

ЛИТИЕВОЕ СЦИНТИЛЛЯЦИОННОЕ СТЕКЛО ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ НЕЙТРОНОВ

*Н. В. Анфимов¹, А. М. Горин², А. Г. Денисов², А. А. Дурум²,
И. Е. Кресло^{1,3,*}, Е. А. Ладыгин¹, С. В. Лисовский³,
А. В. Рыбников¹, А. С. Селюнин¹, Ю. М. Токунов³,
И. В. Шеин², А. А. Янович²*

¹ Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

² Институт физики высоких энергий им. А. А. Логанова
Национального исследовательского центра «Курчатовский институт»,
Протвино, Россия

³ Московский физико-технический институт
(национальный исследовательский университет), Долгопрудный, Россия

Сцинтилляционные стекла с высоким содержанием изотопа ${}^6\text{Li}$ прочно рекомендовали себя как эффективные материалы для регистрации холодных, тепловых и эпитепловых нейтронов. Представлена инновационная лабораторная методика изготовления сцинтилляционного стекла на основе естественной смеси изотопов лития, легированного ионами Ce^{3+} , а также результаты измерения световыхода и эффективности регистрации тепловых нейтронов на экспериментально-измерительном стенде НЕЙТРОН ускорительного комплекса У-70 НИЦ «Курчатовский институт» – ИФВЭ.

Scintillating glasses with high content of ${}^6\text{Li}$ are well proven materials for efficient detection of cold, thermal and epi-thermal neutrons. We present an innovative laboratory-scale method for manufacturing of natural Li-based scintillating glass, doped with Ce^{3+} ions, as well as measured performance in terms of light yield and neutron detection efficiency at the experimental-measuring stand NEUTRON of the U-70 accelerator complex of the NRC KI – IHEP.

PACS: 29.40.–n; 07.57.Kp; 85.25.Pb

ВВЕДЕНИЕ

Потоки нейтронов различных энергий являются одновременно и важным инструментом, и объектом научных исследований. Нейтронная радиография, дифрактометрия и томография за последние несколько десятилетий стали полноценными методами в физике материалов, наряду с рентгеновскими методами. Параметры вторичных нейтронов проливают свет на процессы в астрофизике, физике элементарных частиц, ядерной

* E-mail: kreslo.ie@mipt.ru

физике. Кроме того, нейтроны представляют собой самостоятельный объект изучения, например, в исследованиях по измерению электрического дипольного момента, наличие которого может добавить важный элемент в ряд процессов с нарушением СР-инвариантности и, как следствие, в понимание природы барионной асимметрии Вселенной. Далекий от исчерпывающего список работ, иллюстрирующих проблематику, представлен в [1–4].

Конечной стадией во всех соответствующих экспериментах является детектирование параметров нейтронных пучков, таких как их интенсивность, пространственные и временные распределения, распределение по энергиям. Широко используемые газонаполненные детекторы на основе ^3He подходят к пределу своих возможностей по временному разрешению и не удовлетворяют растущим требованиям. Растущий дефицит и цена этого материала также являются стимулом к поиску эффективной замены.

Для регистрации холодных, тепловых и эпитепловых нейтронов успешно используется процесс испускания заряженных частиц ядром, поглотившим нейтрон, например в реакции $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$. Эти частицы затем могут быть зарегистрированы путем регистрации сцинтилляционной вспышки соответствующим фотодетектором.

Использование сцинтилляционных стекол на основе лития в сочетании с фотодетекторами для детектирования нейтронов — достаточно развитая тема в мировой науке. Основными требованиями к таким стеклам являются высокое содержание ^6Li для обеспечения максимальной чувствительности к нейтронам, минимальный средний заряд ядра для обеспечения низкой чувствительности к гамма-квантам, максимальный световыход от альфа-частицы и тритона, максимальная прозрачность на длине волны сцинтилляции и минимальная продолжительность сцинтилляционной вспышки.

Лидером в данной области является стекло GS20 производства компании Scintacog (Великобритания) [5]. В данной работе представлена инновационная технология изготовления стекла, аналогичного GS20, без использования высокотехнологичного оборудования и доступная даже для небольших лабораторий. Измерения характеристик проведены с использованием современных компактных кремниевых фотоумножителей (SiPM) и быстродействующей электроники обработки и оцифровки сигнала.

