
МЕТОДИКА ФИЗИЧЕСКОГО ЭКСПЕРИМЕНТА

ИЗУЧЕНИЕ ОТКЛИКА СЦИНТИЛЯЦИОННОГО ДЕТЕКТОРА НА ОСНОВЕ BaF_2 КРИСТАЛЛОВ И НАНОКЕРАМИК

О. И. Батенков^a, В. И. Юрьевич^{δ,1}, Е. А. Гарубин^δ, В. М. Рейтеров^δ,

П. Е. Гусев^δ, М. А. Крутов^δ, П. П. Федоров², А. С. Вещиков^a

^aФГУП НПО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина», Санкт-Петербург, Россия

^δ Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

² ЗАО «ИНКРОМ», Санкт-Петербург, Россия

² Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, Москва

Исследуются быстрая и медленная компоненты откликов сцинтиляционного детектора на основе BaF_2 кристаллов и нанокерамик с различными активаторами путем регистрации аннигиляционных γ -квантов с энергией 511 кэВ. Проводится сравнительный анализ полученных результатов для выявления перспективных сцинтилляторов для создания детекторов с высоким времененным и амплитудным разрешением.

Fast and slow components of responses of scintillation detectors based on BaF_2 crystals and nanoceramics with various activators are studied by registration of annihilation gamma quanta with energy of 511 keV. A comparative analysis of the obtained results for determination of advanced scintillators for development of detectors with high time and pulse height resolution is carried out.

PACS: 29.40.Mc

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время сцинтилляторы на основе кристаллов BaF_2 нашли широкое применение в детекторах γ -квантов, заряженных частиц и нейтронов в первую очередь благодаря наличию сверхбыстрой компоненты высвечивания, что имеет большое значение для получения высокого временного разрешения в измерениях для определения энергии частиц по времени пролета и их идентификации [1, 2]. Такие сцинтилляторы считаются также перспективными для создания детекторных систем установок TOF-PET, в которых регистрируются аннигиляционные γ -кванты с энергией 511 кэВ.

Хорошо известно, что сцинтиляционный свет кристалла BaF_2 имеет две компоненты высвечивания, быструю с $\tau_{\text{fast}} \approx 0,7$ нс и выходом примерно 1,8 фотонов/кэВ выделившейся энергии при регистрации γ -квантов, а также медленную с $\tau_{\text{slow}} \approx 630$ нс со световым выходом 10 фотонов/кэВ. Высвечивание этих компонент происходит в различных

¹E-mail: yurevich@jinr.ru

областях длин волн фотонов. В спектре быстрой компоненты наблюдаются два пика при 195 и 220 нм, медленная компонента перекрывает область от примерно 250 до 450 нм и имеет максимум интенсивности при 310 нм. Так как быстрый сцинтилляционный свет находится в ультрафиолетовой области, то для эффективной регистрации таких фотонов требуется фотоприемник с высокой чувствительностью в этой области длин волн, что сильно усложняет задачу создания быстрого временного детектора. Эти две компоненты имеют различную физическую природу, и их интенсивность, как это показано в работах [3–9], может значительно варьироваться при вводимых добавках активаторов, например, таких как Ce, Sc, Tm, La. Сравнительному изучению характеристик сцинтилляторов BaF₂, изготовленных в виде монокристаллов и нанокерамик с различными добавками-активаторами, посвящены недавно выполненные работы [8, 9]. Однако, несмотря на выполненные в различных лабораториях исследования, физическая природа этого сцинтилляционного свечения еще не до конца понята. Кроме того, полученные в этих исследованиях результаты в ряде случаев носят противоречивый характер.

В связи с развитием технологий введения незначительной по процентному содержанию примеси, активатора (легирование), в процессе изготовления сцинтиллятора, способствующего существенному изменению характеристик его высыечивания, появилась потенциальная возможность повышения светового выхода изготавливаемых таким образом сцинтилляторов на основе BaF₂. Такая технология была развита в ЗАО «ИНКРОМ» (Санкт-Петербург), где освоен выпуск кристаллов и нанокерамик на основе BaF₂ с различными добавками-активаторами.

Так как сцинтиллятор BaF₂ обладает сравнительно низким выходом фотонов на единицу выделившейся в нем энергии, возможность повышения выхода фотонов быстрой компоненты световой вспышки, а также увеличения эффективности регистрации таких фотонов имеет первоочередное значение для улучшения временных характеристик детекторов на базе таких сцинтилляторов. Недавно в [9] было сообщено о наблюдении роста интенсивности на 12 % для быстрой компоненты высыечивания при замене кристалла BaF₂ на керамический образец. Более того, авторы этой работы обнаружили, что легирование кристалла скандием (1 %) в 2,4 раза увеличивает отношение быстрой компоненты к полному световому выходу, а также то, что легирование кристаллов и керамик Тм значительно увеличивает интенсивность быстрой компоненты и подавляет медленную компоненту.

