундные лазеры.

Бурное развитие лазерных технологий, связанное с изобретением метода усиления частотно-модулированных (чирпированных) импульсов, привело к созданию лазерных систем, способных генерировать излучения мощностью, превышающей ПВт [6,7]. При этом качество получаемых пучков позволило фокусировать их в область диаметром порядка нескольких длин волн, что обеспечивает значение интенсивности излучения на уровне 10^{22} Вт см⁻². Применение принципа чирпирования позволило поднять интенсивность лазерного излучения на 5 – 6 порядков, радикально снизить размер и стоимость ТВт лазеров, ставшими «настольными» устройствами (T3 lasers – Table-Top Terawatt lasers). Изучение механизмов взаимодействия столь интенсивного оптического излучения с веществом является фундаментальной задачей, стоящей перед физиками.

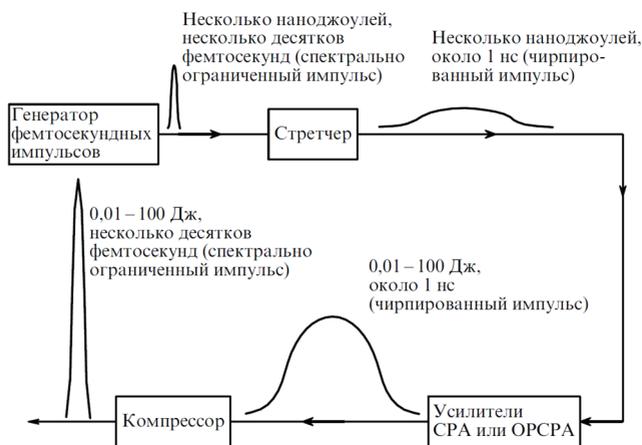


Рис. 1. Общая схема мощных фемтосекундных лазеров [7].

Появление лазерной техники высоких плотностей энергии позволило перейти от изучения атомных и твердотельных процессов к лабораторному изучению горячей плазмы, лазерной ядерной физике, физике высоких энергий и т.д. [1; 2].

Кратко напомним метод усиления чирпированных импульсов (Chirped Pulse Amplification – CPA). Идея метода, схематически представленного на рис. 1, заключается в том, что исходный изначально короткий лазерный импульс пропускается через *стретчер* – дисперсионную оптическую систему, придающую ему сильную линейную частотную модуляцию. При этом импульс оказывается растянутым во времени и пространстве за счет разнесения его спектральных компонент и имеет интенсивность много меньшую по сравнению с первоначальной. Растянутый импульс усиливается обычным способом, обходя таким образом серьезное ограничение по оптическому пробую среды, и затем пропускается через вторую диспергирующую систему – *компрессор*. В качестве стретчера и компрессора обычно используют пару дифракционных решеток, определенным образом расположенных и ориентированных по отношению к оптическому пути импульса. Если традиционная

техника позволяла фокусировать излучение линзами в двух перпендикулярных направлениях, то метод чирпирования делает фокусировку сразу в трех измерениях, резко повышая результирующую плотность мощности на выходе.

По усиливающей среде петаваттные лазеры делятся на три типа: 1) неодимовое стекло; 2) сапфир (корунд с титаном) и 3) параметрические усилители (Optical Parametric Chirped Pulse Amplification – OPCPA) на кристаллах KDP и DKDP. Максимальная энергия достигается в лазерах на неодимовом стекле, поскольку запасенная в виде инверсии заселенностей энергия непосредственно преобразуется в чирпированный импульс. Однако, узкая полоса усиления лазерных стекол с неодимом ограничивает длительность сжатого импульса на уровне нескольких сотен фемтосекунд. В результате оптическая стойкость дифракционных решеток ограничивает продвижение в мультипетаваттный диапазон.

Изобилие новых физических явлений и возможных применений в петаваттном диапазоне стимулирует развитие большого количества лазерных проектов в мире, в том числе в Европе [8] и в России [9]. В частности, европейский мегапроект ELI [8] предусматривает создание европейской лазерной инфраструктуры с центрами в Венгрии, Чехии и Румынии для решения задач физики сверхсильных полей, аттосекундной физики, фотоядерной физики и создания лазерно-плазменных ускорителей и новых источников жестких излучений на их основе.

2 Движение электрона в лазерной волне. Релятивистские пороги электронов и ионов.

Рассмотрим весьма упрощенно процессы ионизации и движения электронов в волне мощного лазерного импульса [10]. Для начала сравним электрическое поле интенсивного лазерного импульса с атомарными электрическими полями. Электрическое поле, действующее на первой борновской орбите атома водорода, равно

$$E_a = \frac{e}{a_b^2} = 5.1 \cdot 10^9 \text{ В} \cdot \text{см}^{-2} \quad (1)$$

где $a_b = \frac{\hbar^2}{mc^2} = 5 \cdot 10^{-9}$ см – боровский радиус. Поле (1) соответствует следующей интенсивности лазерного импульса

$$I_a = \frac{cE_a^2}{8\pi} = 3.14 \cdot 10^{16} \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$$

Итак, поле сильной лазерной волны может ионизировать атомы, причем конкретный механизм ионизации существенно зависит от интенсивности импульса. Для его определения важно значение безразмерного параметра адиабатичности Келдыша Γ [11]:

$$\Gamma^2 = \frac{U_i}{2\epsilon_{0s}}$$

где U_i – потенциал ионизации и $\epsilon_{0s} = \frac{eE(1+\alpha)^2}{4m\omega^2}$ – энергия колебаний электрона в лазерном импульсе с электрическим полем E и несущей частотой ω , α – степень поляризации лазерного импульса, соответственно $\alpha = 0$ для линейной поляризации и $\alpha = 1$ для циркулярной поляризации.

Для больших величин параметра Келдыша, $\Gamma \gg 1$, доминирует механизм многофотонной ионизации. В противоположном случае, когда $\Gamma \ll 1$, туннельная ионизация приводит к практически мгновенному высвобождению электрона и формированию плазмы. Известная простейшая квазиклассическая картина туннельной ионизации представима в виде механизма полевой надбарьерной ионизации. Электрон находится в первоначально невозмущенном потенциале атомного ядра на энергетическом уровне $-U_i$, (см. рис. 2(а)). Электрическое поле лазера может рассматриваться как статическое, потому что лазерная частота обычно много ниже, чем частоты атомных переходов. Лазерное поле деформирует потенциальный барьер, удерживающий электрон вблизи ядра. Когда лазерное поле достаточно сильно, барьер становится ниже величины энергии электрона, и он освобождается из атома (рис. 2(б)).