1. МЕТОДИКА ИЗГОТОВЛЕНИЯ СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО СТЕКЛА

Для изготовления сцинтилляционного стекла использованы следующие прекурсоры: карбонат лития с естественным содержанием изотопов (7,5 % ^6Li), мелкодисперсный диоксид кремния, оксиды алюминия и магния, трифторид церия и элементный кремний. Все реактивы имеют

Параметр	Прекурсор				
	SiO ₂	Li ₂ CO ₃	Al ₂ O ₃	MgO	CeF ₃
Количество, мг	5700	4220	1800	350	800

класс чистоты х.ч. (содержание основного вещества > 99,9%). Пример весовых количеств прекурсоров приведен в таблице. Такое соотношение прекурсоров обеспечивает примерный атомный состав стекла $11\text{Si} + 4\text{Al} + \text{Mg} + 0,47\text{Ce} + 13\text{Li} + 36\text{O} + 1\text{F}$ (7,7 масс. % Li). Такое стекло далее будет упоминаться как K734 по внутреннему номеру рецептуры. Реактивы тщательно перетираются в керамической ступке или шаровой мельнице для формирования однородной шихты и загружаются в тигель для сплавления. Особенностью и новизной в данной методике является использование СВЧ-излучения частотой 2,45 ГГц для разогрева тигля. Для обеспечения эффективного поглощения СВЧ-излучения печи, с одной стороны, и сохранения чистоты расплава, с другой, разработан тигель специальной конструкции.

Тигель имеет внешний диаметр 50 мм, высоту 50 мм и изготовлен из двух отдельных цилиндрических контейнеров с промежуточным слоем из порошка карбида кремния, являющегося эффективным поглотителем СВЧ-излучения. Контейнеры изготовлены горячим прессованием из порошка нитрида бора и доступны на рынке химического оборудования. Нитрид бора выдерживает температуры до 1500 °С без разложения и нерастворим в материалах шихты, что обеспечивает неизменный состав и чистоту в процессе плавки стекла. Для обеспечения эффективной теплоизоляции тигля и защиты стенок камеры печи тигель помещен в блок с крышкой размером 15 × 15 × 15 см, изготовленный из волоконной керамики с рабочей температурой 1500 °С (оксид алюминия — циркония), также доступной в виде коммерческого продукта.

Плавка стекла производилась в СВЧ-печи с максимальной мощностью магнетрона 800 Вт. Для периодического контроля температуры использовался пирометр НР-1500 с диапазоном температур 0–1500 °С. Процесс выплавки длился 100 мин, в середине его в расплав вводилось 0,5 мг мелкодисперсного элементного кремния. Добавление кремния позволяет создать восстановительную среду в расплаве, что приводит к сдвигу баланса содержания ионов $\text{Ce}^{4+}/\text{Ce}^{3+}$ в сторону трехвалентного церия, и существенно уменьшает поглощение стеклом сцинтилляционного света на характерной длине волны ~ 395 нм.

По окончании выплавки расплав выливался в теплоизолированный прямоугольный контейнер из нитрида бора, предварительно прогретый до 200 °С. Дальнейшее охлаждение до комнатной температуры происходит за счет естественного теплоотвода в течение 4–5 ч.

Для изготовления образцов стекла капля разрезалась алмазным диском на прямоугольные пластинки, которые затем полировались до оптической чистоты алмазными пастами и пастой из диоксида церия.

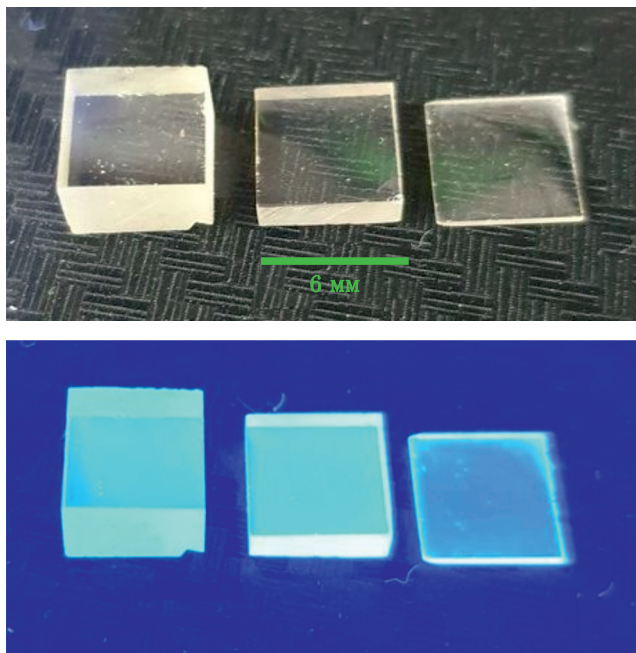


Рис. 1. Образцы изготовленного сцинтилляционного стекла при естественном освещении (сверху) и в освещении УФ-лампой с длиной волны 375 нм (снизу)

Массовое содержание изотопа ^6Li в образцах было измерено методом масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой (ИСП-МС) на установке Центра коллективного пользования ИКТ МФТИ и составило $(7,3 \pm 0,7) \%$. Некоторые изготовленные образцы представлены на рис. 1 при естественном освещении и при освещении УФ-излучением с длиной волны 375 нм.