Настоящее исследование посвящено изучению характеристик отклика сцинтилляционного детектора, в котором γ -кванты регистрируются с помощью различных образцов из кристаллов и нанокерамик на основе BaF₂. Цель работы состоит в выявлении наиболее перспективных сцинтилляторов для создания быстрых детекторов ионизирующих излучений для времепролетных измерений. Поэтому особое внимание уделялось сравнению быстрой компоненты откликов различных сцинтилляторов на основе BaF₂.

1. ОБРАЗЦЫ СЦИНТИЛЛЯТОРОВ

Для выполнения исследований были изготовлены образцы кристаллов и керамик на основе BaF₂ без и с добавками активаторов Ce, Sc и Tm. Выращивание кристаллов, производство керамик с последующей обработкой образцов (отжиг в атмосфере CF₄, резка, полировка и т. д.) осуществлялось в ЗАО «ИНКРОМ». Получен-

Список сцинтилляторов на основе BaF_2 , использовавшихся в измерениях

Кристаллы			Нанокерамика		
Тип	Легирование	Отжиг в CF_4	Тип	Легирование	Отжиг в CF_4
BaF_2	—	—	BaF_2	—	+
$\text{BaF}_2 : \text{Ce}$	0,12 % Ce	—	$\text{BaF}_2 : \text{Ce}$	0,12 % Ce	+
$\text{BaF}_2 : \text{Sc}$	0,7 % Sc	—	$\text{BaF}_2 : \text{Sc}$	1 % Sc	+
$\text{BaF}_2 : \text{Tm}$	0,25 % Tm	—			
$\text{BaF}_2 : \text{Tm}$	0,5 % Tm	—			
$\text{BaF}_2 : \text{Tm}$	0,75 % Tm	—			
$\text{BaF}_2 : \text{Tm}$	1 % Tm	—			
$\text{BaF}_2 : \text{Tm}$	1,5 % Tm	—			
$\text{BaF}_2 : \text{Tm}$	5 % Tm	—			

ные образцы монокристаллов квалифицированы как образцы марки ВУФ. Образцы керамики BaF_2 и $\text{BaF}_2 : \text{Ce}$ были получены высокотемпературным одноосным прессованием порошков соответствующего состава. Образец керамики $\text{BaF}_2 : \text{Sc}$ был получен высокотемпературной одноосной деформацией монокристалла. Список образцов приведен в таблице. Для обеспечения идентичности условий измерения и повторяемости результатов в опытах использовались по два образца каждого типа сцинтилляторов одинакового размера $6 \times 6 \times 10$ мм. Все поверхности сцинтилляторов были тщательно отполированы.

Отметим, что добавление активаторов может изменить интенсивность, время выесвечивания, диапазон длин волн, а также прозрачность образца в зависимости от длины волны. Это приводит к тому, что результаты измерений с использованием образцов различной толщины или фотодетекторов с различной зависимостью чувствительности от длины волны могут сильно отличаться друг от друга, что сильно затрудняет интерпретацию результатов измерений.

Измерение пропускания излучения образцами в области длин волн от 115 до 240 нм проводилось с помощью прибора BMP2 с погрешностью 0,5 %. В области больших

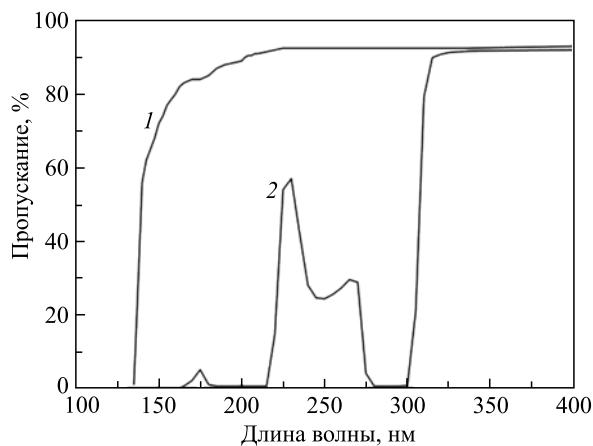


Рис. 1. Измеренная зависимость пропускания кристаллов от длины волны фотонов: 1 — BaF_2 ; 2 — $\text{BaF}_2 : \text{Ce}$

