

ХАРАКТЕРИСТИКИ ДЕТЕКТОРА ГАММА-ИЗЛУЧЕНИЯ НА ОСНОВЕ МОНОКРИСТАЛЛА $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ И ФЭУ-184

А. С. Симутин, М. Ю. Чернов, Д. С. Семенов, А. Д. Орлов*

ФГУП «ВНИИА им. Н. Л. Духова», Москва

*Институт физики твердого тела РАН, г. Черноголовка Московской обл.

Одним из наиболее перспективных с точки зрения эффективности и энергетического разрешения является сцинтиллятор на основе бромида лантана, активированного церием. Монокристаллы сцинтиллятора $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ имеют высокий световой выход, составляющий $\sim 7 \cdot 10^4$ фотонов/МэВ, плотность $5,3 \text{ г/см}^3$ и короткое время высвечивания $\sim 16 \text{ нс}$ [1], что делает их подходящими для использования в современных спектрометрах, в особенности, если к ним предъявляются требования по высокому быстродействию. Энергетическое разрешение кристаллов на основе галогенидов лантана, заметно лучше по сравнению с широко распространенным в настоящее время $\text{NaI}(\text{Tl})$, позволяет использовать его при создании гамма-спектрометрической аппаратуры нового поколения.

Таблица 1

Основные характеристики сцинтилляторов

Сцинтиллятор	$\text{NaI}(\text{Tl})$ [1]	$\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ [1]
Плотность, г/см^3	3,67	5,29
Световой выход, 10^4 фотон/МэВ	4	6,8
Собственное энергетическое разрешение (662 кэВ), %	5,9	2,8
Время высвечивания, нс	~ 200	~ 16
Максимум спектра излучения, нм	415	370
Естественная радиоактивность	нет	Распад ^{138}La
Гигроскопичность	Есть	Есть

Чувствительным элементом разрабатываемого прибора является монокристалл бромида лантана, активированного церием, диаметром 25 мм и высотой 25 мм, помещенный в специальный герметичный корпус.

Кристалл ДССБЛ.01.25.25 (рис. 1) изготовлен в Институте физики твердого тела РАН. Кристаллы ДССБЛ.01 разработаны для применения в аппаратуре, предназначенной для регистрации и спектрометрии гамма-излучения в интервале энергий от 0,05 до 5,00 МэВ. Основным сцинтилляционным параметром кристалла ДССБЛ.01 является амплитудное разрешение в процентах по гамма-излучению ^{137}Cs и световой выход в фотонах на МэВ, измеренный по фотопику для гамма-излучения ^{137}Cs , а также собственный фон [1]. Согласно паспортным данным, при-



Рис. 1. Кристалл ДССБЛ.01.25.25

меняемый в нашей разработке кристалл ДССБЛ.01.25.25 имеет световой выход не менее 45000 фотон/МэВ и амплитудное разрешение при нормальных климатических условиях, измеренные по фотопику для гамма-излучения ^{137}Cs , не более 5 %. Собственный фон кристаллов в условиях защиты в диапазоне энергий от 0,1 до 3,0 МэВ должен быть не более 100 имп/с.

Для создания спектрометра, использующего кристалл $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$, был проведен ряд экспериментов по выявлению выпускаемых российской промышленностью фотоэлектронных умножителей с минимальным размером входного окна, способных реализовать спектрометрические возможности кристалла.

Рассматривались серийно выпускаемые фотоэлектронные умножители ФЭУ-85, ФЭУ-115МУ, ФЭУ-181-1 с диаметром фотокатода 25 мм и ФЭУ-184 с диаметром фотокатода 46 мм, область максимальной чувствительности которых (340–440 нм) соответствует длине волны излучения $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 370 нм.

