

ИНЖЕНЕРНОЕ ПРОЕКТИРОВАНИЕ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКОЙ АППАРАТУРЫ

УДК 539.1.08; 539.16

ВОЗМОЖНОСТИ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ КРИСТАЛЛОВ CdZnTe И CeBr₃ ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ ФОТОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ШИРОКОМ ДИАПАЗОНЕ ЭНЕРГИЙ

© 2021 г. А. В. Шахов^а, *, С. М. Лукьянов^а, Т. Исатаев^а,
К. Мендибаев^а, Ю. Э. Пенионжкевич^а, С. С. Стукалов^а, Ю. Г. Соболев^а

^аОбъединенный институт ядерных исследований, Дубна, 141980 Россия

*E-mail: vt34lu00@inbox.ru

Поступила в редакцию 30.10.2020 г.

После доработки 30.10.2020 г.

Принята к публикации 30.10.2020 г.

Были опробованы новые полупроводниковые детекторы на основе кристаллов CdZnTe и CeBr₃. Собрана спектрометрическая установка для проверочных измерений, состоящая из (CdZnTe, CeBr₃, Si — для α - γ измерений) детекторов. Исследованы и определены основные характеристики таких детекторов, такие как энергетическое разрешение FWHM/E_γ (кэВ), эффективность регистрации $\epsilon(\%)$. Проверена возможность регистрации в широком диапазоне энергии. Проведены измерения γ - γ и α - γ совпадений с использованием данных детекторов. Результаты подобных измерений показывают, что эти детекторы могут использоваться для исследования механизмов ядерных реакций и исследования свойств продуктов реакций.

Ключевые слова: детекторы, спектрометрическая установка, характеристики детекторов, γ - γ и α - γ совпадения

DOI: 10.56304/S2079562920060500

ВВЕДЕНИЕ

В последнее время технология изготовления детекторов и материалов используемых для регистрации ядерных излучений получила широкое развитие. В настоящее время выращиваются кристаллы различных форм, и размеров с самым разнообразным составом. Это позволяет создавать на их основе уникальные детекторы с различными спектрометрическими характеристиками для любого физического эксперимента. Такие детекторы имеют высокую эффективность регистрации и относительно хорошее энергетическое разрешение даже при использовании при комнатных температурах.

Целью данной работы является исследование характеристик новых полупроводниковых детекторов на основе (CdZnTe) и сцинтилляторов (CeBr₃), для регистрации рентгеновского и гамма-излучений в широком диапазоне энергий, в частности при энергии до нескольких десятков МэВ и применение этих детекторов для экспериментов в корреляционных экспериментах с использованием методов гамма-гамма и альфа-гамма совпадений. Целью настоящей работы было исследование возможностей детекторов для экспериментальных

установок экспериментах по исследованию ядерных реакций.

ДЕТЕКТОР НА ОСНОВЕ КРИСТАЛЛА КАДМИЙ-ЦИНК-ТЕЛЛУР (CDZnTE)

В течение последних 40 лет для измерения ядерных излучений использовались полупроводниковые детекторы на базе кремния и германия (основным недостатком таких детекторов являются низкотемпературный режим работы). В результате прогресса при изготовлении полупроводников из сложных материалов, все больше возникает интерес, связанный с возможностью использования полупроводниковых соединений на основе кристаллов CdZnTe в качестве детекторов ионизирующего излучения (рис. 1) [1, 2].

Блок регистрации включает в себя ПСД (полусферический детектор) и плату ПУ (предусилитель) предназначенный для предварительного линейного усиления сигналов детектора. ПСД располагается вблизи передней панели корпуса.

Детектор на основе кристалла CdZnTe имеет относительно небольшой объем и не требует охлажде-

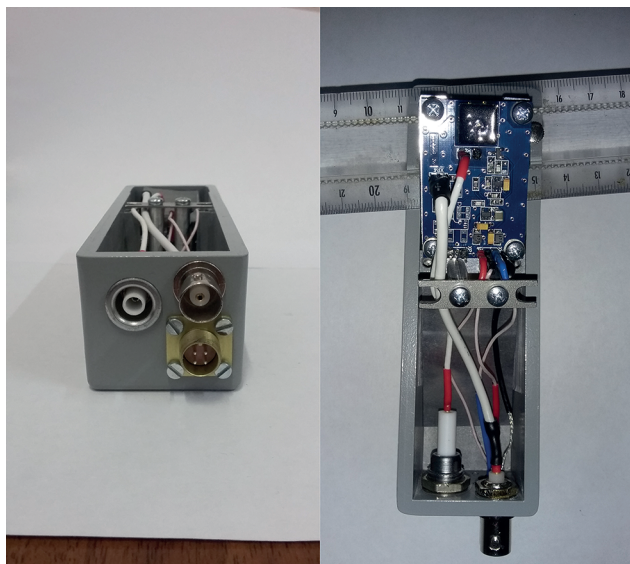


Рис. 1. Блок регистрации на основе кристалла CdZnTe.

