
ФИЗИКА ЯДРА И ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ЧАСТИЦ

ATOMIC NUCLEUS AND ELEMENTARY PARTICLE PHYSICS

УДК 539.1.07+539.1.074.3

О ПРЕДЕЛЕ ТОЧНОСТИ ПОСТАНОВКИ ВРЕМЕННОЙ МЕТКИ ПРИ РЕГИСТРАЦИИ АННИГИЛЯЦИОННЫХ γ -КВАНТОВ СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫМ ДЕТЕКТОРОМ

М. В. КОРЖИК¹⁾

¹⁾Институт ядерных проблем БГУ, ул. Бобруйская, 11, 220006, г. Минск, Беларусь

Проанализировано влияние различных процессов релаксации электронных возбуждений, приводящих к возникновению в кристаллических соединениях сцинтилляции под действием ионизирующего излучения. Установлено, что внутрицентровая релаксация электронных возбуждений формирует физический предел для временного разрешения сцинтилляционного детектора. Путем моделирования определен численный предел временного разрешения, который может быть обеспечен при измерении ионизирующего излучения сцинтилляционными детекторами. Выполнено сравнение пределов временного разрешения детекторов при различных погрешностях, вносимых электронной частью детектора ионизирующего излучения. Показано, что неорганические сцинтилляционные материалы на основе монокристаллов, активированных ионами церия, имеют предел на уровне 10 пс, в то время как самоактивированные сцинтилляторы, обладающие малым выходом и короткой кинетикой сцинтилляций, – не хуже 20 пс. Дальнейшее увеличение выхода сцинтилляций при сохранении короткой кинетики в самоактивированных материалах может обеспечить лучшее временное разрешение при использовании их в детекторах в сравнении с таковым при применении Се-активированных материалов.

Ключевые слова: сцинтиллятор; временное разрешение; релаксация; церий; вольфрамат свинца.

Образец цитирования:

Коржик МВ. О пределе точности постановки временной метки при регистрации аннигиляционных γ -квантов сцинтилляционным детектором. *Журнал Белорусского государственного университета. Физика.* 2021;2:96–101. <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2021-2-96-101>

For citation:

Korzhih MV. On the limit of the accuracy of time stamp at the detection of annihilation γ -quanta with a scintillation detector. *Journal of the Belarusian State University. Physics.* 2021;2:96–101. Russian. <https://doi.org/10.33581/2520-2243-2021-2-96-101>

Автор:

Михаил Васильевич Коржик – доктор физико-математических наук; заведующий лабораторией экспериментальной физики высоких энергий.

Author:

Mikhail V. Korzhik, doctor of science (physics and mathematics); head of the laboratory of experimental high energy physics. korzhik@inp.bsui.by



ON THE LIMIT OF THE ACCURACY OF TIME STAMP AT THE DETECTION OF ANNIHILATION γ -QUANTA WITH A SCINTILLATION DETECTOR

M. V. KORZHIK^a

^a*Institute for Nuclear Problems, Belarusian State University,
11 Babrujskaja Street, Minsk 220006, Belarus*

An influence of the various relaxation processes of the electronic excitations causing the scintillation in the crystalline compounds under ionising radiation is analysed. It was found that the intracenter relaxation of electronic excitations in the luminescence ion forms a physical limit for the time resolution of the scintillation detector. The limit of the time resolution, which can be provided when measuring the ionising radiation with a scintillation detector, has been established by simulation. A comparison of the time resolution limits for various errors by the electronic part of the ionising radiation detector is performed. It is shown that inorganic scintillation materials based on single crystals activated by cerium ions have a limit of 10 ps, while self-activated scintillators with low yield and short scintillation kinetics may show results not worse than 20 ps. It has been demonstrated that a further increase in the scintillation yield while keeping the short kinetics in self-activated materials can provide a better time resolution in comparison with Ce-activated materials in future detectors.

Keywords: scintillator; time resolution; relaxation; cerium; lead tungstate.

