

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

Физический институт им. П.Н.Лебедева

Российской академии наук

На правах рукописи

Пестовский Николай Валерьевич

ИЗЛУЧАТЕЛЬНЫЕ ПРОЦЕССЫ ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ ИМПУЛЬСНОЙ
КАТОДОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД

Специальность 1.3.6 – Оптика

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук

Савинов Сергей Юрьевич

Москва - 2022

Оглавление

Введение.....	5
Актуальность темы исследования.....	5
Цель работы и задачи исследований.....	8
Методы исследований.....	9
Научная новизна работы.....	9
Научная и практическая значимость работы.....	10
Положения, выносимые на защиту.....	11
Личный вклад автора.....	12
Достоверность и обоснованность результатов.....	12
Апробация работы и публикации.....	12
Структура работы.....	18
Глава 1. Состояние проблемы, постановка задачи.....	23
1.1. Люминесценция неорганических широкозонных материалов	24
1.2. Сцинтилляция	25
1.2.1. Торможение быстрых электронов в веществе	26
1.2.2. Структура трека заряженной частицы	27
1.2.3. Нелинейность сцинтилляции	28
1.2.3.1. Теоретические и экспериментальные исследования нелинейности сцинтилляции	29
1.2.3.2. Нелинейность сцинтилляции под действием мощных потоков ионизирующего излучения	31
1.3. Кристаллические неорганические сцинтилляторы	32
1.3.1. Редкоземельные оксиортосилликаты	33
1.3.1.1. Лютециевые оксиортосилликаты	33
1.3.1.2. Скандиевые оксиортосилликаты	34
1.3.2. Редкоземельные гранаты	34
1.3.3. Фторидные сцинтилляторы с собственной люминесценцией.....	36
1.3.3.1. Фторид бария	36
1.3.3.2. Фторид церия.....	36
1.3.4. Оксиды с собственной люминесценцией при комнатной температуре ..	37
1.3.4.1. Германат висмута	37
1.3.4.2. Вольфрамат свинца	38
1.4. Люминесценция диоксида кремния	38

1.5.	Взаимодействие центров люминесценции диоксида кремния с частицами окружающих газов	39
1.6.	Передача энергии электронного возбуждения от экситонов пористого кремния молекулам кислорода окружающего газа	40
1.7.	Излучение молекулярного азота	40
1.7.1.	Основное состояние молекулы N_2	40
1.7.2.	Вторая положительная система полос излучения молекулы N_2	42
1.7.3.	Первая отрицательная система полос излучения молекулярного иона N_2^+	43
1.8.	Заключение к обзору литературы. Постановка задачи	44
1.8.1.	Цель работы	46
1.8.2.	Задачи, решаемые в работе	46
Глава 2.	Техника и методика эксперимента	47
2.1.	Возбуждение ИКЛ	47
2.2.	Измерения спектров ИКЛ	51
2.3.	Измерения кинетики затухания ИКЛ	53
Глава 3.	Излучение молекулярного азота при возбуждении ИКЛ.....	56
3.1.	Излучение свободного воздушного промежутка	56
3.2.	Механизм возбуждения излучения 2^+N_2 при бомбардировке электронами диоксида кремния и металлических мишеней на воздухе	60
3.2.1.	Спектр и кинетика излучения при бомбардировке электронами высокодисперсного диоксида кремния	61
3.2.2.	Температурная зависимость параметров излучения 2^+N_2	67
3.2.3.	Обсуждение механизма возбуждения 2^+N_2	69
3.3.	Выводы к главе 3	74
Глава 4.	Нелинейность ИКЛ	75
4.1.	Измерение полной кинетической энергии электронного пучка по энергии его тормозного излучения	77
4.1.1.	Связь энергии тормозного излучения и полной кинетической энергии пучка электронов.....	77
4.1.2.	Экспериментальная проверка корректности методики измерений полной энергии электронного пучка	80
4.2.	Характеристики ИКЛ кристаллов $Bi_4Ge_3O_{12}$, CeF_3 , BaF_2 и $PbWO_4$	87
4.3.	Нелинейность ИКЛ $Bi_4Ge_3O_{12}$	89
4.4.	Сопоставление нелинейности выхода ИКЛ и ФЛ $Bi_4Ge_3O_{12}$ -	96
4.5.	Нелинейность ИКЛ CeF_3 , BaF_2 и $PbWO_4$	107

4.6. Выводы к главе 4	117
4.7. Приложение к главе 4.....	119
4.7.1. Оценка статистических параметров ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$	119
4.7.2. Оценки параметров глубины проникновения электронов в исследуемые кристаллы	124
4.7.3. Оценка пространственного распределения возбуждения, создаваемого пучком электронов в исследуемых кристаллах	127
4.7.4. Оценка точности определения отношения пробега в исследованных кристаллах.....	129
Глава 5. Измерение параметров новых сцинтилляторов методом ИКЛ	132
5.1 Измерение параметров сцинтилляции методом ИКЛ	133
5.1.1. Измерение спектров сцинтилляции методом ИКЛ	133
5.1.2. Измерение кинетики сцинтилляции методом ИКЛ	134
5.1.2.1. Кинетика ИКЛ CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4	134
5.1.2.2. Сопоставление кинетики ИКЛ и РЛ сцинтиллятора LFS-3	139
5.2 ИКЛ $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce}^{3+}\text{:Li}^+\text{:Sc}^{3+}$	141
5.3 ИКЛ LuScSiO_5	145
5.4 ИКЛ $\text{GdVO}_4\text{:Ca}^{2+}$ и $\text{YVO}_4\text{:Ca}^{2+}$	148
5.5 Исследование деградации сцинтилляционных свойств кристаллов методом ИКЛ	151
5.5.1. Радиационная деградация оптических свойств нестехиометрических кристаллов-сцинтилляторов $\text{Lu}_{3.01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4.99}\text{O}_{12}\text{:Ce:Cr}$	151
5.5.2. Радиационная деградация оптических свойств нестехиометрического кристалла-сцинтиллятора LFS-3	156
5.6 Выводы к главе 5	159
Заключение	161
Список условных сокращений.....	163
Благодарности.....	164
Литература.....	165

Введение

Настоящая работа посвящена исследованию люминесценции [1-5] твердых и газообразных сред под действием мощных ($\sim 10^6$ Вт/см²) импульсных (длительностью менее ~ 0.1 мкс) пучков электронов с энергией частиц более ~ 100 кэВ, генерируемых холодными взрывоэмиссионными катодами. Эта разновидность люминесценции носит в отечественной литературе название «импульсная катодолюминесценция» (далее во всей работе - ИКЛ) [6].

Актуальность темы исследования

Исследование веществ методом ИКЛ обладает многими практическими преимуществами. Использование для возбуждения ИКЛ взрывоэмиссионного электронного пучка [7-11] с энергией частиц 100-300 кэВ, длительностью от сотен пикосекунд до десятков наносекунд и силой тока пучка до $\sim 10^3$ А, имеет следующие достоинства:

- глубина проникновения электронов с такими энергиями составляет сотни мкм. Следовательно, пучок эффективно возбуждает КЛ из внутреннего объёма образца, а не из его поверхностной области, в которой находится большое количество примесей и дефектов, искажающих люминесцентную информацию о веществе [6];
- высокая плотность мощности воздействия ($\sim 10^6$ - 10^8 Вт/см²) позволяет эффективно возбуждать КЛ у многих, даже слабосветящихся веществ;
- длительность импульса на уровне наносекунд позволяет, с одной стороны, измерять с соответствующим временным разрешением кинетику затухания КЛ, с другой – при высокой мощности воздействия препятствует перегреву образца;
- энергия электронов более 100 кэВ, позволяющая выводить пучок в атмосферу, даёт возможность проводить измерения, не помещая исследуемое тело в вакуумную камеру, а бомбардируя его электронами на воздухе при атмосферном давлении, что делает возможным поточный экспресс-анализ образцов и удешевляет систему; Также в этом случае из-за высокого давления окружающего газа и, следовательно, достаточно плотной плазмы, окружающей образец, частично снимается проблема с накоплением на поверхности образцов избыточного заряда [6];

- малые габариты ускорителей и регистрирующей аппаратуры, а также возможность питания системы от обычной электрической сети, делают возможными широкие практические применения методики.

По этим причинам метод ИКЛ исследования веществ широко применяется в геологии [12-21], для оценки качества кристаллических лазерных активных сред [22], изучения физики короткоживущих радиационно-индуцированных дефектов в твёрдых телах [23-26], исследования характеристик излучения Вавилова-Черенкова в разных веществах [27], и др.

