

УДК 539.1.074.3

СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫЕ СВОЙСТВА КРУПНЫХ КРИСТАЛЛОВ $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Y}^{3+}\text{:Ce}^{3+}\text{:Ca}^{2+}$

М. В. Белов¹, Ю. Д. Заварцев², М. В. Завертяев¹,
А. И. Загуменный², В. А. Козлов¹, С. А. Кутовой²,
Н. В. Пестовский¹, С. Ю. Савинов¹

Исследованы сцинтилляционные параметры оксиорто-силиката лютеция, легированного ионами Ce^{3+} , Y^{3+} и Ca^{2+} . Новый материал описывается химической формулой $\text{Lu}_{(2-y)}\text{Y}_{(y-z-x)}\text{Ce}_x\text{Ca}_z\text{SiO}_{5-z}$. Кристалл диаметром 65 мм и длиной цилиндрической части 160 мм выращен методом Чохральского. Состав кристалла изменяется по длине от верха к низу кристаллической буллы, вызывая изменение времени затухания сцинтилляций в диапазоне 38.5–37.9 нс. Рассмотрена перспективность использования этого кристаллического материала в экспериментальных установках на современных ускорительных комплексах.

Ключевые слова: сцинтилляционный кристалл, гамма-излучение, время затухания сцинтилляций, импульсная катодолюминесценция.

В последние годы опубликован ряд работ об исследовании свойств высокоплотных сцинтилляционных кристаллов, эффективных для использования в детекторах, работающих в условиях высокой радиационной нагрузки [1, 2]. Промышленные кристаллы LSO:Ce и LYSO:Ce, сочетающие хорошую совокупность сцинтилляционных характеристик с высокой радиационной стойкостью, были выбраны для всесторонних исследований в научных центрах различных стран. В работе [3] были опубликованы результаты статистического сравнения сцинтилляционных свойств модулей сечением 30×30 мм² и длиной 130 мм, а также пластин $14 \times 14 \times 1.5$ мм³, изготовленных из крупных промышленных кристаллов $\text{Lu}_{2(1-x)}\text{Y}_{2x}\text{SiO}_5\text{:Ce}$, LYSO:Ce, выращенных в разных организациях.

¹ ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: kozlovva@lebedev.ru.

² ИОФ РАН, 119991 Россия, Москва, ул. Вавилова, 38.

В 2022 году будет введён в эксплуатацию новый Российский коллайдер NICA для исследований в физике высоких энергий – ускорительный комплекс на базе Объединённого института ядерных исследований (Дубна, Россия). В связи с этим ФИАН им. П. Н. Лебедева РАН проводит исследования по разработке радиационно стойких сцинтилляционных материалов для детекторов в этом ускорительном комплексе. Ранее нами были изучены сцинтилляционные параметры и радиационная стойкость мультилегированных кристаллов оксиортосиликат лютеция с церием $\text{Ce}_{2x}\text{Lu}_{2(1-x)}\text{SiO}_5$, дополнительно легированные ионами Sc^{3+} , Gd^{3+} , Y^{3+} , Ca^{2+} [2, 3].

Данная статья посвящена исследованию сцинтилляционных свойств для верха и низа нового промышленного кристалла $\text{Lu}_{(2-y)}\text{Y}_{(y-z-x)}\text{Ce}_x\text{Ca}_z\text{SiO}_{5-z}$, перспективного для использования в экспериментах на современных коллайдерах.

Технология выращивания методом Чохральского промышленных мультилегированных кристаллов диаметров более 60 мм основана на использовании начального расплава с оптимальной концентрацией каждого легирующего элемента, оптимизированного состава газовой атмосферы, эффективной конструкции теплоизолирующей керамики, заданной ориентации затравочного кристалла, минимальной скорости роста, заданной скорости вращения кристалла, экспериментально подобранной формы конуса разращивания кристалла, оптимального соотношения диаметра растущего кристалла и диаметра тигля с расплавом, определенной формы конуса отрыва кристалла от расплава на завершающем этапе, многодневного режима охлаждения до комнатной температуры кристалла и тигля с температурой 2000 °С, подобранной последовательности разрезания кристалла на части, чтобы предотвратить появления трещин в цилиндрической части. На основе этих параметров нами выращен радиационно стойкий кристалл с диаметром цилиндрической части 65 мм, легированный ионами Ce^{3+} , Y^{3+} и Ca^{2+} (рис. 1). Состав кристалла изменяется по длине от верха к низу кристаллической були, описывается химической формулой соединения $\text{Lu}_{(2-y)}\text{Y}_{(y-z-x)}\text{Ce}_x\text{Ca}_z\text{SiO}_{5-z}$, и содержит кислородные вакансии в концентрации z .