Исследованиям подвергались сцинтилляционные сборки, состоящие из кристалла ДССБЛ.01.25.25 и фотоумножителя ФЭУ-85, ФЭУ-115МУ, ФЭУ-181-1 и ФЭУ-184 с соответствующими высоковольтными делителями. Исследование проводилось с целью определения разрешающей способности сборки монокристалл-ФЭУ-делитель для линии 662 кэВ источника ^{137}Cs при условии соблюдения линейности отклика сцинтилляционной сборки. Линейность отклика проверялась по отношению амплитуд сигналов, соответ-

ствующих линиям 898 и 1836 кэВ источника ^{88}Y , при различных напряжениях питания ФЭУ. При исследованиях использовались образцовые спектрометрические источники фотонного излучения ^{137}Cs и ^{88}Y .

Спектры регистрировались амплитудным анализатором Canberra Series 35 Plus, также использовались зарядочувствительный усилитель, усилитель сигналов Canberra AFT Research Amplifier Model 2025, осциллограф Tektronix TDS 3032, высоковольтный источник СБПК55 и низковольтный источник Б5-7 (схема эксперимента приведена на рис. 2).

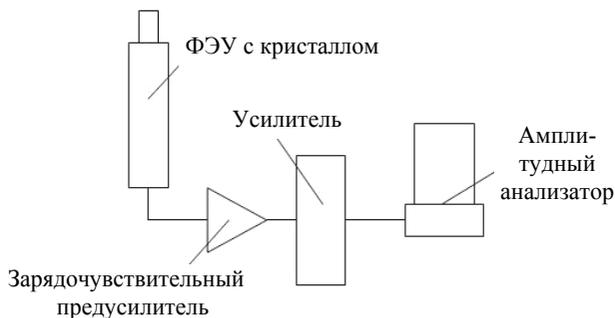


Рис. 2. Схема эксперимента

Сцинтилляционный кристалл приклеивался к входному окну каждого образца ФЭУ оптическим вазелином. На ФЭУ подавалось высокое напряжение отрицательной полярности. Сигнал снимался с анода фотоумножителя и через зарядочувствительный усилитель сигналов подавался на амплитудный анализатор. Время экспозиции для всех измерений было выбрано равным 300 с. Источник гамма-излучения располагался на расстоянии 5 см от входного окна кристалла. Для каждого образца ФЭУ подбиралось оптимальное напряжение питания. Критерием оптимальности служило наилучшее значение энергетического разрешения при условии соблюдения линейности сигнала со сцинтилляционной сборки. Соблюдение линейности функции отклика сцинтилляционной сборки проверялось путем сравнения отношения номеров каналов, в которых располагались максимумы пиков зарегистрированного спектра ^{88}Y , со значениями

ем 2,04, равным отношению энергий гамма-линий ^{88}Y 898 и 1836 кэВ (рис. 7). Для каждого значения напряжения питания ФЭУ также определялось амплитудное разрешение по линии 662 кэВ гамма-источника ^{137}Cs . Таким образом, были определены характеристики сцинтилляционной сборки кристалла $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ с каждым образцом ФЭУ при оптимальном значении напряжения питания.

В результате исследований было установлено, что амплитудное разрешение по линии 662 кэВ для ФЭУ-85, ФЭУ-115МУ и ФЭУ-181-1 с диаметром фотокатода 25 мм составляло от 4,5 до 5,0 % (соответствующий спектр приведен на рис. 3).

Несколько лучшие результаты были получены для ФЭУ-184 с диаметром фотокатода 46 мм, включенного в схему со стандартным делителем напряжения ($R_1 = 4R$; $R_2 = R_5 = 1,3R$; $R_3 = 1,5R$; $R_4 = R_6 = R_7 = \dots = R_{11} = R$) (схема представлена на рис. 4) и отрицательным питанием, в этом случае амплитудное разрешение составляло 4,3–4,4 %.

