

P13-2016-51

В. А. Морозов, Н. В. Морозова

**АВТОКОРРЕЛЯЦИОННЫЙ МЕТОД ОПРЕДЕЛЕНИЯ
ВРЕМЕНИ ВЫСВЕЧИВАНИЯ СЦИНТИЛЛЯТОРОВ**

Направлено в журнал «Приборы и техника эксперимента»

Морозов В. А., Морозова Н. В.

P13-2016-51

Автокорреляционный метод определения времени высвечивания
сцинтилляторов

Разработан автокорреляционный метод определения компонентного состава и времени высвечивания сцинтилляторов. Этот метод позволяет также изучать пространственное распределение ядерного излучения и осуществлять контроль за количеством введенной примеси в сцинтилляторах. Диапазон измеряемых значений времени высвечивания простирается от нескольких наносекунд до микросекунд. Установлено увеличение времени высвечивания в пластмассовых сцинтилляторах со сместителем спектра и примесью Gd.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем им. В.П.Джелепова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2016

Morozov V. A., Morozova N. V.

P13-2016-51

Autocorrelation Method for Determination of Scintillator Decay Time

An autocorrelation method is developed for determining the composition and decay time of scintillators. It also allows studying the spatial distribution of nuclear radiation and controlling the amount of the admixture introduced in the scintillators. The decay time is measured in the range from a few nanoseconds to microseconds. It is found that the decay time increases in plastic scintillators with a wave shifter and a Gd admixture.

The investigation has been performed at the Dzhelepov Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2016

ВВЕДЕНИЕ

Сцинтилляторы являются преобразователями корпускулярного или электромагнитного излучения достаточной энергии в низкоэнергетическое фотонное излучение в области, равной или близкой к видимой части электромагнитного спектра с энергией 6–2 эВ ($\lambda = 200\text{--}700$ нм). К наиболее важным характеристикам сцинтиллятора относятся: поглощающая способность внешнего и в том числе собственного излучения, длина волны люминесцентного излучения, световой выход и время высвечивания сцинтиллятора. Точное знание времени высвечивания сцинтиллятора τ позволяет добиться наилучшего временного разрешения временного спектрометра, повысить эффективность регистрации совпадений исходя из характеристик фотоприемника и используемой электроники. В прикладных исследованиях знание τ позволяет контролировать технологические процессы изготовления сцинтилляторов. В области физики твердого тела анализ процесса разрядки центров люминесценции дает возможность установить состав спектров высвечивания и тип разрядки метастабильных состояний. До сих пор определение времени высвечивания сцинтилляторов осуществлялось в основном по методу Боллингера [1] или при помощи цифрового осциллографа. Данная работа связана с разработкой нового метода определения времени высвечивания сцинтилляторов в области от нескольких наносекунд до микросекунд с использованием автокорреляционного метода задержанных совпадений [2, 3].

1. ПРИНЦИП РЕАЛИЗАЦИИ АВТОКОРРЕЛЯЦИОННОГО МЕТОДА

В основе разработанного метода лежит автокорреляционный принцип установления временной корреляции в последовательности событий, регистрируемых одним сцинтилляционным детектором. Способ выделения одноэлектронных событий, определяющих процесс разрядки центров люминесценции сцинтиллятора, отличает этот подход от метода Боллингера, основанного на том факте, что пуассоновское распределение вероятности регистрации импульсов во времени обратно пропорционально скорости счета событий и при очень малой вероятности детектирования фотонов это приводит к тому, что вероятность регистрации событий будет определяться временем высвечивания сцинтиллятора. В методе Боллингера применяется схема задержанных совпадений с двумя фотоумножителями и ослабителем фотонного потока посредством диафрагмы перед одним из ф.э.у. (рис. 1, а). Один из ф.э.у. регистрировал момент начала процесса высвечивания сцинтиллятора — канал «СТАРТ», а второй — канал «СТОП», регистрируя существенно ослабленный поток фотонов, позволяя проследить процесс высвечивания сцинтиллятора. В результате применения этого метода получались одномерные спектры экспоненциальных временных распределений, характеризующих время высвечивания сцинтиллятора $N = N_0 \exp(-t/\tau)$ (рис. 1, б) [4].

