

ОБ АНИЗОТРОПИИ ВОЗБУЖДЕНИЯ СПИНТИЛЛЯЦИЙ В СМЕШАННЫХ КРИСТАЛЛАХ НАФТАЛИНА И ОКТАДЕЙТЕРОНАФТАЛИНА С АНТРАНИЛОВОЙ КИСЛОТОЙ

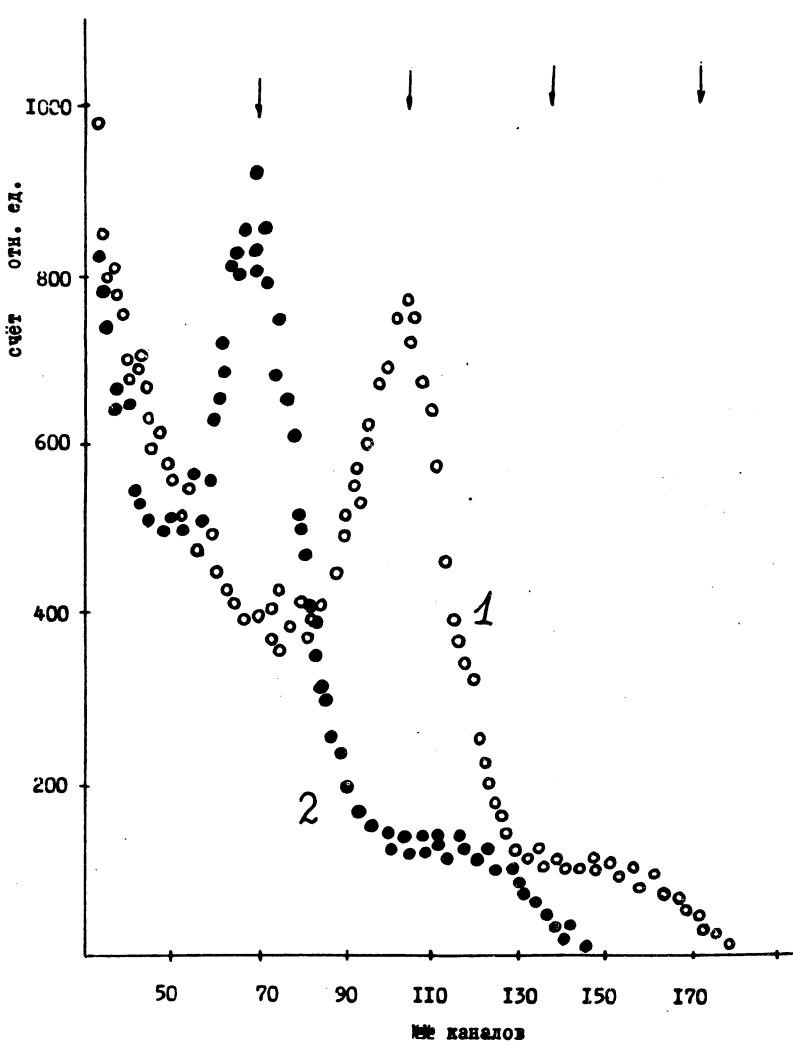
Г. С. Беликова, Б. А. Бененский

В спиритуационной спектрометрии ядерных излучений хорошо известен эффект зависимости светового выхода от направления движения тяжелых частиц в органических кристаллах. Подробное исследование этого эффекта во многих спиритуаторах проведено В. В. Нефедовым /1/, а его значительное усиление в дейтерированном нафталине впервые было отмечено Н. Д. Тифяковым.

В нашей работе экспериментально исследованы кристаллы нафталина $C_{10}H_8$ и октадейтеронафталина $C_{10}D_8$ с антраксиловой кислотой (АК) и предлагается интерпретация наблюдаемого явления.

Кристаллы $C_{10}H_8$ и $C_{10}D_8$ представляют собой совокупность молекулярных слоев, ориентированных параллельно плоскости спайности кристалла. Молекулы АК, люминесценция которых определяет, в основном, спиритуационные характеристики, входят в их состав в качестве примеси. Кристаллографические оси "а" и "б" лежат в плоскости спайности, а ось "с" наклонена к ней под некоторым углом.

Кристаллы $C_{10}D_8$ были предложены и употреблялись для целей спектрометрии быстрых нейтронов /2,3/. В этом случае, в отличие от других спиритуаторов, амплитудный спектр световых импульсов от быстрых монознергетических нейтронов имеет пик, соответствующий рассеянным вперед дейтонам отдачи (см. рис. I). Его положение связано с энергией нейтронов. Кроме того, если в кристалле имеется примесь молекул $C_{10}H_8$, в том же спектре наблюдается "ступенька" протонов отдачи. Измерение амплитудных спектров спиритуации при различных направлениях падающего на спиритуатор пучка



Р и с. I. Амплитудные спектры спонтанной от нейтронов с энергией 14 Мэв в кристалле октадецилнафталина, содержащего 81,7 ат.-% дейтерия и 12,3% водорода. 1 - поток нейтронов направлен по нормали к плоскости спайности ($\theta = 0^\circ$); 2 - параллельно плоскости спайности ($\theta \approx 90^\circ$).