С увеличением напряжения питания ФЭУ амплитудное разрешение улучшалось, но при этом нарушалась линейность из-за перегрузки зарядочувствительного усилителя. Схема включения ФЭУ была изменена: на ФЭУ было подано положительное напряжение питания, и, чтобы избежать перегрузки

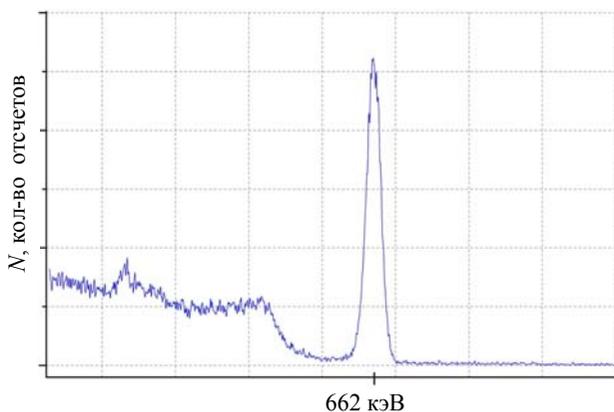


Рис. 3. Участок спектра источника ^{137}Cs с разрешением 4,6 %

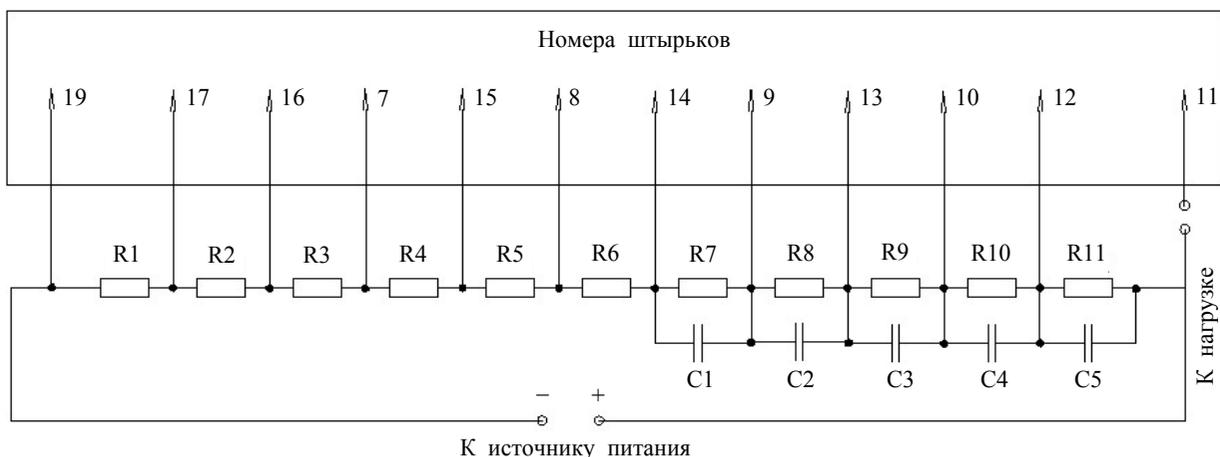


Рис. 4. Стандартная схема включения ФЭУ-184

усилителя, съем сигнала стал производиться с предпоследнего динода. В результате амплитудное разрешение улучшилось до величин 3,8–4,0 %. Чтобы оптимизировать распределение высоковольтных потенциалов между динодами ФЭУ при такой схеме включения, параметры делителя напряжения были изменены следующим образом: $R_1 = R$; $R_2 = \dots = R_{11} = 0,47R$.

При такой схеме питания ФЭУ (рис. 5) было получено разрешение 3,2 % (соответствующий амплитудный спектр приведен на рис. 6).

Следует отметить, что из имеющихся в наличии десяти штук ФЭУ-184 только четыре экземпляра показывали разрешение для линии 662 кэВ в пределах 3,2–3,3 %, сохраняя линейность отклика при изменении высокого напряжения в пределах 100 В в диапазоне от 570 до 660 В (график зависимости линейности и разрешения от величины напряжения представлен на рис. 7).

Выбор фотоэлектронного умножителя с наилучшими спектрометрическими характеристиками и оптимизации схемы его питания для работы с монокристаллом $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ позволил создать сцинтилляционный спектрометрический детектор, имеющий

энергетическое разрешение 3,2 % по линии 662 кэВ ^{137}Cs , близкое к значению 2,9 % у детектора BrillanCe380 компании Saint-Gobain [3].

В то же время, для создания полноценного спектрометрического тракта необходимы и другие технические характеристики – зависимость энергетического разрешения от энергии, интегральная нелинейность, температурная зависимость и т. д.