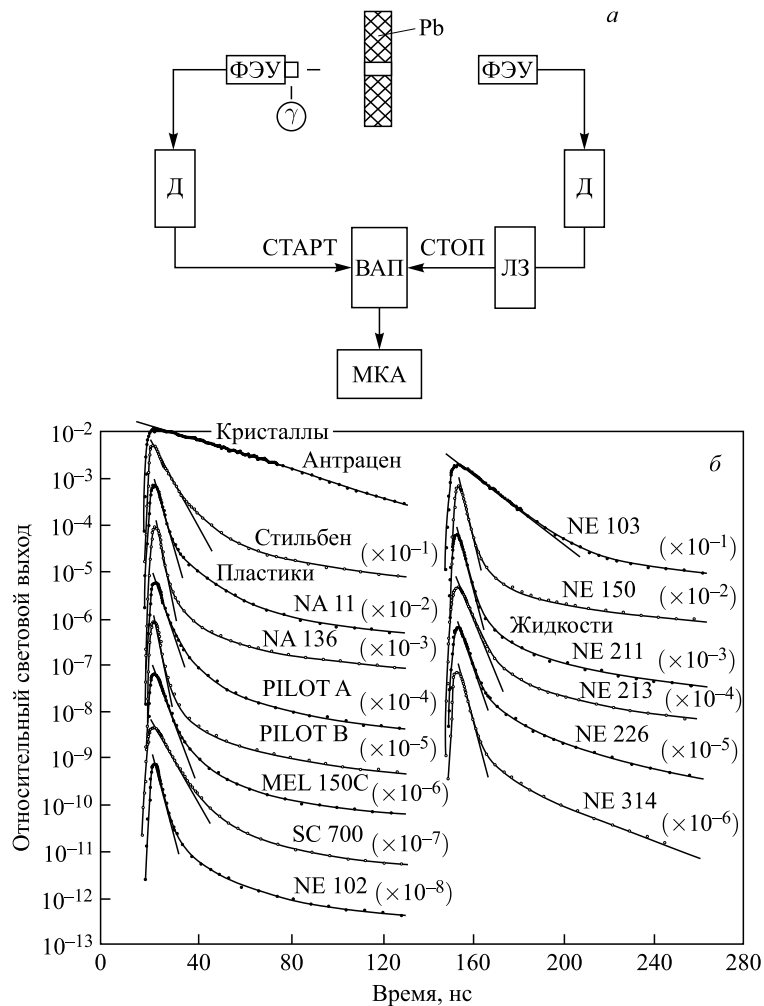


Рис. 1. а) Блок-схема временного спектрометра Боллингера: Д — дискриминатор; ВАП — время-амплитудный преобразователь; ЛЗ — линия задержки; МКА — многоканальный анализатор. б) Пример результатов измерений времени высвечивания сцинтилляторов по методу Боллингера [3]

Реализация автокорреляционного метода основывается на аналогии разрядки метастабильных состояний сцинтиллятора с радиоактивным распадом и на зависимости мертвого времени дискриминатора от амплитуды импульса. Таким образом, помимо инструментального мертвого времени дискриминатора t_d возникает также понятие динамического мертвого времени t_{dd} , величина которого определяется длительностью импульса на уровне порога

дискриминатора. Это время является функцией $t_{dd} = f(\tau, E)$. Суммарное мертвое время дискриминатора будет определяться длительностью одноэлектронного импульса t_{se} , а также t_d и t_{dd} . Длительность импульса t_{se} и t_d является постоянной величиной и зависит только от типа ф.э.у. и применяемой электроники. От этих двух величин зависит определение минимально возможного значения времени высвечивания сцинтиллятора.

В процессе измерений происходит регистрация временных интервалов, соответствующих определенным значениям энергии и определяемых разностью времени возбуждения сцинтиллятора и временем регистрации первого одноэлектронного импульса, появляющегося после окончания процесса суммирования одноэлектронных импульсов на выходе ф.э.у. Этот процесс регистрации прямо соотносится с экспоненциальным распадом возбужденных состояний центров люминесценции исследуемых сцинтилляторов. Время высвечивания сцинтилляторов определялось при анализе двумерных распределений $E-t$, получаемых на автокорреляционном спектрометре задержанных совпадений.

В автокорреляционном спектрометре использовался один фотоумножитель и стандартный комплект наносекундной электроники (рис. 2). Основные элементы временного спектрометра включали в себя фотоумножитель XP1020 (или XP2020), работающий в токовом режиме, дискриминатор CANBERRA-2126 и время-амплитудный конвертор ORTEC TRHC-467. Сцинтилляторы в зависимости от их светового выхода возбуждались от радиоактивных источников ^{60}Co или ^{226}Ra , активность которых составляла $A = 2,4 \cdot 10^3$ и $1,1 \cdot 10^3$ Бк соответственно.

При регистрации импульсов происходит блокировка дискриминатора на время, равное длительности импульса на уровне порога дискриминатора. Повторное срабатывание дискриминатора от импульсов разрядки центров люминесценции происходит при появлении одноэлектронного импульса (рис. 3, а). Импульсы разных амплитуд будут иметь разное время деблокировки, экспо-

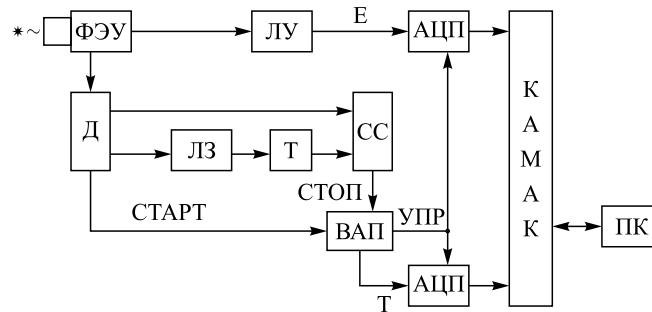


Рис. 2. Блок-схема автокорреляционного спектрометра задержанных совпадений: ЛУ — линейный усилитель; ЛЗ — линия задержки; СС — схема совпадений; Т — триггер