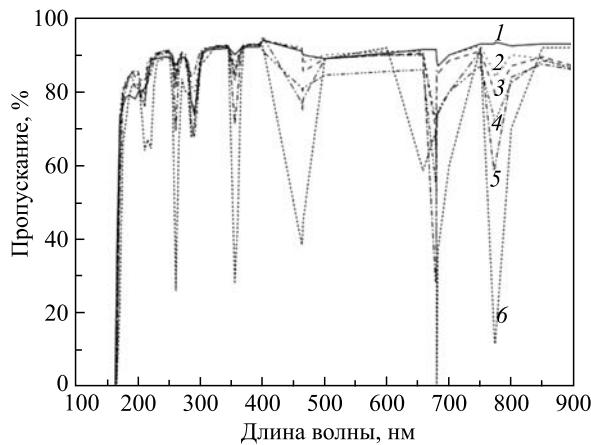


Рис. 2. Измеренная зависимость пропускания кристаллов BaF_2 с различным содержанием Тм от длины волн фотонов: 1 — 0,25%; 2 — 0,5%; 3 — 0,75%; 4 — 1%; 5 — 1,5%; 6 — 5%

длин волн от 200 до 1000 нм использовался прибор СФ16, где погрешность измерений составляла 1 %.

Результаты измерений пропускания кристаллов в зависимости от длины волны фотонов показаны на рис. 1 для образцов BaF_2 и $BaF_2 : Ce$ и на рис. 2 для образцов с различным содержанием Тм. Активация Се сильно понизила пропускание кристалла в области длин волн $\lambda < 315$ нм. Увеличение концентрации Тм приводит к значительному поглощению фотонов определенных длин волн 260, 355, 464, 658, 680, 774 нм и др.

2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Измерения выполнялись на установке, созданной сотрудниками ОИЯИ и «Радиевого института им. В. Г. Хлопина» специально для выполнения этого исследования. Идея состояла в проведении относительных измерений, где в качестве опорного сцинтиллятора использовался чистый кристалл BaF_2 . Основное внимание было уделено созданию идентичных условий в опытах с различными образцами, стабильности параметров установки и повторяемости результатов измерений.

Сцинтилляции в образцах возникали в момент регистрации аннигиляционных γ -квантов с энергией 511 кэВ от источника ^{22}Na . В одном событии аннигиляции рождаются два таких γ -кванта, при этом угол между их траекториями составляет 180° . Эти γ -кванты регистрировались двумя идентичными детекторами, в которых исследуемые образцы сцинтилляторов были оптически состыкованы с ФЭУ NAMAMATSU R2496 с временем нарастания импульса 0,7 нс и чувствительностью фотокатода от 160 нм.

В качестве примера на рис. 3 приведены спектр сцинтилляционного излучения и прозрачность кристалла BaF_2 , а также квантовая эффективность фотокатода ФЭУ R2496 в зависимости от длины волны фотонов. Для всей области длин волн, перекрываемых спектром, прозрачность кристалла составляет $\sim 90\%$. Квантовая эффективность фотокатода в области 200 нм (быстрая компонента высыечивания) равна $\sim 15\%$, а в области пика для медленной компоненты при 310 нм она равна $\sim 20\%$.

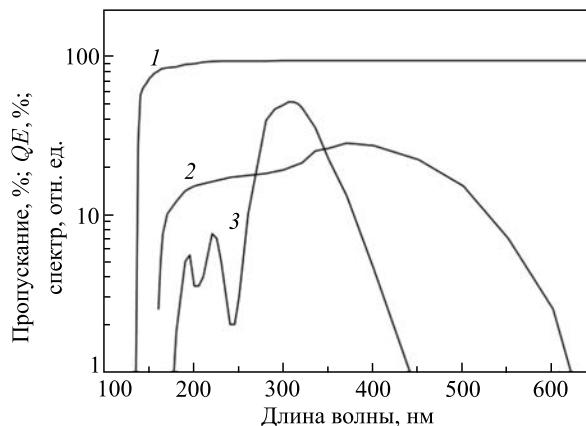


Рис. 3. Пропускание кристалла BaF_2 (1), квантовая эффективность фотокатода ФЭУ R2496 (2) и спектр сцинтилляционного излучения кристалла (3) в зависимости от длины волн фотонов