Используя ранее полученные параметры ФЭУ и делителя, были проведены исследования характеристик детектора гамма-излучения на основе монокристалла бромид лантана. Исследованиям подвергалась сцинтилляционная сборка, состоящая из кристалла ДССБЛ.01.25.25 и фотоумножителя ФЭУ-184 с высоковольтным делителем. Спектры регистрировались при помощи ЭВМ и программы АСР, предназначенной для управления набором амплитудных спектров производства ООО «Парсек», также использовались высокоскоростной спектрометрический амплитудноцифровой преобразователь (В4к-САЦП-USB), усилитель сигналов Canberra AFT Research Amplifier Model 2025, осциллограф Tektronix TDS 3032 и высоковольтный источник СБПК55 (см. рис. 8).

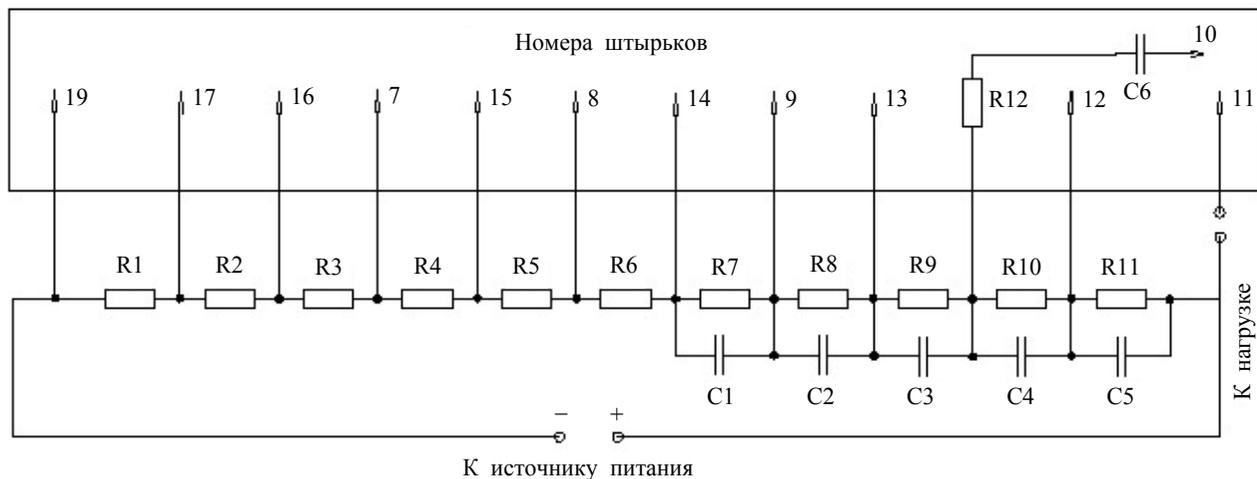


Рис. 5. Оптимизированная схема включения ФЭУ-184

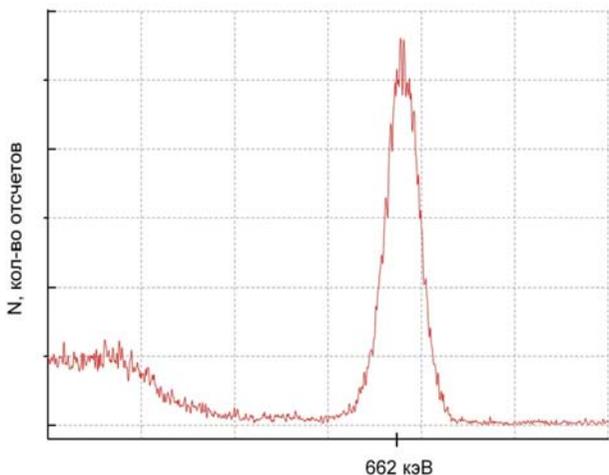


Рис. 6. Участок спектра источника ^{137}Cs с разрешением 3,2 %

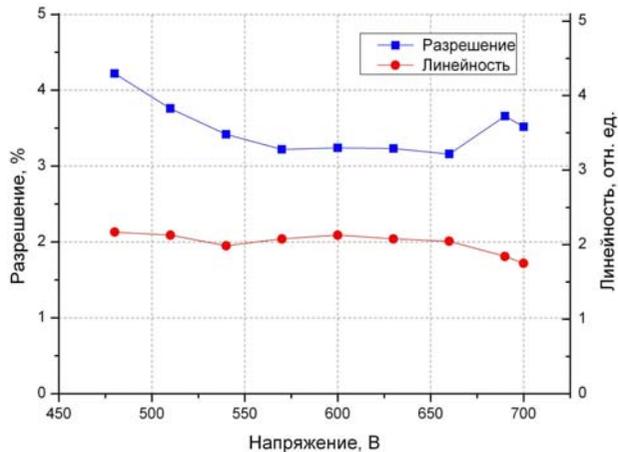


Рис. 7. График зависимости линейности и разрешения от величины напряжения

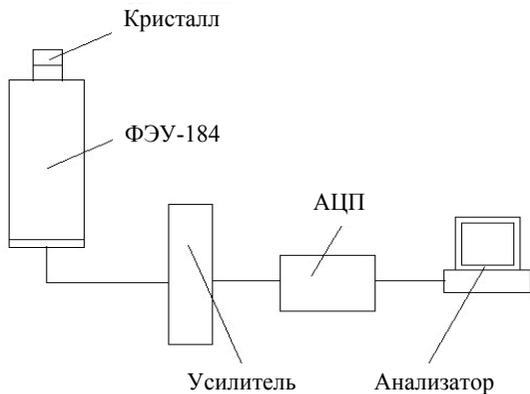


Рис. 8. Схема эксперимента

Сцинтилляционный кристалл приклеивался к входному окну ФЭУ оптическим вазелином. На ФЭУ подавалось положительное напряжение питания, сигнал снимался с предпоследнего диода, и через усилитель подавался на амплитудный анализатор. Время экспозиции для всех измерений было выбрано равным 600 с. Источник гамма-излучения располагался на расстоянии 5 см от входного окна кристалла.

