

94-305



объединенный
институт
ядерных
исследований
дубна

P13-94-305

И.Р.Бойко, М.А.Игнатенко, К.Есенак*, Л.Кухта*,
Я.Ружичка*, В.Файнор*

СЦИНТИЛЛЯТОР НА ОСНОВЕ SiO_2 -АЭРОГЕЛЯ

Направлено в журнал «NIM»

*Университет им.Коменского, Братислава, Словакия

1994

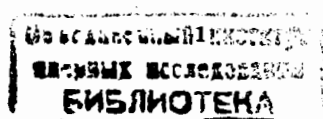
1. Введение

Одним из перспективных материалов, существенно расширяющих область применения детекторов одиночных заряженных частиц, является аэрогель на основе $\text{SiO}_2/1/$. Так, использование этого материала в качестве радиаторов пороговых черенковских счетчиков позволяет отказаться от газовых счетчиков высокого давления, а также продвинуться в область скоростей частиц, где невозможно применение других материалов. В настоящее время аэрогель может изготавливаться с показателями преломления в диапазоне от $n = 1,006$ до $n = 1,075$ (плотность $\rho = 0,03 - 0,36 \text{ г/см}^3$)/2/, что дает возможность создавать пороговые счетчики, способные производить разделение частиц в области β от 0,93 до 0,99. Путем дальнейшей термообработки аэрогеля возможно повышение показателя преломления до $n = 1,25$ и более ($\rho = 1,19 \text{ г/см}^3$)/3/. Таким образом, аэрогель уже полностью перекрывает по плотности и по показателю преломления интервал между газами и твердыми телами.

Однако аэрогель обладает и рядом существенных недостатков: сильная зависимость его прозрачности от длины волны в коротковолновой части спектра видимого света и почти полная непрозрачность в области ультрафиолета; значительное рассеяние света в области коротких длин волн, приводящее к потере направленности излучения Вавилова-Черенкова (ИВЧ) при больших длинах радиаторов; трудности с механической обработкой и др. Эти факторы существенно препятствуют собиранию света на фотоприемник, особенно в случае радиаторов больших размеров.

Использование сместителя спектра для улучшения светосбора на фотоприемник в случае радиаторов малых размеров, когда ультрафиолетовая часть ИВЧ еще может выходить из радиатора, впервые было предложено в /4/. Эта идея использовать сместитель спектра для увеличения сигнала от черенковских счетчиков нашла дальнейшее развитие в случае радиаторов больших размеров при внедрении в объем аэрогеля световодов, изготовленных в виде прямоугольных пластин, содержащих сместитель спектра/5/. Результаты моделирования откликов нескольких вариантов таких черенковских счетчиков, проектируемых для работы в составе детектора КЕДР, показали, что можно добиться существенного сокращения количества ФЭУ за счет выигрыша в светосборе. Там же было сделано предположение, что можно получить дополнительный выигрыш в количестве собираемого света, если удастся внедрить вещество, являющееся сместителем спектра, непосредственно в материал аэрогеля.

Технология допирования аэрогеля известным сместителем спектра 1,4-ди-(2-(5-фенилоксазол))-бензол (РОРОР) впервые была разработана в Университете им.Коменского, Братислава /6/. Допирование аэрогеля сместителем



спектра приводит к тому, что электромагнитное излучение, возникающее в результате взаимодействия заряженных частиц с атомами вещества аэрогеля, может быть захвачено абсорбированным РОРОР и переизлучено в диапазоне длин волн, для которых, с одной стороны аэрогель прозрачен, а с другой, которые более соответствуют максимальной квантовой чувствительности фотокатодов ФЭУ. Так может быть переизлучена и использована значительная часть излучения в коротковолновой области спектра, которая практически не может быть использована в случае обычного аэрогеля. Процесс переизлучения приводит также к увеличению времени высвечивания.

Таким образом, излучение аэрогеля с имплантированным РОРОР обладает всеми атрибутами люминесценции, а легированный сместителем спектра аэрогель может рассматриваться и использоваться в качестве сцинтиллятора. Это открывает новую возможность применения аэрогеля в разнообразных сцинтилляционных счетчиках.

2. Приготовление SiO₂-аэрогеля и способ его допирования РОРОР

SiO₂-аэрогель был изготовлен путем сверхкритической сушки алкогеля (T=270°C; p=12МПа), полученного гидролизом раствора тетраметоксисилана в метиловом спирте в слабощелочной среде аммиака с последующей выдержкой в метиловом спирте при нормальных условиях в течение 7 суток. Отношения объемов тетраметоксисилана, метилового спирта и воды в первоначальном растворе было 2:2:1 соответственно. SiO₂-аэрогель затем подвергался обжигу при температуре 400°C в течение 5 часов. Полученные образцы имели плотность $\rho=0,18 \text{ г/см}^3$ и показатель преломления $n=1,038$.