2. ИЗМЕРЕНИЕ ХАРАКТЕРИСТИК СЦИНТИЛЛЯЦИИ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ИСТОЧНИКАМИ ^{241}Am И ^{137}Cs

Для прямых измерений световыхода образцов стекла при возбуждении альфа-частицами и комптоновскими электронами в качестве фотодетектора использовался вакуумный фотоэлектронный умножитель (ФЭУ) Hamamatsu R1355 со штатным делителем при напряжении питания 1900 В. ФЭУ был предварительно откалиброван в секторе методических исследований НЭОФЭЧ ЛЯП ОИЯИ и показал на данном напряжении чувствительность $(0,63 \pm 0,03)$ пКл/ф.э. Средняя квантовая эффективность фотокатода $(25,7 \pm 0,1) \%$ была вычислена с использованием паспортной спектральной чувствительности ФЭУ и спектра фотолюминес-

ценции сцинтилляционного стекла. Последний был измерен спектрометром OceanOptics USB4000 при возбуждении светодиодной УФ-лампой с длиной волны 375 нм.

Источник альфа-частиц представлял собой подложку с нанесенным слоем изотопа ^{241}Am в родиевой матрице со средней энергией альфа-частиц 4,5 МэВ и активностью ~ 10 Бк. Образец сцинтилляционного стекла K734 был помещен на фотокатод ФЭУ с использованием силиконового оптического компаунда с коэффициентом преломления $1,4040 \pm 0,0005$, а радиоактивный источник помещен на поверхность образца ($6 \times 6 \times 0,95$ мм) с минимальным зазором ($< 0,1$ мм). Коэффициент преломления сцинтилляционного стекла, для сравнения, равен $1,5575 \pm 0,0005$. Отражением на поверхности оптического контакта, таким образом, можно пренебречь. Вкладом света, отраженного от источника, также можно пренебречь, так как последний имел темную поверхность с весьма низким коэффициентом отражения в видимом диапазоне. Спектр импульсов с ФЭУ регистрировался модулем АЦП на основе микросхемы DRS4 (Radec, PSI) [6] с частотой дискретизации 1 ГГц и входной полосой пропускания 900 МГц.

Регистрация импульсов запускалась по порогу и окном в 1024 отсчета (1024 нс). Полученный в результате измерений зарядовый спектр 3177 импульсов представлен на рис. 2.

После коррекции на телесный угол светосбора полный световыход образца стекла в 4π составил (700 ± 35) фотонов/МэВ с систематической погрешностью, в которой доминирует погрешность калибровки чувствительности ФЭУ.

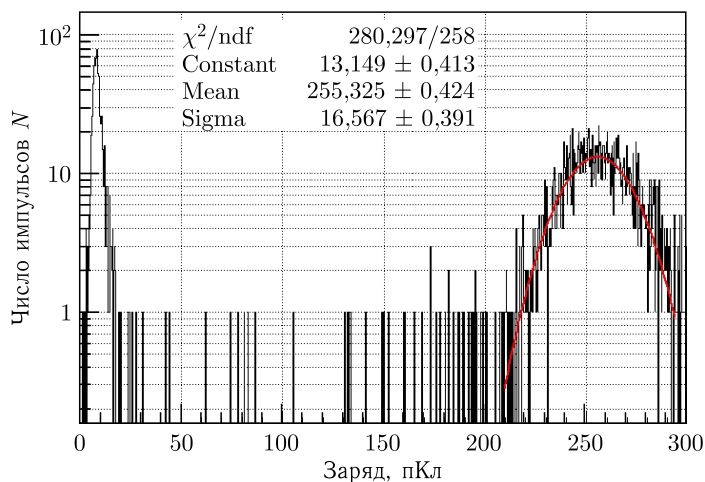


Рис. 2. Зарядовый спектр импульсов сцинтилляции при возбуждении источником альфа-частиц ^{241}Am

На рис. 3 показана усредненная форма импульса сцинтилляции при возбуждении от альфа-источника и параметры фитирования суммой трех экспоненциальных функций. Вклад быстрой компоненты (11,4 нс) составляет 21,8 % от полного интеграла, средняя и медленная (50,2, 258 нс) составляют 44,6 и 33,6 % соответственно. Для сравнения формы импульса сцинтилляции от альфа-частиц и электронов использовался источник