Механизмы люминесценции под действием мощных потоков ионизирующего излучения, создающего в веществах высокую объёмную плотность электронных возбуждений (ЭВ), в настоящий момент активно исследуются с использованием мощных ультрафиолетовых лазеров, лазеров на свободных электронах, синхротронного излучения, мощных потоков электронов и ионов [24-26,28-36]. Интерес к этим явлениям определяется тем, что при высоких плотностях ЭВ наблюдаются нелинейные сцинтилляционные явления, связанные, в частности, с взаимодействием ЭВ между собой, и значительным образом влияющие на механизм люминесценции. В настоящий момент в литературе имеется нехватка экспериментальных данных о нелинейных сцинтилляционных явлениях для многих широко-зонных материалов [37-40].

Высокая (~ 10 МВт/см²) плотность мощности воздействия при возбуждении ИКЛ приводит к формированию в веществах значительной (на уровне $\sim 10^{18}$ см⁻³ [23]) объёмной плотности ЭВ, при которой наблюдаются нелинейные сцинтилляционные явления. Это позволяет использовать метод ИКЛ для измерения нелинейных характеристик сцинтилляции веществ.

К настоящему моменту в литературе доступны данные о нелинейной зависимости интенсивности ИКЛ ряда широкозонных веществ от пиковой силы тока возбуждающего пучка электронов [23,24]. Наиболее информативной с точки зрения анализа нелинейности сцинтилляции вещества оказывается зависимость выхода его сцинтилляции от плотности ЭВ [28,37,38]. Сейчас в литературе доступны экспериментальные данные только о зависимости выхода

фотолюминесценции (ФЛ) ряда веществ от плотности ЭВ, ширина запрещенной зоны которых ограничена значением 6,1 эВ [28]. Исследований зависимости выхода ИКЛ от плотности ЭВ, созданных электронным пучком, а также влияния нелинейности ИКЛ на получаемую методом ИКЛ спектральную информацию к настоящему моменту выполнено не было.

Возможность исследования ИКЛ веществ в атмосфере воздуха позволяет проводить поточную экспресс-диагностику значительных количеств образцов, что дает возможность широко применять метод ИКЛ в промышленности (в геологии, в технике производства лазерных и сцинтилляционных материалов и др.). В то же время, помещение образца в атмосферу различных газов может приводить к изменению механизма его люминесценции из-за взаимодействия ЭВ, создаваемых в веществе при возбуждении люминесценции, с частицами окружающего газа.

Действительно, в литературе имеются сведения о влиянии частиц окружающей атмосферы (молекул азота, кислорода, углекислого газа и паров воды) на ФЛ высокодисперсного диоксида кремния [41,42], а также о возбуждении излучения молекул газа (кислорода) при фотовозбуждении пористого кремния [43-55]. В то же время, влияние частиц окружающих газов на механизмы излучательных процессов при возбуждении ИКЛ и на получаемую методом ИКЛ информацию о веществе к настоящему моменту не было исследовано.

Сцинтилляционные детекторы в настоящее время широко используются в спектрометрии ионизирующих излучений как в научных исследованиях, так и в медицине, и в различных отраслях промышленности. Улучшение характеристик сцинтилляционных материалов представляет собой важную задачу [56-58]. По этой причине помимо фундаментальных исследований механизма ИКЛ веществ представляет существенный интерес использование метода ИКЛ для исследования сцинтилляционных характеристик новых сцинтилляционных материалов: спектра, времени высвечивания, радиационной стойкости, выхода и др. Для этого сперва следует определить ограничения, накладываемые особенностями метода ИКЛ на измерение этих параметров.

Все это делает исследования механизмов излучательных процессов при возбуждении ИКЛ широкозонных конденсированных сред под действием наносекундных электронных пучков с энергиями частиц 50-300 кэВ и высокими пиковыми значениями сил тока актуальной и интересной физической задачей как с фундаментальной точки зрения, так и для различных приложений.

Цель работы и задачи исследований

Цель работы – изучение излучательных процессов в твердом теле и газе при бомбардировке широкозонных веществ электронами с энергией 50-300 кэВ на воздухе при нормальных условиях. Установление в них роли взаимодействия ЭВ твердого тела с частицами газа и друг с другом при их высокой плотности. Определение на основе этих данных сцинтилляционных характеристик ряда новых кристаллов.

Для достижения этой цели были поставлены следующие задачи:

1. Исследовать спектрально-кинетические параметры ИКЛ при бомбардировке электронами свободного воздушного промежутка, мишеней из алюминия и высокодисперсного SiO_2 в атмосфере воздуха и выяснить механизмы наблюдаемых излучательных процессов.

2. Разработать метод исследования нелинейности зависимостей параметров ИКЛ широкозонных материалов от энергии пучка электронов.

3. Исследовать разработанным методом нелинейные характеристики ИКЛ кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 .

4. Определить ограничения, накладываемые на измерения спектрально-кинетических параметров сцинтилляции веществ, при их измерении методом ИКЛ и, используя эти данные:

а) определить спектрально-кинетические параметры ИКЛ новых составов $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^{3+}:\text{Li}^+:\text{Sc}^{3+}$, LuScSiO_5 , $\text{GdVO}_4:\text{Ca}^{2+}$ и $\text{YVO}_4:\text{Ca}^{2+}$,

б) исследовать радиационные повреждения, наведенные гамма-облучением, в сцинтилляторах LFS-3 и $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}:\text{Ce}:\text{Cr}$.

Методы исследований

Основными методами исследования параметров ИКЛ в работе служат методы оптической времяразрешенной эмиссионной спектроскопии и цифровой обработки данных.

Научная новизна работы

1. Впервые исследованы механизмы возбуждения второй положительной системы полос излучения молекул N_2 (2^+N_2) при бомбардировке электронами высокодисперсного SiO_2 . Установлено, что наряду с возбуждением прямым электронным ударом 2^+N_2 возбуждается некоторым иным новым механизмом с вполне сопоставимой эффективностью. Предложен возможный механизм возбуждения 2^+N_2 при передаче энергии от ЭВ, созданных в SiO_2 электронным пучком.

2. Разработан новый метод исследования нелинейных параметров сцинтилляции, в основе которого измерение зависимости спектрально-кинетических параметров ИКЛ от энергии возбуждающего электронного пучка. Этим методом впервые исследованы нелинейные зависимости энергии ИКЛ от энергии пучка электронов ряда широкозонных кристаллов, в частности – с шириной запрещенной зоны более 10 эВ (BaF_2 и CeF_3).

3. На основе полученных данных о нелинейности ИКЛ и особенностях её возбуждения найдены ограничения при измерении сцинтилляционных параметров веществ методом ИКЛ. Впервые исследованы спектрально-кинетические параметры ИКЛ новых кристаллов $Lu_2SiO_5:Ce:Li:Sc$, $LuScSiO_5$, $Ca:GdVO_4$ и $Ca:YVO_4$ и радиационные повреждения сцинтилляционного механизма кристаллов-сцинтилляторов $Lu_{3,01-x}Y_xAl_{4,99}O_{12}:Ce:Cr$ и LFS-3.

4. Обнаружено, что новый кристалл $LuScSiO_5$, люминесценция которого впервые исследована в работе, обладает яркой собственной люминесценцией (СЛ) при комнатной температуре, свойства которой близки к свойствам СЛ Sc_2SiO_5 и Sc_2O_3 .

Научная и практическая значимость работы

Значимый с научно-практической точки зрения результат работы состоит в том, что механизмы возбуждения излучения при бомбардировке электронами широкозонных веществ в атмосфере газа могут сопровождаться процессами взаимодействия ЭВ твёрдого тела и частиц газа, способных иметь достаточно высокую эффективность, что было продемонстрировано на примере SiO_2 и молекул N_2 . Эти процессы могут влиять на механизм люминесценции исследуемого вещества, приводить к безызлучательным потерям энергии, и их следует принимать во внимание при работе со сцинтилляцией в атмосфере газов. В частности, эти процессы могут приводить к падению световыхода сцинтилляции высокодисперсных сцинтилляторов, работающих в таких условиях.

Также значимый результат работы состоит в создании нового метода исследования нелинейных сцинтилляционных параметров веществ. Нелинейность люминесценции ограничивает ряд важных характеристик сцинтилляторов (пропорциональность отклика, амплитудное разрешение и др.). Определены нелинейные параметры ИКЛ и выполнены оценки зависимости выхода ИКЛ от плотности ЭВ широко используемых на практике сцинтилляторов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 . Отметим, что кристаллы CeF_3 и BaF_2 обладают шириной запрещенной зоны более 10 эВ.