Два образца из SiO₂-аэрогеля, имевшие форму цилиндров диаметром 25 мм и высотой 20 мм, выдерживались в атмосфере паров РОРОР при температуре $t=245^\circ\text{C}$ и пониженном давлении $p=150 \text{ Па}$, в течение 7 часов (образец N1) и 24 часов (образец N2). Весовые концентрации абсорбированного аэрогелем сместителя спектра в результате составили 0,7% и 2,5% соответственно.

Легированные образцы имели слабый коричневатый оттенок по сравнению с чистым аэрогелем. Облучение ультрафиолетовым светом показало, что проникновение сместителя спектра по объему аэрогеля неравномерное - основная концентрация РОРОР, особенно в случае образца N1, сосредоточена в поверхностном слое толщиной несколько миллиметров.

В измерениях также использовался контрольный образец чистого аэрогеля, имевший те же размеры, что и легированные образцы.

3. Оптические свойства легированных аэрогелей

На рис.1 приведены зависимости прозрачности легированных образцов аэрогелей и контрольного образца чистого аэрогеля от длины волны света, измеренные на спектрофотометре. На этом же рисунке показаны спектры возбуждения и излучения РОРОР в полистироле/7/. Видно, что допирование приводит к значительному снижению прозрачности образцов, причем тем больше, чем больше концентрация РОРОР. В области, соответствующей спектру поглощения РОРОР, допирование вызывает почти полную потерю прозрачности. Уменьшение прозрачности в диапазоне длин волн, соответствующих области видимого света, связано, по-видимому, с рассеянием света в допированном аэрогеле.

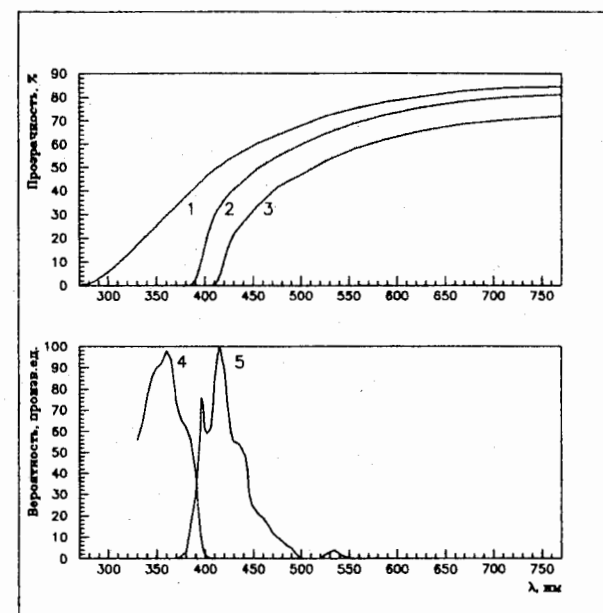


Рис. 1. Прозрачность исследованных образцов аэрогеля в зависимости от длины волны света: 1 - чистый аэрогель, 2 - образец N1, 3 - образец N2. Кривые 4 и 5 - спектры возбуждения и поглощения РОРОР в полистироле

4. Исследование кинетики излучения сцинтиллятора на основе аэрогеля

Исследование кинетики излучения проводилось методом счета отдельных фотонов/8/. Схема измерений приведена на рис.2. Исследуемый образец облучался электронами от радиоактивного источника Ru^{106} (максимальная энергия 3,55 МэВ). Сигнал, запускающий время-цифровой преобразователь (ВЦП) с чувствительностью 20 пс/канал, вырабатывался в результате совпадения импульсов от фотоумножителей ФЭУ1 и ФЭУ2 (ХР1020), которые регистрировали свет, возникающий в сцинтилляторе (полистирол, 2% партерфенил, 0,2% РОРОР) толщиной 4 мм в результате попадания в него электронов, прошедших через исследуемый образец аэрогеля. Сцинтиллятор располагался в 30 мм за аэрогелем. Сигналом "Стоп" для ВЦП служил импульс от ФЭУ3 (ХР2020), который регистрировал свет от аэрогеля. Интенсивность этого света ослаблялась с помощью диафрагмы настолько, чтобы сигнал от ФЭУ3 соответствовал в среднем 0,05 фотоэлектронам. Напряжение на ФЭУ3, коэффициент усиления усилителя и порог регистрации формирователя соответствовали однофотоэлектронному режиму работы.