В методе Чохральского состав растущего кристалла отличается от состава расплава, а также состав кристалла изменяется по длине. Концентрацию легирующих примесей Ce^{3+} , Y^{3+} , Ca^{2+} по длине выращенной були можно рассчитать, используя стандартную формулу изменения концентрации примеси по длине були в зависимости от доли закристаллизованного расплава:

$$C_s = kC_0(l - g)^{k-l},$$

C_s – концентрация легирующей примеси в кристалле, C_0 – концентрация легирующей

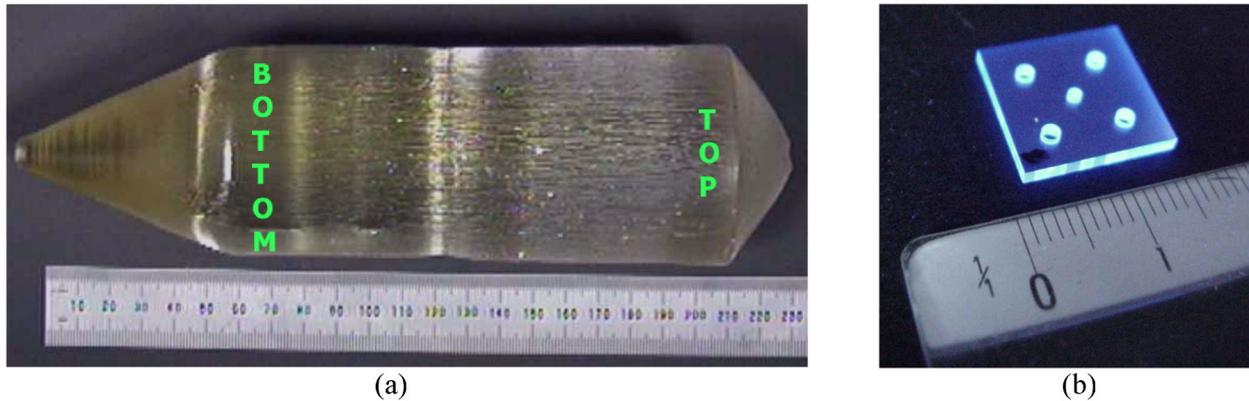


Рис. 1: (а) кристалл $\text{Lu}_{(2-y)}\text{Y}_{(y-z-x)}\text{Ce}_x\text{Ca}_z\text{SiO}_{5-z}$ с диаметром цилиндрической части 65 мм, (б) элемент из кристалла $\text{Lu}_{(2-y)}\text{Y}_{(y-z-x)}\text{Ce}_x\text{Ca}_z\text{SiO}_{5-z}$ размером $14 \times 14 \times 2 \text{ мм}^3$ с отверстиями.

примеси в расплаве в начале роста кристалла, k – коэффициент распределения примеси между расплавом и кристаллом, g – доля закристаллизованного расплава.

Коэффициент распределения примеси между расплавом и кристаллом составляет для ионов церия $k_{\text{Ce}} = 0.22$, ионов иттрия $k_{\text{Y}} = 0.9$ и ионов кальция $k_{\text{Ca}} = 0.2$. Вследствие таких значений коэффициентов распределения концентрация церия, иттрия, кальция постоянно увеличивается по длине були от верха к низу, в результате чего плотность кристалла и сцинтиляционные параметры изменяются по длине выращенного кристалла. Состав верха цилиндрической части кристалла описывается химической формулой $\text{Lu}_{1.961}\text{Y}_{0.037}\text{Ce}_{0.00068}\text{Ca}_{0.00038}\text{SiO}_{5-z}$, $z = 0.00038$.