В работе показано, что метод ИКЛ может быть использован для измерения сцинтилляционных параметров веществ. При этом он имеет много практических преимуществ по сравнению с методами, использованными ранее: высоким отношением сигнала к шуму, отсутствием необходимости в работе с радиоактивными препаратами и др. Вместе с этим при исследовании сцинтилляции веществ методом ИКЛ следует учитывать нелинейность разных полос ИКЛ и параметры возбуждающего электронного пучка. Используя эти результаты, методом ИКЛ исследованы параметры сцинтилляции новых кристаллов $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce:Li:Sc}$, LuScSiO_5 , Ca:GdVO_4 и Ca:YVO_4 и радиационные повреждения

сцинтилляционного механизма кристаллов $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}:\text{Ce}:\text{Cr}$ и LFS-3. Исследованные составы представляют интерес для ряда приложений.

Положения, выносимые на защиту

1. При бомбардировке электронами высокодисперсного SiO_2 на воздухе при нормальных условиях интенсивность излучения полос 2^+N_2 на 50-70% превышает их интенсивность при бомбардировке алюминия в тех же условиях. Дополнительное возбуждение 2^+N_2 не осуществляется прямым электронным ударом и объясняется передачей энергии от электронных возбуждений, создаваемых в SiO_2 электронным пучком, молекулам N_2 при их контакте с поверхностью SiO_2 .
2. При неизменности функции распределения электронных пучков по энергиям в разных импульсах и энергиях электронов 100-300 кэВ энергия рентгеновского излучения электронного пучка при торможении в газе и твердом теле прямо пропорциональна его полной кинетической энергии. Этот факт может быть использован для измерения полной энергии пучка электронов по энергии возбуждаемого им рентгеновского излучения.
3. Зависимости энергии E_l ИКЛ кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, PbWO_4 , CeF_3 и BaF_2 от энергии импульсного сильноточного взрывоэмиссионного электронного пучка E_b приближенно описываются степенной функцией $E_l(E_b) \sim E_b^B$. Показатели нелинейности B для интегрального по длине волны излучения для этих кристаллов равны $1,177 \pm 0,004$, $1,08 \pm 0,02$, $1,072 \pm 0,011$ и $1,282 \pm 0,007$, соответственно. То, что $B > 1$, объясняется возрастанием кулоновского расталкивания электронов пучка с ростом их числа в каждом импульсе, приводящем к снижению с ростом E_b средней объёмной плотности создаваемых им электронных возбуждений, которое сопровождается ростом выхода ИКЛ.
4. Спектральная плотность энергии и время высвечивания τ сцинтилляции веществ могут быть определены методом ИКЛ при учете нелинейностей полос ИКЛ и зависимости тока возбуждающего пучка от времени. Кристалл LuScSiO_5 обладает $\tau = 990 \pm 1$ нс, $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Sc}:\text{Li}$ - $\tau = 39.1 \pm 0.1$ нс, $\text{GdVO}_4:\text{Ca}$ - $\tau = 5 \pm 1$ мкс и $\text{YVO}_4:\text{Ca}$ - $\tau = 12 \pm 1$ мкс.

Личный вклад автора

Результаты диссертации получены автором лично или при его непосредственном участии. Все измерения ИКЛ и обработка полученных данных в диссертационной работе выполнены лично автором.

Достоверность и обоснованность результатов, полученных в диссертационной работе, подтверждена многократным их воспроизведением во многих экспериментах с использованием современного оборудования и современных методов статистической обработки результатов измерений. Результаты работы многократно докладывались и обсуждались на научных конференциях и семинарах.

Апробация работы и публикации

Результаты работы докладывались и обсуждались на всероссийских и международных научных конференциях: First MIPT-UEC International workshop, 2013 г., Москва, Россия; XXIX International Conference on Equations of State for Matter, 2014 г., пос. Эльбрус, Россия; XXX International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter, 2015 г., пос. Эльбрус, Россия; VI Всероссийская молодежная конференция по фундаментальным и инновационным вопросам современной физики, 2015 г., Звенигород, Россия; XXXI International Conference on Equations of State for Matter, 2016 г., пос. Эльбрус, Россия; 62-я Всероссийская научная конференция МФТИ, 2019 г., Долгопрудный, Россия, Школы молодых ученых «Быстропротекающие электровзрывные, электронные и электромагнитные процессы в импульсной электронике и оптоэлектронике» БПИО-2019 (2019 г., Москва, Россия), БПИО-2020 (2020 г., Москва, Россия) и БПИО-2021 (2021 г., Москва, Россия); 64-ая Всероссийская научная конференция МФТИ, 2021 г., онлайн.

По материалам докладов на всероссийских и международных конференциях подготовлено 13 публикаций (см. **Труды конференций** [1-13]). Основные результаты работы опубликованы в виде 12 статей в рецензируемых научных

журналах из перечня ВАК, индексируемых в системе *Web of Science* (см. **Публикации в журналах** [1-12]) и в виде глав в 2 коллективных монографиях (см. **Главы в монографиях**). Работа выполнена при поддержке гранта Российского Научного Фонда (проект №19-79-30086).

Основные результаты диссертации опубликованы в работах:

Публикации в журналах из перечня ВАК, индексируемых в системах Web of Science и Scopus:

Ж1. *Завертяев М. В., Козлов В. А., Пестовский Н. В., Петров А. А., Родионов А. А., Савинов С. Ю., Цхай С. Н., Заварцев Ю. Д., Загуменный А. И., Кутовой С. А.,* Излучение молекулярного азота при бомбардировке электронами пиролитического аэрогеля SiO₂ и алюминия //Письма в ЖЭТФ. – 2019. – Т. 110. – №. 10. – С. 652-657.

Ж2. *Kozlov V. A., Kutovoi S. A., Mislavskii V. V., Pestovskii N. V., Petrov A. A., Rodionov A. A., Savinov S. Yu., Tskhai S. N., Zagumennyi A. I., Zavartsev Yu. D. and Zavertyaev M. V.,* Effect of Pressing on Luminescence Spectra of Fumed Silica //Journal of Russian Laser Research. – 2019. – Т. 40. – №. 1. – С. 42-47.

Ж3. *Belov M. V., Koutovoi S. A., Kozlov V. A., Pestovskii N. V., Savinov S. Yu., Zagumennyi A. I., Zavartsev Yu. D., and Zavertyaev M. V.,* Measurement of non-linearity in the cathodoluminescence yield for non-doped scintillators //Journal of Applied Physics. – 2021. – Т. 130. – №. 23. – С. 233101.

Ж4. *Belov M. V., Koutovoi S. A., Kozlov V. A., Pestovskii N. V., Savinov S. Yu., Vlasov V. I., Zagumennyi A. I., Zavartsev Yu. D., and Zavertyaev M. V.,* Wavelength-Resolved Photoluminescence and Cathodoluminescence Decay Times of LSO: Ce Scintillator co-Doped with Lithium and Scandium //Journal of Russian Laser Research. – 2021. – Т. 42. – №. 3. – С. 313-317.

Ж5. *Белов М. В., Заварцев Ю. Д., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю.,* Сцинтилляционные

характеристики новых кристаллов LuScSiO_5 //Краткие сообщения по физике ФИАН – 2021. – Т. 48. – №. 4. – С. 3-8.

Ж6. Андреев С. Н., Белов М. В., Заварцев Ю. Д., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю., Выращивание и исследование сцинтилляционных свойств кристаллов-ортованадатов Ca:GdVO_4 и Ca:YVO_4 //Краткие сообщения по физике ФИАН – 2018. – Т. 45. – №. 6. – С. 29-36.

Ж7. Белов М. В., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кондратюк В. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю., Влияние дефектов на сцинтилляционные свойства кристаллов оксиортосиликатов Ce: Sc: LFS //Краткие сообщения по физике ФИАН. – 2017. – Т. 44. – №. 8. – С. 25-33.

Ж8. Завертяев М.В., Загуменный А.И., Козлов В.А., Очкин В.Н., Пестовский Н.В., Петров А.А., Савинов С.Ю., Сопоставление спектров катодо- и гамма-люминесценции сцинтилляционных кристаллов, //Письма в ЖТФ. – 2014. – Т. 40. – №. 10. - С. 73-79.

Ж9. Загуменный А. И., Лобанов А. Н., Михайлов А. В., Очкин В. Н., Пестовский Н. В., Петров А. А., Савинов С. Ю., Сопоставление времен затухания катодо- и гамма-люминесценции сцинтилляционных кристаллов //Краткие сообщения по физике ФИАН. – 2015. – Т. 42. – №. 1. - С. 15-20.

Ж10. Kozlov V. A., Ochkin V. N., Pestovskii N. V., Petrov A. A., Savinov S. Yu., Zagumennyi A. I., Zavertyaev M. V., Pulsed cathodoluminescence and γ -luminescence of scintillation crystals //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2015. – Т. 653. – №. 1. – С. 012017.