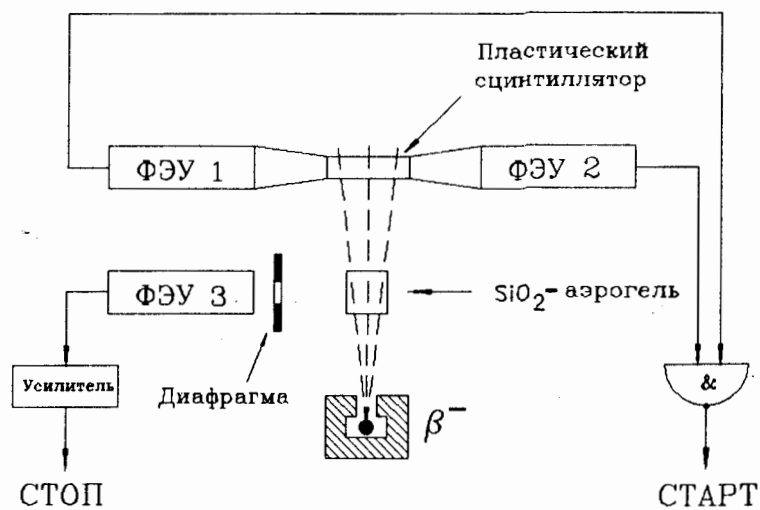


Рис. 2. Схема аппаратуры для изучения кинетики излучения легированного аэрогеля

В полученные результаты вносилась коррекция Δt на корреляцию между измеренным временем и амплитудой A регистрируемого сигнала от ФЭУ3: $\Delta t = K/\sqrt{A}$, где константа K находилась из условия наилучшего временного разрешения при измерении функции аппаратного разрешения. Функция аппаратного разрешения была найдена путем измерения временного спектра ИВЧ в чистом аэрогеле.

На рис.3 представлены временные спектры излучения легированных образцов и контрольного образца чистого аэрогеля. Временной спектр излучения чистого аэрогеля хорошо аппроксимируется функцией Гаусса с $\sigma = 750$ пс.

Данные измерений фитировались в предположении, что измеренные спектры представляют собой свертку функции аппаратного разрешения и за-

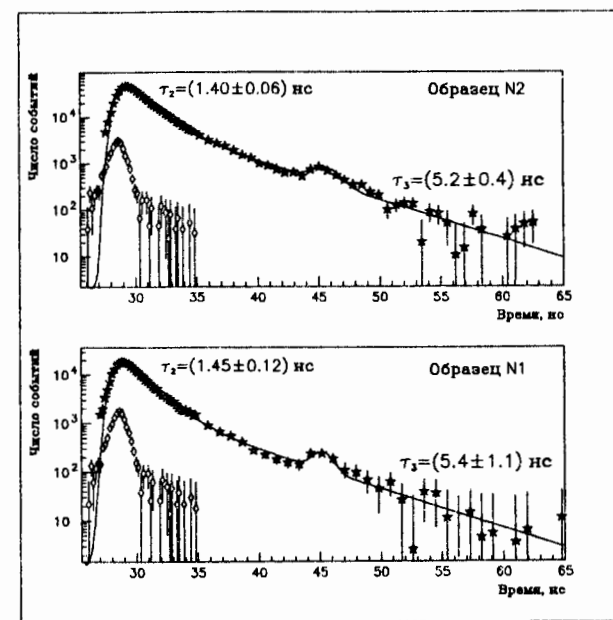


Рис. 3. Временные спектры излучения аэрогельных сцинтилляторов с фитирующими кривыми. Ромбиками изображен спектр излучения чистого аэрогеля

висимости, которая применяется для описания высвечивания двух- и трехкомпонентных органических сцинтилляторов/9/:

$$i(t) = \frac{\frac{e^{-t/\tau_2} - e^{-t/\tau_1}}{\tau_2 - \tau_1} + \frac{R}{\tau_3} e^{-t/\tau_3}}{1 + R},$$

где τ_1 , τ_2 и τ_3 - соответственно постоянные времен нарастания вспышки и высвечивания быстрой и медленной компонент, R - коэффициент, пропорциональный вкладу медленной компоненты высвечивания в полную интенсивность вспышки.

Помимо основного максимума в спектрах излучения образцов приблизительно через 15 нс наблюдается дополнительный пик, величина которого составляет около 1/80 от амплитуды основного пика. Происхождение его связано с эффектом регистрации послепулсов ФЭУ/9/. Аппаратурный пик послепулсов также учитывался при фитировании. В результате были найдены следующие значения параметров: $\tau_2 = 1,40 \pm 0,06$ нс ($55 \pm 11\%$ от полной интенсивности) и $\tau_3 = 5,2 \pm 0,4$ нс ($45 \pm 9\%$ от полной интенсивности) для образца N1 и $\tau_2 = 1,45 \pm 0,12$ нс ($68 \pm 30\%$) и $\tau_3 = 5,4 \pm 1,1$ нс ($32 \pm 11\%$) для образца N2.