Введение

Сцинтилляционные материалы сыграли исключительную роль в формировании облика современной физики, уже более века они обеспечивают измерение ионизирующего излучения [1]. Сцинтилляцию можно наблюдать в различных неорганических и органических кристаллических средах, жидкостях, газах (включая жидкие благородные газы), полимерах и метаматериалах [2]. В данной работе рассмотрены наиболее используемые сцинтилляторы – кристаллические неорганические материалы. Они применяются в широком спектре измерительного оборудования – от гигантских установок в экспериментах по физике частиц и высоких энергий до рутинных приборов, обеспечивающих радиационную безопасность и экологический контроль. Взаимодействие ионизирующего излучения с неорганическим сцинтиллятором приводит к цепи процессов и в результате к возникновению ансамбля возбужденных люминесцентных центров. Эти процессы составляют кинетику сцинтилляции, которая в совокупности с выходом сцинтилляции формирует основные пользовательские параметры сцинтилляционных детекторов – энергетическое и временное разрешения. Если энергетическое разрешение при регистрации γ -квантов за счет фотопоглощения, или заряженных частиц за счет полного поглощения, или образования пар e^+e^- с их дальнейшей аннигиляцией для большинства материалов описывается зависимостью $\sim \frac{1}{\sqrt{Y}}$, где Y – выход сцинтилляции, то временное разрешение не имеет простой аналитической зависимости и обусловлено комбинацией различных параметров сцинтилляционного импульса и используемых элементов преобразования оптического сигнала в электрический [3].

Потребность в высоком временном разрешении обозначилась в последнее десятилетие, когда стало ясно, что будущее экспериментальной физики высоких энергий связано с увеличением светимости коллайдеров и частоты столкновения импульсов заряженных частиц. Основными детекторами в таких многослойных исследовательских установках являются электромагнитные калориметры, где продукты взаимодействия электромагнитной природы образуют пары e^+e^- и далее аннигиляционные γ -кванты (511 кэВ). Также стало очевидно, что улучшение пространственного разрешения изображений, получаемых с помощью позитронно-эмиссионной томографии (ПЭТ) человека, напрямую зависит от временного разрешения совпадений аннигиляционных γ -квантов противоположно стоящих детекторов в ПЭТ-сканере. Таким образом, регистрация аннигиляционных γ -квантов с высоким временным разрешением становится востребованной, в связи с чем прояснение граничных возможностей сцинтилляционных детекторов при их регистрации является актуальной задачей.

Временное разрешение сцинтилляционного детектора

В технике детектирования ионизирующего излучения под временным разрешением, как правило, понимают точность постановки временной метки при регистрации единичного сцинтилляционного импульса. Все части детектора, начиная с фотоприемника, участвующие в преобразовании сцин-



тилляционного импульса в электрический сигнал, вносят вклад во временное разрешение σ_t , которое можно формализовать квадратичной суммой различных членов [4]:

$$\sigma_t = \sigma_c \oplus \sigma_d \oplus \sigma_e \oplus \sigma_{ps},$$

где σ_c , σ_d и σ_e – дрожание тактовой частоты, оцифровки и электроники соответственно; σ_{ps} – вклад шума фотодатчика при заданной температуре. Современное состояние электроники и фотодатчиков, например кремниевых фотоумножителей, обеспечивает достаточно малые значения σ_c , σ_d , σ_e , σ_{ps} (на уровне 10–20 пс каждое). Не исключено, что в ближайшее десятилетие они будут снижены до единиц пикосекунд или даже меньше.

Для достижения высокого временного разрешения принципиально важной является форма фронта сцинтилляционного импульса, попадающего на окно фотоприемника. Световой импульс до достижения окна фотоприемника претерпевает искажения вследствие распределения длин пробега оптических фотонов в сцинтилляционных элементах конечных размеров. Обычно минимизация искажений за счет светосбора достигается путем использования тонких слоев сцинтиллятора или, наоборот, длинных элементов малого сечения (световодов). В этом случае именно скорость заселения излучательного состояния люминесцентного центра формирует фронт сцинтилляционного импульса (табл. 1).

Таблица 1

Последовательность процессов и их характерные длительности при взаимодействии неорганического кристаллического сцинтиллятора с γ -квантами 511 кэВ

Table 1

The sequence of processes and their characteristic durations in the interaction of an inorganic crystalline scintillator with 511 keV γ -quanta

№ п/п	Фаза	Характерное время, пс	Ссылка
1	Фотопоглощение γ -кванта, потери энергии фотоэлектроном на ионизацию и термализация неравновесных носителей	0,1–1,0	[3]
2	Создание ансамбля возбужденных люминесцентных центров	0,1–100,0	[2]
3	Внутрицентровая релаксация и заселение излучательного состояния люминесцентного центра	0,5	[5]