Ниже приводятся результаты исследования характеристик детектора гамма-излучения на основе монокристалла $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ и ФЭУ-184.

Зависимость энергетического разрешения от энергии для $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ и $\text{NaI}(\text{Tl})$

Таблица 2

Зависимость энергетического разрешения от энергии нуклида

Нуклид	Энергия, кэВ	$\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ Разрешение, %	$\text{NaI}(\text{Tl})$ Разрешение, %	Коэффициент улучшения
^{241}Am	59,537	13,6	14,6	1,1
^{139}Ce	165,857	6,5	11,0	1,7
^{133}Ba	356,017	4,2	8,1	1,9
^{113}Sn	391,702	3,9	7,7	2,0
^{137}Cs	661,660	3,2	6,9	2,2
^{54}Mn	834,843	2,6	6,8	2,6
^{60}Co	1173,238	2,4	6,4	2,7
	1332,502	2,3	5,8	2,5
^{88}Y	1836,063	2,0	4,3	2,2

Для области энергий выше 100 кэВ бромид лантана имеет преимущество по разрешению над кристаллом $\text{NaI}(\text{Tl})$ от 1,7 до 2,7 раз.

Для проверки энергетического диапазона и линейности для каждого источника из набора ОСГИ определялся номер канала, в котором располагалась вершина пика, соответствующего энергии излучения источника и затем эти данные наносились на график, где по оси X отложена энергия соответствующего радионуклида, а по оси Y – номер канала. Полученный график представлен на рис. 9.