В случае возбуждения излучения аэрогеля электронами от источника Ru^{106} естественно предположить, что регистрируемый свет является результатом переизлучения ИВЧ сместителем спектра (максимальная энергия частиц от источника $E_{max} = 3,55$ МэВ существенно превышает пороговую энергию для возникновения ИВЧ ($E_{пор} = 1,4$ МэВ)). Присутствие медленной компоненты высвечивания можно было бы связать с процессом переизлучения сместителем спектра своего собственного излучения, так как спектр его излучения и поглощения значительно перекрываются.

Временные спектры излучения исследуемых образцов были также измерены при облучении их электронами от источника Tl^{204} , максимальная энергия которых $E_{max} = 760$ кэВ, что значительно ниже порога возникновения ИВЧ в исследуемых образцах. В случае контрольного образца не наблюдалось свечения аэрогеля, а для легированных аэрогелей полученный временной спектр оказался таким же, как и при облучении электронами от источника Ru^{106} . В данном случае основную роль при возбуждении РОРОР могут играть тормозное и переходное излучения, возникающие при движении электронов в образце, возбуждение самого РОРОР, а также возможные радиационные или безрадиационные механизмы передачи энергии от возбужденного вещества кварца.

5. Изучение световыхода

Исследование световыхода легированных образцов проводилось при облучении их α -частицами с энергией 5,499 МэВ от источника Pu^{239} , а также космическими частицами. Образцы устанавливались непосредственно на стекло ФЭУ (ХР1020) без каких-либо дополнительных мер для улучшения оптического контакта из-за гигроскопических свойств аэрогеля.

В случае облучения α -частицами источник размещался на поверхности образцов. Сигналы от ФЭУ усиливались и поступали на АЦП с чувствительностью 0,25 пКл/канал. Показания АЦП были прокалиброваны в количестве регистрируемых фотоэлектронов с помощью световых импульсов от светодиода. Измеренные амплитудные спектры сигналов показаны на рис.4. Там же приведен спектр, полученный при облучении прямоугольного пластического сцинтиллятора (полистирод, 2% паратерфенила, 0,2% РОРОР) с размерами $2 \times 1,5 \times 1,5$ см, который также устанавливался на стекло ФЭУ. Аэрогель с меньшим содержанием сместителя спектра (образец N1) всего в 3

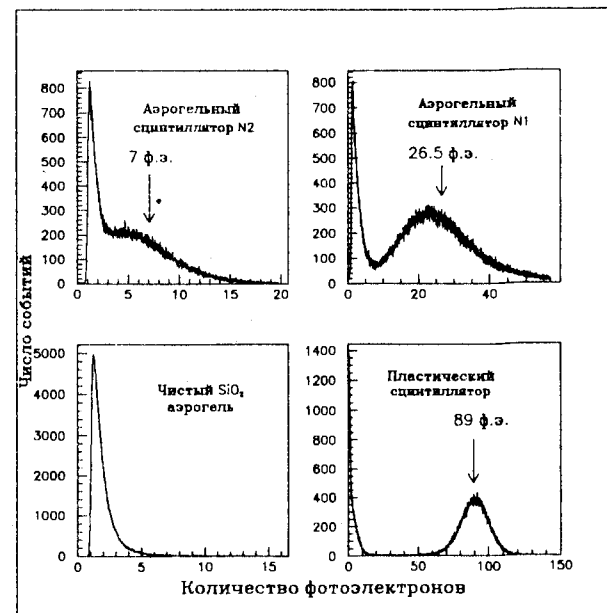


Рис. 4. Амплитудные спектры сигналов от ФЭУ при облучении аэрогелей и пластического сцинтиллятора α -частицами от Pu^{239}

раза уступает по техническому световыходу сцинтилятору, световыход которого оценивается в 24% от световыхода $NaI(Tl)$. Центр тяжести распределения соответствует 26,5 регистрируемым фотоэлектронам. Технический световыход образца N2 оказался еще в 4 раза меньше, хотя содержание РОРОР в нем значительно выше. Этот результат можно понять, принимая во внимание, что свободный пробег α -частиц в аэрогеле не превосходит 0,5 мм. Поглощение и рассеяние света в материале самого аэрогеля на пути к ФЭУ приводит к более сильному ослаблению сигнала от образца с большим содержанием РОРОР. При облучении контрольного образца не было замечено какого-либо свечения.