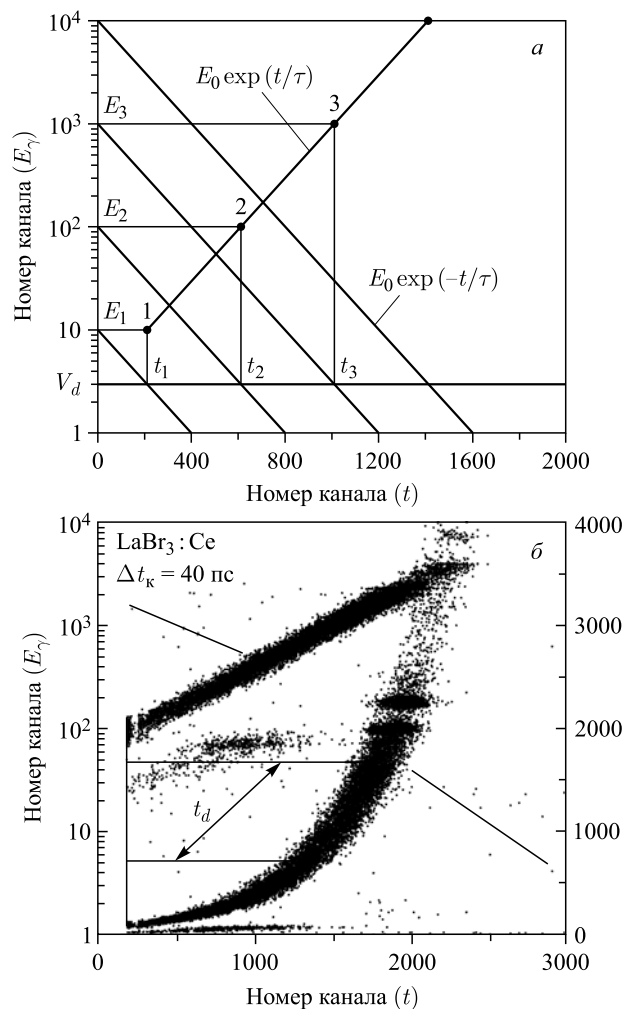


Рис. 3. а) Принцип формирования временного распределения при использовании автокорреляционного метода; б) спектр времени высвечивания $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$

ненциально зависящее от времени высвечивания сцинтиллятора τ , т.е. при измерении будет формироваться не одномерное, а двумерное временное распределение $E(t) = E_i \exp(t/\tau)$, где число центров люминесценции эквивалентно энергии высвечивания E_i .

На рис. 3, б показано, что экспериментальное распределение имеет экспоненциальный характер $E(t) = E_0 \exp(t/\tau)$. Это позволяет по функциональной зависимости $E(t)$ определять τ . Так как число возбужденных со-

стояний в сцинтилляторе эквивалентно зарегистрированной энергии излучения, то каждому значению энергии будет соответствовать свой временной диапазон регистрации событий. Регистрация момента сигнала «СТОП» будет осуществляться в зависимости от энергии излучения в точках t_1, t_2, t_3 и т. д., что будет соответствовать регистрации событий в двухмерном спектре вре-

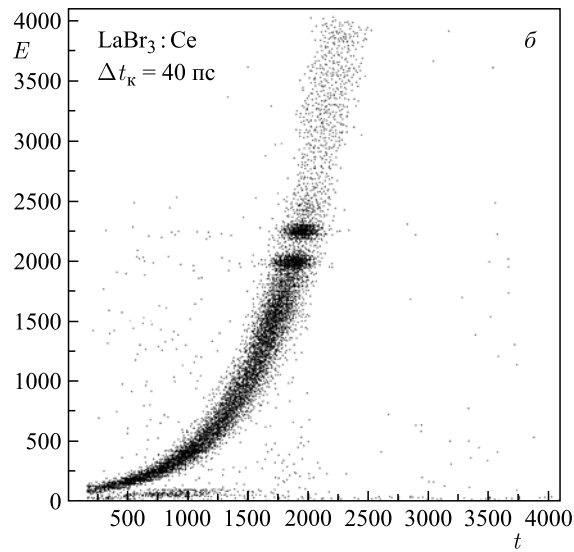
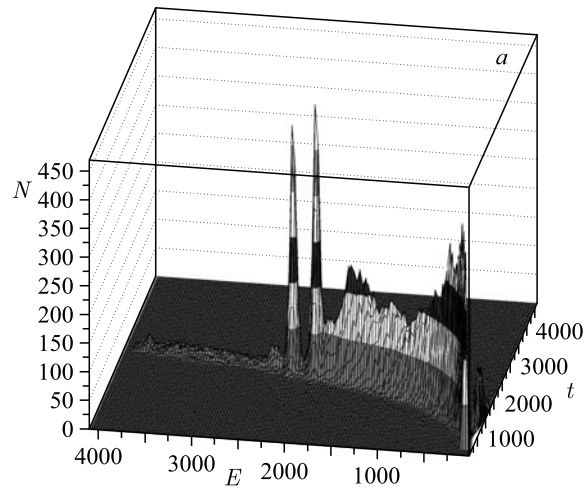


Рис. 4. а) Трехмерное распределение $E-t-N$, полученное при определении времени высвечивания сцинтиллятора $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ при его возбуждении источником ^{60}Co ; б) двухмерное распределение $E-t$, сформированное из трехмерной матрицы

менных распределений в точках 1, 2, 3 и т.д. Временные интервалы $0-t_1$, $0-t_2$ и т.д. характеризуют время динамической блокировки дискриминатора вследствие эффекта суммирования одноэлектронных импульсов и мертвого времени дискриминатора. Порог дискриминатора V_d определяет нижний порог регистрируемой энергии E_0 . Повышение порога дискриминатора приводит к уменьшению вычисленной величины τ вследствие увеличения вероятности регистрации двух-, трех- и т.д. электронных событий. Так, при повышении порога регистрации дискриминатора с 8 до 100 мВ вычисленное время высвечивания кристалла NaI(Tl) варьировалось от 230 до 210 нс.

Трехмерные $E-t-N$ и двумерные $E-t$ распределения, полученные при измерении τ кристалла $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ фирмы «Saint-Gobain», представлены на рис. 4. Процесс обработки сводился к нахождению центров тяжести временных сечений для каждого интервала энергии $\Delta E_1-T_{\text{ит}1}$, $\Delta E_2-T_{\text{ит}2}$, $\Delta E_3-T_{\text{ит}3}$ и т.д. и преобразованию распределения $E-t-N$ к распределению $E = T_{\text{ит}0} \exp(t/\tau)$, после чего производился расчет τ .

2. РЕЗУЛЬТАТЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ВРЕМЕНИ ВЫСВЕЧИВАНИЯ СЦИНТИЛЛЯТОРОВ

Мы изучали свойства как неорганических, так и органических кристаллов, включая пластмассовые сцинтилляторы. В табл. 1 приведены результаты нашей более ранней работы (см. [5]) по неорганическим кристаллам, в которой впервые был сформулирован принцип определения τ по новому методу, и данные по этой работе. В табл. 2 приведены результаты по изучению времени высвечивания органических сцинтилляторов. Полученные результаты помимо новых данных хорошо согласуются с ранее известными данными и в отличие от измерений по методу Боллингера дают возможность установить не только компонентный состав временного излучения, но и параллельный или после-

Таблица 1. Характеристики неорганических сцинтилляторов

Сцинтиллятор	ρ , г/см ³	Относительный световой выход, %	τ , нс (%) [5]	$\tau_{\text{эксп}}$, нс
BaF ₂	4,88	4/20	0,6/620	644(9)
BGO	7,13	15–20	300	299(4)
CsI(Tl)	4,51	45	630–1000	998(15)
LaBr ₃ :Ce	5,30	158	15(97%)–66(3%) [7]	22,5(2)
NaI(Tl)	3,67	100	230	228(3)
YAG:Ce	4,57	15	70	95,4(10)
YAP:Ce	5,37	40	26(90%) 67(10%)	38,9(4) 83,0(2)

Таблица 2. Характеристики органических сцинтилляторов

Сцинтиллятор	ρ , г/см ³	Относительный световой выход, %	τ , нс	$T_{\text{эсп}}$, нс*
Стильбен	1,16	0,55 [6]	4–8 [6]	4,2(3) — 1 8,2(4) — 2 9,1(9) — 3
ПС(Gd)	1,032	0,31	—	4,0(1) — 1 7,6(3) — 2
ПС(смес)		0,49	—	5,4(2) — 1 13,4(5) — 2
ПС(SG)		0,68 [10]	1,8 [10]	2,3(1)
Толан	1,18	0,3–0,5 [6]	2,8 [9]	3,0(7) — 1 4,1(5) — 4 8,2(18) — 2 11,2(16) — 3
Нафталин	1,15	0,2 [6]	70–80 [6]	75,0(8)

* Запись 4,2(3) — 1 означает время высвечивания и номер компоненты.

довательный тип разрядки метастабильных центров люминесценции сцинтиллятора в случае многокомпонентного распада центров люминесценции.

2.1. Неорганические сцинтилляторы. 2.1.1. *LaBr₃:Ce*. На рис. 5, а представлен результат определения времени высвечивания сцинтиллятора *LaBr₃:Ce*. Сцинтиллятор имел размеры 38 × 38 мм (содержание примеси Ce неизвестно). Полученный результат $\tau = 22,5(2)$ нс не противоречит ранее известным данным [6]: в зависимости от процентного содержания Ce (от 5 до 0,5 %) время высвечивания сцинтиллятора τ меняется от 15 до 26 нс. Результаты расчета были получены с помощью программы VMRIA [8].

2.1.2. *YAP:Ce*. С кристаллом *YAP:Ce* были проведены повторные измерения с использованием дискриминатора CANBERRA-2126, мертвое время которого $t_d = 5$ нс было меньше мертвого времени дискриминатора ORTEC-4210 с $t_d = 20$ нс, применявшегося ранее [5]. Использование нового дискриминатора позволило уточнить полученные ранее результаты. Отметим, что форма спектра высвечивания кристалла *YAP:Ce* (рис. 5, б) отличается по виду от распада, разряжающего параллельно два метастабильных состояния. Поэтому можно сделать вывод, что девозбуждение кристалла *YAP:Ce* происходит последовательными переходами. Обработка временного спектра включала в себя как начальный участок временного распределения $\Delta N(t) = 1-800$, так и конечный $\Delta N(t) = 2000-4000$, чтобы снизить вклады

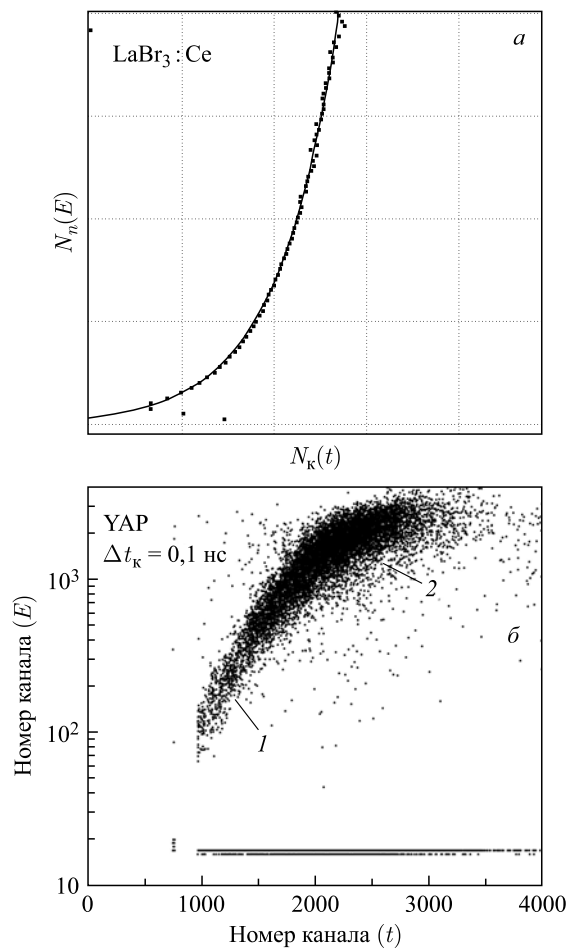


Рис. 5. *a)* Результаты определения времени высвечивания сцинтиллятора $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$ с помощью программы VMRIA; *б)* спектр высвечивания кристалла $\text{YAP}:\text{Ce}$