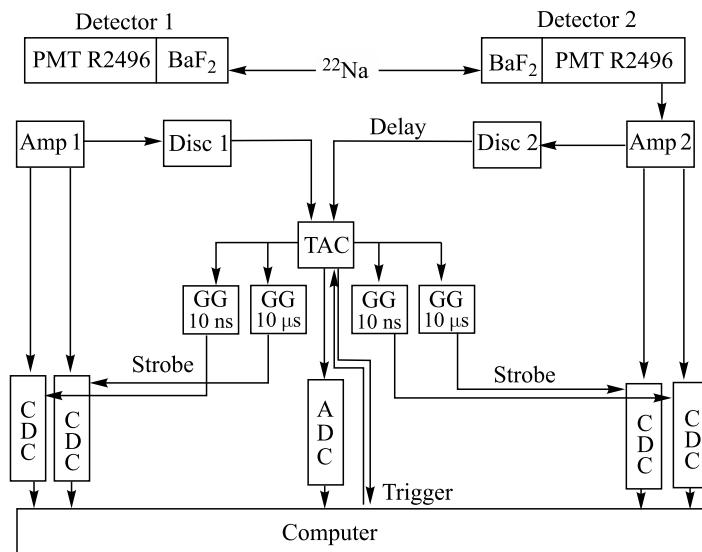


Рис. 4. Схема измерений: Amp — усилитель; Disc — дискриминатор; TAC — время-амплитудный преобразователь; GG — генератор импульса ворот; CDC — заряд-цифровой преобразователь; ADC — аналого-цифровой преобразователь

Детекторы располагались на расстоянии 30 мм от источника. В каждом опыте в детекторах использовались сцинтилляторы одного типа. Схема измерений приведена на рис. 4. Импульсы с ФЭУ поступали на широкополосные усилители (Amp1, Amp2) и далее на дискриминаторы (Disc 1, Disc 2) и заряд-цифровые преобразователи (CDC). Триггером события служило быстрое совпадение сигналов с обоих детекторов на модуле времени-амплитудного преобразователя (TAC). С помощью модулей CDC измерялся заряд быстрой компоненты (10 нс) и медленной компоненты (10–1000 нс). Стробом для изме-

рения заряда являлся логический сигнал совпадений, вырабатываемый модулем ТАС, его положение и длительность задавали диапазон измерения заряда импульса. Для каждого события записывалось время между приходом сигналов на ТАС с детекторов с помощью аналого-цифрового преобразователя (ADC) и заряды быстрой и медленной компонент импульсов с обоих детекторов с помощью модулей CDC.

Для контроля стабильности характеристик установки периодически проводились измерения с кристаллами BaF_2 . Эти измерения показали высокую стабильность работы установки. Отметим, что характеристики каналов электроники для измерения амплитудных распределений быстрой и медленной компонент отклика детектора не были идентичными, что не позволяло проводить прямое сравнение быстрой и медленной компонент для исследуемого образца сцинтиллятора. Для нас было важно выяснить, как влияет легирование различными активаторами, а также переход от кристаллов к керамикам на интенсивность компонент откликов детекторов по сравнению с результатами, полученными для чистого кристалла BaF_2 .

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

3.1. Быстрая компонента отклика. Амплитудные распределения, полученные для быстрой компоненты откликов различных образцов, показаны на рис. 5 для нелегированного кристалла BaF_2 и кристаллов, легированных Ce и Sc, на рис. 6 — для кристаллов, легированных Tm различной концентрации, и на рис. 7 — для нанокерамик.

Введение добавок Ce и Sc в состав кристалла очень слабо влияет на характер амплитудных спектров. В то же время введение в кристалл добавки Tm существенно подавляет быструю компоненту, особенно при увеличении ее концентрации до 5 %.

Другая ситуация наблюдается при легировании керамик Ce и Sc. Здесь наибольший выход получен для чистого кристалла, что слегка уступает результату, полученному

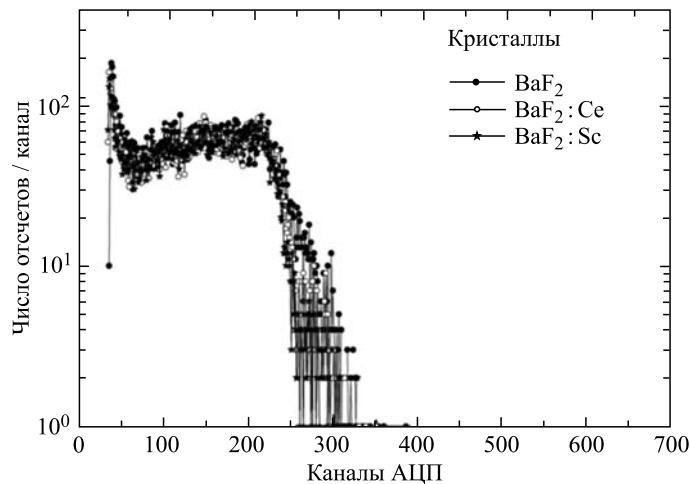


Рис. 5. Амплитудные распределения быстрой компоненты импульсов детектора для кристаллов BaF_2 , $BaF_2 : Ce$ и $BaF_2 : Sc$