ния жидким азотом, как указывалось выше. Кроме этого, детектор может работать в магнитных полях [3].

Высокая плотность материала и достаточно высокий средний атомный номер ($Z \sim 44$), обеспечивают высокую эффективность регистрации гамма-квантов. Данный кристалл показал высокую стабильность при продолжительных измерениях в рабочих диапазонах температур — в интервале от -5 до $+40^\circ\text{C}$. Спектрометры γ -излучения на основе CdZnTe обладают энергетическим разрешением порядка нескольких процентов. Эти свойства обусловлены, наличием широкой запрещенной зоны ($1.5\text{--}2.2$ эВ), обеспечивающей высокое объемное

сопротивление и низкую концентрацию носителей заряда в объеме детектора при комнатной температуре. Детектор на основе CdZnTe, подходит для измерений рентгеновского излучения от 30 кэВ. Энергетический диапазон регистрируемого гамма-излучения лежит в интервале от 50 до 2000 кэВ.

ДЕТЕКТОР НА ОСНОВЕ СЦИНТИЛЛЯТОРА CeBr_3

Выбор сцинтилляторов в первую очередь обуславливается эффективностью регистрации. Вероятность регистрации гамма-излучения пропорциональна эффективному атомному номеру $Z_{\text{эфф}}$ и плотности вещества.

По этой причине, было решено использовать сцинтиллятор CeBr_3 (рис. 2). Кристаллы CeBr_3 имеют высокую гигроскопичность, поэтому их необходимо хранить и эксплуатировать в герметичном контейнере. В данном детекторе, и сцинтиллятор и ФЭУ помещены в один контейнер, при этом ФЭУ находится в оптическом контакте непосредственно со сцинтиллятором. Главным преимуществом этого детектора, является обладание значительно более низкого внутреннего фона чем, его изученный аналог LaBr_3 . CeBr_3 , как бромид лантана, имеет практически такие же $Z_{\text{эфф}}$ и высокую плотность, подходит для измерений при комнатной температуре [4].

Однако, в ходе выполнения работы было установлено, что данный тип детектора имеет определенные недостатки, а именно, основным из которых является — наличие собственной радиоактивности.

Проведен анализ внутренней активности радионуклидов, испускающих гамма-излучение, в кристалле CeBr_3 размером $51 \times 51 \times 51$ мм.



Рис. 2. Сцинтилляционный детектор CeBr_3 .

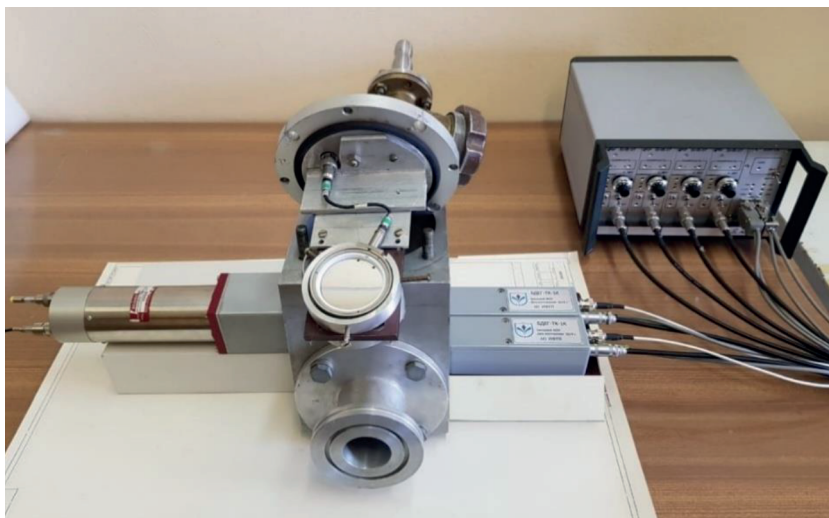


Рис. 3. Внешний вид измерительной установки.

Сами элементы Се и Вг не содержат естественного радиоактивного изотопа, а внутренняя активность CeBr_3 в основном обусловлена радиоактивными примесями, присутствующими в сырье или в технологическом процессе выращивания самого кристалла. CeBr_3 показывает в области энергий 1.2–2.2 МэВ собственную активность. Установлено, что это обусловлено примесями от альфа-распада. Подобное альфа-загрязнение всегда наблюдается в кристаллах LaBr_3 и приписывается ^{227}Ac и дочерним элементам. Присутствие ^{227}Ac может быть обусловлено тем фактом, что Ac, La и Се являются химически гомологичными элементами, и их чрезвычайно трудно отделить друг от друга. Вероятнее ^{227}Ac -загрязнение может даже возникать из-за присутствия в руде U и, в частности, ^{227}Ac -родительского ядра ^{235}U , недостаточно очищенного при обработке сырья. Измеренный фоновый вклад от ^{227}Ac — 0.00125 отчетов в секунду на кубический сантиметр [4, 5].