различных компонент. Наблюдаемое расхождение во времени высвечивания кристалла $\text{YAP}:\text{Ce}$ по сравнению с известными данными (см. табл. 1) требует знания процентного содержания Ce в исследуемом сцинтилляторе. В нашем случае эти данные не были известны.

2.2. Органические сцинтилляторы (кристаллы). Органические сцинтилляторы в рассматриваемом диапазоне времени высвечивания $> 3 \text{ нс}$ демонстрируют более широкий компонентный состав спектров высвечивания и виды разрядки центров люминесценции последовательными или параллельными переходами по сравнению с изученными неорганическими кристаллами.

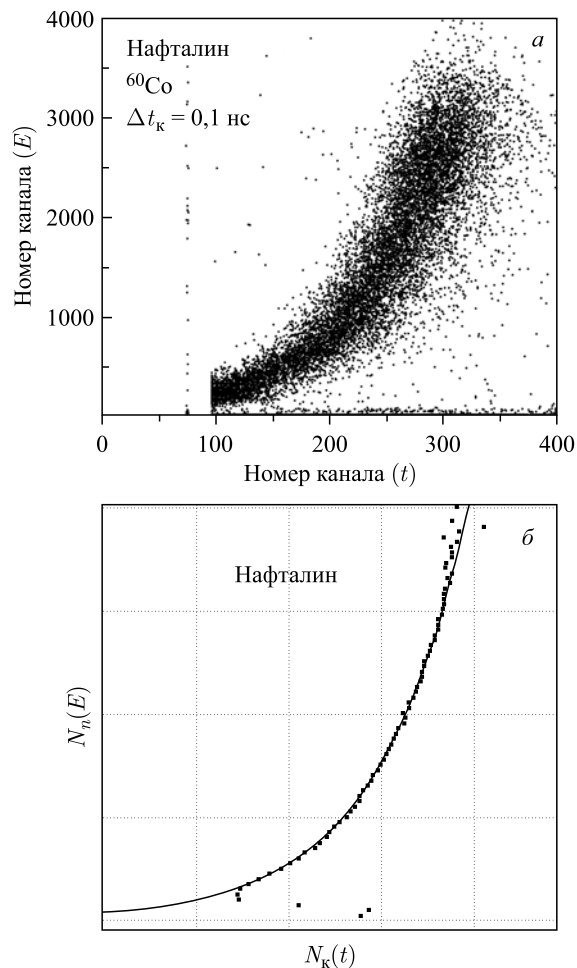


Рис. 6. а) Спектр высвечивания кристалла нафталин; б) результаты определения времени высвечивания кристалла нафталин

2.2.1. *Нафталин.* Измерения времени высвечивания нафталина, проведенные ранее [5] (рис. 6), показали наличие только одной компоненты высвечивания, что дает возможность использовать этот сцинтиллятор как эталон для сравнительных измерений с другими сцинтилляторами.

2.2.2. *Стильбен.* Стильбен относится к органическим кристаллам с достаточно большим световым выходом по отношению к кристаллу антрацен, который считается эталоном по отношению к другим сцинтилляторам. На рис. 7 представлен спектр высвечивания стильбена, на котором видны три четко

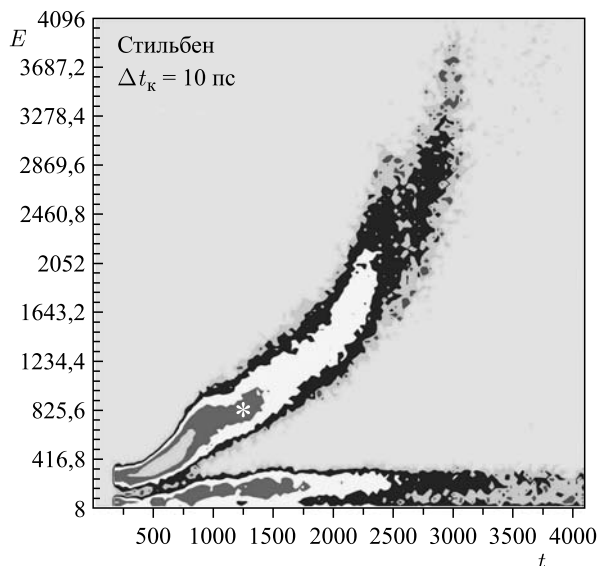


Рис. 7. Спектр высвечивания кристалла стильбен. Масштаб по осям E и t линейный

выраженные компоненты, вид которых характерен для параллельного распада. Четвертая компонента (со значком * на рис. 7) скорее всего связана с последовательной разрядкой двух метастабильных состояний. Отметим, что подобное разложение спектра высвечивания сцинтиллятора на компоненты невозможно получить при измерениях по методу Боллингера.