Ж11. Андреев С.Н., Завертяев М.В., Заварцев Ю.Д., Загуменный А.И., Козлов В.А., Пестовский Н.В., Кутовой С.А., Петров А.А., Савинов С.Ю., Исследование радиационной деградации оптических свойств нестехио-метрических кристаллов $\text{Lu}_{3.01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4.99}\text{O}_{12}$, допированных ионами Ce^{3+} , Cr^{3+} , и Sc^{3+} , под действием гамма-излучения //Краткие сообщения по физике ФИАН. – 2016. – Т. 43. – №. 10. – С. 38-47.

Ж12. Заварцев Ю.Д., Завертяев М.В., Загуменный А.И., Зерроук А.Ф., Козлов В.А., Кутовой С.А., Пестовский Н.В., Петров А.А., Савинов С.Ю., Природа радиационной стойкости кристаллов-оксиортосиликатов LFS, допированных ионами Се, Sc, Са и Y //Краткие сообщения по физике ФИАН. – 2016. – Т. 43. – №. 11.-С.31-38.

Главы в монографиях:

М1. Андреев С.Н., Заварцев Ю.Д., Завертяев М.В., Загуменный А.И., Козлов В.А., Кутовой С.А., Пестовский Н.В., Петров А.А. и Савинов С.Ю., «Исследование широкозонных полупроводников и диэлектриков методом импульсной катодолюминесценции», глава в коллективной монографии «Нано-, пико- и фемтосекундная электроника и фотоника», под редакцией академика Г.А. Месяца. – М.: «Печатный салон «Шанс», 2017. – 297 с.

М2. Гижса С.С., Заварцев Ю.Д., Завертяев М.В., Загуменный А.И., Козлов В.А., Кутовой С.А., Пестовский Н.В., Петров А.А., Савинов С.Ю., «Спектроскопия импульсной катодолюминесценции твёрдых оксидов», Глава в коллективной монографии "Электрофизические и оптические процессы в плазменных и твердотельных средах и наноструктурах" под ред. Г.А. Месяца. Москва : РУСАЙНС, 2019. — 372 с. ISBN 978-5-4365-3174-8

Труды конференций:

T1. Pestovskii N.V., Pulse Cathodoluminescence spectra and spectra of luminescence under the influence of Gamma-irradiation // First MIPT-UEC international workshop - book of abstracts, РИИС ФИАН, 2013.

T2. Kozlov V.A., Ochkin V.N., Pestovskiy N.V., Petrov A.A., Savinov S.Yu., Zagumenniy A.I., Zavertyaev M.V. Comparison between pulsed cathodoluminescence spectra and spectra of luminescence of the same crustals under the action of gamma-irradiation//XXIX International Conference on Equations of State for Matter, March 1-6, 2014, Elbrus, Russia, Book of abstracts pp. 142-143.

T3. Kozlov V.A., Mikhailov A.V., Pestovsky N.V., Petrov A.A., Savinov S.Yu., Zagumenniy A.I., Comparison of cathodoluminescence and gamma luminescence decay times of scintillators // XXX International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter, March 1-6, Elbrus, Russia. 2015. Book of Abstracts, p. 52.

T4. Завертяев М.В., Загуменный А.И., Козлов В.А., Пестовский Н.В., Петров А.А. и Савинов С.Ю., Сопоставление спектров и времен затухания импульсной катодолуминесценции и гамма-люминесценции сцинтилляционных кристаллов // Всероссийская конференция «Импульсная Сильно-точная и Полупроводниковая Электроника – 2015», 27-28 мая 2015 г., ФИАН, Сборник трудов, сс. 58-62

T5. Загуменный А.И., Заварцев Ю.Д., Завертяев М.В., Козлов В.А., Кутовой С.А., Пестовский Н.В., Петров А.А., Савинов С.Ю., Спектры импульсной катодолуминесценции кристаллов и неупорядоченных сред сходного химического состава // VI Всероссийская молодежная конференция по фундаментальным и инновационным вопросам современной физики, 15-20 ноября 2015 года Москва, ФИАН, Сборник трудов с. 70

T6. Kozlov V.A., Kutovoi S.A., Pestovskii N.V., Petrov A.A., Savinov S.Yu., Zagumennii A.I., Zavartsev Yu.D. and Zavertiaev M.V, Comparison of pulsed cathodoluminescence spectra of LFS crystals, doped by different elements, before and after gamma-irradiation // XXXI International Conference on Equations of State for Matter, March 1-6, 2016, Elbrus, Russia, Books of Abstracts, p. 283 (2016).

T7. Завертяев М.В., Козлов В.А., Пестовский Н.В., Петров А.А., Родионов А.А., Савинов С.Ю., Цхай С.Н., Заварцев Ю.Д., Загуменный А.И., Кутовой С.А., Излучение молекулярного азота при бомбардировке электронами диоксида кремния // Труды 62-й Всероссийской научной конференции МФТИ, 18–24 ноября 2019 г., с. Фундаментальная и прикладная физика, сс. 172-173.

T8. Завертяев М. В., Козлов В. А., Пестовский Н. В., Петров А. А., Родионов А. А., Савинов С. Ю., Цхай С. Н., Заварцев Ю. Д., Загуменный А. И., Кутовой С. А., Механизм возбуждения излучения молекулярного азота при бомбардировке электронами пиролитического аэрогеля SiO_2 // Тезисы докладов школы молодых ученых «Быстропротекающие электровзрывные, электронные и электромагнит-

ные процессы в импульсной электронике и оптоэлектронике» БПИО-2019, 12-14 ноября 2019 г., М., ФИАН, сс. 65-68.

Т9. Белов М. В., Заварцев Ю. Д., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю., Времена высвечивания стинтилляционных кристаллов при возбуждении ионизирующим излучением высокой плотности энергии // Тезисы докладов школы молодых ученых «Быстропротекающие электровзрывные, электронные и электромагнитные процессы в импульсной электронике и оптоэлектронике» БПИО-2020, Москва, 24-26 ноября 2020 г., сс. 19-20.

Т10. Белов М. В., Заварцев Ю. Д., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю., Измерение зависимости мощности наносекундного электронного пучка, распространяющегося в воздухе, от времени //Тезисы докладов школы молодых ученых «Быстропротекающие электровзрывные, электронные и электромагнитные процессы в импульсной электронике и оптоэлектронике» БПИО-2020, Москва, 24-26 ноября 2020 г., сс. 21-22.

Т11. Белов М. В., Заварцев Ю. Д., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю., Тажитдинов Д. М., Шляхтун О. С., Нелинейность импульсной катодолюминесценции широкозонных кристаллов // Тезисы докладов shk. мол. уч. «Быстропротекающие электровзрывные, электронные и электромагнитные процессы в импульсной электронике и оптоэлектронике БПИО-2021», 16-18 ноября 2021 г., ФИАН, с. 17-18 (2021).

Т12. Белов М. В., Заварцев Ю. Д., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю., Тажитдинов Д. М., Шляхтун О. С., Измерение энергии электронного пучка по энергии его тормозного излучения // Тезисы докладов shk. мол. уч. «Быстропротекающие электровзрывные, электронные и электромагнитные процессы в импульсной электронике и оптоэлектронике БПИО-2021», 16-18 ноября 2021 г., ФИАН, с. 19 (2021).

Т13. Белов М. В., Заварцев Ю. Д., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю., Тажитдинов Д. М., Шляхтун О. С., Нелинейность импульсной катодолюминесценции кристалла

LFS -3 // Труды 64-й Всероссийской научной конференции МФТИ. 29 ноября – 03 декабря 2021. Фундаментальная и прикладная физика — Москва–Долгопрудный–Жуковский : МФТИ, 2021. – СС. 275-276.

Структура работы

Во введении дана краткая характеристика работы, обоснована её актуальность, сформулированы цели и задачи исследований.

В первой главе приведен обзор литературы о процессах, происходящих при распространении электронного пучка с энергией частиц 50-300 кэВ в конденсированных средах. Приведены литературные данные о применении метода ИКЛ для исследования веществ в физике твёрдого тела и геологии, современные представления о структуре треков электронов и о явлениях нелинейности сцинтилляции. Кратко приведены имеющиеся в литературе данные о люминесценции материалов, исследованных в работе. Даны спектроскопические характеристики второй положительной (2^+N_2) и первой отрицательной ($1^-N_2^+$) систем полос излучения молекулярного азота. Рассмотрены результаты работ о влиянии окружающего газа на тушение фотолюминесценции высокодисперсного SiO_2 и о механизме передачи энергии электронного возбуждения от экситонов, создаваемых в пористом кремнии, молекулам O_2 путём обменного взаимодействия. В заключении к главе сформулирована цель настоящей работы и поставлены решаемые в ней задачи.