нейтронов с энергией 14 Мэв позволило получить зависимость светового выхода от направления движения протонов и дейтонов в кристалле. При использовании этого метода, во-первых, имеется возможность сравнить спектральные характеристики кристаллов $C_{10}H_8$ и $C_{10}D_8$ для одного сорта частиц (протоны). Во-вторых, можно одновременно наблюдать эффект анизотропии для дейтонов и протонов в одном кристалле. В-третьих, исключается или, по меньшей мере, существенно снижается влияние поверхностных эффектов, так как при размерах кристаллов от одного до нескольких сантиметров имеется достаточно равномерное распределение сцинтилляций по объему кристалла. Исследованы три кристалла $C_{10}D_8$ и семь кристаллов $C_{10}H_8$, выраженные на ориентированных затравках по методу Стокбаргера. Во всех случаях световой выход является функцией угла θ между направлением движения частицы и нормалью к плоскости спайности (ось "с"). При движении параллельно плоскости спайности световой выход имеет резкий минимум (см. рис. I, 2). Точность определения плоскости спайности в нашем случае порядка $5^\circ - 7^\circ$. Необходимо оговорить, что наблюдаемый эффект анизотропии сильно зависит от временных характеристик электронной аппаратуры, так как они определяют время сбиивания света /I/. В нашем случае амплитуда импульса определялась светом, собираемым на фотокатоде ФЭУ за $\Delta t \sim 2 \times 10^{-7}$ сек.

В предположении экзитонного механизма передачи энергии, потерянной частицей в кристалле, молекулам активатора световой выход dS/dr определяется формулой Биркса /4/

$$\frac{dS}{dr} = \frac{A \frac{dE}{dr}}{1 + kB \frac{dE}{dr}}. \quad (I)$$

Здесь dE/dr – потеря энергии частицей на единице длины пути, $A dE/dr$ – энергия, переданная возбужденным молекулам решетки, $B dE/dr$ – количество поврежденных молекул, способных захватить экзитоны без трансформации энергии в энергию фотона. $k = w/W$ – отношение вероятностей захвата экзитона, где w – вероятность захвата поврежденной молекулой, $W = w n_a$ – вероятность захвата молекулами активатора, n_a – число молекул активатора.

Так как в области энергий $E > 1$ Мэв пробег тяжелых частиц хорошо аппроксимируется соотношением $r = r_0 E^{1.8}$, зависимость

с от Е (см. (I)) можно представить в виде

$$\frac{ds}{dE} = \frac{A \frac{dE}{dx}}{1 + G/E}, \quad (2)$$

где

$$G = \frac{k_B}{1,6r_0} = \frac{WB}{1,6w_a r_a}. \quad (3)$$

Отсюда в первом приближении по G/E следует

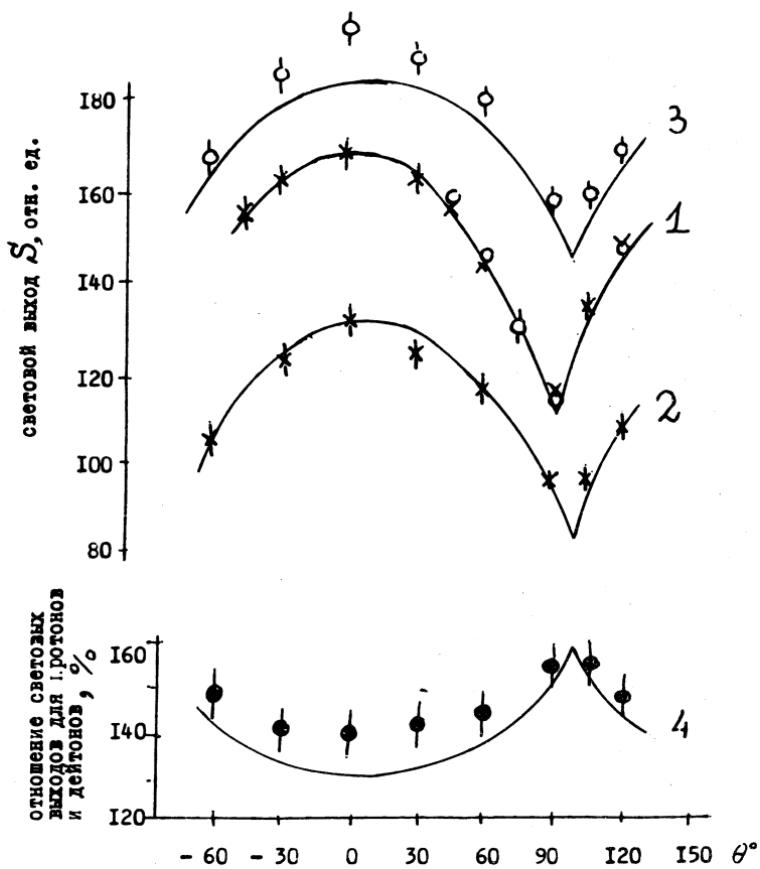
$$s = A \left\{ E - G \ln \frac{E + G}{G} - 0,1G [\ln^2(E + G) - \ln^2 G] \right\}. \quad (4)$$