2.2.3. *Толан*. Результат измерений времени высвечивания кристалла толан представлен на рис. 8, из которого видно, что его спектр высвечивания имеет не одну, как сообщалось ранее [7], компоненту, а, по крайней мере, четыре. Компоненты 2 и 3 последовательно связывают два метастабильных состояния. Обращает на себя внимание отсутствие низкоэнергетических переходов при более медленном времени высвечивания кристалла по сравнению с основной компонентой с $\tau = 3,0$ нс. Возможно, это связано с процессом безрадиационных переходов.

2.3. Пластмассовые сцинтилляторы. Обнаружение сцинтилляций в твердых растворах ряда веществ в полистироле привело к созданию большого класса пластмассовых сцинтилляторов (ПС), обладающих хорошим временным разрешением и высокой эффективностью регистрации заряженных частиц.

2.3.1. *BC-404*. Сцинтиллятор BC-404, изготовленный фирмой «Saint-Gobain», обладает малым временем высвечивания ($\tau = 1,8$ нс) и большим световым выходом (68 % по сравнению с кристаллом антрацен). Он предна-

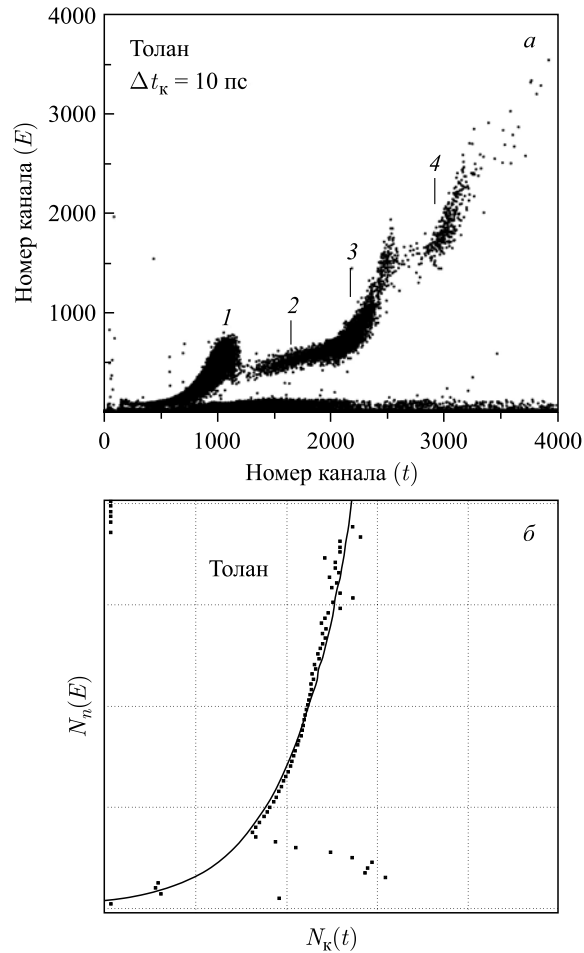


Рис. 8. а) Спектр высвечивания кристалла толан; б) результат определения самой быстрой и интенсивной компоненты в спектре высвечивания кристалла толан

значен для регистрации и α -, и β -частиц. Результаты проведенных измерений представлены на рис. 9, а. Отклонение экспериментального распределения от однокомпонентного экспоненциального (рис. 9, б) свидетельствует, по крайней мере, еще об одной быстрой компоненте в спектре высвечивания ВС-404. Отличие полученного результата (см. табл. 2) от известных данных может означать не только наличие второй компоненты, но и предел разрешающей способности нашей аппаратуры.

2.3.2. *Спектрсмещающий ПС.* Пластмассовые сцинтилляторы подобного типа обеспечивают лучшее согласование спектра люминесценции ПС со спек-

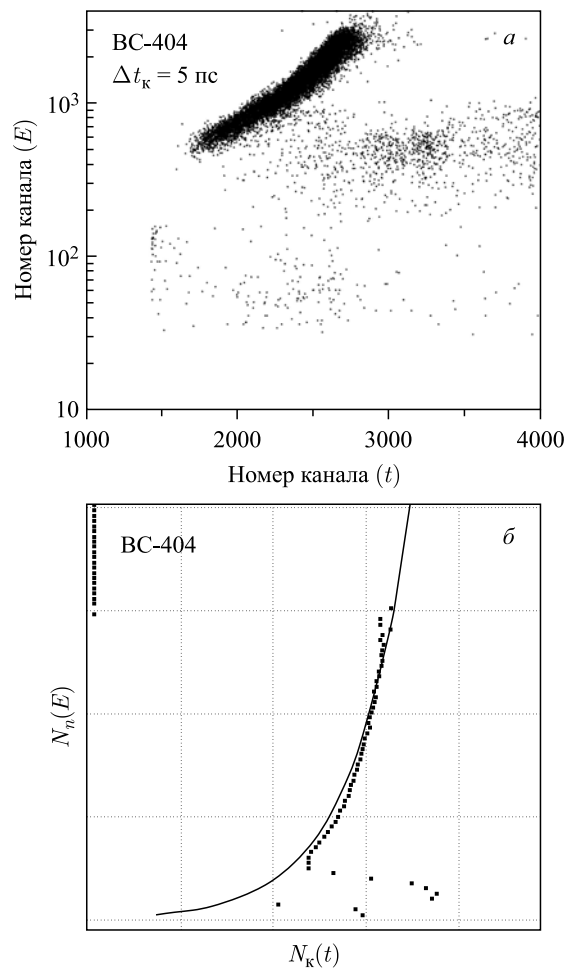


Рис. 9. а) Спектр высвечивания сцинтиллятора BC-404; б) результаты определения времени высвечивания сцинтиллятора BC-404

тальной характеристикой фотокатода ф.э.у. Подобный сцинтиллятор со смещением спектра люминесценции в желтую область видимого спектра был изготовлен в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ (Дубна). Результаты проведенных измерений представлены в табл.2 и на рис.10. В спектре высвечивания ПС наблюдаются три последовательно связанные компоненты. Также наблюдается заметное увеличение времени высвечивания данного ПС $\tau = 5,4(2)$ нс по сравнению со стандартным ПС с добавкой РОРОР, время высвечивания которого составляло $\tau = 3,4(2)$ нс.