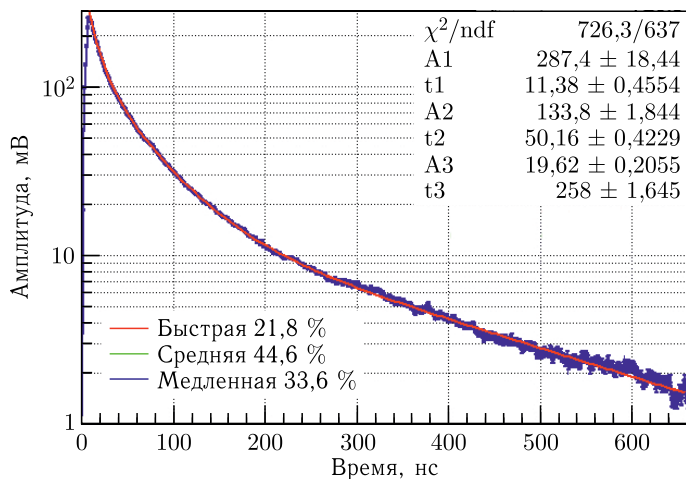


Рис. 3. Временные характеристики импульса сцинтилляции стекла при возбуждении альфа-частицами источника ^{241}Am

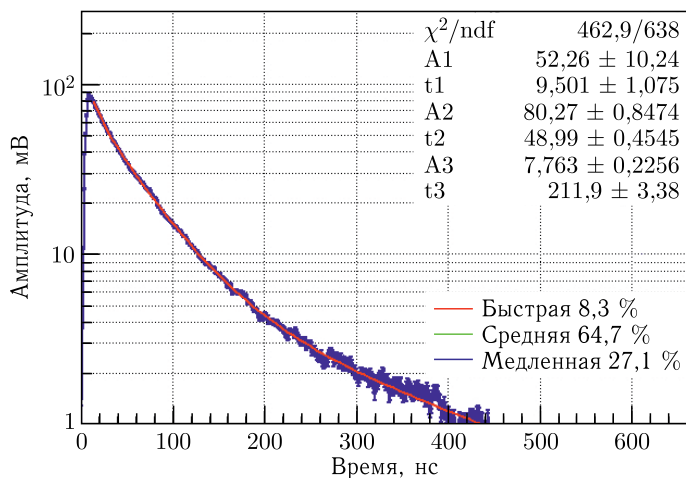


Рис. 4. Временные характеристики импульса сцинтилляции при возбуждении комптоновскими электронами от гамма-источника ^{137}Cs

гамма-фотонов на основе изотопа ^{137}Cs с активностью ~ 1 кБк. Результат представлен на рис. 4. Стоит отметить заметно меньший вклад быстрой и медленной компонент (8,3 и 27,1 %) в сравнении с импульсом от альфа-частицы. Эта разница может быть использована для дополнительной дискриминации сигналов от альфа-частиц, произведенных нейтронами, по форме импульса.

3. КАЛИБРОВКА ФОТОДЕТЕКТОРА (SiPM) НА ОПОРНОМ ИСТОЧНИКЕ

Для измерений характеристик стекла на нейтронном пучке в качестве фотодетектора был выбран кремниевый фотоумножитель (SiPM) Hamamatsu S13360-6050VE с активной площадью 6×6 мм и полным количеством микропикселей 14 336. Фотоумножитель был интегрирован в компактный ($15 \times 15 \times 30$ мм) модуль, содержащий прецизионный источник напряжения смещения и зарядово-чувствительный усилитель-формирователь с выходным импульсом, имеющим длительность 340 нс на полувывоте. Спектр амплитуд импульсов анализировался с помощью специализированного спектрометра на базе интегрального АЦП AD9226 (65 МГц, 12 бит) под управлением ПЛИС GW1NR-9 производства Gowin Semiconductors (Китай). АЦП непрерывно тактировался с частотой 50 МГц, триггер вырабатывается цифровым дискриминатором, длительность регистрации импульса составляет 640 нс (32 отсчета, 2 до триггера, 30 после). Для каждого импульса регистрируется пиковая амплитуда и интеграл. Образец сцинтилляционного стекла ($6 \times 6 \times 0,95$ мм) стыкуется с модулем при помощи силиконового оптического компаунда с коэффициентом преломления $1,4040 \pm 0,0005$.

Выходной импульса с модуля SiPM имеет ширину на полувывоте около 300 нс.

Кремниевые фотоумножители имеют значительную зависимость усиления от температуры. Для измерения температуры фотодетектора модуль оборудован цифровым датчиком температуры на основе ИС TMP112, обеспечивающей измерение с точностью до $0,06^\circ\text{C}$ и периодом измерений 10 Гц. Зависимость амплитуды выходного сигнала модуля от температуры была измерена при помощи высокостабильного светодиодного источника световых импульсов и использована в дальнейшем для пересчета измеренных спектров к температуре 20°C .