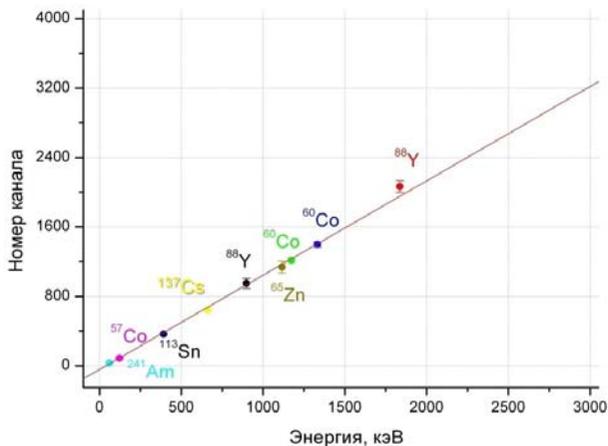


Рис. 9. График зависимости энергии радионуклида от номера канала

Из графика видно, что бромид лантана обладает хорошей линейностью в диапазоне от 50 кэВ до 2 МэВ. В линейном режиме график зависимости энергетического разрешения от энергии имеет следующий вид (см. рис. 10).

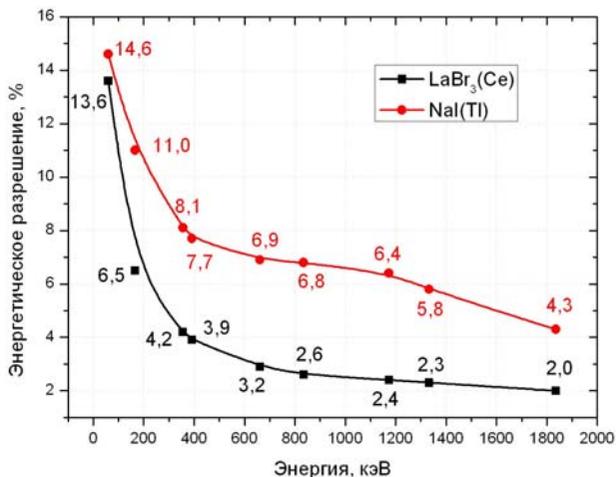


Рис. 10. График зависимости энергетического разрешения от энергии нуклида

Характерный собственный фон

Собственный фон кристаллов бромида лантана в основном формируется за счет распада радионуклида ^{138}La , который присутствует в природной смеси изотопов лантана около 0,09%. ^{138}La распадается (схема представлена на рис. 11) путем электронного захвата (66,4%) в ^{138}Ba и путем бета-распада (33,6%) в ^{138}Ce . Электронный распад сопровождается испусканием γ -квантов с энергией 1436 кэВ и рентгеновского излучения, β -распад с граничной энергией 252 кэВ сопровождается гамма-излучением с энергией 789 кэВ.

Пик с энергией $\sim 1,45$ МэВ (см. рис. 12), помимо γ -квантов с энергией 1,436 МэВ, формируют γ -кванты внешнего фона с энергией 1,461 МэВ, возникающие при распаде радиоактивного изотопа ^{40}K , который содержится во многих материалах, в частности в стекле входного окна ФЭУ.

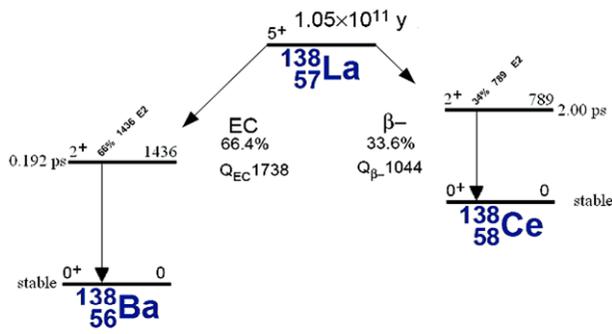


Рис. 11. Схема распада ^{138}La

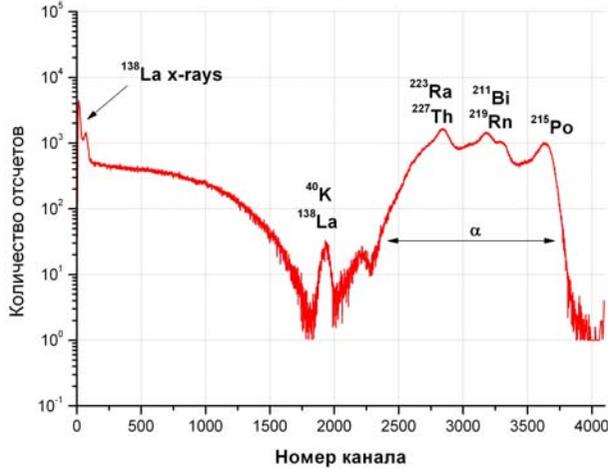


Рис. 12. Спектр фона сцинтиллятора $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$

При энергиях выше 1,55 МэВ, как видно из рис. 12, наблюдается широкое плато в измеряемом фоне, которое обусловлено серией α -распадов, порождаемых радиоактивным изотопом ^{227}Ac .