2.3.3. *ПС, допированный Gd.* Сцинтилятор этого типа также изготовлен в Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ. Цель создания такого сцинтилятора заключалась в увеличении эффективности регистрации тепловых нейтронов с энергией менее 0,5 кэВ. Содержание Gd в этом сцинтиляторе составляло 1%. Полученные результаты показали также увеличение времени высвечивания допированного сцинтилятора по сравнению с обычным сцинтилятором (рис. 11). Очевидно, это связано не только с одночастичными электронными, но и молекулярными межполосными переходами.

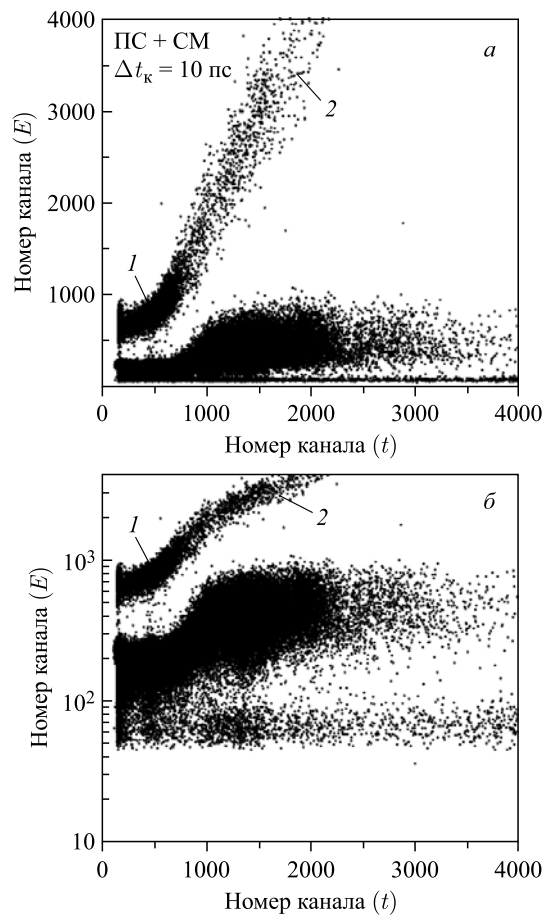


Рис. 10. *а)* Спектр высвечивания ПС со сместителем спектра; *б)* демонстрация многокомпонентности спектра высвечивания ПС со сместителем спектра

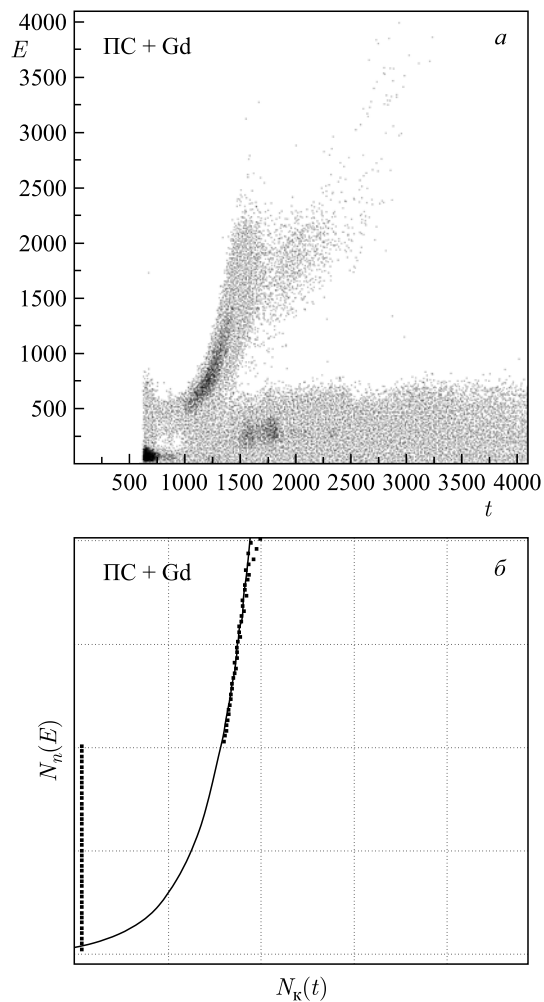


Рис. 11. *a*) Спектр высвечивания ПС с примесью Gd; *б*) результаты определения времени высвечивания самой интенсивной компоненты ПС с примесью Gd

3. КОНТРОЛЬ СОДЕРЖАНИЯ ПРИМЕСИ В СЦИНТИЛЛЯТОРАХ

На рис.12 представлены спектры времени высвечивания кристаллов $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$, отличающиеся содержанием Ce в сцинтиляторе, которое составляло 0,5 и 5%. Заметим, что даже качественное сравнение спектров высвечивания сцинтилляторов позволяет контролировать процесс изготовления сцинтилляторов с заданными свойствами.