Этот порог интенсивности лазерного излучения может быть оценен следующим образом:

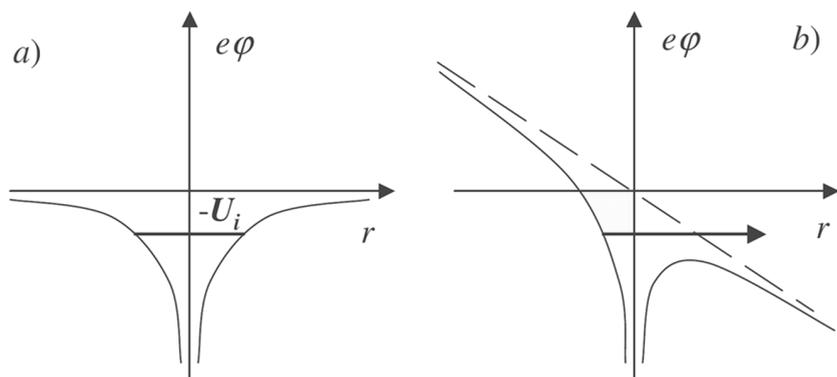


Рис. 2. Картина полевой ионизации: (а) электрон находится на энергетическом уровне $-U_i$ в невозбужденном атоме в отсутствии внешнего поля; (б) к веществу приложено сильное электрическое поле, возможен надбарьерный выход электрона [10].

$$I_{ion} (\text{Вт} \cdot \text{см}^{-2}) = \frac{4.0 \cdot 10^9 U_i^4 (\text{эВ})}{Z^2}, \quad (2)$$

где Z – заряд ядра. Очевидно, что рассмотренная модель квазиклассическая и весьма упрощенная. Следует напомнить, что существует квантовое туннельная подбарьерная ионизация, которая позволяет электрону покидать атом задолго до достижения порога (2). Подробно познакомиться с теорией лазерной ионизации можно по обзору [11]. Однако, высота барьера быстро растет для электрических полей ниже величины порога и во многих практических случаях инженерная формула (2) дает удовлетворительную оценку.

Интенсивности, соответствующие полям (2), имеют значения ниже $10^{16} \text{Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ для электронов занимающих внешние оболочки атомов. Это означает, что когда сверхинтенсивный лазерный импульс взаимодействует с веществом, ионизация происходит в начале взаимодействия, а центральная часть импульса взаимодействует уже с плазмой свободных электронов и ионов. Таким образом, взаимодействие электромагнитной волны именно со свободной заряженной частицей носит здесь фундаментальный характер.

Рассмотрим потенциал простейшей плоской электромагнитной волны, распространяющейся в положительном направлении вдоль оси Z :

$$a(\zeta) = a_0(\zeta) \cos k\zeta \quad (3)$$

где $a = \frac{eA}{mc^2}$ – релятивистски нормализованный векторный потенциал, $z = \frac{mc^2}{\hbar} z - ct$, $k = 2\pi/l$, l – длина волны. Используем кулоновскую калибровку и положим скалярный потенциал электромагнитной волны равным нулю, $j(z) = 0$.

Потенциал волны (3) имеет две важных симметрии, каждая из которых приводит к интегралу движения, сохраняющемуся при перемещении заряженной частицы. Во-первых, потенциал (3) не зависит от поперечных координат. Как следствие, это приводит к сохранению обобщенного поперечного момента

$$P_z = P_{\perp} + amc = const,$$

Где $P_{\perp} = m\gamma v_{\perp}$ – кинетический момент и $\gamma = 1/\sqrt{1 - (v/c)^2}$ – лоренц-фактор. Во-вторых, лазерный импульс – это волна, распространяющаяся с постоянной фазовой скоростью v_{ph} , которая в вакууме равна скорости света. Эта симметрия порождает второй интеграл движения:

$$W = K - p_z c = const,$$

где $K = (\gamma - 1)mc^2$ – кинетическая энергия частицы.

Получив эти два интеграла, можно определить энергию и момент как функцию амплитуды лазерной волны. Пусть частица находится в покое, когда ее достигает лазерный импульс. В этом случае оба интеграла равны нулю и

$$p_z = \frac{p_{\perp}}{2mc}, \quad K = \frac{a^2}{2} mc^2 \quad (4)$$

Из выражения для кинетической энергии K мы видим, что частица, колеблющаяся в лазерной волне, получает энергию, сравнимую с ее энергией покоя mc^2 , когда нормализованная амплитуда лазерной волны становится близкой к единице, $a_0 = 1$. Если нормализовать ее на массу электрона, то эта амплитуда соответствует интенсивности лазерного излучения

$$I_0 \lambda^2 = 1,37 \cdot 10^{18} \text{ Вт} \cdot \text{мкм}^2 \cdot \text{см}^{-2}.$$

Интенсивность I_0 обычно рассматривается как переходная к релятивистскому взаимодействию лазер-плазма (релятивистская оптика), потому что большие количества электронов в плазме в этом случае начинают осциллировать с релятивистскими скоростями. Отметим, что релятивистская интенсивность I_0 зависит от длины волны как λ^2 . Это дает $10^{18} \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ для лазера на стекле с $\lambda = 1 \text{ мкм}$ и «всего» $10^{16} \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ для CO_2 лазера с $\lambda = 10 \text{ мкм}$.

Форму траектории частицы в плоской волне можно определить аналитически, если ввести «внутреннее время частицы» $s = \omega t / \gamma$. Для плоской волны с амплитудой a_0 линейной поляризацией в направлении X , траектория в нормализованных координатах (ζ, ξ, τ) имеет вид:

$$\zeta = \frac{kz}{a_0^2} = \frac{1}{8}(2s - \sin 2s), \quad \xi = \frac{kx}{a_0} = \cos s,$$

$$\tau = ckt = a + \frac{a_0^2}{8}(2s - \sin 2s)$$

Эта траектория показана на рис. 3. Она автомодельная и не зависит от амплитуды лазерного поля в координатах (ζ, ξ, τ) . Однако при возвращении к физическим координатам видно, что существует значительная разница в движении частицы при нерелятивистской ($a \ll 1$) и релятивистской ($a > 1$) амплитудах поля.