Для оценки сцинтиляционных характеристик для верхней и нижней частей выращенного кристалла (см. рис. 1(а)) были изготовлены пластины размером $14 \times 14 \times 2 \text{ мм}^3$, все грани которых были отполированы (рис. 1(б)). Сцинтиляционные пластины были перфорированы для использования в слоистом калориметре с известной конструкцией “Шашлык”, когда активные слои чередуются со слоями поглотителя, а свет выводится на фотоприемники с помощью световодов.

С целью изучения спектров импульсной катодолуминесценции (ИКЛ) образцов оксиортосиликата лютеция $\text{Lu}_{(2-y)}\text{Y}_{(y-z-x)}\text{Ce}_x\text{Ca}_z\text{SiO}_{5-z}$ использовалась установка на основе ускорителя электронов РАДАН-ЭКСПЕРТ, генерирующего импульсы электронов со средней энергией 150 кэВ, длительностью 2 нс и пиковой плотностью мощности 10 МВт/см^2 . Спектры ИКЛ пластин, изготовленных из верхней и нижней части кристалла $\text{Lu}_{(2-y)}\text{Y}_{(y-z-x)}\text{Ce}_x\text{Ca}_z\text{SiO}_{5-z}$ представлены на рис. 2.

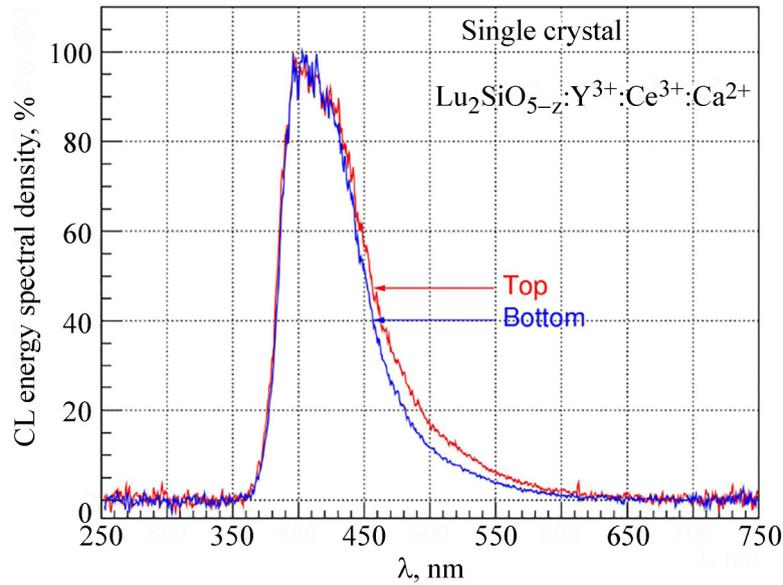


Рис. 2: Спектры ИКЛ пластин, изготовленных из верхней и нижней части кристалла $Lu_{(2-y)}Y_{(y-z-x)}Ce_xCa_zSiO_{5-z}$.

Времена высвечивания кристаллов $Lu_{(2-y)}Y_{(y-z-x)}Ce_xCa_zSiO_{5-z}$ исследовались на специальной установке с использованием метода “задержанных совпадений”, который заключается в измерении распределения временных интервалов Δt между возбуждением в сцинтилляторе и образованием фотоэлектрона на фотокатоде ФЭУ [6].

На рис. 3 приведены зависимости от времени интенсивности высвечивания, полученные с помощью радиоактивного источника ^{137}Cs .

Для изучения световых выходов образцов использовались спектры полного поглощения γ -квантов (фотопики) от радиоактивного источника ^{137}Cs . Исследуемый сцинтилляционный кристалл с помощью оптической смазки был соединен с фотоумножителем Hamamatsu R4125Q с кварцевым окном. Все остальные поверхности кристаллов были завернуты в 7 слоев тефлоновой ленты. На рис. 4 приведены фотопики от радиоактивного источника ^{137}Cs для $Lu_{(2-y)}Y_{(y-z-x)}Ce_xCa_zSiO_{5-z}$.

Абсолютный световой выход в терминах числа фотоэлектронов/МэВ определялся, используя калибровку каналов амплитудного преобразователя по положению одноэлектронного пика фотоумножителя, полученного при уменьшении засветки ФЭУ с помощью регулируемой диафрагмы. В табл. 1 приведены основные характеристики, измеренные на образцах $Lu_{(2-y)}Y_{(y-z-x)}Ce_xCa_zSiO_{5-z}$, изготовленных из верха и низа кристалла.