Схема измерений световыхода аэрогелей под действием космических частиц показана на рис.5. Телескоп из двух сцинтиляционных счетчиков выделял космические частицы, которые пересекали исследуемый образец в диапазоне углов от 0° до 20° . Сигнал от ФЭУ усиливался зарядово-чувствительным усилителем и поступал на АЦП с чувствительностью 1 пКл/канал. Совпадение сигналов от сцинтиляционных счетчиков и испытываемого счетчика приводило к выработке стробирующего сигнала для измерения амплитуды.

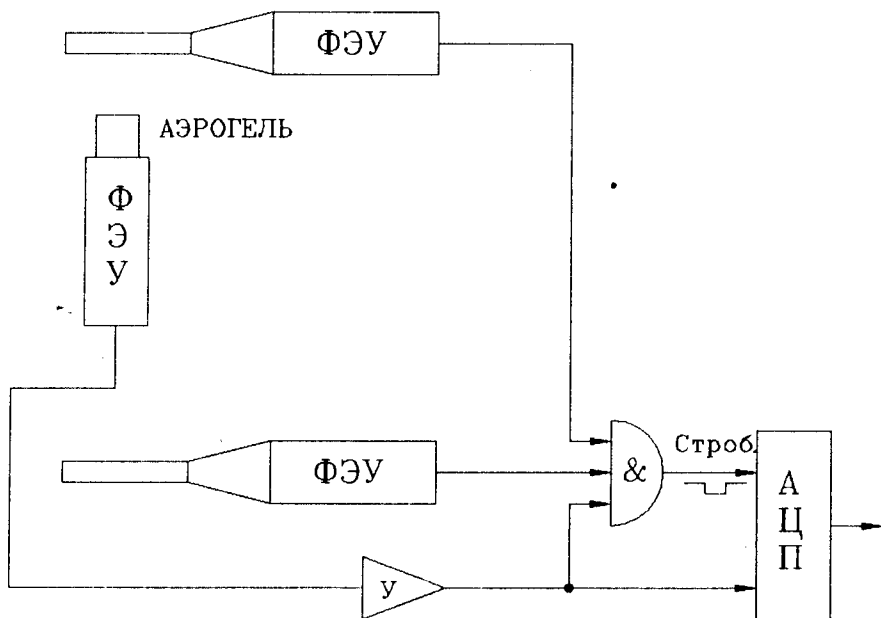


Рис. 5. Схема измерения световыхода аэрогелей под действием космических частиц

В данных измерениях существенный фон представляло ИВЧ, образующееся в стекле входного окна ФЭУ при прохождении через него космических частиц. Величина этого фона измерялась отдельно, когда исследуемый образец удалялся из счетчика. На рис.6 представлен спектр амплитуд сигналов от ФЭУ в случае облучения образца N2. Там же показан один из спектров сигналов ФЭУ, полученный при калибровке спектрометрического тракта с помощью светодиода. Из-за некоторой неэффективности триггера в спектре присутствует фон случайных совпадений, вызванный шумами ФЭУ. В предположении, что этот фон имеет вид затухающей экспоненты, суммарный спектр всех исследуемых образцов был профитирован суммой фона и распределения Гаусса (спектры просуммированы с целью увеличения статистики). Результат фитирования показан на рис.7.

На рис.8 представлены измеренные амплитудные спектры сигналов от ФЭУ после вычитания пьедестала, а также результаты вычитания фона случайных совпадений. Стрелками на рисунках обозначены центры тяжести полученных распределений и указаны соответствующие им числа регистрируемых фотоэлектронных.

С целью получения дополнительной оценки вклада сцинтиляции в полную величину сигнала от легированных аэрогелей, измерения были также проведены в геометрии, когда счетчик был повернут в противоположную сторону относительно направления космических частиц. Результаты измерений показаны на рис.9 вместе со спектрами, полученными после вычитания фона случайных совпадений.

Средние значения количества регистрируемых ФЭУ фотоэлектронных от исследуемых образцов после вычитания вклада ИВЧ в стекле ФЭУ приведены в таблице.

Таблица. Средние числа зарегистрированных фотоэлектронных от излучения исследованных образцов

Расположение образца относительно ФЭУ	образец "N2"	образец "N1"	Чистый аэрогель
Вверху	$4,5 \pm 0,5$	$2,7 \pm 0,5$	$2,4 \pm 0,4$
Внизу	$3,4 \pm 0,6$	$1,4 \pm 0,6$	$-0,1 \pm 0,5$

Сравнивая полученные значения средних чисел регистрируемых фотоэлектронных, можно сделать вывод, что допирование аэрогеля РОРОР приводит к увеличению суммарного световыхода для образца N2 почти в 2 раза, а образца N1 приблизительно на 35%.