Во второй главе описаны техника и методики экспериментов, использованные для измерения спектрально-кинетических характеристик ИКЛ. Приведены параметры электронного пучка ускорителя электронов РАДАН-ЭКСПЕРТ и используемой измерительной аппаратуры. Представлена кривая спектральной чувствительности используемого спектрометра.

В третьей главе описаны результаты исследований механизма возбуждения излучения молекулярного азота при бомбардировке электронами пиролитического аэрогеля SiO_2 с удельной площадью поверхности $380 \text{ м}^2/\text{г}$ (размер частиц 4-40 нм).

Установлено, что при бомбардировке электронами высокодисперсного SiO_2 на воздухе при атмосферном давлении интенсивность излучения 2^+ системы полос молекулы N_2 (переход $\text{C}^3\Pi_u \rightarrow \text{B}^3\Pi_g$) выше на 40–70%, чем при бомбардировке алюминия в тех же условиях.

Установлено, что зависимости энергии излучения на длине волны 337 нм (колебательный переход 0-0 2^+N_2) от температуры мишени в области 30–60°C для алюминия и SiO_2 отличаются между собой, что свидетельствует о разных механизмах возбуждения состояния $\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u)$. Хорошо известно, что при бомбардировке электронами на воздухе металлической мишени возбуждение 2^+N_2 осуществляется прямым электронным ударом. Следовательно, при бомбардировке электронами SiO_2 на воздухе реализуется некоторый дополнительный механизм возбуждения 2^+N_2 , эффективность которого сопоставима с эффективностью возбуждения 2^+N_2 прямым электронным ударом.

Пороговая энергия перехода молекулы N_2 из основного состояния $X^1\Sigma_g^+$ в возбужденное $\text{C}^3\Pi_u$, равная 11,032 эВ, близка к ширине запрещенной зоны SiO_2 , составляющей для разных модификаций SiO_2 8–11,5 эВ. На основе этого высказано предположение, что при бомбардировке электронами SiO_2 возбуждение состояния $\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u)$ происходит не только прямым ударом электронов первичного пучка и вторичных электронов, но и путем передачи энергии от экситонов и других ЭВ, возникающих в SiO_2 под действием пучка электронов, молекулам N_2 при их контакте с поверхностью SiO_2 .

Четвёртая глава посвящена исследованию нелинейности ИКЛ. Под нелинейностью ИКЛ понимается зависимость выхода ИКЛ от средней объёмной плотности ЭВ n , создаваемых электронным пучком. К причинам нелинейности ИКЛ относится, в частности, рост тушения ЭВ при высоких n ($\sim 10^{18} \text{ см}^{-3}$), обусловленный взаимодействием ЭВ друг с другом.

Предложен метод измерения зависимости спектрально-кинетических параметров ИКЛ от энергии возбуждающего электронного пучка. Теоретически

показано, что для сильноточного электронного пучка с энергией 50-300 кэВ, для которого основным каналом потерь энергии в веществе служит ударная ионизация, в случае, если число электронов в пучке меняется, а его ФРЭЭ остаётся постоянной, энергия тормозного излучения прямо пропорциональна полной кинетической энергии пучка.

Показано, что в настоящем эксперименте эти условия выполнены, и, следовательно, одновременное измерение параметров ИКЛ и рентгеновского излучения, генерируемого в промежутке, позволяет измерить зависимость этих параметров от полной кинетической энергии пучка.

Теоретически показано, что при распространении электронов в свободном воздушном промежутке энергия излучения 2^+N_2 , возбуждаемого прямым электронным ударом, также прямо пропорциональна полной кинетической энергии электронного пучка. Следовательно, используя это свойство, можно экспериментально проверить правильность предложенной методики измерения полной кинетической энергии пучка электронов.

Экспериментально на основе описанной методики установлено, что энергия рентгеновского излучения, генерируемая пучком электронов, прямо пропорциональна его полной энергии, что подтверждает применимость предложенного метода. Измерены зависимости энергии ИКЛ от энергии пучка для кристаллов $Bi_4Ge_3O_{12}$, $PbWO_4$, CeF_3 и BaF_2 .

Установлено, что все исследованные в работе зависимости энергии ИКЛ E_l от полной энергии электронного пучка E_b удовлетворительно описываются степенной функцией вида $E_l = AE_b^B$, где B – параметр, называемый в работе параметром нелинейности ИКЛ. Установлено, что для всех исследованных зависимостей $E_l(E_b)$ выполняется условие $B > 1$, то есть все они сверхлинейны. В работе дано объяснение этого факта на основе представления о росте кулоновского расталкивания электронов пучка при увеличении их числа в импульсе. Действительно, в этом случае начальная объёмная плотность электронов

в пучке выше и, следовательно, распределение углов расталкивания электронов шире, что приводит к уменьшению средней плотности тока пучка и, следовательно, плотности создаваемых им ЭВ в веществе. Хорошо известно, что с ростом плотности ЭВ выход сцинтилляции уменьшается. Следовательно, уменьшение плотности ЭВ, создаваемой пучком более высокой энергии, приводит к сверхлинейному росту энергии ИКЛ.

Проведена оценка зависимостей выхода ИКЛ от плотности электрон-но-дырочных пар, создаваемых электронным пучком, в кристаллах PbWO_4 , CeF_3 и BaF_2 . Обнаружено, что для полосы ИКЛ кристалла CeF_3 в области 300 нм, связанной с переходами в ионах Ce^{3+} , расположенных в регулярных узлах кристаллической решетки, и для полосы в области 350 нм, связанной с переходами в ионах Ce^{3+} в искаженных дефектах областях кристаллической решетки, зависимости выхода ИКЛ от средней плотности ЭВ различны.

В пятой главе исследуются ограничения на использование метода ИКЛ при измерении сцинтилляционных характеристик кристаллов, и получены спектрально-кинетические параметры ИКЛ ряда новых сцинтиллирующих составов. Спектр ИКЛ совпадает со спектром сцинтилляции под действием других ионизирующих частиц, если он состоит из одной или нескольких полос с одинаковым значением нелинейности ИКЛ. Это условие выполнено не всегда. Так, оно не выполнено для CeF_3 . Кинетика ИКЛ может совпадать с кинетикой сцинтилляции под действием других частиц, если она не зависит от плотности ЭВ. Показано, что существенным образом точность измерения кинетики ИКЛ ограничивается формой зависимости тока пучка электронов от времени, которая может быть определена по зависимости от времени интенсивности рентгеновского излучения и излучения 2^+N_2 .

Впервые исследованы спектрально-кинетические параметры ИКЛ новых составов $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:0,1\%\text{Ce}:0,25\%\text{Sc}:0,5\%\text{Li}$, LuScSiO_5 , $\text{GdVO}_4:\text{Ca}^{2+}$ и $\text{YVO}_4:\text{Ca}^{2+}$. Кристаллы $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}:\text{Sc}:\text{Li}$, $\text{GdVO}_4:\text{Ca}$ и $\text{YVO}_4:\text{Ca}$ - развитие хорошо известных сцинтилляторов $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ и ReVO_4 (Re-редкоземель-ный ион) с новыми

добавками, цель которых - в улучшении сцинтилляционных характеристик: повышении выхода и радиационной стойкости, уменьшении времени высвечивания и др. В работе впервые обнаружена и описана яркая СЛ нового кристалла LuScSiO_5 , при комнатной температуре.

Установлено, что максимум спектральной плотности энергии ИКЛ кристаллов LFS-3 и $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce:Sc:Li}$ расположен на длине волны 405 нм, LuScSiO_5 - 310 нм, $\text{GdVO}_4\text{:Ca}$ – на 440 нм и $\text{YVO}_4\text{:Ca}$ – на 430 нм. Время высвечивания ИКЛ $\tau_{\text{ИКЛ}}$ кристалла LFS-3 и $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce:Sc:Li}$ на длине волны 405 нм равно $36,2 \pm 0,1$ нс и $39,1 \pm 0,1$ нс, LuScSiO_5 на длине волны 310 нм - 990 ± 1 нс, $\text{GdVO}_4\text{:Ca}$ и $\text{YVO}_4\text{:Ca}$ - 12 ± 1 и 5 ± 1 нс (интегрально по длинам волн). Экспериментально показано, что $\tau_{\text{ИКЛ}}$ кристаллов LFS-3, $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce:Sc:Li}$ и LuScSiO_5 равны временам их высвечивания под действием гамма-излучения. Установлено, что введение примеси Ca^{2+} уменьшает $\tau_{\text{ИКЛ}}$ оксиортованадатов до ~4-х раз. В то же время, введение примеси Li^+ и Sc^{3+} не приводит к существенному уменьшению времени высвечивания сцинтилляции $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce}$.