Несмотря на то, что CeBr_3 имеет собственное свечение, данный тип детекторов имеет явное преимущество перед другими сцинтилляторами высокого разрешения в которых присутствует внутренняя активность.

УСТАНОВКА ДЛЯ ТЕСТОВЫХ И КОРРЕЛЯЦИОННЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

С использованием указанных детекторов на основе $\text{Ge}(\text{Li})$, CdZnTe и CeBr_3 были проведены инклюзивные измерения фотонных спектров от стандартных источников ОСГИ [6], а также были проведены корреляционные α - γ измерения для источников $^{233}\text{U} + ^{238}, ^{239}\text{Pu}$.

Для проведения измерений была собрана спектрометрическая измерительная установка, внешний вид которой представлен на рис. 3.

Для накопления экспериментальной информации при измерениях использовался система дигитайзер-типа “Faster”, разработанная в LPC Saen (Франция) [7].

СРАВНЕНИЕ ХАРАКТЕРИСТИК ДЕТЕКТОРОВ CeBr_3 И CDZnTe

Кристаллы CeBr_3 и CdZnTe являются относительно новыми материалами, поэтому сравнение характеристик были проведены в сравнении с детектором из особо чистого германия (ОЧГ).

Основными исследуемыми характеристиками детектора являлись — эффективность и энергети-

Таблица 1. Основные параметры детекторов

Детектор	ρ , г/см ³	$\langle Z \rangle$	$E_{\text{ион}}$, эВ	Световыход, фотон/кэВ	Требуется охлаждения
$\text{Ge}(\text{Li})$	5.33	32	2.95	—	Да
CdZnTe	5.81	44	4.6	—	Нет
CeBr_3	5.1	46	—	~60	Нет

ρ , г/см³ — плотность вещества; $\langle Z \rangle$ — средний атомный номер; $E_{\text{ион}}$ — энергия на ионизацию.

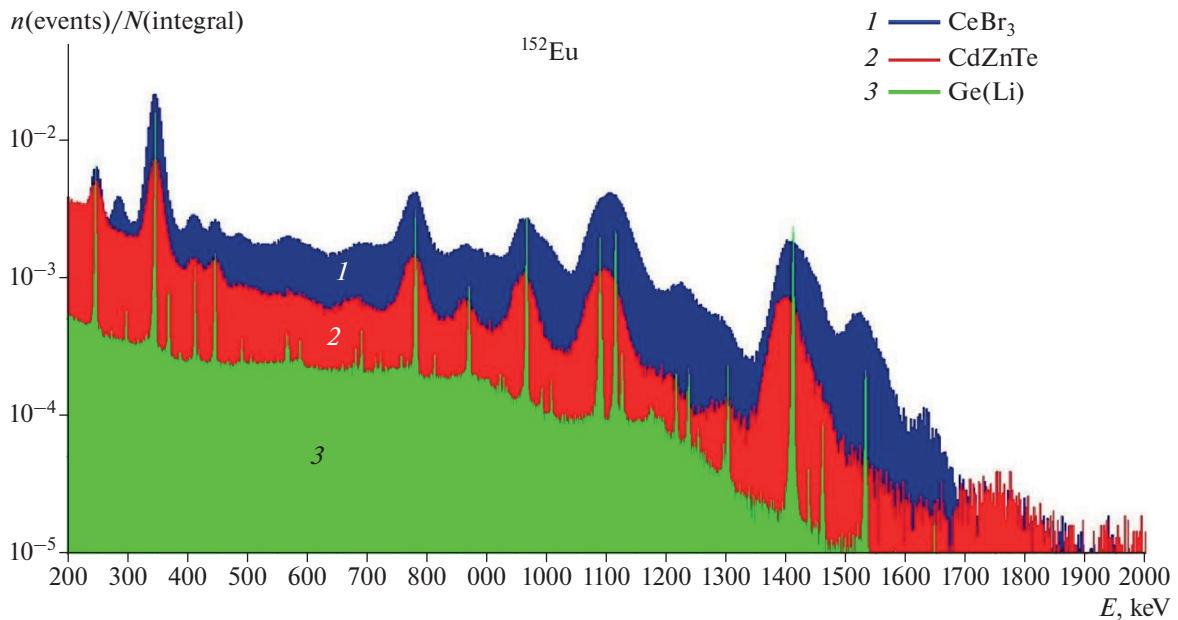


Рис. 4. Спектры гамма излучения ^{152}Eu источника для детекторов, полученных в одинаковых условиях: 1 – CeBr_3 , 2 – CdZnTe , 3 – Ge(Li) .