Для калибровки абсолютной чувствительности комплекса SiPM-спектрометр были проведены измерения с использованием опорного источника световых импульсов. Опорный источник представляет собой образец сцинтилляционного стекла, изготовленный с примесью естественной смеси изотопов тория и его дочерних продуктов распада. В таком источнике радиоактивная примесь присутствует в виде гомогенного раствора, обеспечивая, таким образом, полное преобразование энергии альфа-распада тория в ионизационный сигнал. Амплитудный спектр

световых импульсов опорного источника был измерен в секторе методических исследований НЭОФЭЧ ЛЯП ОИЯИ на установке, описанной в разд. 2, с калиброванным фотодетектором (ФЭУ) Hamamatsu R1355. Спектр представлен на рис. 5, а. Для калибровки использовался узкий пик в районе 70 пКл. Аналогичный спектр был получен на комплексе SiPM-спектрометр (рис. 5, б).

Сравнение результатов двух измерений с учетом средней квантовой эффективности фотокатода ФЭУ по спектру излучения стекла (25,7 %)

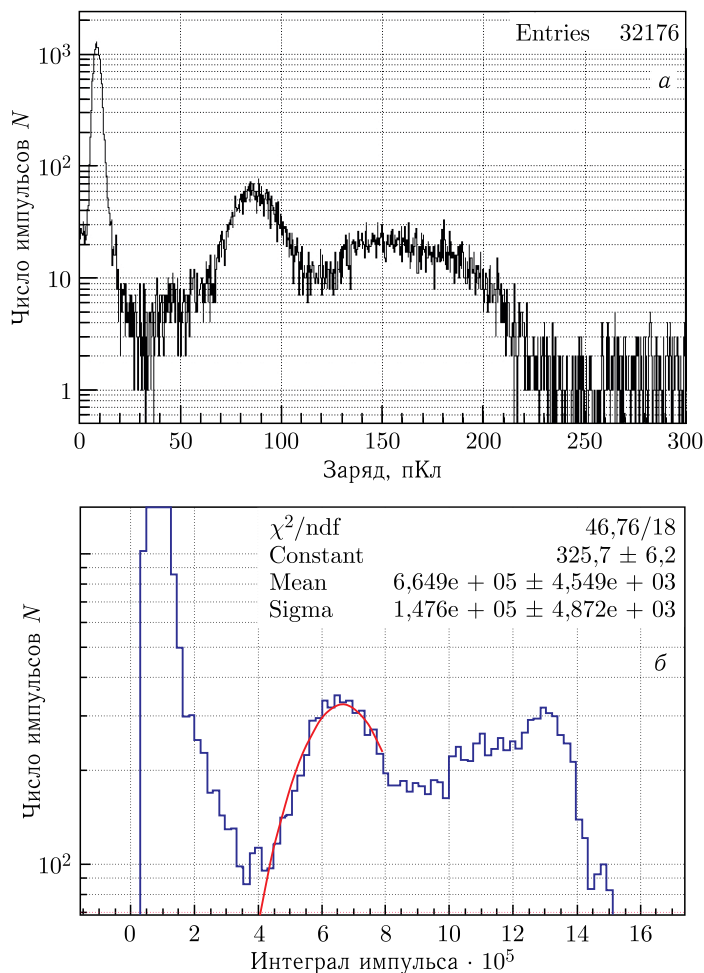


Рис. 5. а) Спектр импульсов опорного источника, измеренный калиброванным ФЭУ; б) тот же спектр, измеренный модулем SiPM

позволило получить калибровку чувствительности комплекса на основе SiPM, которая составила (1267 ± 63) отчетов АЦП на фотон, приведенных к температуре 20°C .

4. ИЗМЕРЕНИЯ НА НЕЙТРОННОМ ПУЧКЕ ЭИС «НЕЙТРОН» (ИФВЭ)

Для измерения световыхода стекла и оценки эффективности регистрации при захвате теплового нейтрона использовался пучок нейтронов широкого энергетического спектра, получаемый в канале экспериментально-измерительного стенда (ЭИС) «Нейтрон» ускорительно-го комплекса У-70 Института физики высоких энергий в Протвино (НИЦ «Курчатовский институт» – ИФВЭ). Пучок нейтронов рождается при бомбардировке вольфрамовой мишени пучком протонов с энергией 50–70 ГэВ из канала быстрого вывода ускорителя У-70. Длительность сгустка протонов составляет величину порядка 15 нс. За цикл ускорителя на мишень ЭИС сбрасывалось от 1 до 3 сгустков с интервалом между сгустками от 0,7 до 3 мкс. Импульсный пучок нейтронов коллимируется в направлении перпендикулярно оси протонного пучка и замедляется полиэтиленовым блоком.