Исследованы спектры ИКЛ кристаллов $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}\text{:Ce:Cr}$ и LFS-3 до и после их облучения значительными дозами ионизирующего излучения: гамма-излучения источника ^{60}Co поглощенной дозой 45 Мрад ($\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}\text{:Ce:Cr}$) и пучком протонов энергией 155 МэВ при плотности потока частиц $4,4 \cdot 10^{12}$ частиц/см² (LFS-3). Обнаружена значительная деградация спектров ИКЛ $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}\text{:Ce:Cr}$: отношение спектральных плотностей энергии ИКЛ полос Ce^{3+} и Cr^{3+} изменилась в 1,6-8 раз после облучения. В то же время, изменений спектра ИКЛ LFS-3 с точностью $\leq 10\%$ не обнаружено.

Глава 1. Состояние проблемы, постановка задачи

Термин «люминесценция» был введен Е. Видеманом для обозначения соответствующего класса явлений в 1888 г. [1,2]. Согласно Видеману, люминесценция - избыток излучаемого телом светового потока над его тепловым излучением. С. И. Вавилов дополнил [3] это определение критерием длительности. Согласно [3], к люминесценции относятся излучательные явления, не прекращающиеся после окончания действия возбуждения. Современное определение дано Э. А. Свириденковым в Физической Энциклопедии [4]: «Люминесценция - излучение, представляющее собой избыток над тепловым излучением тела и продолжающееся в течение времени, значительно превышающего период световых колебаний, и превышающего время фазовой релаксации среды».

Характеристиками люминесценции служат спектральная плотность интенсивности и энергии излучения (спектр), зависимость интенсивности от времени (кинетика), выход люминесценции и др. Выход люминесценции Y определяется как отношение испущенной энергии излучения люминесценции к энергии возбуждения, поглощенной веществом [4].

Люминесценция классифицируется по типам возбуждения [4,5]: фотолюминесценция (ФЛ) возникает под действием оптического излучения, радиолюминесценция (РЛ) возбуждается проникающей радиацией, и т.д. К РЛ относится, в частности, гамма-люминесценция (ГЛ), вызываемая γ -квантами, катодолюминесценция (КЛ), возбуждаемая бомбардировкой электронами, ионолюминесценция, возбуждаемая бомбардировкой ускоренными ионами, и др.

В отечественной литературе принято подразделять КЛ на стационарную, квазистационарную и импульсную в соответствии с типом электронной трубки, генерирующей электронный пучок [6]. Стационарная КЛ возбуждается постоянными во времени потоками электронов с кинетической энергией 4-15 кВ, выпускаемыми электронно-лучевыми трубками с холодным катодом. Квазистационарная КЛ возбуждается пучками электронов с энергией 20-70 кэВ

длительностью 1-10 мс, испускаемыми трубками с подогретым катодом. Импульсная катодолюминесценция (ИКЛ) возбуждается пучками электронов с энергией частиц более ~ 100 кэВ и длительностью менее ~ 0.1 мкс, генерируемыми холодными взрывоэмиссионными катодами.

1.1. Люминесценция неорганических широкозонных материалов

Люминесценция неорганических широкозонных материалов (кристаллов, стёкол и аморфных тел) подразделяется на собственную люминесценцию (СЛ) основного вещества, примесную (активаторную) люминесценцию, связанную с находящимися в веществе примесными атомами, а также люминесценцию дефектов структуры вещества.

СЛ широкозонных веществ связана с излучательным распадом экситонов и переходами между зонами электронной структуры основного вещества. В частности, кросс-люминесценция [58,59] происходит между состояниями электронов, расположенными в валентной зоне и верхней основной зоне, фундаментальная плазменная, или, иначе, - внутризонная люминесценция [58,60], – между состояниями в зонах проводимости и валентных зонах.

Для описания процессов люминесценции широко используется понятие электронных возбуждений (ЭВ). Под ЭВ понимаются элементарные состояния твёрдого тела с энергией, большей, чем энергия тела при абсолютном нуле температуры, связанные с возбуждением электронной подсистемы. При описании процессов в полупроводниках и диэлектриках на языке зонной теории твёрдого тела считается, что ЭВ отсутствуют, если полностью заполнены все валентные зоны. ЭВ в этом случае возникает в виде дырки (состояния, незанятого электроном) в валентной зоне и электрона, который может находиться в зонах проводимости, локализовываться в области примеси или дефекта, либо быть составной частью многочастичных систем (экситон, экситонная жидкость и др). Электрон и дырка в зонной теории представляют из себя квазичастицы, несущие элементарные

отрицательный и положительный заряды соответственно, движение которых можно приближенно описать как движение свободных частиц с соответствующими зарядами и эффективными массами.

Экситоном называют бестоковое ЭВ в кристаллах [61]. Экситоны часто обладают полосами излучения и поглощения. В случае, если при формировании экситона в беспримесном бездефектном кристалле соответствующая область кристаллической решетки значительно искажается, что приводит к локализации экситона, то такой экситон называется автолокализованным (АЛЭ). К основным признакам АЛЭ относится сильный сдвиг полосы люминесценции АЛЭ в красную область по сравнению с полосой поглощения [61].

Дефекты структуры твердого тела могут иметь свои полосы люминесценции, так как их уровни и соответствующие им оптические переходы могут находиться в области прозрачности вещества [62]. При внедрении в структуру вещества посторонних примесей они тоже могут формировать новые полосы люминесценции, отличные от СЛ. Также примеси могут создавать дефекты, которые приводят к появлению новых полос свечения.

1.2. Сцинтилляция

Термин «сцинтилляция» обозначает люминесценцию под действием ионизирующего излучения [56]. В настоящий момент это явление широко применяется в физике высоких энергий, ядерной медицине, промышленной геологии и др. [56,57] для измерения параметров ионизирующего излучения. Столь широкие приложения обуславливают значительный интерес к физике этого явления. Сцинтилляция – сложный многостадийный процесс [56-58], состоящий из следующих этапов [56-58]:

- **Конверсия** исходной высокоэнергетичной частицы в быстрые электроны и дырки вещества ($10^{-18} - 10^{-12}$ с)

- **Размножение ЭВ** – ударная ионизация вещества быстрыми электронами, сопровождающаяся формированием вторичных электронно-дырочных пар, Оже-распадом основных дырок, реабсорбцией рентгеновского излучения и др. ($10^{-15} - 10^{-14}$ с)
- **Термализация** электронных возбуждений ($10^{-16} - 10^{-12}$ с)
- **Транспорт**: передача энергии от термализованных электронов и дырок к люминесцентным центрам и образование экситонных состояний ($10^{-12} - 10^{-8}$ с)
- **Излучение**: релаксация возбужденных люминесцентных центров с испусканием люминесценции ($>10^{-10}$ с).

В настоящей работе исследуются процессы, вызываемые электронами с энергией менее 1 МэВ в среде. В этом случае стадия конверсии заключается главным образом в преобразовании энергии исходной частицы в энергию газа неравновесных носителей заряда (вторичных электронов и дырок).

1.2.1. Торможение быстрых электронов в веществе

Главные потери энергии электрона с кинетической энергией менее 1 МэВ в веществе связаны с ударной ионизацией атомов и генерацией тормозного излучения (ТИ) [58,63-66]. Торможение электрона с энергией E , в наиболее простом виде, описывается формулой Бете-Блоха [37,38,63-66]. Современный вид этой формулы, адаптированный для целей настоящей работы, приведен в работах [37,38,66]:

$$\left(\frac{-dE}{dx}\right)_i = \frac{2\pi e^4 \rho_e}{E} \ln \left[\frac{1.16(E+2.8I)}{I} \right] \quad (1.1).$$

В выражении (1.1) E – кинетическая энергия электрона, x – пространственная координата, если ось x параллельна направлению движения электрона, $\rho_e = \rho \frac{ZN_A}{M}$ – электронная плотность, где ρ – массовая плотность, Z – атомный номер, M – молекулярный вес, N_A – число Авогадро, I – средний потенциал

ионизации вещества, вычисляемый при помощи системы ESTAR [158]. Постоянная 2,8 подобрана феноменологически, чтобы согласовать результаты расчета по формуле (1.1) с результатами экспериментов и детальных вычислений торможения электрона с учетом раскачки плазменных колебаний [37,38,66].

Потери энергии на ТИ, согласно [63,64], могут быть вычислены по формуле:

$$\left(\frac{-dE}{dx}\right)_{br} = \frac{E}{X_0} \quad (1.2)$$

где X_0 – радиационная длина, имеющая у разных веществ порядок от сантиметров до метров [63]. Для электронов с энергией менее 1 МэВ потери на тормозное излучение составляют не более 10% от ионизационных потерь [63].