ческое разрешение. Характерные параметры исследуемых детекторов представлены в табл. 1.

Для сравнения, на рис. 4 показаны спектры ^{152}Eu полученные с помощью исследуемых детекторов. Из рис. 4 видно, что детекторы на основе ОЧГ имеют разрешение около 2 кэВ, для CdZnTe разрешение составляет величину 15–30 кэВ и CeBr_3 18–45 кэВ. Результаты определения величины FWHM/E_γ для различных детекторов занесены в табл. 2.

На основе результатов измерений с калибровочным источником ^{137}Cs , расположенным на расстоянии 5 см от чувствительной поверхности детектора была определена абсолютная эффективность детекторов:

Таблица 2. Энергетическое разрешение

Energy, кэВ	$\text{FWHM}/E_\gamma, \%$		
	Ge(Li)	CeBr_3	CdZnTe
121.7 (^{152}Eu)	1.22	15.3	10.14
244.6 (^{152}Eu)	0.67	11.38	8.7
344.3 (^{152}Eu)	0.47	7.91	5.77
661.2 (^{137}Cs)	0.4	4.57	3.44
1173.2 (^{60}Co)	0.23	4.07	3.38
1332.5 (^{60}Co)	0.20	3.7	2.7

$$\varepsilon = \frac{S_\gamma}{A t_{\text{live}} I_\gamma k_\Omega}, \quad (1)$$

где S_γ – количество гамма-квантов, зарегистрированным детектором, I_γ – Вероятность излучения гамма кванта определенной энергии при распаде, A – количество распадов в единицу времени (активность источника), t_{live} – живое время работы детектора, k_Ω – вероятность гамма-квантов попасть на детектор. Результаты измерений приведены в табл. 3 [2].

Для проверки эффективности регистрации гамма-квантов большой энергии, использовался нейтронный источник. К альфа источнику ^{238}Pu (5.4 МэВ), была приставлена пластина ^9Be . В результате взаимодействия α -частицы с ядрами ^9Be , происходит ядерная реакция с образованием жестких гамма-квантов: $^{13}\text{C} \rightarrow n + \gamma$ (4.4 МэВ)

На рис. 5. представлены гамма спектры, измеренные PuBe источником с помощью детекторов CdZnTe , Ge(Li) и CeBr_3 .

Как видно из рис. 5, полупроводниковые детекторы CdZnTe и Ge(Li) не чувствительны к гамма-квантам больших энергий. В свою очередь CeBr_3 показывает достаточно высокую эффективность регистрации в диапазоне энергий до нескольких МэВ, несмотря на присутствие в спектрах линий, обусловленных собственным свечением.

КОРРЕЛЯЦИОННЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ (γ – γ СОВПАДЕНИЯ И α – γ СОВПАДЕНИЯ)

Гамма-спектрометрия представляет собой надежный метод идентификации продуктов ядерных реакций, а также определения их количественного и качественного состава инклюзивным методом. Идентификация различных, неизвестных радионуклидов имеет ряд сложностей. Например, гамма-спектры содержащие большой, разнообразный спектр продуктов деления, усложняющий идентификацию пиков и достаточно интенсивный вклад комптоновского рассеяния.

Для более надежного метода идентификации необходимо проведение корреляционных измерений (эксклюзивных). Для такой системы важен в первую очередь выбор детекторов (т.е. сцинтилляторы или полупроводники) с наибольшей эффективностью. Экспериментальная работа направлена на применение сцинтилляционного CeBr_3 и полупроводникового CdZnTe детекторов в корреляционных методах γ – γ совпадения и α – γ совпадения.

Система совпадений с несколькими детекторами позволяет более точно определять характеристики сложных спектров. Гамма-гамма совпадения имеют преимущество, так как практически исключают все фоновые пики, что является важным для детекторов с внутренней радиоактивностью [8].

Таблица 3. Эффективность детекторов, полученная с помощью источника ^{137}Cs .

	$V, \text{см}^3$	$H, \text{см}$	$\epsilon_g, \%$	$\epsilon, \%$
$\text{Ge}(\text{Li})$	98.125	5	5.3	3.12
CdZnTe	0.5	5	1.12	4.7
CeBr_3	132.651	5	6.57	24.62

H – расстояние от источника, до чувствительной поверхности детектора; ϵ_g – геометрическая эффективность (отношение количества гамма-квантов, попавших в детектор, к количеству гамма квантов, испущенных источником).

γ – γ СОВПАДЕНИЯ

Спектроскопия гамма-гамма совпадений, включает в себя систему из двух детекторов гамма-излучения, расположенных в определенной геометрии относительно друг друга и временной логикой для реализации многомерного спектра. В результате получается спектр совпадений. Сетка содержит в себе события, которым соответствуют две энергии одновременно зарегистрированные в каждом детекторе [8, 9].