Полученная формула справедлива при $E > 1$ Мэв и $E > G$. Проверкой ее применимости может служить описание зависимости светового выхода от энергии частиц. Сравнение с экспериментальными данными показало, что для $E > 3$ Мэв расчет по формуле (4) с точностью до нескольких процентов описывает как зависимость s от E , так и соотношение световых выходов для протонов и дейтонов.

В основу предлагаемой интерпретации зависимости возбуждения спинтилляций от направления движения частиц положены две предпосылки. Так как возбуждение молекул в значительной мере связано с дельта-электронами, с взаимодействием на больших расстояниях, предполагается, что параметр A в формуле (2) не зависит от направления движения частиц. Весь эффект анизотропии мы связываем с влиянием гашения, т.е. с зависимостью параметра G от направления движения частиц. Можно, не делая каких-либо дополнительных предположений, разложить этот параметр в ряд по степеням θ или $\cos\theta$ и, наложив ограничения, связанные с четностью функции, рассматривать коэффициенты разложения как новые параметры. Однако, характер экспериментальной зависимости таков, что не представляется возможным ограничиться небольшим числом членов разложения (см. рис. 2). Поэтому мы попытались найти зависимость G от θ на основании модельного подхода. Эта зависимость имеет вид

$$G = \frac{b}{1 + \cos\theta} + a \quad (5)$$

и соответствует предположению, что вероятность захвата экситонов гасящими центрами увеличивается с увеличением пути частицы в слое молекул.



Р и с. 2. Зависимость светового выхода от направления движения дейтонов (1 и 2) и протонов (3) в кристаллах октадецилнафталина с антрациновой кислотой. (θ — угол между нормалью к плоскости спайности и направлением трека частицы.)

Действительно, S зависит от отношения B/n_a , где B определяет количество образованных центров гашения, n_a – количество молекул активатора (см. (3)). Пусть на пути dr образовано n_g экситонов в N слоях и n_{\perp} гасящих центров. Предположим также, что экситон может мигрировать только вдоль слоя (это предположение связано с наличием сильных связей между молекулами вдоль плоскости спайности в этих кристаллах). Тогда вероятность захвата в одном слое пропорциональна $(n_g/N)(n_{\perp}/N)$, а в N слоях – $n_g n_{\perp}/N$, т.е. обратно пропорциональна числу слоев, пересеченных частицей на данном участке трека. Феноменологически это можно учесть за-висимостью B от θ типа

$$B \sim \frac{1}{1 \cos \theta}. \quad (6)$$

Она была бы, по-видимому, справедлива в случае идеального кристалла и абсолютно прямого трека. На самом деле, даже двигаясь вдоль плоскости спайности, частица хотя бы из-за многократного рассеяния должна пересекать порядка $\sim 10^5$ слоев. Последнее можно учесть, введя дополнительный параметр a

$$B \sim \frac{1}{1 \cos \theta + a} \quad (7)$$

В дальнейшем мы будем считать, что для протонов и дейтонов примерно одинаковых энергий многократное рассеяние одинаково.

Проверкой справедливости предлагаемой интерпретации может служить, во-первых, попытка описания на основании полученных формул формы кривой анизотропии светового выхода I , во-вторых, сопоставление данных для протонов и дейтонов.

На рис. 2 представлены три кривые. Кривая I описывает зависимость $S(\theta)$ для дейтонов в одном из кристаллов $C_{10}B_8$. Параметры a и b , определенные из сопоставления экспериментальных точек для этой кривой с расчетом, позволили описать форму всех экспериментальных кривых, как для протонов, так и для дейтонов для всех исследованных спиритилляторов (некоторые кривые приведены на рис. 2 и 3).

Написанные соотношения позволяют сопоставить наблюдаемый эффект анизотропии в случае возбуждения спиритилляций различными частицами. С точки зрения предлагаемой интерпретации различие состоит в разных плотностях ионизации и многократном рассеянии.