Образец стекла K734, оптически соединенный с модулем SiPM, как описано в разд. 3, был помещен на расстоянии 16 м от оси протонного пучка, что обеспечивало, таким образом, базу, позволяющую разделять нейтроны по энергиям методом измерения времени пролета. Отсчет времени опирается на сигнал с выводящего магнита ускорителя, имеющего жесткую временную привязку к моменту прибытия протонного сгустка на мишень. Времена прилета нейтронов в диапазоне энергий 0,01–1 эВ находятся в диапазоне от 1–10 мс. В точке расположения детектора интегральная интенсивность нейтронного пучка не превышала 300 см^{-2} за цикл ускорителя (8,8 с).

Для исключения насыщения фотодетектора образец стекла K734 был сопряжен с SiPM посредством оптического аттенюатора в виде пленки с коэффициентом ослабления $2,8 \pm 0,2$. Верхняя поверхность образца была покрыта черным светопоглощающим материалом. На рис. 6 представлены распределения сигналов от сброса протонов на мишень в образце сцинтилляционного стекла. Распределение на рис. 6, а показывает амплитудный спектр пиков импульсов сцинтилляции. На рис. 6, б показано распределение задержки между сбросом протонов на мишень и сигналом в детекторе (время пролета). На левом и среднем распределениях зеленым выделена область, предположительно соответствующая сигналу от нейтронов, синим — сигналы от гамма-квантов, красным — от высокоинтенсивной гамма-вспышки в момент взаимодействия протонов с мишенью. Рис. 6, в — распределение числа фотонов на фотодетекторе, сгруппированное по временам пролета: красный — мгновенные сигналы от гамма-вспышки взаимодействия протонов с мишенью, синий —

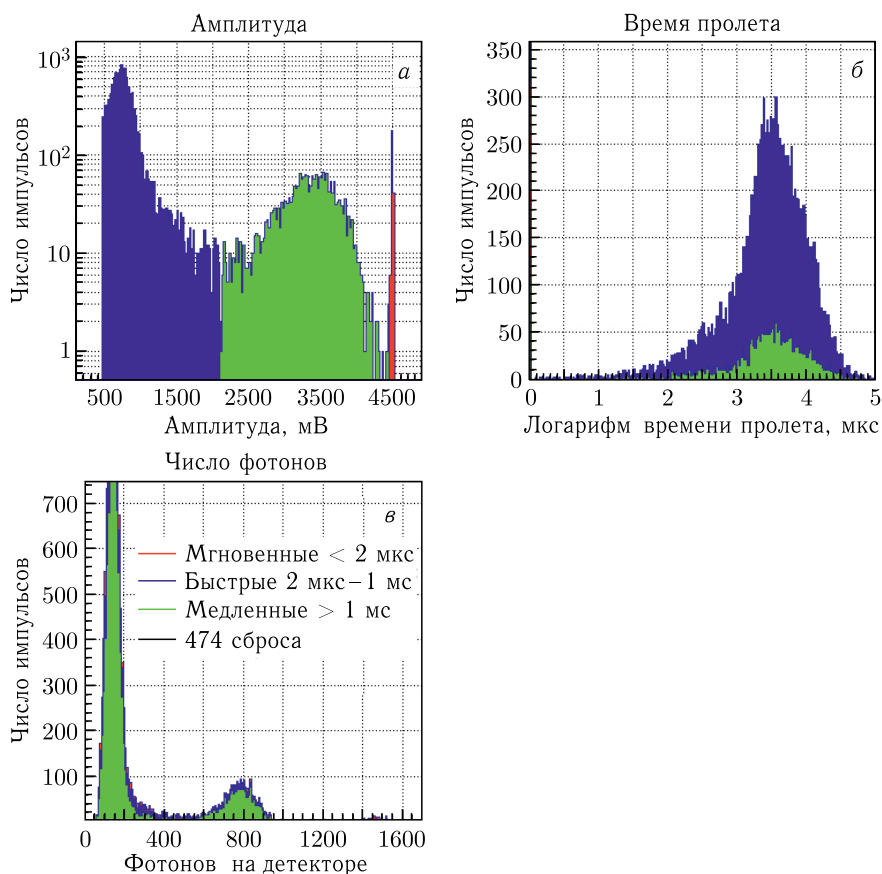


Рис. 6 (цветной в электронной версии). Сигналы от импульсного нейтронного пучка в образце сцинтилляционного стекла. а) Распределение амплитуд пиков световых импульсов; б) распределение задержек импульсов относительно момента сброса протонов в мишень (времен пролета); в) распределение числа фотонов на фотоумножителе, сгруппированное по диапазонам задержек (времен пролета)