Для системы γ – γ совпадений, один из наиболее важных параметров – окно временных совпадений. Это продолжительность времени, в течение которого любые события, которые происходят можно считать одновременными. Окно совпадений как правило, составляет от единицы наносекундо сотен микросекунд. Синхронизация

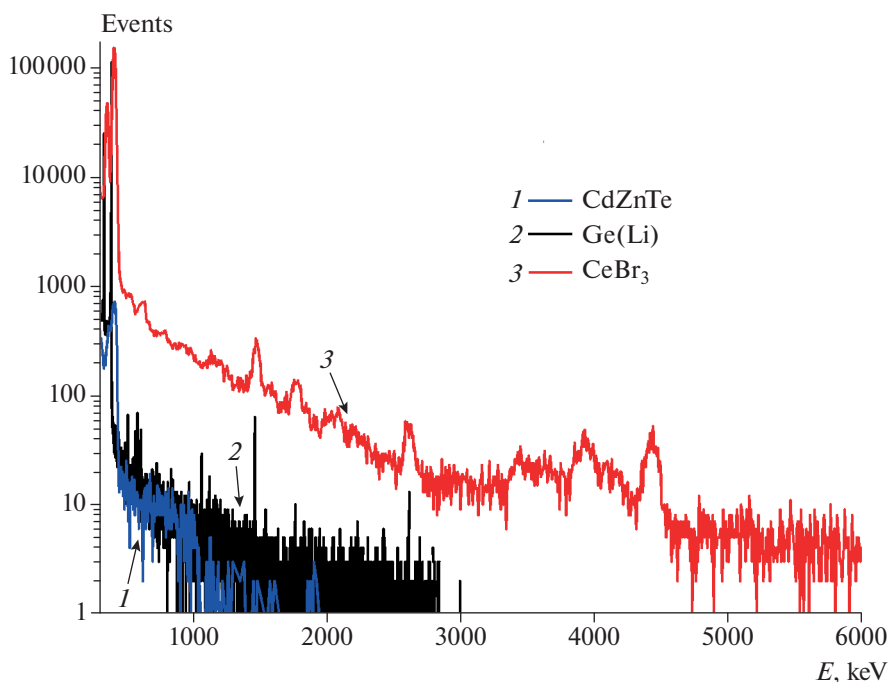


Рис. 5. Спектры нейтронного источника “Pu–Be” для детекторов CdZnTe , $\text{Ge}(\text{Li})$ и CeBr_3 .

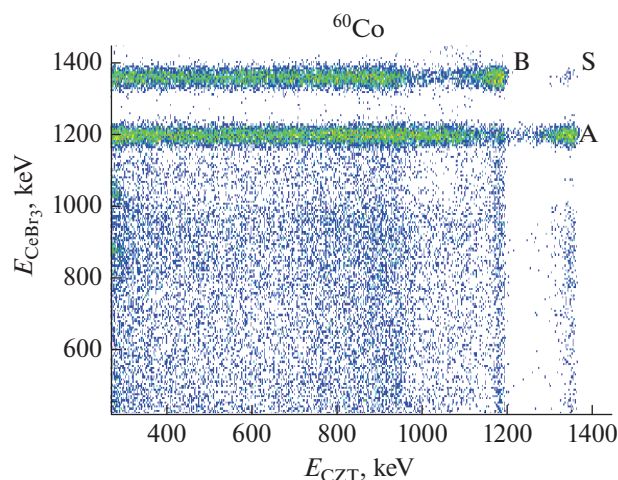


Рис. 6. Пики А и В соответствуют истинным совпадениям полной энергии. S) — случайное совпадение одинаковой энергии.

ция размера окна совпадений, так же сильно зависит от типа используемого детектора. Так же, следует включить во внимание возможность временного смещения между двумя детекторами, которые могут возникнуть в результате различных длин кабелей, размеров кристаллов или моделей электроники [10].

Для проведения эксперимента использовалась подготовленная установка, включающая в себя вакуумный объем, в котором размещается источник излучения, и установлены детекторы гамма-излучения. К полупроводниковому детектору был подключен высоковольтный источник питания и дополнительный предусилитель. Сигналы с детекторов, идут на систему сбора данных “Faster” которая так же является модулем совпадений.

Рассмотрим на нескольких примерах, что из себя представляют гамма-гамма совпадения на матрице. Измерения проводились на каскадном источнике ^{60}Co .

После β -распада ^{60}Co дочернее ядро ^{60}Ni , оказывается в возбужденном состоянии. При переходе в основное состояние, возбужденное ядро последовательно испускает два γ -кванта с вероятностью 98.8%.