Процессы 1 и 2 существенно зависят от свойств материала и механизма создания ансамбля возбужденных люминесцентных центров, их длительность варьируется в широких пределах и является предметом оптимизации материала для достижения наилучших эксплуатационных характеристик. Внутрицентровая релаксация, обуславливающая заселение излучательного состояния люминесцентного центра, в свою очередь, обусловлена природой люминесцентного центра. Для наиболее распространенного активаторного иона Ce^{3+} она составляет 0,5 пс [5], что объясняется развитостью электронных уровней иона, вдоль которых происходит релаксация за счет электрон-фононного взаимодействия. Для самоактивированных сцинтилляторов, где люминесцентными центрами являются оксианионные комплексы (как, например, в PbWO_4 [2]), обладающие развитой структурой электронных состояний, следует ожидать такого же порядка длительности внутрицентровой релаксации. Таким образом, внутрицентровая релаксация является тем фактором, который формирует предел скорости заселения излучательного состояния и, следовательно, предел точности постановки временной метки при регистрации аннигиляционных γ -квантов детектором на основе сцинтилляционного материала.

Достижимая точность постановки временной метки для различных типов неорганических сцинтилляторов

Будем считать, что парциальная ошибка, вносимая электронной частью детектора, и парциальная ошибка вследствие транзита фотонов к окну фотодетектора пренебрежимо малы ($\ll 1$ пс), а размеры сцинтилляционного кристалла достаточно малы, что дает возможность пренебречь парциальной ошибкой, связанной с флуктуациями положения точки энерговыделения в кристалле. В качестве сцинтилляционных кристаллов рассмотрим три типа сцинтилляторов с параметрами затухания кинетики τ_d и выхода сцинтилляций, близкими к реально используемым кристаллам (табл. 2): 1 – материал, близкий к кристаллу $(\text{Lu}-\text{Y})_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ [6], широко используемому в производстве ПЭТ-сканеров; 2 – недавно разработанный кристаллический материал $(\text{Gd}-\text{Y})_3\text{Al}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}:\text{Ce}$ [7], который имеет хорошую



перспективу для применения в целях регистрации нейтронов высоких энергий; 3 – PbWO_4 , являющийся последней версией широко используемого в физике высоких энергий материала с ускоренной кинетикой сцинтилляций [2]. При этом будем считать, что время нарастания τ_r сцинтилляций для всех кристаллов обусловлено внутрицентральной релаксацией 0,5 пс.

Таблица 2

Параметры сцинтилляционных кристаллов для моделирования

Table 2

Parameters of scintillation crystals for modelling

Параметры	Материалы		
	1	2	3
τ_r , пс	0,5	0,5	0,5
τ_d , нс	39,0	53,0	0,8
Y , фот/МэВ	30 000	53 000	200

Примечание. фот/МэВ – фотонов на 1 МэВ.

Форма светового сцинтилляционного импульса и аппаратная форма отклика электронной части детектора будут описываться функциями

$$f(t) = \frac{\exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_d}\right) - \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_r}\right)}{\tau_d - \tau_r} \theta(t-t_0),$$

$$g(t) = \frac{1}{\sigma_t \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(t-\Delta_t)^2}{2\sigma_t^2}\right),$$

где t_0 – момент времени поглощения γ -кванта; $\theta(t-t_0)$ – функция Хевисайда.

Форма сцинтилляционного импульса после регистрации сигнала фотодетектором и обработки анализирующей электроникой может быть получена при помощи следующего выражения:

$$S(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\tau) g(t-\tau) d\tau =$$

$$= \frac{1}{2(\tau_d - \tau_r)} \left(e^{\frac{\sigma_t^2 + 2(-t+t_0 + \Delta_t)\tau_d}{2\tau_d^2}} \left(1 - \operatorname{erf}\left(\frac{\sigma_t^2 + (-t+t_0 + \Delta_t)\tau_d}{\sqrt{2}\sigma_t\tau_d}\right) \right) - \right.$$