1.2.2. Структура трека заряженной частицы

Треком заряженной частицы называется совокупность областей локализации ЭВ, созданных частицей при прохождении через вещество. Хорошо известно, что при ударной ионизации атомов быстрыми электронами вторичные электроны имеют средние энергии порядка десятков эВ [67,68]. Вторичные электроны также создают ЭВ в твёрдом теле. Спектр энергий вторичных электронов представляет значительный интерес, так как он определяет размеры и структуру распределения ЭВ в треке.

Детальные расчеты физических процессов при распространении электрона с энергией менее 1 МэВ в NaI [68] показывают, что изменение энергии налетающего электрона с 1 кэВ до 1 МэВ приводит к малым изменениям средней энергии вторичного электрона - с 40 до 75 эВ. Энергия вторичного электрона определяет длину его свободного пробега и, следовательно, размер пространственной области, в которой находятся ЭВ. Результаты, полученные в [68], дают для таких энергий значения длины свободного пробега электронов в несколько ангстрем. В то же время электрон с энергией ~100 кэВ имеет длину трека в несколько сотен микрометров. Следовательно, трек может приближенно рассматриваться как

цилиндр диаметром несколько десятков ангстрем и длиной сотни микрометров, как это сделано в [37,38,66,69].

Конечно, эта модель не является вполне точной. Более строгий анализ показывает, что трек состоит из серии областей с неравномерным распределением ЭВ, продольный размер которых тоже имеет порядок десятков ангстрем [70]. Также имеется некоторая вероятность передачи вторичному электрону энергии, сравнимой с энергией падающего электрона. В этом случае вторичный электрон называется δ -электроном и создаёт новый трек, приводя к ветвлению исходного трека. Тем не менее, модель цилиндрического трека для объяснения многих сцинтилляционных явлений оказалась вполне подходящей [37,38,66,69]. Также важно отметить, что длина свободного пробега электрона, связанная напрямую со средней длиной трека, зависит от энергии налетающего электрона нелинейно [71]. Это приводит к тому, что средняя плотность ЭВ, создаваемых электроном, падает с увеличением его начальной кинетической энергии.

1.2.3. Нелинейность сцинтилляции

Как уже описано выше, в процессе сцинтилляции происходит ионизация среды и разделение зарядов – электронов и дырок. Восстановление равновесного состояния вещества идет, следовательно, через их рекомбинацию по сложным и разнообразным сценариям с формированием промежуточных ЭВ разных типов. В целом это означает, что сцинтилляция представляет из себя главным образом рекомбинационное излучение. Так, в книге [6] показано, что рекомбинационную природу имеют все разновидности КЛ – стационарная, квазистационарная и ИКЛ.

Рекомбинационный характер сцинтилляции служит основной причиной ряда явлений, объединяемых в настоящей работе под общим названием «нелинейность сцинтилляции». Согласно [72], главной характеристикой рекомбинационного процесса служит объёмная плотность n ЭВ, созданных ионизирующим излучением. Так, в случае чистой бимолекулярной рекомбинации

зависимость n от времени имеет вид гиперболы второго порядка (закон Э. Беккереля, 1868 г.), а интенсивность люминесценции пропорциональна n^2 [72].

1.2.3.1 Теоретические и экспериментальные исследования нелинейности сцинтилляции

В работе [73] под нелинейностью люминесценции понимается нелинейность зависимости интенсивности $I(t, Q)$ излучения некоторого объёма среды от величины поглощенной этим объёмом энергии Q . Основной причиной нелинейности сцинтилляции в [73] называется формирование пространственно разделённых электронов и дырок. Также нелинейность вызывается иными процессами взаимодействия между ЭВ, параметры которых зависят от n . В работе [73] дано детальное описание нелинейности сцинтилляции с учетом многих процессов (диполь-дипольное взаимодействие ЭВ между собой, описание замедления электрона в поляриза-ционном приближении и др.).

Простое аналитическое описание нелинейности сцинтилляции приведено в работе [37]. Согласно полученному результату, связь локального выхода сцинтилляции Y_l с плотностью ЭВ n в данной малой области вещества имеет вид $Y_l(n) = (a_1 + a_2 n) / (1 + a_3 n + a_4 n^2)$ при условии одноэкспоненциальности люминесцентного распада и при учете одно-, двух- и трехчастичных процессов взаимодействия и эволюции ЭВ (как излучательных, так и безызлучательных).

Параметры $a_1 \dots a_4$ аналитически выражаются через константы скоростей кинетических процессов [37]. Видно, что зависимость $Y_l(n)$ в общем случае существенно нелинейная, причем при разных значениях параметров $a_1 \dots a_4$ вид этой кривой может быть разным. Асимптотика этой зависимости такова: при $n \rightarrow \infty$ выход $Y_l \rightarrow 0$, а при $n \rightarrow 0$ выход $Y_l \rightarrow 1$.

Экспериментальные зависимости $Y_l(n)$ ФЛ кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, CdWO_4 , SrI_2 , CsI , CsI:Tl , NaI:Tl , ZnO , CdTe и $\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Te}$ опубликованы в работе [28]. ФЛ возбуждалась при комнатной температуре импульсным лазерным излучением на

длинах волн 203 и 210 нм. Длительность импульса составляла 0,5 пс. Измерение нелинейности ФЛ выполнялось методом z-сканирования параметров ФЛ образца вдоль оптической оси собирающей линзы. Образцы располагались в интегрирующей сфере. Параметры ФЛ измерялись при помощи фотоэлектрического умножителя (ФЭУ) без разрешения по длине волны.

Результаты работы показывают, что при плотности ЭВ 10^{18} - 10^{20} см⁻³ у всех исследуемых образцов наблюдаются нелинейные эффекты – уменьшение выхода ФЛ с ростом n . По виду кривых $Y_l(n)$ исследованные материалы классифицированы как вещества с доминирующим тушением второго и третьего порядка. Под тушением второго порядка понимается тушение в результате двухчастичных, а под тушением третьего порядка – трёхчастичных взаимодействий ЭВ между собой. Так, кристаллы $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ и CdWO_4 обладают тушением второго порядка, а SrI_2 – тушением третьего порядка.

Ограничения на круг материалов, нелинейность ФЛ которых измерена в работе [28], определяются максимальной энергией фотона лазерного излучения, равной 6,1 эВ. Таким образом, зависимости $Y_l(n)$ для кристаллов BaF_2 , MgF_2 , CaF_2 , α – кварца и др., имеющих значительную (до 10-11 эВ) ширину запрещенной зоны, не могут быть исследованы методом, использованным в [28].

С другой стороны, существует острая потребность в экспериментальных значениях параметров нелинейности сцинтилляции веществ, которая, в частности, отмечена в [37,38]. В этих работах для описания нелинейных сцинтилляционных процессов используется 13 параметров. При этом только 4-5 из них измерены экспериментально. Остальные параметры в [37,38] получены на основе приблизительных качественных оценок по порядкам величин и как подгоночные параметры при сопоставлении полученной авторами теории с экспериментами по непропорциональности выхода сцинтилляции под действием одиночных гамма-квантов и электронов.

Развитая в работах [37,38,73] теория объясняет механизм явления непропорциональности выхода Y сцинтилляции, возбуждаемой отдельными частицами ионизирующего излучения (главным образом – гамма-квантами) с разными энергиями [37-40,66,68,69,73] – к настоящему моменту наиболее изученного явления, связанного с нелинейностью сцинтилляции. Согласно выводам [37,38,73], непропорциональность возникает из-за одновременного влияния двух особенностей сцинтилляции: разных средних объёмных плотностей ЭВ в треках, создаваемых квантами разной энергии, и разных значений выхода люминесценции, соответствующих этим плотностям.

1.2.3.2. Нелинейность сцинтилляции под действием мощных потоков ионизирующего излучения

Механизмы сцинтилляционных процессов под действием мощных потоков ионизирующего излучения могут отличаться от механизмов процессов, вызванных в веществе отдельными высокоэнергетичными частицами. Действительно, в случае отдельных частиц в веществе формируется один трек с высокими значениями пространственной неоднородности ЭВ, в особенности вдоль радиуса трека. В то же время, при облучении тел мощными потоками ионизирующего излучения каждая из частиц пучка создаёт свой трек так, что треки, созданные разными частицами одного пучка, могут пространственно перекрываться, изменяя пространственное распределение плотности ЭВ.

В литературе имеются следующие данные о нелинейности сцинтилляции под действием мощных потоков ионизирующего излучения. К настоящему моменту исследованы особенности сцинтилляции под действием мощного излучения синхротрона [29,30], рентгеновского лазера на свободных электронах [31-34], ультрафиолетового лазера [28,34], мощных ионных [23,35] и электронных пучков [6,23-26,36].