быстрые сигналы в диапазоне до 1 мс (быстрые нейтроны), зеленый — медленные сигналы с временем пролета более 1 мс (тепловые нейтроны). Для дальнейшего анализа были отобраны импульсы, находящиеся в зеленых зонах распределений: амплитуда в диапазоне 2000–4400 мВ, время пролета 1–10 мс. Для проверки ассоциации зон, отмеченных зеленым с тепловыми нейтронами, аналогичное измерение проведено с детектором, полностью помещенным в кадмиевый экран толщиной 1 мм (рис. 7). Подавление количества отобранных сигналов, предположи-

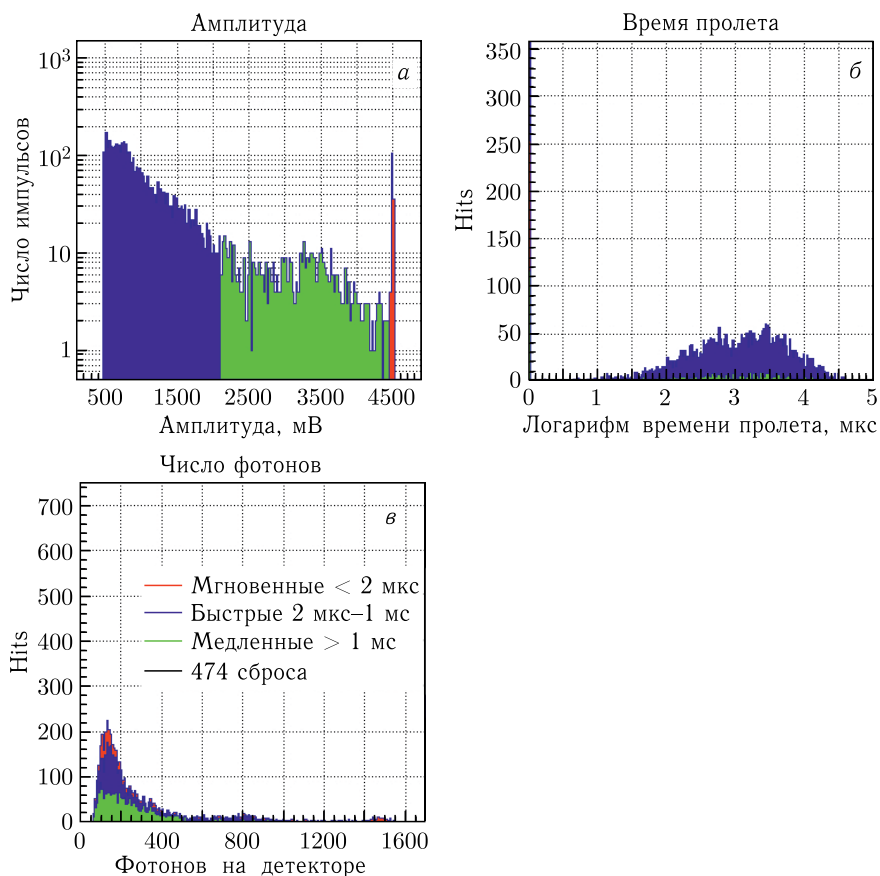


Рис. 7 (цветной в электронной версии). Сигналы от импульсного нейтронного пучка в образце сцинтилляционного стекла, экранированного слоем кадмия толщиной 1 мм. Количество импульсов в зеленых зонах, предположительно соответствующих нейтронам, подавлено благодаря высокому сечению поглощения тепловых нейтронов кадмием

тельно принадлежащих тепловым нейтронам, на порядок указывает на правильности критериев отбора.

Для оценки световыхода был выбран образец K734 размером немного меньше фотодетектора ($5 \times 5 \times 1,05$ мм) для обеспечения наиболее полного светосбора. Отбор сигналов производился по времени пролета в диапазоне 1–10 мс и амплитуде пиков 2000–4200 мВ. Среднее значение полученного световыхода составило $(3913 \pm 280(\text{сист.}) \pm 11(\text{стат.}))$ фотонов/нейтрон. Погрешность этой величины определяется доминирующим вкладом систематической погрешности измерения коэффициента ослаб-

ления attenuатора (7,1 %). Разрешение нейтронного пика на полувысоте составило 18 % (рис. 8, а). Для оценки эффективности регистрации нейтронов был изготовлен идентичный по размерам образец из стекла GS20. Для сравнения на рис. 8, б приведен аналогичный спектр, полученный