Действительно, отклонение частицы в направлении поляризации пропорционально амплитуде лазерной волны, а в продольном направлении – квадрату амплитуды. Таким образом, при малых интенсивностях частицы осциллируют в основном в направлении

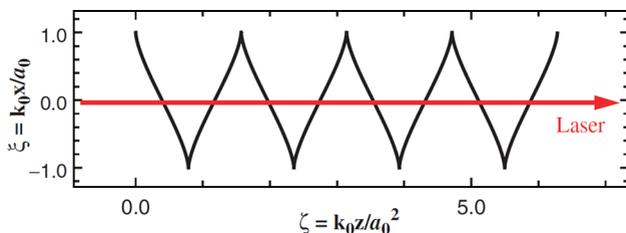


Рис. 3. Автомоделная траектория электрона в плоской электромагнитной волне [10].

поляризации с малым пондеромоторным сдвигом в направлении распространения лазерного импульса. При переходе в релятивистский режим движение частиц становится преимущественно продольным. Лазерная пондеромоторная сила $v_{\perp} \times B$ ускоряет их вдоль оси распространения импульса.

Правда следует отметить, что такое прямое лазерное ускорение электронов в вакууме достаточно неэффективно. Средняя ускоряющая сила (F), действующая на релятивистскую частицу в вакууме, насыщается на уровне $F/mc\omega < 2$. Причиной этого является зависимость поперечной скорости от нормированной амплитуды волны. При нерелятивистских интенсивностях она вначале растет $v_{\perp}/c \sim a_0$ для $a_0 \ll 1$, далее достигает максимума на a_0 и далее спадает обратно пропорционально амплитуде, $v_{\perp}/c \sim 1/a_0$ для больших a_0 . Как следствие, пондеромоторная сила $v_{\perp} \times B$ далее уже не возрастает вне зависимости от интенсивности лазерного импульса.

Кроме того, лазерные импульсы при экстремальных интенсивностях сильно сфокусированы, а не являются плоскими волнами. Сфокусированная волна имеет не только поперечные, но продольные компоненты векторного потенциала. Это приводит к тому, что когда сфокусированный лазерный импульс взаимодействует с частицами в вакууме, они рассеиваются от фокусного пятна.

Рассмотренный механизм прямого лазерного ускорения генерирует ускоренные электроны со спектром, имеющим форму близкую к распределению Больцмана. Однако, будущие применения

(например, в ядерной медицине) требуют пучков намного лучшего качества, т.е. (квази)-моноэнергетических и с малой угловой расходимостью. Такие пучки могут генерироваться лазером в плазме с использованием другого механизма ускорения: ускорение в плазменной кильватерной волне, который будет более подробно рассмотрен далее.

Что касается ионов, они значительно тяжелее электронов, поэтому достигают релятивистского режима много позднее. Например, для протонов можно оценить интенсивность следующим образом:

$$I_p = \left(\frac{M_p}{m} \right)^2 I_0 \approx 5 \cdot 10^{24} \text{ Вт} \cdot \text{мкм}^2 \cdot \text{см}^{-2}$$

Эта интенсивность даже для протонов пока превышает технически доступные на сегодняшний день значения. При «электронной» релятивистской интенсивности протон осциллирует в лазерном поле с энергией порядка сотни электрон-вольт. Таким образом, ускорение ионов в настоящее время возможно только как вторичный процесс, т.е. в электрических полях индуцированных разогретыми лазерным импульсом электронами.

3. Ускорение электронов в плазменной волне.

Размеры современных радиочастотных ускорителей электронов определяются напряженностью ускоряющего поля, которая составляет $10^7 - 10^8 \text{ В} \cdot \text{м}^{-1}$ и физически ограничена электрическим пробоем в резонаторной ускоряющей системе. Уже достаточно давно начал обсуждаться вопрос об ускорении частиц не в вакууме, а в плазме [5]. В этом случае, с одной стороны отсутствует ограничение, обусловленное пробоем, а с другой – напряженность электрического поля в релятивистской волне плотности заряда (фазовая скорость которой близка к скорости света) может достигать огромных величин. Действительно, оценка ([1] с. 126) с помощью уравнения Пуассона позволяет связать эту напряженность с концентрацией электронов плазмы n_e :

$$E \cong a(n_e)^{1/2} [\text{В}\cdot\text{см}^{-1}]$$

где $a = \delta n/n_e$ – безразмерная амплитуда плазменной волны (δn – амплитуда колебаний плотности электронов). При плотности электронов $n_e = 10^{17} \text{ см}^{-3}$ и $a = 0,3$, напряженность ускоряющего поля в плазменной волне составляет 10^8 Вт/см , что сразу на два-три порядка превышает темпы ускорения даже в лучших традиционных радиочастотных ускорителях.

Общая идея ускорения заряженных частиц мощными лазерными импульсами в при их взаимодействии с плазмой, впервые предложенная в [5], заключается в следующем. Лазерный импульс, распространяясь в прозрачной плазме, оказывает пондеромоторное воздействие на электроны вдоль направления своего распространения и индуцирует тем самым колебания плазмы, которые проявляются в виде кильватерной плазменной волны. В этой плазменной волне существует продольное электрическое поле, в котором есть как фазы ускорения, так и фазы торможения. Поскольку зоны ускорения перемещаются с фазовой скоростью, равной групповой скорости лазерного импульса в плазме и близкой к скорости света, то электроны, попавшие в фазу ускорения и движущиеся с релятивистской скоростью в направлении распространения лазерного импульса, могут оставаться в ускорительной фазе относительно долгое время, приобретая тем самым значительную энергию, рис. 4. Такие электроны называют захваченными, а предел набора энергии определяется длиной дефазировки.