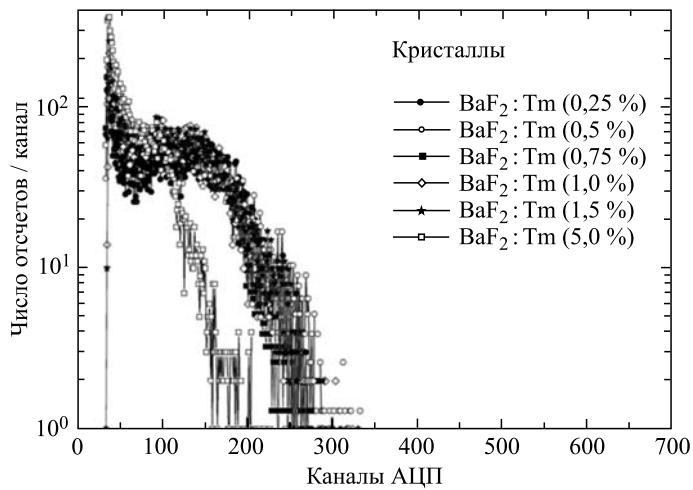


Рис. 6. То же, что на рис. 5, но для кристаллов, легированных Tm с различной концентрацией

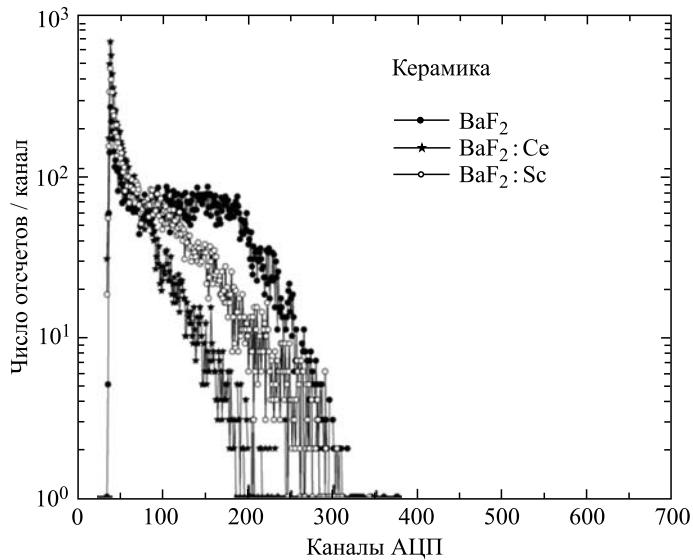


Рис. 7. То же, что на рис. 5, но для керамических образцов

для такого же кристаллического образца. Введение Sc существенно уменьшило быструю компоненту отклика, а для образца легированного Ce получен наибольший эффект подавления быстрой компоненты среди исследованных керамик.

3.2. Медленная компонента отклика. Изучение медленной компоненты откликов для кристаллических образцов BaF₂, BaF₂ : Ce и BaF₂ : Sc показало существенное различие в измеренных распределениях, приведенных на рис. 8. Наибольший отклик получен для кристалла, легированного Ce. Несколько меньше амплитуды дает чистый BaF₂. Детектор с кристаллом BaF₂ : Sc производит импульсы, медленная компонента которых почти в два

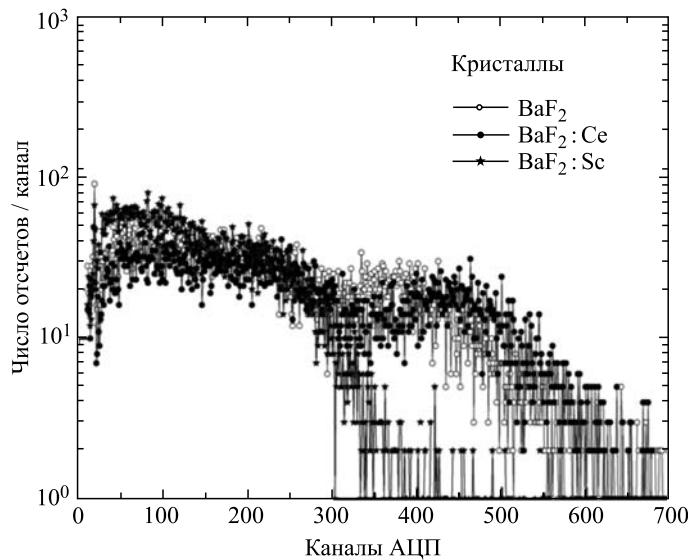


Рис. 8. Амплитудные распределения медленной компоненты импульсов детектора для кристаллов BaF_2 , $BaF_2 : Ce$ и $BaF_2 : Sc$

раза меньшие, чем у кристалла, активированного Се. Для кристаллов, легированных Тм, результаты измерений показаны на рис. 9. Из них следует, что величина медленной компоненты отклика еще в несколько раз меньше. Причем наблюдается такая же тенденция, как и в случае быстрой компоненты, а именно, с увеличением концентрации Тм все большее понижается величина отклика.