Для протонов и дейтонов это различие определяется отношением параметров r_0^p/r_0^d в (3) и равно 1,74. Это позволяет на основании данных по дейтонам (кривая 2 на рис. 2) рассчитать анизотро-

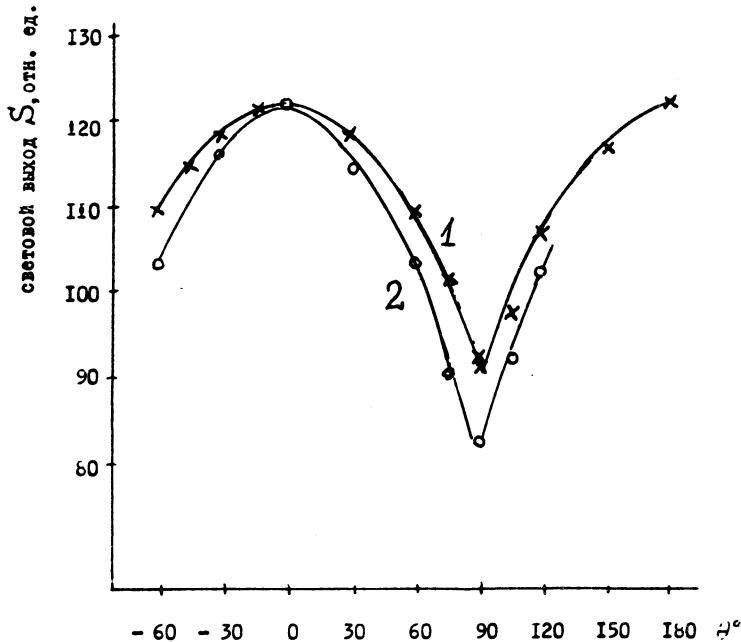


Рис. 3. Зависимость светового выхода от направления движения протонов в кристаллах нафталина с различной концентрацией антрациновой кислоты.

нию для протонов (кривая 3 на рис. 2). На том же рисунке приводятся данные расчета и эксперимента для отношения световых выходов в случае движения протонов и дейтонов под разными θ (кривая 4).

Таким образом, на основании формул (3) – (5) можно убедительно описать наши экспериментальные данные, что говорит в пользу предлагаемой интерпретации.

Согласно (3), эффект анизотропии должен, по-видимому, зависеть от концентрации активатора n_a . При уменьшении n_a увелич-

чивается влияние "гасящего" параметра G , что, в свою очередь, должно приводить к уменьшению светового выхода, большему отклонению от линейного закона зависимости $S = S(E)$, и одновременно к усилению эффекта анизотропии. Такое усиление желательно для некоторых приложений.

Для всех исследованных нами спиритилиторов, выраженных из расплава с "оптимальной" концентрацией активатора, отношение светового выхода в максимуме $S(0^\circ)$ к световому выходу в минимуме $S(90^\circ)$ равно $S(0^\circ)/S(90^\circ) = 1,24 \pm 0,02$ в случае протонов и $S(0^\circ)/S(90^\circ) = 1,32 \pm 0,02$ в случае дейтонов. Так называемая "оптимальная" концентрация соответствует такому содержанию примеси в кристалле, когда вследствие концентрационного тушения, увеличение числа дислокаций и т.д. дальнейшее увеличение светового выхода становится более невозможным. Поэтому оценить количественно ожидаемое усиление анизотропии при обеднении примесью активатора трудно. Тем не менее, при уменьшении концентрации активатора в 7 раз величина анизотропии для протонов в пределах точности измерений заметно не изменилась, но при уменьшении в 70 раз возросла до $1,32 \pm 0,02$, т.е. достигла значения, характерного для дейтонов в кристаллах октацетеронайтальмина. Этот результат качественно подтверждает предсказание, сделанное на основе развитых представлений, и определил возможный путь усиления эффекта анизотропии в исследуемых спиритилиторах.

В заключение авторы благодарят за участие в работе студента МИИ Б. Н. Заринского, а также за полезные обсуждения и помощь В. В. Нефедова, Н. Д. Тилякова, И. В. Штранаха и А. А. Руденко.

Поступила в редакцию
28 ноября 1972 г.

Л и т е р а т у р а

1. В. В. Нефедов. Доклад на XУШ Ежегодном совещании по ядерной спектроскопии. Рига, 1968 г.
2. Г. С. Беликова, Л. М. Белиев, Б. А. Бенецкий. Кристаллография, II, 439 (1966); Isotopenpraxis, Heft 4, 133 (1967).
3. Б. А. Бенецкий. Е. М. Бурымов, И. М. Франк. Я. Ф., 8, 920 (1968).
4. Дж. Биркс. Спиритилиторные счетчики. Москва, изд. ИЛ, 1961 г.