Одной из основных проблем в этом режиме является загрузка или захват электронов в ускоряющую фазу поля. Обычно захватываемый заряд не превышает 10 нКл, имеет больцмановское распределение и температуру порядка нескольких МэВ ($\sim 10^{10} \text{ К}$). При этом новый захват ограничивается уже захваченными электронами ввиду действия кулоновских сил отталкивания. Предпринимаются различные способы решения проблемы инжекции: инжекция из внешнего источника (технически очень сложная задача для традиционной ускорительной физики); создание условий захвата с по-

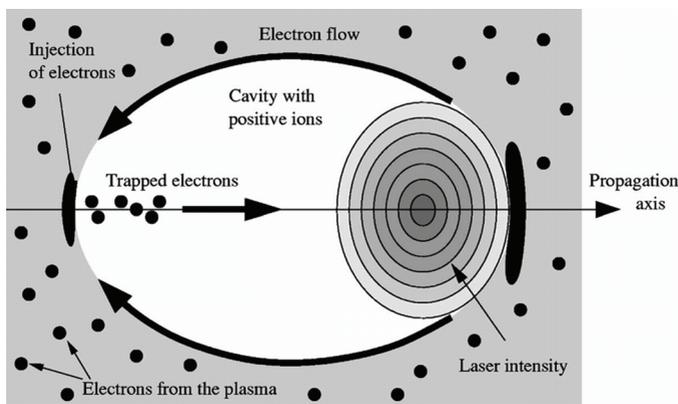


Рис. 4. Ускорение в кильватерной волне лазерного импульса в плазме [21].

мощью второго лазерного импульса [12] (см. рис. 5); использование неоднородной плазмы с градиентом плотности [13] и т.д.

Рассмотрим схему механизма автоинжекции в (сильно нелинейном) режиме электронного пузыря. На рис. 5а представлена диаграмма распределения плотности электронов плазмы за лазерным импульсом. Плазменная волна сильно нелинейна и имеет области, откуда электроны удалены (на рисунке – темные) и области, где электроны сконцентрированы (на рисунке – светлые). Стрелками показано как электроны перемещаются наружу и потом собираются в задней части кильватерной волны, где некоторые из них захватываются и ускоряются. На рис. 5b показана диаграмма инъекции в схеме с двумя сталкивающимися импульсами. На рис. 5b(1) два лазерных импульса еще не столкнулись, импульс накачки создает сильную плазменную волну, однако не столь сильно нелинейную, как в случае режима электронного пузыря. На рис. 5b(2) импульсы сталкиваются, и их интерференция создает биение поля, которое предускоряет электроны. На рис. 5b(3) некоторые из предварительно ускоренных электронов захватываются и далее ускоряются в кильватерной волне.

Среди наиболее впечатляющих результатов с точки зрения качества и возможностей управления параметрами пучка в экспе-

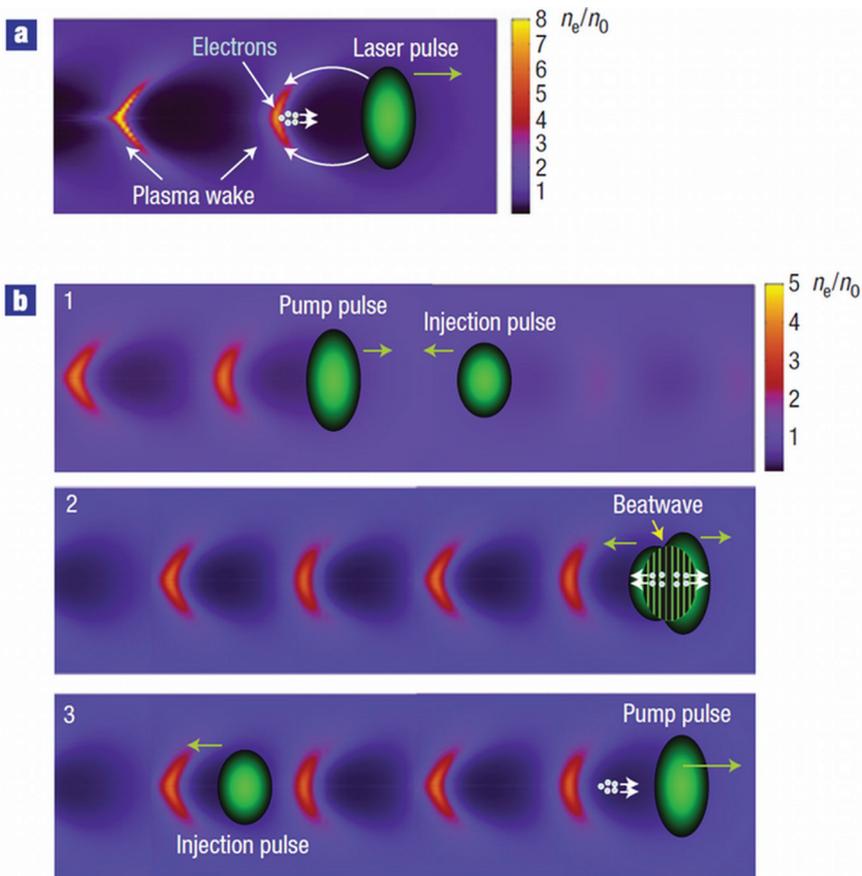


Рис. 5. Некоторые схемы инжекции в лазерно-плазменных ускорителях [12].

риментах по ускорению электронов можно указать на результаты, полученные в схеме (рис. 6) и воспроизведенные на рис. 7.