Примесь этого изотопа неизбежно присутствует в исходном материале, из которого выращивается кристалл $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ [1].

Сравнение спектров кристаллов $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ и $\text{NaI}(\text{Tl})$

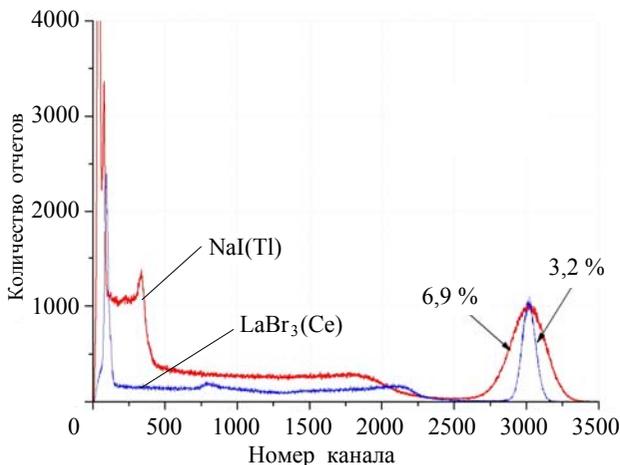


Рис. 13. Спектры ^{137}Cs

Как видно из сравниваемых спектров, бромид лантана обладает существенно более высоким, по сравнению с кристаллом $\text{NaI}(\text{Tl})$, энергетическим разрешением. Значение разрешения для $\text{NaI}(\text{Tl})$ составляет 6,9 %, в то время как для $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ типовое значение разрешения составляет лишь 3,2 %. С увеличением энергии характеристики $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$, по сравнению с $\text{NaI}(\text{Tl})$, становятся еще лучше. В диапазоне энергий от 200 до 400 кэВ, особенно важном для большинства приложений, бромид лантана обеспечивает существенные преимущества в отношении идентификации радионуклидов. Это видно из следующего рис. 14, где показан спектр изотопа ^{133}Ba .

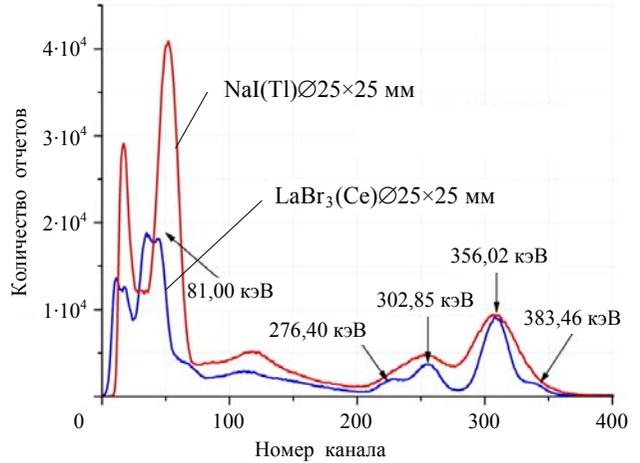


Рис. 14. Спектры ^{133}Ba

Эффективность регистрации кристалла $\text{LaBr}_3(\text{Ce}) \text{ } \varnothing 25 \times 25$ относительно $\text{NaI}(\text{Tl}) \text{ } \varnothing 25 \times 25$

Эффективность регистрации другой очень важный параметр для гамма-спектрометров. По эффективности регистрации также наблюдается существенное преимущество детектора на основе монокристалла бромида лантана. Если принять эффективность регистрации $\text{NaI}(\text{Tl})$ за 100 %, то можно увидеть, что с ростом энергии эффективность регистрации для кристалла $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ растет (рис. 15).