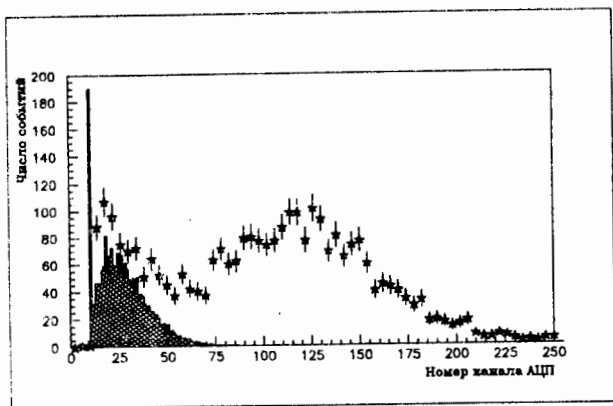


Рис. 6. Амплитудные спектры сигналов от ФЭУ: звездочки - облучение образца аэрогеля N2 космическими частицами; заштрихованный спектр - при освещении ФЭУ от светодиода

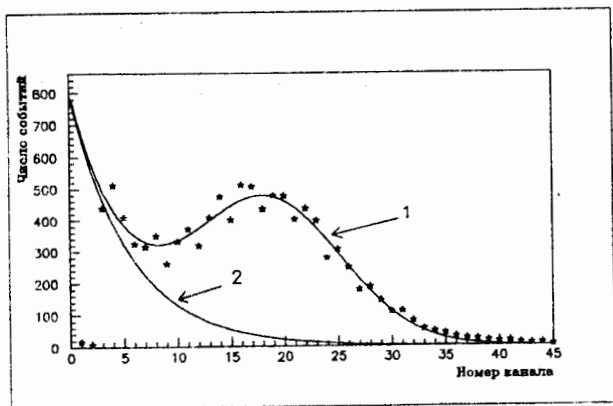


Рис. 7. Результаты фитирования суммарного амплитудного спектра сигналов от всех исследуемых образцов аэрогеля (звездочки) суммой затухающей экспоненты и функции Гаусса (кривая 1). Кривая 2 - аппроксимация фона случайных совпадений

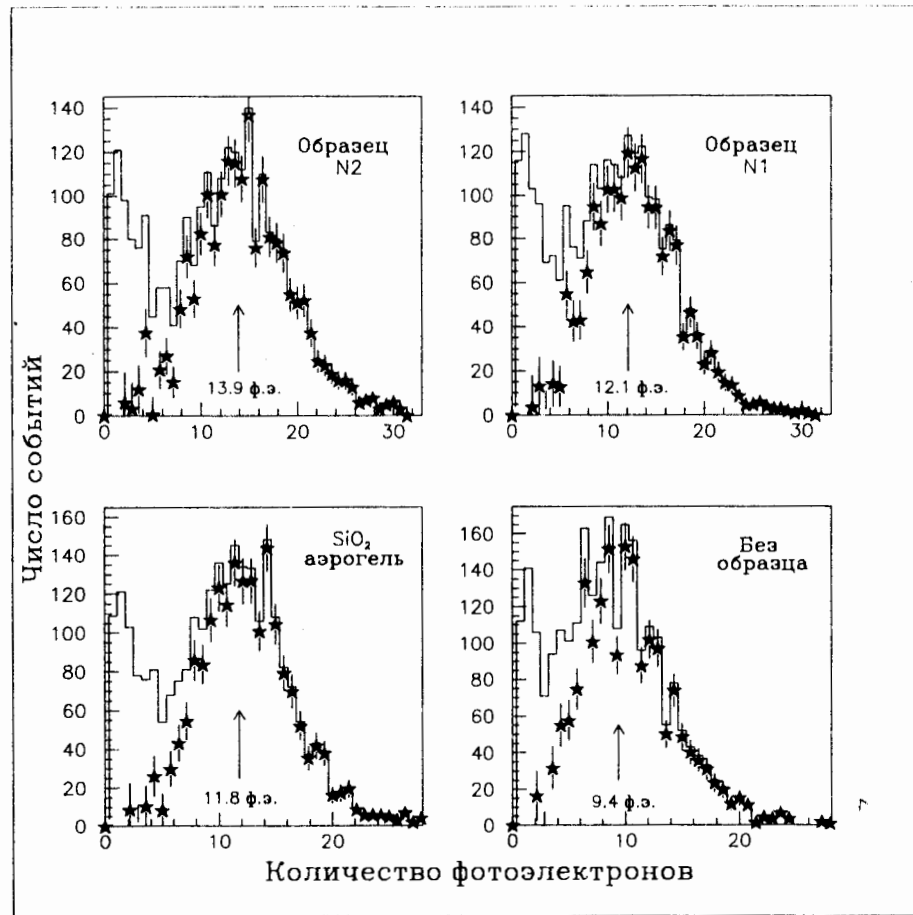


Рис. 8. Амплитудные спектры сигналов, наблюдаемых при облучении образцов космическими частицами при расположении образцов над ФЭУ. Сплошная линия - необработанные данные, звездочки - результат вычитания фона случайных совпадений