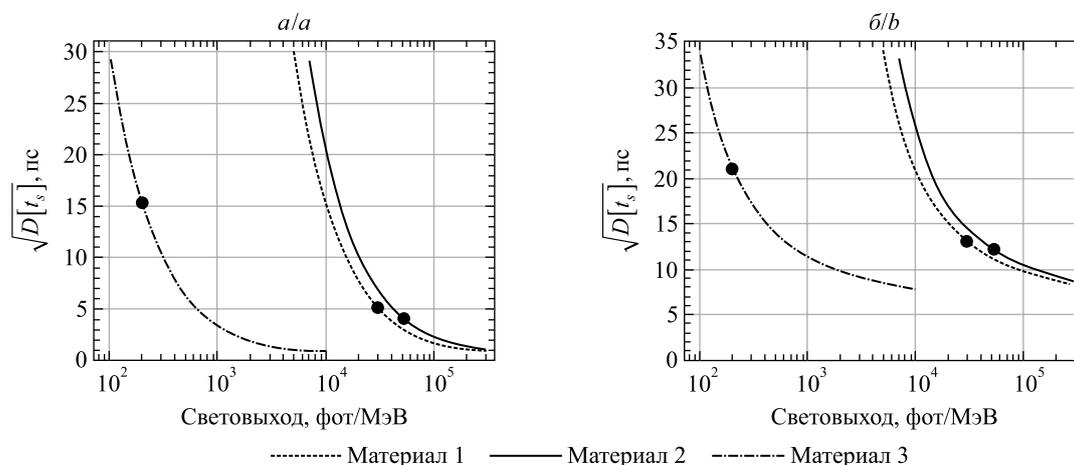
$$\left. - e^{\frac{\sigma_t^2 + 2(-t+t_0 + \Delta_t)\tau_r}{2\tau_r^2}} \left(1 - \operatorname{erf}\left(\frac{\sigma_t^2 + (-t+t_0 + \Delta_t)\tau_r}{\sqrt{2}\sigma_t\tau_r}\right) \right) \right), \quad (1)$$

где Δ_t – среднее время задержки электрического сигнала оптоэлектронной частью детектора, $\Delta_t \gg \sigma_t$. Используя выражение (1), можно получить плотность распределения временной метки регистрации события с порогом детектирования в 1 фотон:

$$p_s(t_s) = (1 - N(t))^\eta Y E_\gamma S(t),$$

где $N(t) = \int_{t_0}^t S(\tau) d\tau$ – интегрированный сигнал; η – квантовая эффективность фотодетектора; Y – световой выход кристалла; E_γ – энергия γ -кванта.

Точность постановки временной метки может быть рассчитана как корень квадратный из дисперсии ($\sqrt{D[t_s]}$) случайной величины t_s с плотностью распределения $p_s(t_s)$. Зависимость $\sqrt{D[t_s]}$ от светового выхода для трех материалов (см. табл. 1) при $\sigma_t = 1$ пс и $\sigma_t = 17$ пс и $\eta = 50\%$ представлена на рисунке.



Зависимость $\sqrt{D[t_s]}$ от световыхода для материалов с параметрами τ_r, τ_d , приведенными в табл. 1, от выхода сцинтилляций при $\sigma_t = 1$ пс (а) и $\sigma_t = 17$ пс (б) и $\eta = 50\%$.

Точки на каждой кривой соответствуют значению $\sqrt{D[t_s]}$ для световыхода из табл. 1 для данного кристалла

Dependence of $\sqrt{D[t_s]}$ on the light yield for materials with the parameters τ_r, τ_d , given in table 1, on the scintillation yield at $\sigma_t = 1$ ps (a) and $\sigma_t = 17$ ps (b) and $\eta = 50\%$. The dots on each curve indicate the $\sqrt{D[t_s]}$ value for the light output from table 1 for that crystal

Выводы

Полученные результаты позволяют сделать вывод о существенном влиянии выхода и кинетики сцинтилляций на предельное временное разрешение, получаемое с различными типами сцинтилляционных материалов. Рассмотрим два типа сцинтилляторов, имеющих характерное время затухания кинетики, большее (длинная кинетика) и меньшее (короткая кинетика), чем временной интервал между столкновениями в коллайдере.

Активированные сцинтилляторы, несмотря на относительно длинную кинетику сцинтилляций, могут обеспечивать высокое временное разрешение – менее 15 пс при современном уровне электроники. При дальнейшем совершенствовании электронной части детекторов и доведении σ_t до ~ 1 пс граничным значением является уровень 2 пс при выходе сцинтилляций не менее 100 000 фот/МэВ. Вместе с тем достигнутые к настоящему времени значения $\sigma_t \oplus \sigma_{sc}$, где σ_{sc} – ошибка, вносимая сцинтиллятором в точность постановки временной метки, немногим ниже 100 пс [8]. Таким образом, можно утверждать, что создание ансамбля возбужденных люминесцентных центров является основным процессом, ограничивающим временное разрешение детекторов, использующих такие материалы.