Для исследованных керамик (результаты показаны на рис. 10) наблюдается пониженная интенсивность медленной компоненты по сравнению с такими же кристаллическими образцами. Здесь наибольшие амплитуды получены для чистого BaF_2 , $BaF_2 : Ce$ дает почти вдвое меньшие величины амплитуд, а минимальные значения показала керамика $BaF_2 : Sc$.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Сравнение быстрой и медленной компонент импульсов детекторов проводилось относительно результатов, полученных для чистого кристалла BaF_2 , как отношение максимальных амплитуд в измеренных амплитудных спектрах, показанных на рис. 5–10. Важно подчеркнуть, что сравнение проводится для откликов реальных детекторов, отличающихся только материалом сцинтиллятора. На формирование откликов оказывает влияние несколько факторов, среди которых основными являются интенсивность и спектр сцинтилляционного излучения, прозрачность образцов сцинтиллятора и чувствительность фотокатода ФЭУ для фотонов с различной длиной волны. Важно также отметить, что в выполненных измерениях возбуждение сцинтилляционного излучения осуществлялось в результате поглощения полностью или частично энергии аннигиляционного γ -кванта. Основным механизмом поглощения такого γ -кванта с энергией 511 кэВ является комптоновское рассеяние, и оно может происходить на различной глубине 10-мм сцинтиллятора.

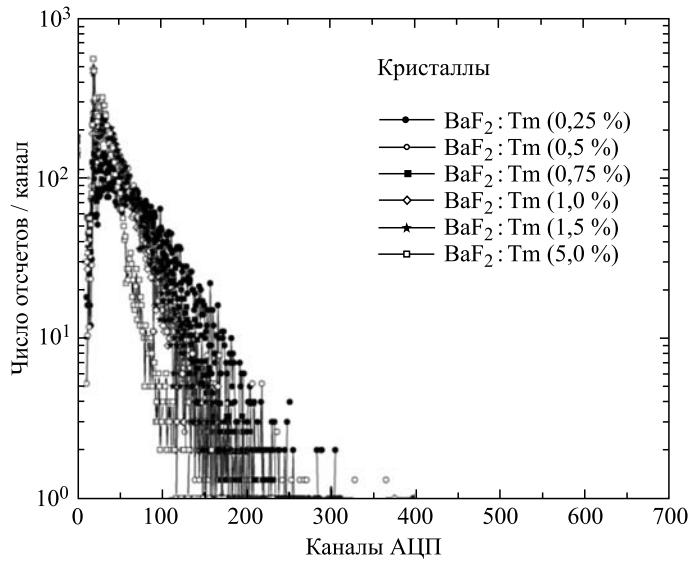


Рис. 9. То же, что на рис. 8, но для кристаллов, легированных Тм с различной концентрацией

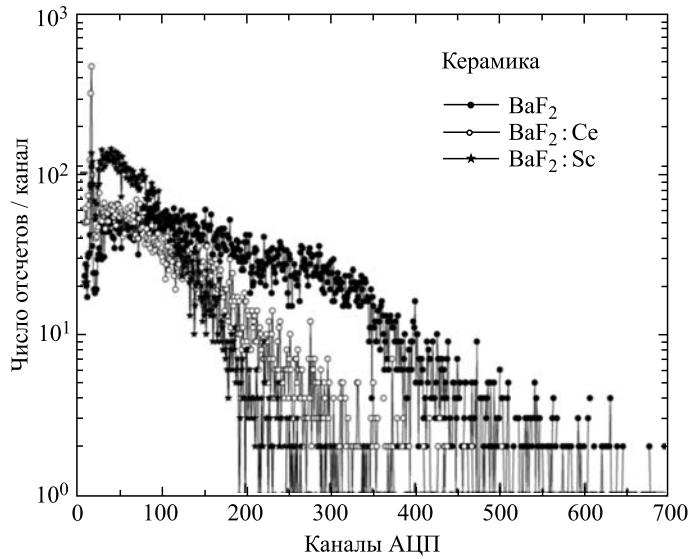


Рис. 10. То же, что на рис. 8, но для керамических образцов

Таким образом, используемый нами метод существенно отличается от метода рентгено-люминесценции, использованного, например, в работах [8, 9] для изучения характеристик светового излучения сцинтилляторов на основе BaF_2 .