Таким образом, прогресс в лазерно-плазменном ускорении электронов позволяет утверждать, что параметры пучков уже близки к необходимым для их применения в различных схемах генерации жестких излучений. Целью всегда ставится получение компактных («настоельных») интенсивных источников (квази)-мо-

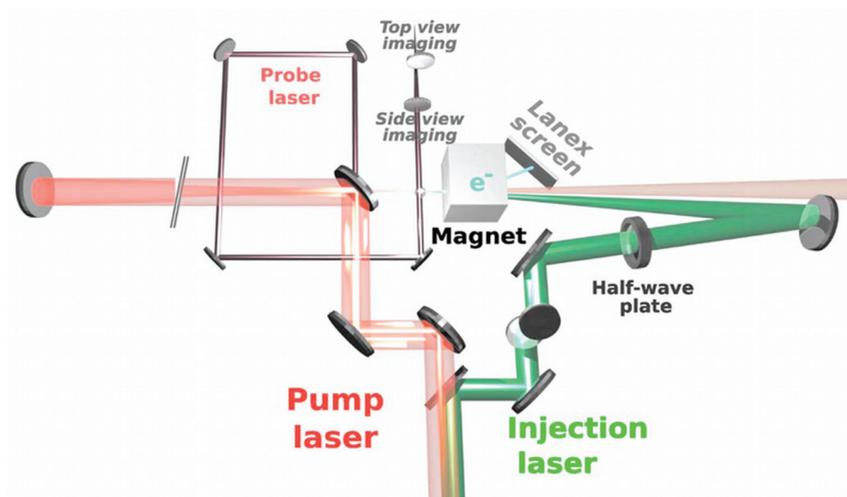


Рис. 6. Экспериментальная схема с двумя лазерными пучками, распространяющимися под углом 176° и ускоряющими электроны в плазменной мишени в виде ультразвуковой газовой струи [14].

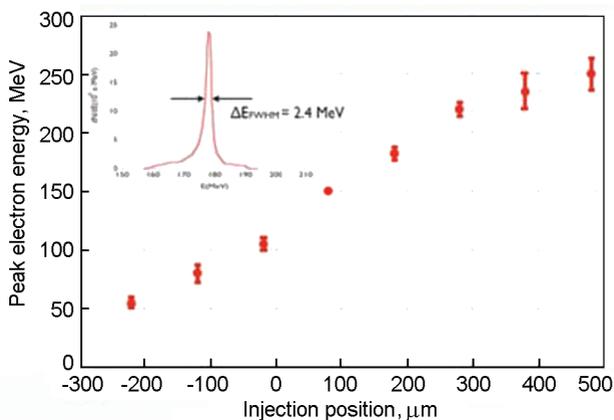


Рис. 7. Энергия электронного пучка как функция расположения точки столкновения лазерных импульсов внутри газовой струи. На врезке показано, что энергетический разброс порядка 1,3%. Точка 0 мкм соответствует середине газовой струи, а точка 500 мкм соответствует ранней инжекции на входе в струю газа [15].

нохроматических ионизирующих излучений с перестраиваемой энергией фотонов, которые позволят, например, использовать радиационные технологии, которые применимы пока только на синхротронных световых источниках. Перечислим уже достигнутые параметры этих пучков:

- энергия пучка до 400 МэВ и dE/E порядка 1%;
- возможность перестройки энергии излучения;
- короткий импульс электронов порядка 1,5 фс;
- слабая пространственная расходимость порядка 2 мрад.

Конечно, здесь особо следует уточнить, что в рассматриваемых процессах ускоряются короткие сгустки (банчи) электронов с зарядом порядка десятков пКл, что не может обеспечить большой средний ток (пока частота работы мощных лазерных систем не превышает нескольких десятков герц) и, как следствие, существенную интенсивность выходного излучения. Однако, весьма вероятно усиление генерируемой интенсивности в некоторых радиационных механизмах из-за коллективных эффектов (сверхизлучение) в силу очень короткой длительности импульсов тока.

4 Короткоимпульсные источники жесткого излучения.

Весьма перспективным выглядит полностью оптический короткоимпульсный источник высокоэнергетического гамма-излучения на основе обратного комптоновского рассеяния (см. рис. 8). На рис. 8а интенсивный фемтосекундный лазерный импульс фокусируется на гелиевой струйной мишени толщиной порядка миллиметра, индуцирует в ней кильватерную полость, в которой захватываются и ускоряются электроны. За газовой мишенью нормально к осям лазерного импульса и электронного пучка располагается твердая мишень (например, стекло толщиной 1,0 мм). Мишень ионизируется фронтом импульса и превращается в плазменное зеркало, эффективно (лучше чем 70% при $a_0 \geq 0,04$) отражающее лазерный импульс. Такой подход позволяет синхронизировать в пространстве и времени встречные импульсы лазерного излучения и релятивист-