Для самоактивированных сцинтилляторов, наиболее часто применяемых в экспериментах на коллайдерах [9; 10], характерна короткая кинетика с быстрым временем высвечивания сцинтилляций – менее 10 нс. Укорочение времени кинетики сцинтилляций до значений в субнаносекундном диапазоне даже при небольшом выходе на уровне ~ 200 фот/МэВ делает достижимое временное разрешение всего лишь в 2–3 раза хуже, чем для детекторов на основе материалов, имеющих выход на 2 порядка выше. В самоактивированных сцинтилляторах создание ансамбля возбужденных люминесцентных центров определяется временем формирования полярных состояний [2], локализующихся на оксианионных группах, образующих кристалл. Это почти исключает вклад диффузии в затягивание процесса создания ансамбля. В экспериментах на ускорителях существенным является радиационный фон, который формирует повышенный порог регистрации сцинтилляционных импульсов. По этой причине сокращение кинетики сцинтилляций для таких материалов, обуславливающее увеличение амплитуды импульса и, как следствие, быстрое прохождение уровня порога, обеспечит приемлемое временное разрешение перекрывающихся событий взаимодействия в пучках, сталкивающихся в области конечной длины.

В заключение следует отметить, что даже при выходе сцинтилляций ~ 1000 фот/МэВ самоактивированный сцинтиллятор из семейства вольфрамата свинца с временем высвечивания короче 1 нс дает лучшее временное разрешение, чем любой из существующих и потенциально возможных активированных сцинтилляторов. Такой сцинтиллятор обеспечит на годы вперед потребности экспериментальной работы на коллайдерах семейства FCC, которые планируется ввести в эксплуатацию в Европейской организации по ядерным исследованиям (ЦЕРН) после 2040 г.



Библиографические ссылки

1. Архипова АА, Чайка ВА, Громышева ОВ, редакторы. *Люминесценция и ее применение в народном хозяйстве. Сборник материалов II научно-практического семинара; 12 марта 2020 г.; Москва, Россия*. Москва: Курчатовский институт – ИРЕА; 2020. 64 с.
2. Lecoq P, Gektin A, Korzhik M. *Inorganic scintillators for detector systems: physical principles and crystal engineering*. 2nd edition. Cham: Springer; 2017. 408 p. DOI: 10.1007/978-3-319-45522-8.
3. Korzhik M, Tamulaitis G, Vasil'ev AN. *Physics of fast processes in scintillators*. Cham: Springer; 2020. 250 p. DOI: 10.1007/978-3-030-21966-6.
4. LHC Experiments Committee. Technical proposal for a MIP timing detector in the CMS experiment phase 2 upgrade: CERN-LHCC-2017-027/LHCC-P-009 [Internet]. Geneva: CERN; 2017 [cited 2020 November 5]. 98 p. Available from: <https://cds.cern.ch/record/2296612>. (Technical proposal).
5. Nargelas S, Dosovitskiy G, Korzhik M, Tamulaitis G. Role of inter- and intraconfigurational transitions of Pr³⁺ ion in nonequilibrium carrier relaxation in garnet-type scintillators. *Optical Materials*. 2021;111:110676. DOI: 10.1016/j.optmat.2020.110676.
6. Gundacker S, Acerbi F, Auffray E, Feri A, Gola A, Nemallapudi MV, et al. State of the art timing in TOF-PET detectors with LuAG, GAGG and L(Y)SO scintillators of various sizes coupled to FBK-SiPMs. *Journal of Instrumentation*. 2016;11:P08008. DOI: 10.1088/1748-0221/11/08/P08008.
7. Korzhik M, Alenkov V, Buzanov O, Dosovitskiy G, Fedorov A, Kozlov D, et al. Engineering of a new single-crystal multi-ionic fast and high-light-yield scintillation material (Gd_{0.5} – Y_{0.5})₃Al₂Ga₃O₁₂:Ce, Mg. *CrystEngComm*. 2020;22(14):2502–2506. DOI: 10.1039/D0CE00105H.
8. Lecoq P, Morel C, Prior JO, Visvikis D, Gundacker S, Auffray E, et al. Roadmap toward the 10 ps time-of-flight PET challenge. *Physics in Medicine and Biology*. 2020;65(21):21RM01. DOI: 10.1088/1361-6560/ab9500.
9. LHC Experiments Committee. The compact muon solenoid. Technical proposal: CERN-LHCC-94-38/LHCC-P-1 [Internet]. Geneva: CERN; 1994 [cited 2020 November 5]. 254 p. Available from: <http://cds.cern.ch/record/290969>. (LHC technical proposal; 1).
10. LHC Experiments Committee. ALICE. Technical proposal for A Large Ion Collider Experiment at the CERN LHC: CERN-LHCC-95-71/LHCC-P-3 [Internet]. Geneva: CERN; 1995 [cited 2020 November 5]. 237 p. Available from: <http://cds.cern.ch/record/293391>. (LHC technical proposal; 3).