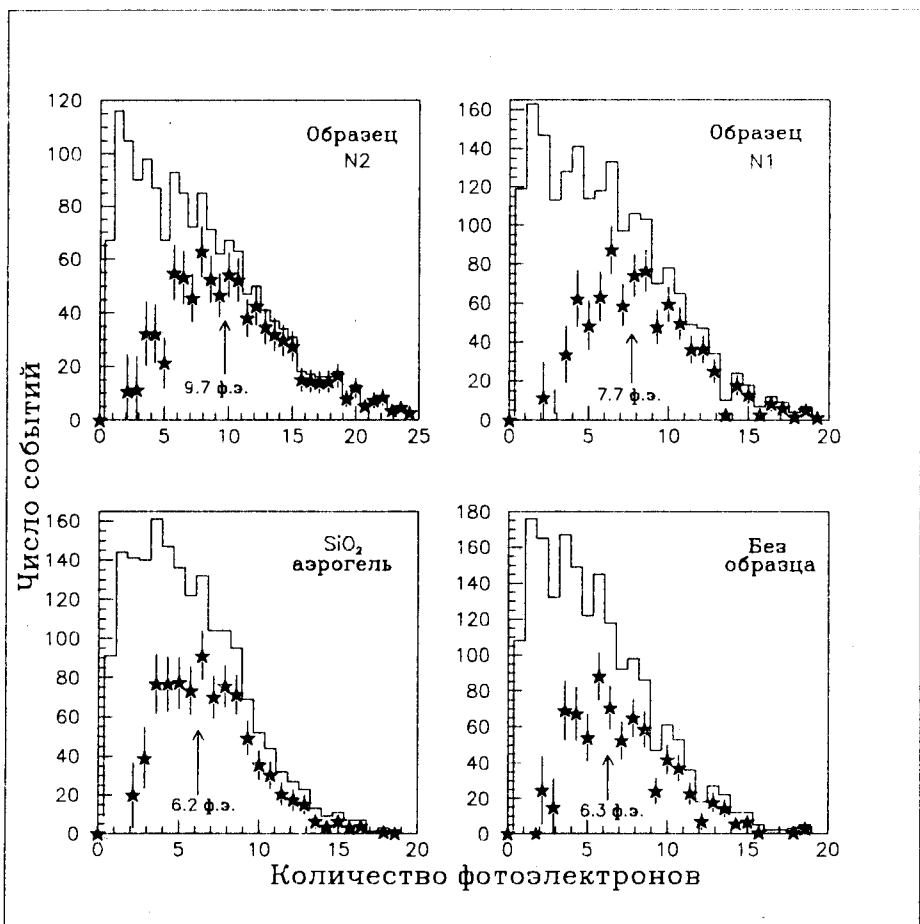


Рис. 9. Амплитудные спектры сигналов, наблюдаемых при облучении образцов космическими частицами при расположении образцов под ФЭУ. Сплошная линия - необработанные данные, звездочки - результат вычитания фона случайных совпадений

Предполагая, что ионизационные потери энергии космических частиц в аэрогеле ($1,83 \text{ МэВ см}^2/\text{г}/10/$) близки к ионизационным потерям β -частиц, из полученных данных можно оценить отношение $\frac{\alpha}{\beta}$ для легированных аэрогелей. В одних и тех же условиях при облучении образцов N1 и N2 α -частицами было зарегистрировано $4,8 \pm 0,3$ и $1,3 \pm 0,2$ ф.э./МэВ, а при облучении космическими частицами $1,3 \pm 0,5$ и $4,7 \pm 0,5$ ф.э./МэВ соответственно. Столь существенная разница в отношении $\frac{\alpha}{\beta}$ для образцов N1 и N2 связана с двумя обстоятельствами. В случае образца N1 из-за неравномерного проникновения РОРОР в его объем (облучение ультрафиолетовым светом показало, что для этого образца сместитель спектра сосредоточен главным образом в поверхностном слое толщиной 2 мм), вычисленный световыход на 1 МэВ энергии, потерянной минимально ионизирующей частицей, необходимо увеличить приблизительно в отношении толщины всего образца аэрогеля к толщине имплантированной сместителем спектра $\frac{20}{4 \pm 5}$. В этом случае отношение $\frac{\alpha}{\beta}$ для образца N1 будет близко к 1. Значительное ослабление излучения, вызванного α -частицами, в образце N2 на пути к ФЭУ из-за поглощения и рассеяния в веществе самого аэрогеля приводит к заниженному измеренному значению световыхода для этого образца. Однако если предположить, что количество испущенного света при облучении образца N2 α -частицами по крайней мере не меньше, чем для образца N1, отношение $\frac{\alpha}{\beta}$ для второго образца также будет близко к единице.