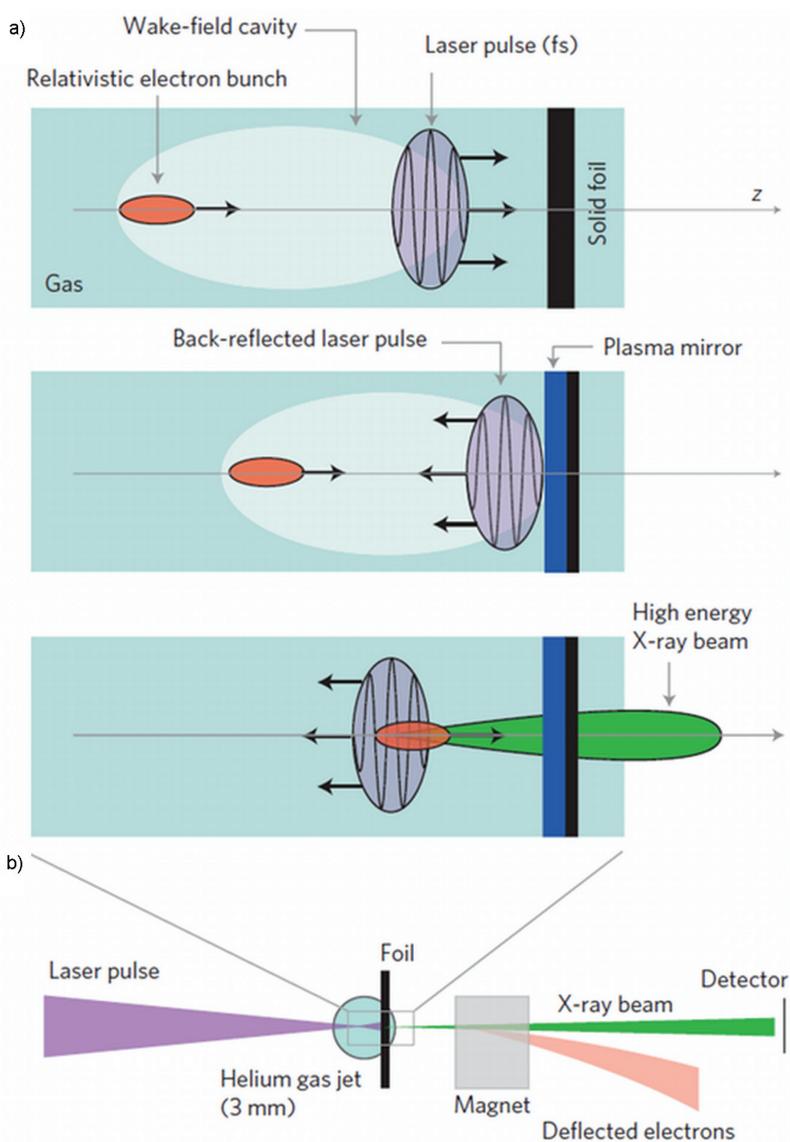


Рис. 8. Полностью оптический гамма-источник: а – формирование условий обратного комптоновского рассеяния; б – упрощенная экспериментальная схема [16].

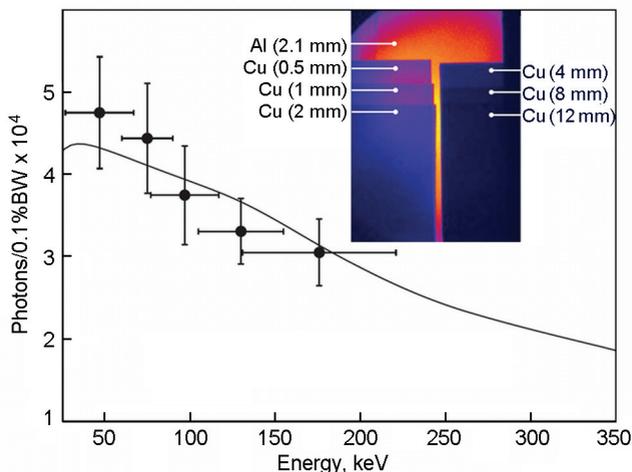


Рис. 9. Энергия и интенсивность полностью оптического источника гамма-излучения [16].

ских электронов для обеспечения условий для обратного комптоновского рассеяния. На рисунке 8b показана упрощенная схема эксперимента. Измеренный заряд банча электронов, ускоренного в кильватерном режиме, составлял 120 пКл. Энергия и интенсивность полученного гамма-излучения показана на рис. 9.

В недавно опубликованной работе [17] при демонстрации полностью лазерного (100 ТВт) комптоновского гамма-источника были получены гамма-кванты 50%-ной монохроматичности с перестраиваемой энергией в диапазоне 70 кэВ–1 МэВ. Его спектральная яркость оценивается величиной для пучка с энергией 70 кэВ и для пучка с энергией 1,0 МэВ. Такие величины уже конкурентны с величинами спектральных яркостей синхротронных световых источников 3-го поколения (с ондуляторами или вигглерами) [18] при «настольных» габаритах лазерной установки-генератора. Количество фотонов было порядка двух миллионов в импульсе, что при существующей частоте следования лазерных импульсов пока не обеспечивает нужных для широкого применения интенсивностей пучка.

Для исследования быстропротекающих процессов в рентгеновском и гамма диапазонах очевидным образом требуются адекватные аппаратура и методики. Рентгеновская спектроскопия короткоимпульсных источников уже во многом разработана применительно к фемтосекундной диагностике плазмы (напр. см. обзор [19]). Однако, что касается рентгеновской спектрометрии с разрешением по времени, перевода фемтосекундных структурных исследований из академических лабораторий в индустрию и медицину, необходимо разработать целый ряд новых или модифицированных методик измерений, подкрепленных соответствующим инструментарием, а также новых детекторов и стандартов. В целом, должна быть сформирована полная система рентгеновской фемтосекундной метрологии, включающей в себя некогерентную метрологию (качество рентгеновской оптики, свойство многослойных рентгеновских зеркал, измерения коэффициентов преломления), когерентные методики (интерферометрия, голография), спектрально-временную метрологию (фурье-спектрометрия, аттосекундные измерения), контроль деградации оптики из-за интенсивности падающего излучения и прямые оценки его интенсивности. Одной из структурированных попыток собрать экспертов из различных областей применения рентгеновских методов для фокусирования на этой проблеме является мероприятие MP2013 в рамках Европейской кооперации в науке и технологии (COST) под названием «Усовершенствованная пространственная и временная рентгеновская метрология» [20].

5 Новая структура импульсного лазера с высокой средней мощностью – CAN.

Но все же, основным сдерживающим фактором в практическом использовании лазерно-плазменных методов ускорения и связанных с ними разработок является существующее в настоящее время технологическое ограничение средней мощности импульсного лазерного излучения. В качестве одной из новых идей для преодоления этого ограничения можно упомянуть международный

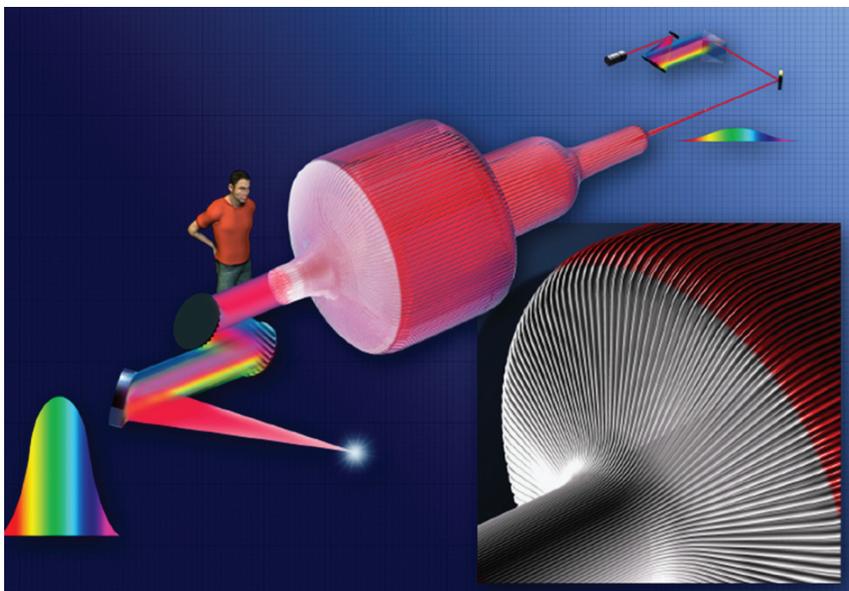


Рис. 10. Концепция волоконного CAN-усилителя в схеме усиления чирпированных импульсов [22].