Наблюдаемые максимальные амплитуды отклика детектора соответствуют поглощению γ -квантов в сцинтилляторе вблизи фотокатода ФЭУ, где поглощением световых фотонов в образце можно пренебречь. Такие же события поглощения γ -квантов, но

имеющие место в переднем, дальнем от фотокатода слое сцинтиллятора, соответствуют максимальному поглощению светового излучения в образце. При достаточно большой толщине образца и слабой его прозрачности в области длин волн излучаемых фотонов наблюдается размытие измеряемого амплитудного распределения, приводящее к появлению длинного пологого наклона на правом краю амплитудного спектра.

Из высказанного следует, что образец с наиболее высоким световым выходом соответственно имеет наибольшее значение максимальной амплитуды в спектре. Образец, характеризующийся сильным поглощением фотонов светового излучения, имеет малую крутизну наклона амплитудного спектра, или плохое амплитудное разрешение.

На рис. 11 показаны величины отношений, полученные для быстрой (темные точки) и медленной (светлые точки) компонент откликов детекторов на основе кристаллических образцов BaF_2 . Для всех легированных кристаллов величина отношения для быстрой компоненты меньше единицы. Максимальная амплитуда быстрой компоненты для детекторов с кристаллами $BaF_2 : Ce$ (0,12 %) и $BaF_2 : Sc$ (0,7 %) лишь на несколько процентов ниже величины, полученной с чистым кристаллом. В работе [8] для кристалла, активированного Ce (0,1 %), отношение составило 87 %, что несколько ниже полученного нами. В то же время такое же отношение, но полученное в наших измерениях для медленной компоненты составляет $\sim 1,17$ для кристалла с Ce, (больше, чем у чистого кристалла) и $\sim 0,61$ для кристалла с добавкой Sc.

Как видно из рис. 11, более сильное подавление быстрой компоненты дает легирование тулием. Причем при концентрации Tm от 0,25 до 1,5 % коэффициент подавления изменяется незначительно и составляет примерно 0,77, но при дальнейшем увеличении концентрации до 5 % максимальная амплитуда быстрой компоненты уменьшается в два раза. Полученный результат находится в сильном противоречии с выводом работы [9], где для быстрой компоненты получено усиление светового выхода при небольших концентрациях Tm (0,5–2 %) более чем в два раза.

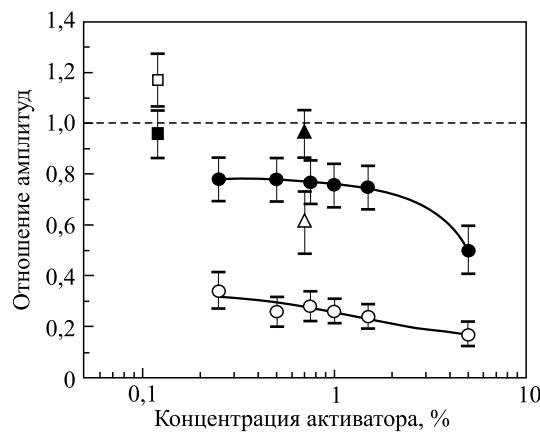


Рис. 11. Максимальные амплитуды измеренных амплитудных распределений для быстрой и медленной компонент откликов детекторов на основе кристаллических образцов по отношению к таким же величинам для чистого кристалла BaF_2 : темные точки — быстрая компонента; светлые — медленная компонента; кружки — добавка Tm; квадраты — добавка Ce; треугольники — добавка Sc

Подавление медленной компоненты путем добавки тулия носит еще более сильный характер и составляет от 3 до 4 раз, что находится в удовлетворительном согласии с результатом [9], где разница составляет от 2,5 до 5 раз при изменении концентрации Тм от 0,5 до 3 %.

Измерения с керамическими образцами BaF₂ показали, что максимальные амплитуды быстрой и медленной компонент откликов примерно на 12–15 % ниже полученных для чистого кристалла. Противоположный результат для быстрой компоненты — увеличение светового выхода на 12 % — был получен в [9].

Добавление в керамику Ce (0,12 %) еще приблизительно в два раза понизило амплитуды как быстрой, так и медленной компонент, т. е. заряд полного отклика уменьшился в примерно два раза. В работе [8] был получен противоположный результат — добавка Ce (0,1 %) привела примерно к двукратному повышению полного светового выхода. При этом для быстрой компоненты световой выход уменьшился на 15 %.