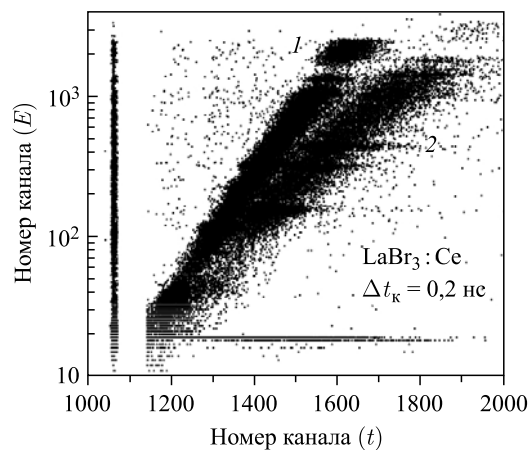


Рис. 12. Спектры высвечивания кристаллов $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$, отличающиеся содержанием Ce: 1 — 5% Ce; 2 — 0,5% Ce

4. ИССЛЕДОВАНИЕ УГЛОВОЙ АНИЗОТРОПИИ ЯДЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Различие по времени высвечивания различных сцинтилляторов позволяет реализовать изучение угловых корреляций ядерного излучения при помощи однодетекторного спектрометра. Это достигается размещением сцинтилляторов с различным временем высвечивания на фотокатоде ф.э.у. Более пол-

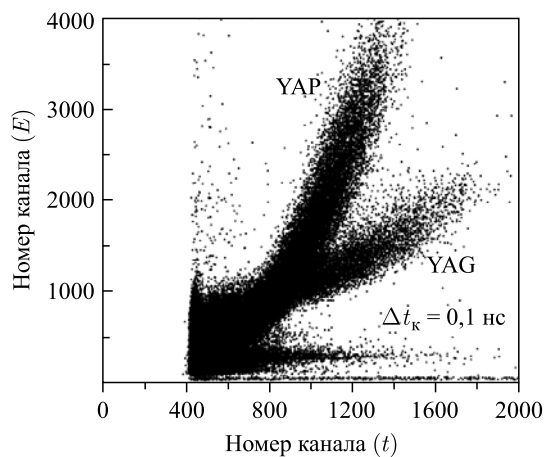


Рис. 13. Результаты одновременного измерения сцинтилляторов YAP и YAG на одном ф.э.у.

ную картину можно будет получить при стыковке ф.э.у. посредством световодов — фибр с большим числом сцинтилляторов с разными значениями времени высвечивания. На рис. 13 приведен пример измерений двух сцинтилляторов, размещенных на фотокатоде. Диаметр каждого сцинтиллятора составлял 20 мм.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотренный автокорреляционный метод определения времени высвечивания сцинтилляторов является более универсальным по сравнению с другими методами определения времени высвечивания, поскольку он позволяет установить компонентный состав спектров высвечивания, тип девозбуждения метастабильных состояний (параллельная или последовательная разрядка); обеспечивает возможность изучения пространственной корреляции излучения, а также влияния вводимой примеси в состав сцинтиллятора на его временные свойства. Этот метод отличается от метода Боллингера способом регистрации процесса высвечивания центров люминесценции сцинтиллятора и не требует обязательной регистрации одноэлектронных событий, особенно в тех случаях, когда проводится сравнительный анализ значений времени высвечивания разных сцинтилляторов. Он может быть применен при определении времени высвечивания в диапазоне от наносекунд до нескольких микросекунд. В необходимых случаях при относительном сравнении значений времени высвечивания сцинтилляторов в качестве эталонных источников, перекрывающих диапазон от десятков наносекунд до микросекунд и обладающих одной компонентой высвечивания, можно использовать сцинтилляторы нафталин, YAG:Ce, NaI(Tl) и CsI(Tl). В перспективе определение времени высвечивания < 3 нс возможно при использовании фотодетекторов с длительностью импульсов < 5 нс и дискриминаторов с мертвым временем < 5 нс. Автокорреляционный метод может найти применение в технологических процессах, связанных с разработкой и исследованиями сцинтилляторов новых типов, а также в экспериментах, связанных, например, с изучением пространственной корреляции процесса взаимодействия излучения с мишенью. Использование стандартной электронной аппаратуры упрощает использование этого метода.

Благодарности. Авторы выражают свою признательность В. Б. Бруданину за постоянную поддержку в работе и Д. И. Выпренцеву и И. Б. Немченку за предоставление образцов сцинтилляторов.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Bollinger L. M., Thomes Y. E. // Rev. Sci. Instr. 1961. V. 32. P. 1044.*
2. *Morozov V. A., Morozova N. V., Norseev Yu. V. // Nucl. Instr. Meth. 2002. V. 484. P. 225.*

3. *Morozov V. A., Morozova N. V., Zloказov V. B.* // Nucl. Instr. Meth. A. 2015. V. 775. P. 148.
4. *Wates E. C., Crandall D. G.* // IEEE Trans. Nucl. Sci. 1966. V. 13, No. 3. P. 153.
5. *Глобус М. Е., Гринев Б. В.* Неорганические сцинтилляторы. Харьков: Акта, 2000.
6. *Вяземский В. О. и др.* Сцинтилляционный метод в радиометрии. М.: Госатомиздат, 1961.
7. *Shah K. S. et al.* Preprint LBNL 51793. 2002.
8. *Злоказов В. Б., Морозов В. А., Морозова Н. В.* Сообщ. ОИЯИ Р10-2015-63. Дубна, 2015.
9. *Килин С. Ф. и др.* // ПТЭ. 1974. № 6. С. 64.
10. <http://www.bicron.com>

Получено 14 июля 2016 г.

Редактор *Е. В. Григорьева*

Подписано в печать 30.08.2016.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 1,25. Уч.-изд. л. 1,52. Тираж 215 экз. Заказ № 58893.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/