консорциум CAN (Coherent Amplification Network – сеть когерентного усиления) [22; 23], предлагающий использование когерентного сложения сигналов нескольких тысяч волоконных лазеров с диодной накачкой, уже коммерчески доступных и применяемых в технике телекоммуникаций. Целью проекта является создание импульсного лазера (кпд 30–50%) с выходной энергией 32 Дж при частоте повторения импульсов 15 кГц, что дает среднюю мощность излучения примерно 500 кВт и пиковую мощность 240 ТВт. Концепция проекта CAN показана на рис. 10, а обсуждение проблем и последних достижений приведено в докладе [24], где данный подход представляется, как новая парадигма в генерации фемтосекундных лазерных импульсов с высокой средней мощностью.

Ключевой проблемой в реализации такой концепции является разработка технических возможностей активного управления фазами группы импульсных волоконных лазеров с целью когерентного

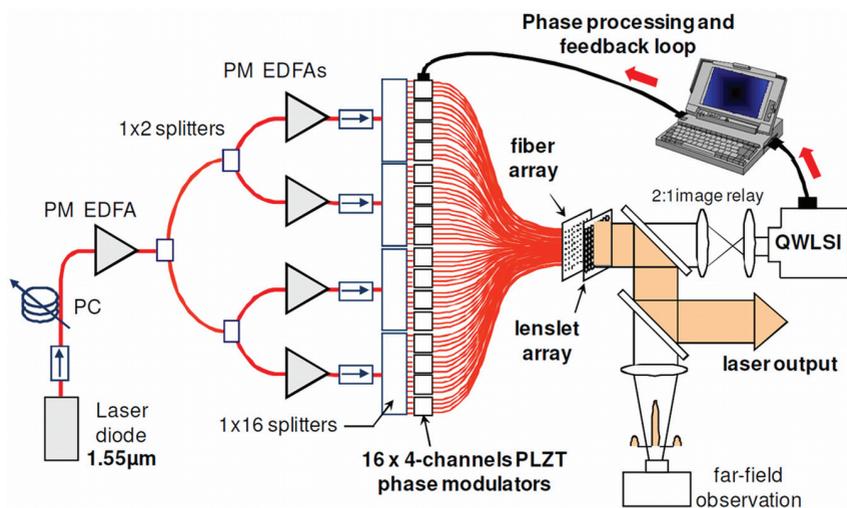


Рис. 11. Экспериментальная установка (PC – контроллер поляризации; PM EDFA – активированный эрбием волоконный усилитель с поддержкой фазы; QWLSI – четырехволновой интерферометр поперечного сдвига) [25].

сложения их полей в дальней зоне. Основная сложность состоит в необходимости управления не только фазовой, но и групповой задержками. Разрабатывается достаточно много различных подходов, один из которых недавно продемонстрировал успешное когерентное сложение выходных полей 64-х независимых волоконных усилителей [25]. Экспериментальная установка состояла из матрицы коллимированных волоконных световодов, наборов быстродействующих фазовых модуляторов и анализатора волнового фронта QWLSI, специально разработанного для этого применения, см. рис. 11.

Утверждается, что такая адаптивная архитектура, базируемая на активном управлении фазой волны каждого из световодов с помощью компактных матриц электрооптических PLZT-модуляторов, имеет потенциал масштабирования до большего (вплоть до 10^4) количества управляемых каналов. Для этого необходимо повысить быстродействие измерительного канала с помощью камеры высокого разрешения и более быстрых каналов обратной связи.

Оценка стоимости системы CAN, сделанная на основании ряда «реалистичных» допущений в [23], приводит авторов к величине в 20 М\$ для лазера с энергией 30 Дж и частотой повторения импульсов 10 кГц.

Заключение

Для того чтобы еще раз подчеркнуть перспективность работ по лазерно-плазменному ускорению, кратко перечислим возможные (фундаментальные и практические) применения лазерно-ускоренных частиц [1, 2]:

- инжекторы для традиционных радиочастотных ускорителей частиц (электронов и ионов);
- протонная радиография, например зондирование сильных полей в мишенях инерционного термоядерного синтеза;
- «быстрый» поджиг мишени инерционного термоядерного синтеза;
- получение короткоживущих изотопов, например для позитронной эмиссионной томографии, которые получают сейчас на медицинских циклотронах;
- коротко-импульсные источники нейтронов, например для диагностики быстропротекающих процессов в плотных средах;
- генерация жесткого электромагнитного излучения;
- ионная имплантация;
- фундаментальные эксперименты в области физики экстремальных состояний и ядерной физики, например исследования по трансмутации долгоживущих изотопов;
- лазерная радиационная терапия [21] т.д.

Очевидно, что исследования в этой области не только находятся на переднем крае науки, но и являются междисциплинарными. Таким образом, ученые многих специальностей могут найти свою нишу в этих исследованиях, т.к. здесь находится стык лазерной физики, теоретической физики, физики плазмы, физики ядра и элементарных частиц, материаловедения, теории и практики ускорения заряженных частиц, научного приборостроения. Коллективный

характер взаимодействия частиц и полей в лазерно-плазменных экспериментах ставят весьма серьезные проблемы при проведении численных экспериментов и, следовательно, требуют привлечения специалистов по высокопроизводительным вычислениям и использования соответствующей суперкомпьютерной техники.

С точки зрения применений просматриваются интересы физиков, химиков, медиков и биологов, разработчиков и промышленных пользователей радиационных технологий. Именно отсутствие компактных ускорителей электронов и ионов тормозит широкое применение многих, уже в достаточной степени зрелых и отработанных на больших ускорителях и синхротронных световых источниках, ядерно-медицинских и радиационных технологий.