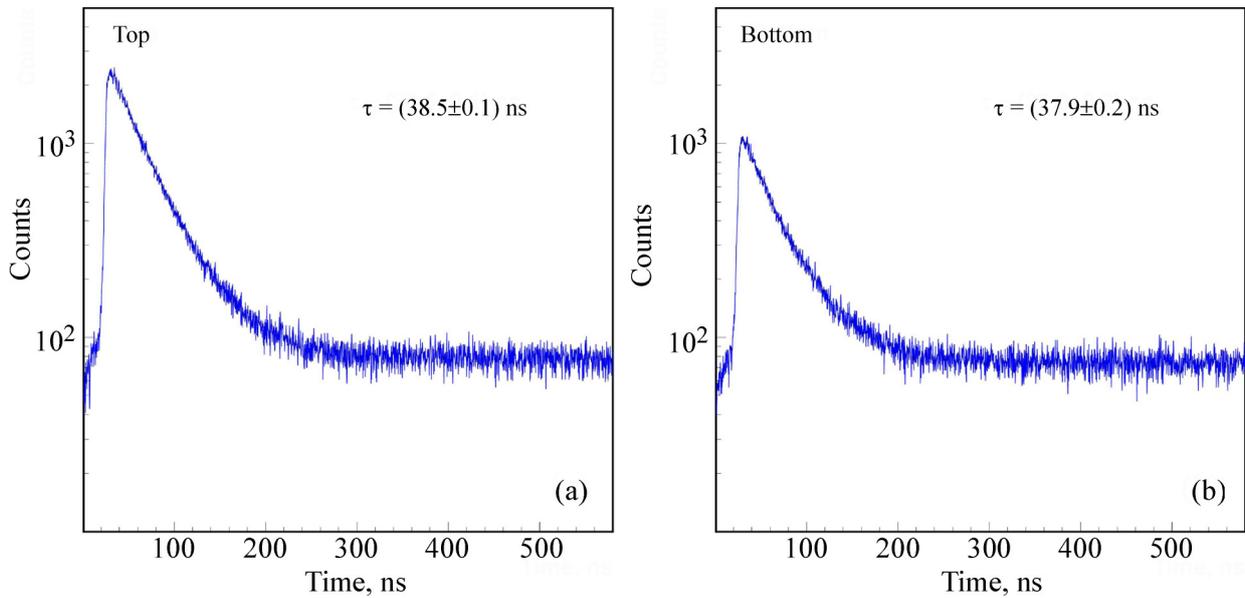


Рис. 3: Зависимости от времени интенсивности высвечивания пластин, изготовленных из верхней и нижней части кристалла $Lu_{(2-y)}Y_{(y-z-x)}Ce_xCa_zSiO_{5-z}$, полученные с помощью радиоактивного источника ^{137}Cs .