На рис. 6. представлена двухмерная корреляционная диаграмма, измеренная в совпадении гамма лучей с источником ^{60}Co , зарегистрированных с помощью детекторов CeBr_3 и CdZnTe во временном окне 5 мкс. Приведенная диаграмма (рис. 7) соответствует известной схеме распада.

Одной характерной особенностью этого спектра, являются зоны А и В, расположенные в координатах энергии (1173.2, 1332.5) и (1332.5, 1173.2). Эти зоны соответствуют совпадениям между дву-

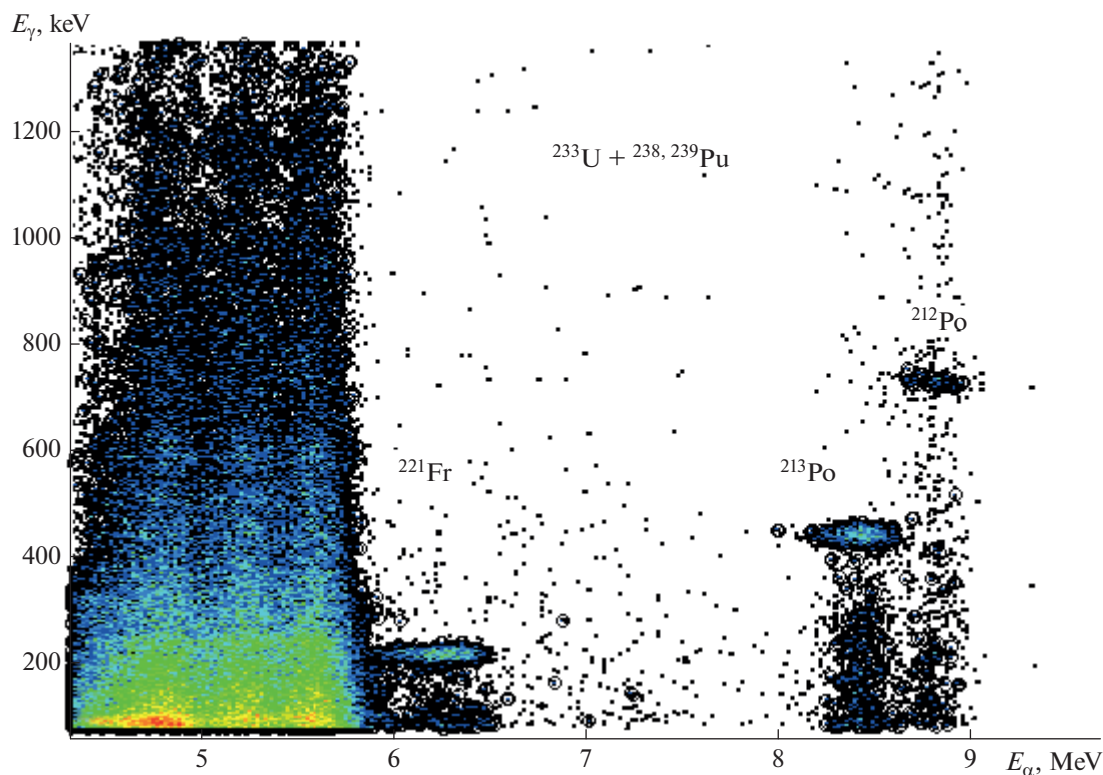


Рис. 7. Спектр альфа-гамма-совпадений от источника $^{233}\text{U} + ^{238,239}\text{Pu}$.