В случае легирования керамики Sc (1,0 %) амплитуда быстрой компоненты понижается на ~28 %, а медленной компоненты в три раза по сравнению с результатом, полученным для керамического образца без легирования.

5. ВЫВОДЫ

Проведено исследование быстрой и медленной компонент откликов детектора, в котором γ -кванты регистрировались сцинтилляторами на основе кристаллов и нанокерамик BaF₂. Нами не получено каких-либо свидетельств в пользу увеличения быстрой компоненты путем введения в состав сцинтиллятора активирующих примесей Ce, Sc или Tm. Анализ результатов выполненных измерений приводит к следующим выводам:

- наибольшие амплитуды наблюдаются для чистого кристалла BaF₂, кристаллических образцов с примесями Ce и Sc, а также для керамического образца без примеси;
- наилучшее амплитудное разрешение и хорошая прозрачность для фотонов быстрой компоненты наблюдается для кристаллов BaF₂ : Sc, BaF₂ : Ce и BaF₂;
- добавка Tm приводит к уменьшению амплитуды и значительному ухудшению разрешения;
- керамические образцы с добавками Ce и Sc драматически ухудшают амплитудное разрешение.

Анализируя результаты, полученные для медленной компоненты откликов исследованных образцов (рис. 8–10), приходим к следующим заключениям:

- наибольшие амплитуды получены с кристаллом BaF₂ : Ce, несколько меньшие значения дали чистые кристаллы и керамика без примесей;
- добавка Sc приводит к существенному уменьшению светового выхода медленной компоненты, а использование Tm многократно его подавляет;
- наилучшее амплитудное разрешение получено, как и в случае быстрой компоненты, для кристаллов BaF₂ : Sc, BaF₂ : Ce и BaF₂;
- использование примесей Ce и Sc в керамике приводит к значительному падению амплитуды отклика с одновременным ухудшением разрешения;
- кристаллические образцы с Tm показали наихудшее амплитудное разрешение.

Необходимо отметить, что процессы излучения и поглощения фотонов в различных образцах сцинтилляторов на основе BaF₂ имеют сложный характер и для физической

интерпретации полученных результатов требуется дальнейшие исследования этих процессов.

На основе полученных результатов можно дать следующие рекомендации по созданию детекторов на основе BaF₂-сцинтилляторов для ядерно-физических экспериментов. Для получения высокого временного и амплитудного разрешения в измерениях с детекторами, в которых толщина сцинтилляторов превышает 1 см, наилучшими кандидатами являются кристаллы BaF₂ : Sc (0,7 %), BaF₂ : Ce (0,12 %) и BaF₂ без примесей. Если важно минимизировать световой выход в области больших времен высвечивания, т. е. медленную компоненту, то определенное преимущество среди этих сцинтилляторов имеет кристалл BaF₂ : Sc.

Авторы выражают искреннюю благодарность проф. П. А. Родному за полезное обсуждение полученных результатов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Акимов Ю. К. Фотонные методы регистрации излучений. Дубна, 2006. 281 с.
2. Юрьевич В. И. Спектрометрия высокоэнергетических нейтронов // ЭЧАЯ. 2012. Т. 43. С. 711–803.
3. Dorenbos P. et al. The Effects of La³⁺ and Ce³⁺ Dopants on the Scintillation Properties of BaF₂ Crystals // Rad. Effects Defects Solids. 1991. V. 119–121. P. 87–92.
4. Visser R. et al. Energy Transfer Processes Involving Different Luminescence Centers in Cerium-Doped Barium Fluoride // J. Phys.: Condens. Matter. 1993. V. 5. P. 1659–1680.
5. Wojtowicz A. J. et al. Radioluminescence and Recombination Processes in BaF₂ : Ce // J. Phys.: Condens. Matter. 2000. V. 12. P. 4097–4124.
6. Eijk C. W. E. Inorganic-Scintillator Development // Nucl. Instr. Meth. A. 2001. V. 460. P. 1–14.
7. Janus S., Wojtowicz A. J. Scintillation Light Yield of BaF₂ : Ce // Opt. Mater. 2009. V. 31. P. 523–526.
8. Родный П. А. и др. Спектрально-кинетические характеристики кристаллов и нанокерамик на основе BaF₂ и BaF₂ : Ce // Физика твердого тела. 2010. Т. 52. С. 1780–1784.
9. Seliverstov D. M. et al. New Fast Scintillators on the Base of BaF₂ Crystals with Increased Light Yield of 0.9 ns Luminescence for TOF PET // Nucl. Instr. Meth. A. 2012. V. 695. P. 369–372.

Получено 24 апреля 2015 г.