6. Заключение

Исследованы сцинтилляционные свойства двух легированных РОРОР образцов аэрогеля. Весовая концентрация сместителя спектра в образцах задавалась временем их выдержки в атмосфере РОРОР и составляла приблизительно 0,7% и 2,5%.

Исследование кинетики излучения легированных аэрогелей методом счета отдельных фотонов при облучении образцов β -частицами от источника Ru^{106} показало, что $58 \pm 9\%$ от полной интенсивности вспышки высвечивается с постоянной времени $\tau = 1,40 \pm 0,06$ нс. Наблюдается также медленная компонента с характерным временем $\tau = 5,2 \pm 0,4$ нс ($42 \pm 6\%$).

Измеренный световыход под действием α -частиц образца с меньшим содержанием РОРОР составляет приблизительно 30% от световыхода органического сцинтиллятора (полистирол, 2% паратерфенила и 0,2% РОРОР), а образца с большим содержанием РОРОР - 8%. Наблюдающаяся разница в величине световыхода связана с рассеянием и поглощением излучения в аэрогеле на пути к ФЭУ.

В случае облучения космическими частицами световыход легированных образцов превосходит световыход образца чистого аэрогеля на 35% для аэрогеля с меньшим содержанием РОРОР и на 100% для аэрогеля с большим содержанием сместителя спектра.

Полученные данные указывают, что отношение $\frac{\sigma}{\lambda}$, характеризующее зависимость световыхода от энергии и сорта частиц, для обоих легированных образцов близко к 1.

Проведенные исследования показали, что допирование аэрогеля сместителем спектра делает практически невозможным использование его в качестве материала радиаторов черенковских счетчиков из-за значительного фона люминесцентного излучения. Однако сцинтилляционные характеристики полученных образцов позволяют заключить, что возможно на практике приготовление быстрых сцинтилляторов с промежуточной плотностью между газом и жидкостью на базе SiO_2 -аэрогелей. Этот сцинтиллятор может найти применение при использовании его в качестве активного вещества детекторов в опытах, где важна пропорциональность между величиной ионизационных потерь и количеством регистрируемого света, а также где критичным является количество вещества на пути регистрируемых частиц, например в экспериментах с тяжелыми ионами и частицами низких энергий.

Авторы выражают благодарность Воробьеву А.И., дискуссии с которым инициировали начало этой работы, а также Акимову Ю.К. и Зрелову В.П. за обсуждения и проявленный интерес к работе. Мы также благодарны Аппелю П.Ю. за помощь при проведении измерений на спектрофотометре и Гальпериной Р.С. за предоставление различных сцинтиллирующих добавок.

Литература

1. Cantin M. et al. - Nucl. Instr. and Meth., v.118, p.177, 1974.
2. Kuschnerus, Diploma Thesis, PI Bonn, 1976.
3. Rasmussen I.L. - Revue de Physique Appliquee, Coll. C4, Suppl. n4, Tome 24, avril 1989, p.C4-221.
4. Holl I., Lorenz E., Mageras G. - 5th Int. Conf. Instr. for Colliding Beams Physics, Novosibirsk, 1990, ed. Evgeny P.Solodov (Wold Scientific, 1990, p.184.
5. Onuchin A. et al. - Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., A 315, 1992, p.517.
6. Файнор В. и др. - Способ приготовления сцинтиллятора на базе SiO_2 -аэрогеля, легированного дифенилхлорбензолом. Заявка на изобретение №PV 22 83-92, Чехословакия, 1992. "Твердотельный сцинтиллятор". Заявка на изобретение ВНИИГПЭ № 506083/25, Россия, 1992 г.
7. Ambrosio C. et al. - CERN-PRE-90-96, 1990
8. Bolinger L., Thomas G. - Rev. Sc. Inst., 1961, v.32, №9, p.1044.
9. Hawkes C.M. et al. - CALT-68-1598, 1989.
10. Review of Particle Properties, Phys. Rev. D45, N11, p.III.5.

Рукопись поступила в издательский отдел
2 августа 1994 года.