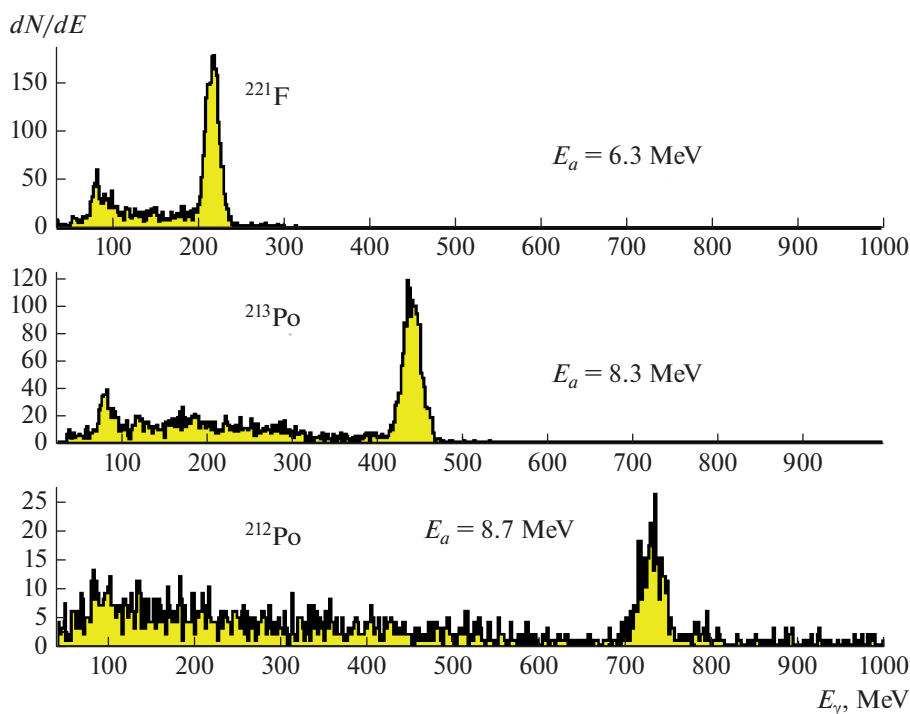


Рис. 8. Гамма спектры совпадений.

мя гамма-квантами, испускаемыми ^{60}Co в теми же энергиями (рис. 6).

Основная доля событий регистрировалась, когда первый гамма квант фиксированной энергии 1332.5 кэВ попадает в первый детектор, второй фотон 1173.2 кэВ, регистрировался во втором детекторе. По матрице действительно наблюдается каскадная структура распада.

α – γ СОВПАДЕНИЯ

Измерения альфа-гамма-совпадений важны для проверки схем распада и для изучения возможных угловых корреляций α -частиц с последующим излучением γ -квантов возбужденных состояний дочернего ядра.

Измерения образцов ядерного материала методом альфа-гамма спектрометрии, включают определение основного и второстепенных актиноидов, таких как U, Np, Am, Pu.

Измерение совпадений предназначено для уменьшения фоновой составляющей спектра. Временное совпадение используется для обнаружения α -частиц и γ -квантов в течении определенного временного интервала (временное окно – gate). α – γ совпадения представляют собой, регистрацию альфа излучения и последующего гамма-кванта, при переходе дочернего ядра из возбужденного состояния в основное [11].

Данный метод был проверен с помощью радиоактивного источника, содержащего в себе три раз-

личных изотопа (^{233}U и $^{238,239}\text{Pu}$), испытывающих альфа-распад.

Измеряемый радиоактивный источник был установлен внутри камеры с Si детектором. Расстояние от источника до детектора альфа-излучения было установлено на 10 мм. Между источником и детектора гамма-излучения присутствует стенка толщиной 5 мм. При такой конфигурации были получены три одновременных спектра в каждом измерении: спектр альфа-частиц, спектр гамма-излучения, и спектр альфа-гамма-совпадений с двумя параметрами.

Важной переменной, является время совпадения (τ). Оптимальное время τ должно быть достаточным, чтобы разрешить регистрацию всех истинных совпадений, и уменьшить число случайных совпадений. Чтобы выбрать это время совпадения, проводилось несколько тестовых измерений с источником ^{233}U , $^{238,239}\text{Pu}$.

При установленном временном окне совпадений 5 мкс, производилось измерение α - γ совпадений с источником (^{233}U , $^{238,239}\text{Pu}$). Спектр альфа-гамма-совпадений от источника $^{233}\text{U} + ^{238,239}\text{Pu}$ представлен на рис. 7.

На рис. 8 гамма-пики, полученные в результате совпадений с альфа-частицами дочерних ядер исследуемого образца. ^{221}Fr (6.3 МэВ) совпадает с энергией возбужденного уровня ^{217}At (218 кэВ) своего дочернего ядра, а также случайные совпадения:

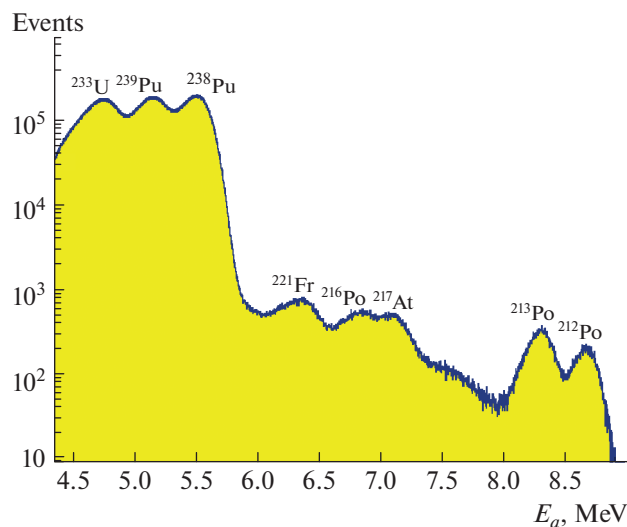


Рис. 9. Энергетические спектры альфа частиц, полученные с помощью стандартного $^{233}\text{U} + ^{238,239}\text{Pu}$ альфа источника с энергиями 4.824, 5.1 и 5.4 МэВ, соответственно. Видны также альфа-частицы дочерних ядер, распада ^{221}Fr , ^{216}Po , ^{217}At и $^{212,213}\text{Po}$ при энергиях больше 6 МэВ.