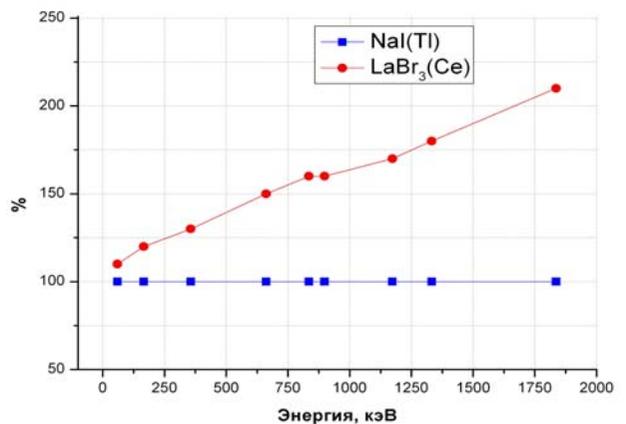


Рис. 15. Эффективность регистрации $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ относительно $\text{NaI}(\text{Tl})$

Климатические испытания кристалла ДССБЛ.01.25.25 и ФЭУ-184

Также были проведены климатические испытания кристалла $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ и ФЭУ-184. Сборка была помещена в климатическую камеру. Кристалл охлаждался на 5 градусов в течение 90 минут, в диапазоне от -10 до $+40$ градусов Цельсия. Таким образом, была получена температурная зависимость, которая представлена на рис. 16.

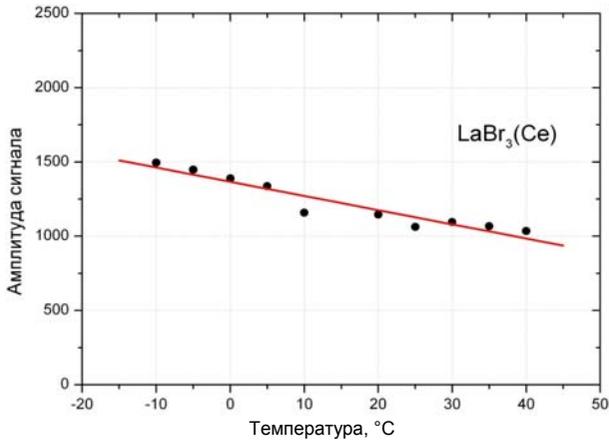


Рис. 16. График зависимости амплитуды сигнала от температуры

Полученная зависимость, в целом, находится в согласии с данными иностранных коллег [3].

И в заключении хочу отметить, что проведенные исследования показали возможность создания спектрометрического детектора на основе монокри-

сталла $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ и ФЭУ отечественного производства, а также то, что разрабатываемый спектрометрический детектор, сопоставим по своим характеристикам с импортными аналогами. Таким образом, использование блоков детектирования на основе кристаллов $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$, позволит качественно улучшить парк приборов сцинтилляционной гамма-спектрометрии России [5].

Литература

1. Июдин А. Ф., Богомолов В. В. и др. Особенности собственного фона в сцинтилляционных кристаллах $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ и CeBr_3 // Приборы и техника эксперимента. 2009, № 6. С. 16–24.
2. Симутин А. С., Чернов М. Ю. и др. Выбор фотоэлектронного умножителя для спектрометрического детектора на основе кристалла $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ // Сб. докл. семинара «Спектрометрический анализ. Аппаратура и обработка данных на ПЭВМ». Обнинск, 2009.
3. Shah K., Higgins W., Van Loef E. V. // High Resolution Sensor for Nuclear Waste Characterization, Report of Radiation Monitoring Devices Inc., Watertown, United States, 2005.
4. Van Loef E. V. // Halide Scintillators, Delft University of Technology, Netherlands, 2003.
5. Дорин А. Б., Ельцин В. Ф., Чураков А. К., Аналитический обзор российских гамма-спектрометров // Сб. докл. семинара «Спектрометрический анализ. Аппаратура и обработка данных на ПЭВМ». Обнинск, 2009.