Чтобы особенно подчеркнуть значение фемтосекундного диапазона временной шкалы, напомним, что базовые изменения в атомарных конфигурациях в процессе химических реакций, структурных фазовых переходов, колебаний кристаллической решетки и других элементарных процессов происходят именно в фемтосекундном диапазоне. Таким образом, если традиционные источники рентгеновского излучения помогают получить статические образы структур, то короткоимпульсные рентгеновские источники будут давать в дополнение к информации с высоким пространственным разрешением еще и информацию о временной эволюции атомарных структур, то есть позволят получить динамические структурные картины вещества. Другими словами, рентгеновские структурные исследования с разрешением по времени (напр. [18] гл. 5) с прогрессом рассмотренных источников получают свое дальнейшее развитие.

Литература

1. Фортгов В.Е. Экстремальные состояния вещества. М.: ФИЗМАТЛИТ. 2009. – 304 с.
2. Laser-plasma interactions. Eds.: Jaroszynsky D.A., Bingham R., Cairns R.A. Boca Raton, London, New York: CRC Press. 2009. – 427 p.

3. Humphries S. Principles of charged particle acceleration. New York: J. Wiley and Sons. 1999. – 578 p.
4. Лебедев А.Н., Шальнов А.В. Основы физики и техники ускорителей. М.: Энергоатомиздат. 1991. – 528 с.
5. Tajima T., Dawson J.M. Laser electron accelerator // *Phys. Rev. Lett.* 1979. Vol. 43. P. 267–270.
6. Коржиманов А.В. и др. Горизонты петаваттных лазерных комплексов // *УФН.* 2011. Т. 181, №1. С. 9–32.
7. Хазанов Е.А., Сергеев А.М. Петаваттные лазеры на основе оптических параметрических усилителей: состояние и перспективы // *УФН.* 2008. Т. 178, №9. С. 1006–1011.
8. Extreme Light Infrastructure: Report on the Grand Challenges Meeting (27-28 Apr. 2009, Paris), Eds. G. Korn, P. Antici – Paris: www.wli-laser.eu. 2009. – 98 P.
9. Сергеев А.М. Экстремальные световые поля // <http://theor.mephi.ru/sem/school-12/sergeev/%d1%e5%f0%e3%e5%e2%20-%20%f8%eae%eb%e0%20%cc%8%d4%c8.pdf> [Электронный ресурс, 20.11.2013].
10. Pukhov A. Strong field interaction of laser radiation // *Rep. Prog. Phys.* 2003. Vol. 66. P. 47–101.
11. Попов В.С. Туннельная и многофотонная ионизация атомов и ионов в сильном лазерном поле (теория Келдыша) // *УФН.* 2004. Т. 174, №9. С. 921–951.
12. Malka V., Faure J., Gauduel Y. et al. Principles and applications of compact laser–plasma accelerators // *Nature Physics.* 2008. Vol. 4. P. 447–453.
13. Malka V. Laser plasma accelerators // *Phys. Plasmas.* 2012. Vol. 19. P. 055501 (11 PP).
14. Malka V., Faure J., Rechatin C. et al Laser-driven accelerators by colliding pulses injection: A review of simulation and experimental results // *Phys. Plasmas.* 2009. Vol. 16. P. 056703 (7 PP).
15. Malka V. Laser plasma accelerator research activities at LOA // *Journ. Intense Pulsed Lasers & Appl. in Adv. Physics.* 2012. Vol. 2. P. 23–29.
16. Ta Phuoc K., Corde S., Thaury C. et al. All-optical Compton gamma-source // *Nature Phot. Letters.* 2012. DOI: 10.1038/nphoton.2012.82.

17. Powers N.D., Ghebregziabher I., Golovin G., et al. Quasi-monoenergetic and tunable x-rays from a laser-driven Compton light source // *Nature Phot.* 2013. DOI:10.1038/NPHOTON.2013.314.
18. Фетисов Г.В. Синхротронное излучение. Методы исследования структуры веществ. / Под ред. Л.А. Асланова. М.: ФИЗМАТЛИТ, 2007. – 672 С.
19. Шевелько А.П. Методы фемтосекундной диагностики плазмы // Препринт ФИАН №35, Москва, 2006. - 62 С.
20. Advanced x-ray spatial and temporal metrology // Электронный ресурс (29.02.2015) <http://www.cost-mp1203.eu/?PHPSESSID=d0270b673b56b224e90f5e6cb06fcfd1>
21. Glinec Y., Faure J., Malka V. et al. Radiotherapy with laser-plasma accelerators: Monte Carlo simulation of dose deposited by an experimental quasimonoenergetic electron beam // *Med. Phys.* 2006. Vol. 33, No 1. P. 155–162.
22. Mourou G., Hulin D., Galvanauskas A. The road to high peak power and high average power lasers: Coherent Amplification Network (CAN) // *AIP Conf. Proc.* 2006. Vol. 827. P. 152–163.
23. Mourou G., Tajima T., Quinn M. et al. Are fiber-based lasers the future of accelerators? // *Nucl. Instr. Meth.* 2014. Vol. A740. P. 17–20.
24. Brocklesby W.S., Nilsson J., Schreiber T. et al. ICAN as a new laser paradigm for high energy, high average power femtosecond pulses // *Eur. Phys. J. Special Topics.* 2014. Vol. 223. P. 1189–1195.
25. Bourderionnet J., Bellanger C., Primot J., Brignon A. Collective coherent phase combining of 64 fibers // *Opt. Express.* 2011. Vol. 19, No 18. P. 17053–17058.

Национальная академия наук Украины
Институт сцинтилляционных материалов

Состояние и перспективы развития функциональных
материалов для науки и техники®

ФИЗИКА СЦИНТИЛЛЯТОРОВ. МАТЕРИАЛЫ, МЕТОДЫ, АППАРАТУРА

Ответственный секретарь Е.В. Щербина
Компьютерная верстка С.В. Баранник

Сдано в набор 26.02.2015. Подписано в печать 01.06.2015.
Формат 60×84 1/16. Бумага типограф. Гарнитура Century Schoolbook.
Печать высокая с ФПФ. Усл. печ. л. 17
Тираж 300 экз.

Харьков
2015