References

1. Arkhipova AA, Chaika VA, Gromysheva OV, editors. *Lyuminestsentsiya i ee primeneniye v narodnom khozyaistve. Sbornik materialov II nauchno-prakticheskogo seminar; 12 marta 2020 g.; Moskva, Rossiya* [Luminescence and its application in the national economy. Proceedings of the 2nd scientific and practical seminar; 2020 March 12; Moscow, Russia]. Moscow: Kurchatovskii institute – IREA; 2020. 64 p. Russian.
2. Lecoq P, Gektin A, Korzhik M. *Inorganic scintillators for detector systems: physical principles and crystal engineering*. 2nd edition. Cham: Springer; 2017. 408 p. DOI: 10.1007/978-3-319-45522-8.
3. Korzhik M, Tamulaitis G, Vasil'ev AN. *Physics of fast processes in scintillators*. Cham: Springer; 2020. 250 p. DOI: 10.1007/978-3-030-21966-6.
4. LHC Experiments Committee. Technical proposal for a MIP timing detector in the CMS experiment phase 2 upgrade: CERN-LHCC-2017-027/LHCC-P-009 [Internet]. Geneva: CERN; 2017 [cited 2020 November 5]. 98 p. Available from: <https://cds.cern.ch/record/2296612>. (Technical proposal).
5. Nargelas S, Dosovitskiy G, Korzhik M, Tamulaitis G. Role of inter- and intraconfigurational transitions of Pr³⁺ ion in nonequilibrium carrier relaxation in garnet-type scintillators. *Optical Materials*. 2021;111:110676. DOI: 10.1016/j.optmat.2020.110676.
6. Gundacker S, Acerbi F, Auffray E, Feri A, Gola A, Nemallapudi MV, et al. State of the art timing in TOF-PET detectors with LuAG, GAGG and L(Y)SO scintillators of various sizes coupled to FBK-SiPMs. *Journal of Instrumentation*. 2016;11:P08008. DOI: 10.1088/1748-0221/11/08/P08008.
7. Korzhik M, Alenkov V, Buzanov O, Dosovitskiy G, Fedorov A, Kozlov D, et al. Engineering of a new single-crystal multi-ionic fast and high-light-yield scintillation material (Gd_{0.5} – Y_{0.5})₃Al₂Ga₃O₁₂:Ce, Mg. *CrystEngComm*. 2020;22(14):2502–2506. DOI: 10.1039/D0CE00105H.
8. Lecoq P, Morel C, Prior JO, Visvikis D, Gundacker S, Auffray E, et al. Roadmap toward the 10 ps time-of-flight PET challenge. *Physics in Medicine and Biology*. 2020;65(21):21RM01. DOI: 10.1088/1361-6560/ab9500.
9. LHC Experiments Committee. The compact muon solenoid. Technical proposal: CERN-LHCC-94-38/LHCC-P-1 [Internet]. Geneva: CERN; 1994 [cited 2020 November 5]. 254 p. Available from: <http://cds.cern.ch/record/290969>. (LHC technical proposal; 1).
10. LHC Experiments Committee. ALICE. Technical proposal for A Large Ion Collider Experiment at the CERN LHC: CERN-LHCC-95-71/LHCC-P-3 [Internet]. Geneva: CERN; 1995 [cited 2020 November 5]. 237 p. Available from: <http://cds.cern.ch/record/293391>. (LHC technical proposal; 3).

Получена 09.03.2021 / исправлена 07.04.2021 / принята 07.04.2021.
Received 09.03.2021 / revised 07.04.2021 / accepted 07.04.2021.