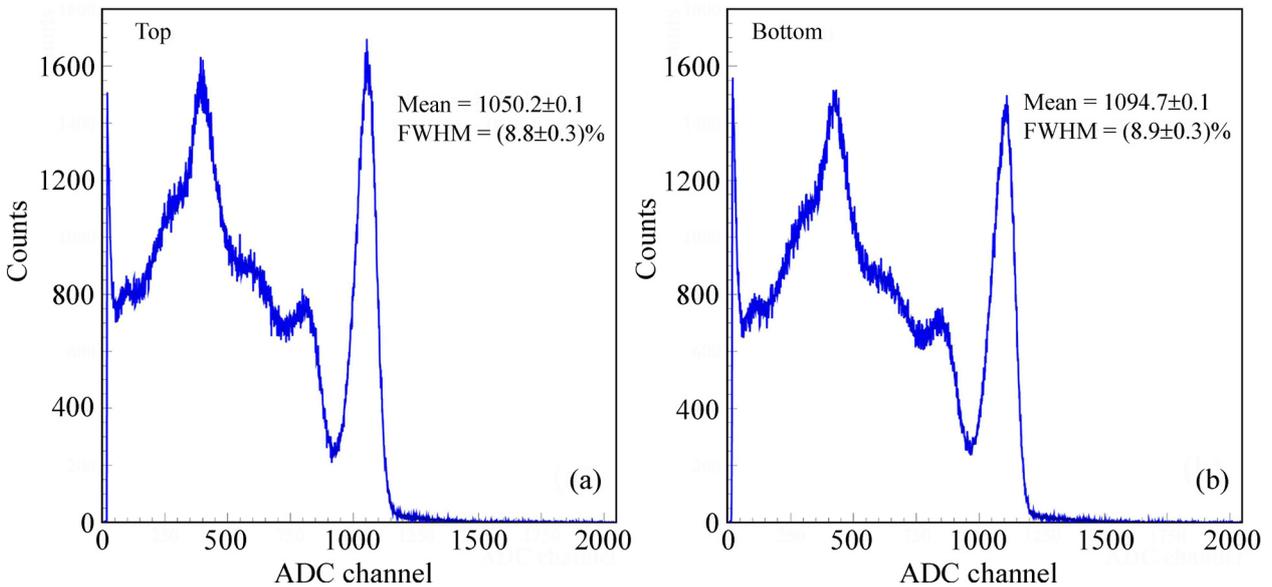


Рис. 4: Амплитудные распределения пластин, изготовленных из верхней и нижней части кристалла $Lu_{(2-y)}Y_{(y-z-x)}Ce_xCa_zSiO_{5-z}$, полученные с помощью радиоактивного источника ^{137}Cs .

Плотность кристаллического материала определяли, используя стандартный гидростатический метод измерения в дистиллированной воде на аналитических весах с точностью измерения 0.0001 г. Для образцов с шлифованной поверхностью и весом около 20 г была достигнута точность измерения плотности 0.001 г/см³.

Т а б л и ц а 1

Основные характеристики пластин размером $14 \times 14 \times 2$ мм³,
изготовленных из верхней и нижней части кристалла $Lu_{(2-y)}Y_{(y-z-x)}Ce_xCa_zSiO_{5-z}$

Параметр	Измеренные значения
1. Световыход, фотонов/Мэв	top: 31000 bottom: 32000
2. Время высвечивания, нс	top: 38.5 bottom: 37.9
3. Пик спектра излучения, нм	415–425
4. Плотность материала, г/см ³	top: 7.358 bottom: 7.345 ³
5. Энергетическое разрешение (FWHM), %	top: 8.8 bottom: 8.9

Измерены сцинтилляционные параметры для верха и низа кристалла оксиортосиликата лютеция $Lu_{(2-y)}Y_{(y-z-x)}Ce_xCa_zSiO_{5-z}$ диаметром 65 мм и длиной цилиндрической части 160 мм, выращенного методом Чохральского. Полученные параметры имеют несущественные различия с точки зрения применения в качестве кристаллического материала в детекторах на современных ускорительных комплексах, в том числе и в слоистых калориметрах, изготовленных по технологии “Шашлык”.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] Ren-Yuan Zhu, J. Phys.: Conf. Ser. **1162**, 012022 (2019). DOI: 10.1088/1742-6596/1162/1/012022.
- [2] Chen Hu, Fan Yang, Liyuan Zhang, et al., IEEE Transactions on Nuclear Science **65**(4), (2018). DOI:10.1109/TNS.2018.2808841.
- [3] F. Yang, R. Mao, L. Zhang, and Ren-Yuan Zhu, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **784**, 105 (2015). <https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.11.103>.

- [4] Ю. Д. Заварцев, М. В. Завертяев, А. И. Загуменный и др., Краткие сообщения по физике ФИАН **40**(2), 13 (2013). DOI:10.3103/S1068335613020024.
- [5] Ю. Д. Заварцев, М. В. Завертяев, А. И. Загуменный и др., Краткие сообщения по физике ФИАН **43**(11), 31 (2016). DOI:10.3103/S1068335616110051.
- [6] М. В. Белов, Ю. Д. Заварцев, М. В. Завертяев и др., Краткие сообщения по физике ФИАН **46**(8), 29 (2019). <https://doi.org/10.3103/S1068335619080050>.

Поступила в редакцию 25 февраля 2022 г.

После доработки 28 марта 2022 г.

Принята к публикации 28 марта 2022 г.