^{213}Po (8.3 МэВ) $\rightarrow$ ^{213}Bi (440 кэВ), ^{212}Po (8.7 МэВ) $\rightarrow$ ^{212}Bi (727 кэВ).

Из рис. 8. и 9 видно, что в данном источнике присутствуют пики не только прямо испускаемых изотопов урана и плутония, но и последующих распадов возбужденных состояний дочерних ядер. Для идентификации, был проведен анализ схем распада изотопов присутствующих в источнике. Было установлено, что пики дочерних ядер приходится на цепочку распада ^{233}U .

Так же, обнаружены пики как альфа излучения, так и гамма, не относящиеся ни к одному изотопу источника (^{233}U , $^{238,239}\text{Pu}$). Данные пики имеют совпадение, источником которого является ^{216}Po и ^{212}Po и определены как дочерние элементы из ряда ^{232}Th , показывающим наличие примеси в источнике.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты работы — был опробован новый тип детекторов на основе кристаллов CdZnTe и CeBr_3 . Исследованы и определены основные характеристики таких детекторов, такие как энергетическое разрешение FWHM/E_γ [кэВ], эффективность регистрации ϵ [%]. Проверена возможность регистрации в широком диапазоне энергии. Результаты подобных измерений показывают, что эти детекторы могут использоваться для исследования механизмов ядерных реакций и исследования свойств продуктов реакций, в частности, продуктов полного и не полного слияния.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке Институт физико-технических проблем, г. Дубна, Российской Федерации, в лице директора Смирнова А.А. и ведущего специалиста Газизова И.М

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Бруданин В.Б., Гуров Ю.Б., Розов С.В., Сандуковский В.Г., Якушев Е.А. // ПТЭ. 2018. № 1. С. 13–16.
2. Пенионжжевич Ю.Э., Вахтель В.М., Григорьев В.А. Современные детекторы ядерных излучений. Учебное пособие. 2019. Воронеж: Издательский дом ВГУ.
3. James R.B., Schlesinger T.E., Lund J., Schieber M. Semicond. Semimet. 1995. V. 43. P. 335–381.
4. Quarati F.G.A., Dorenbos P., van der Biezen J., Owens A., Selle M., Parthier L., Schotanus P. // Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res., Sect. A. 2013. V. 729. P. 596–604.
5. Milbrath B.D., Runkle R.C., Hossbach T.W., Kaye W.R., Lepel E.A., McDonald B.S., Smith L.E. // Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res., Sect. A. 2005. V. 547. P. 504–510.
6. <http://www.isotop.ru/files/treecontent/nodes/attaches/700/704/osai.pdf>.
7. <http://faster.in2p3.fr>.
8. Britton R., Jackson M.J., Davies A.V. // J. Environ. Radioac. 2015. V. 149. P. 158–163.
9. Barton J.C., Michaelis E.G. // Proc. Phys. Soc. 1961. V. 77 (2). P. 377.
10. Konki J., Greenlees P.T., Jakobsson U., Jones P., Julin R., Juutinen S., Uusitalo J. // Appl. Radiat. Isot. 2012. V. 70 (2). P. 392–396.
11. Breitenacker K., Donohue D., Eisenwagner H., Maddison A.P., Siegmund H. // Appl. Radiat. Isot. 2009. V. 67. P. 2088–2091.

Possibilities of Using CdZnTe and CeBr₃ Crystals for Measuring Photon Radiation in a Wide Range of Energy

A. V. Shakhova¹, *, S. M. Lukyanov¹, T. Issatayev¹, K. Mendibayev¹,
Yu. E. Penionjkevich¹, S. S. Stukalov¹, and Yu. G. Sobolev¹

¹*Joint Institute for Nuclear Research (JINR), Dubna, 141980 Russia*

**e-mail: vt34lu00@inbox.ru*

Received October 30, 2020; revised October 30, 2020; accepted October 30, 2020

Abstract—The new semiconductor detectors, which based on CdZnTe crystals and CeBr₃ scintillator, were presented in this work. The spectroscopic setup for testing measurements was created, which consists of CdZnTe, CeBr₃, and Si (measuring α and γ) detectors. The main characteristics of these detectors including energy resolution FWHM/ $E\gamma$ (keV) and efficiency ε_{abs} (%) were investigated and determined. Moreover, we have checked the possibility of registration in a wide range of energy. The alpha-gamma and gamma-gamma coincidence measurements were carried out using these detectors. The results could be used to study the mechanisms of nuclear reactions and the properties of reaction products.

Keywords: detectors, spectroscopic setup, characteristics of these detectors, The alpha-gamma and gamma-gamma coincidence