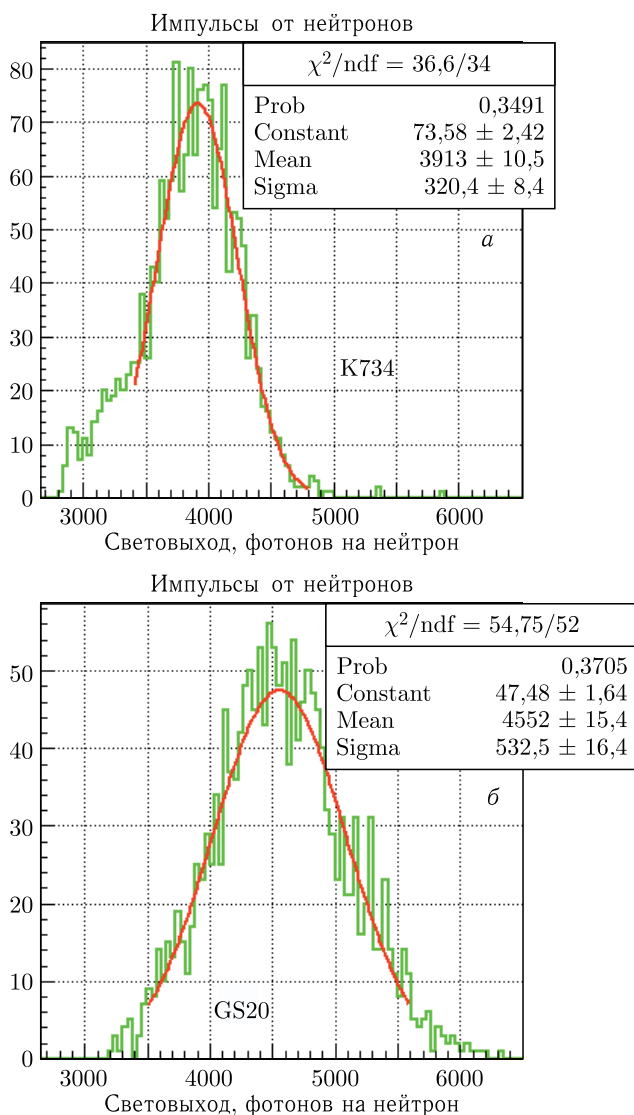


Рис. 8. Амплитудные спектры отобранных событий, соответствующих сигналам от нейтронов: а) образец стекла K734; б) GS20

для этого образца. Среднее измеренное отношение числа зарегистрированных нейтронов при равном количестве протонов на мишени для стекла K734 и GS20 составило, в пересчете на одинаковую толщину, $0,070 \pm 0,014$. Расчетное отношение, определяемое содержанием изотопа ${}^6\text{Li}$ (GS20 — 95 %, K734 — 7,3 %) составляет 0,077, что находится в хорошем соответствии с измеренным. Стекло GS20 толщиной 1 мм имеет по спецификации эффективность 75 % для энергий нейтронов $< 0,025$ эВ. Таким образом, эффективность регистрации тепловых нейтронов для стекла K734 толщиной 1,05 мм составляет $(5,25 \pm 1,06)$ %.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработана масштабируемая лабораторная методика изготовления литиевого сцинтилляционного стекла на основе натуральной смеси изотопов лития (7,5 % ${}^6\text{Li}$) со световыходом (3900 ± 280) фотонов/нейтрон и разрешением нейтронного пика 18 % на полувысоте.

Полученное отношение числа зарегистрированных нейтронов для K734 и GS20 находится в хорошем согласии с отношением содержания изотопа ${}^6\text{Li}$ в этих образцах. Этот результат при использовании прекурсора, обогащенного по изотопу ${}^6\text{Li}$ и изготовленного по описанной рецептуре и методике, позволяет ожидать от полученного стекла эффективность для тепловых нейтронов, равную эффективности стекла GS20.

Авторы выражают благодарность Ю.В. Харлову (МФТИ) за оказанную техническую помощь и плодотворные обсуждения результатов. Авторы также благодарны коллективу ускорительного комплекса У-70 за предоставленный пучок и обеспечение проведения измерений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Шабалин Е. П. // УФН. 1983. Т. 139. С. 561–585.
2. Федоров В. В., Воронин В. В. // ЯФ. 2014. Т. 77, вып. 6. С. 734–743.
3. Серебров А. П., Коломенский Э. А., Пирожков А. Н., Краснощекова И. А., Васильев А. В., Полюшкин А. О., Ласаков М. С., Мурашкин А. Н., Соловей В. А., Фомин А. К., Шока И. В., Жеребцов О. М., Александров Е. Б., Дмитриев С. П., Доватор Н. А., Гельтенборт П., Иванов С. Н., Циммер О. // Кристаллография. 2016. Т. 61, № 1. С. 142–151.
4. Abel C. et al. (nEDM Collab.) // Phys. Rev. Lett. 2020. V. 124. P. 081803.
5. <https://scintacor.com/products/6-lithium-glass/>
6. <https://www.radec.ch/>