Измерения нелинейности зависимости выхода ФЛ кристаллов-сцинтилляторов и, в частности, собственной ФЛ кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, от объёмной плотности электронно-дырочных пар, выполнены в работе [28]. Зависимости энергии ИКЛ ряда кристаллов-сцинтилляторов, среди которых - PbWO_4 , CeF_3 и BaF_2 , от полного заряда электронов с энергией 70 МэВ, поглощённого образцами, измерены в [36]. Зависимости интенсивности КЛ от пиковой плотности электрического тока пучка с энергией 300 кэВ для ряда кристаллов и, в частности, BaF_2 , приведены в [24]. Отметим, что зависимость выхода КЛ от плотности ЭВ, созданных электронным пучком, в [24,36] не исследовалась.

1.3. Кристаллические неорганические сцинтилляторы

Сцинтиллятором называется вещество, сцинтилляция которого используется для измерения параметров ионизирующего излучения. Высокий уровень развития фотодетекторов ближних ультрафиолетового, инфракрасного и, особенно, видимого диапазона делает метод сцинтилляционной диагностики ионизирующего излучения чрезвычайно эффективным.

Главные характеристики сцинтиллятора - это спектр, выход и время высвечивания сцинтилляции, а также радиационная и химическая стойкость. Немаловажный параметр, также, - стоимость сцинтиллятора. В настоящей работе мы касаемся неорганических сцинтилляторов в форме кристаллов. Такие вещества обладают высокой радиационной и химической стойкостью, а также имеют высокие значения выхода сцинтилляции и времена высвечивания вплоть до долей наносекунд.

Поиск новых сцинтилляционных материалов в настоящий момент актуален, так как характеристики известных сцинтилляторов в настоящий момент пока не достигают своих теоретически-предсказанных максимальных значений [56,74].

Далее приведен обзор литературы по характеристикам неорганических сцинтилляторов. В настоящей работе исследовались ИКЛ либо непосредственно этих материалов, либо новых составов на основе веществ этого класса.

1.3.1. Редкоземельные оксиортосилликаты

К этой группе относятся кристаллы с химической формулой Re_2SiO_5 , где Re – редкоземельный ион. Впервые о выращивании таких веществ и об их сцинтилляционных свойствах сообщили отечественные ученые [75]. Высокие сцинтилляционные характеристики были обнаружены у составов $\text{Gd}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ [76], $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ [77] и др. Составы класса редкоземельных оксиортосилликатов обладают высоким световыходом (до 95% NaI:Tl), малыми временами высвечивания (до ~20 нс), высокой радиационной и химической устойчивостью.

1.3.1.1. Лютециевые оксиортосилликаты

Выдающиеся сцинтилляционные характеристики состава $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ (далее LSO:Ce) обнаружены Ч. Мельчером и Д. Швейцером [77]. Кристалл LSO:Ce имеет высокий выход сцинтилляции под действием гамма-излучения - 75% NaI:Tl , время высвечивания ~40 нс и высокую радиационную стойкость. В то же время, в процессе роста кристаллов большого размера возникли серьёзные проблемы. Обнаружилась высокая вероятность растрескивания кристалла, что ограничивало размер выращенных кристаллов несколькими сантиметрами.

Для решения этой проблемы сотрудники Лаборатории физики роста кристаллов ИОФАН им. А. М. Прохорова предложили дополнительно легировать кристалл LSO:Ce двухвалентными ионами для формирования анионных и катионных вакансий [78]. Предложенная технология не только позволила выращивать крупные кристаллы LSO:Ce, но и привела к уменьшению времени высвечивания сцинтилляции этих кристаллов с 44 нс в случае LSO:Ce без дополнительного легирования до 39 нс у кристалла LSO:Mg:Ce.

Дальнейший поиск дополнительных легирующих примесей для LSO:Ce привел к созданию в Лаборатории физики роста кристаллов ИОФАН им. А. М. Прохорова кристалла LFS-3 [79]. Полученный состав имеет световыход 95% NaI(Tl) и время высвечивания 35 нс.

1.3.1.2. Скандиевые оксиортосилликаты

В настоящий момент в литературе описана люминесценция только одного типа скандиевых оксиортосилликатов – кристалла Sc_2SiO_5 . Впервые сцинтилляционные параметры этого вещества были исследованы в работе [80], где было обнаружено, что этот материал обладает яркой СЛ, легко возбуждаемой без дополнительного легирования при комнатной температуре. Подробные исследования механизма СЛ этого вещества, выполненные в работе [81], показали, что СЛ этого состава состоит из двух полос излучения: первая - длительностью ~ 2 нс и максимумом интенсивности в области 280 нм, и вторая - длительностью порядка мкс и максимумом интенсивности в области 340 нм.

В той же работе установлено [81], что свойства наблюдаемой люминесценции схожи со свойствами СЛ Sc_2O_3 [82]. Авторы [81] предположили, что механизм СЛ Sc_2SiO_5 , как и Sc_2O_3 , связан с туннельной рекомбинацией ЭВ, захваченных на ловушки.

1.3.2. Редкоземельные гранаты

Кристаллы с химической формулой $\text{Re}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (ReAG), где Re - редкоземельный элемент (известны составы с Y, Dy, Er, Tm, Yb, Sc, Ce и Lu), относятся к классу редкоземельных гранатов [83]. Хорошо известны применения кристаллов этого типа в лазерной технике. Также кристаллы этого класса обладают прекрасными сцинтилляционными характеристиками [83].

С точки зрения сцинтилляционных свойств иттриевый гранат $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, обладающий массовой плотностью $4,56 \text{ г/см}^3$ и эффективным атомным номером $Z_{eff} = 32,6$, существенно проигрывает лютециевому гранату $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (LuAG), имеющему плотность $6,7 \text{ г/см}^3$ и $Z_{eff} = 60$. В то же время, лютеций как исходный реактив для роста лютециевых сцинтилляторов имеет высокую стоимость в сравнении с другими редкоземельными элементами (гадолинием, иттрием и др.), и на практике широко используются соответствующие комбинации катионов. Стехиометрический состав $\text{Lu}_x\text{Y}_{3-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^{3+}$, где $0 < x < 3$, в котором часть лютеция заменена на иттрий (LuYAG:Ce) исследован в работе [84].

В работе [85] исследовалась радиационная деградация оптических свойств кристаллов LuAG:Ce и LuAG:Pr под действием радиоактивного источника ^{60}Co . Максимальный наведённый коэффициент поглощения в кристалле LuAG:Ce составил $0,08\text{ см}^{-1}$ в диапазоне длин волн 500-750 нм при поглощенной образцом дозе 10 Мрад. Максимальный наведенный коэффициент поглощения после облучения кристалла LuAG:Pr гамма-излучением дозой равной 2 Мрад, составил $2,3\text{ см}^{-1}$ в области 300-900 нм. Таким образом, авторы пришли к выводу, что LuAG:Ce намного более радиационностоек по сравнению с LuAG:Pr по отношению к разрушающему воздействию гамма-излучения.

В работе [86] исследовалась радиационная деградация оптического пропускания (ОП) кристаллов YAG:Ce, LuYAG:Ce, LuAG:Ce и $(\text{Gd,Y})_3(\text{Ga,Al})_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$ (GYGAG:Ce) под действием гамма-излучения источника ^{60}Co . Доза, поглощенная кристаллами, составляла 3,8 Мрад. Наведенный коэффициент YAG:Ce и LuYAG:Ce не превосходил $0,1\text{ см}^{-1}$, LuAG - не превосходил $0,04\text{ см}^{-1}$ и GYGAG:Ce - не превосходил $0,01\text{ см}^{-1}$.

Спектрально-люминесцентные и временные характеристики Cr^{3+} на переходе $^2\text{E}-^4\text{A}_2$ в твердых растворах $\text{Lu}_{3x}\text{Y}_{3-3x}\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ($0 < x < 1$) изучены в работе [87]. Выращивание крупных нестехиометрических кристаллов лазерных гранатов Nd:Cr:GSGG ($\text{Gd}_{2.957}\text{Sc}_{1.903}\text{Ga}_{3.138}\text{O}_{12}$) диаметром 130 мм и весом 21 кг описано в работе [88]. Для достижения высокого оптического качества кристаллы дополнительно легировали ионами церия Ce^{3+} и кальция Ca^{2+} . Ионы хрома Cr^{3+} обеспечивают высокую радиационную стойкость Nd:Cr:GSGG и сохранение эффективной генерации в инфракрасной области на длине волны 1 мкм после облучения дозой до 100 Мрад.

Данных об исследовании радиационных повреждений нестехиометрических кристаллов лютеций-иттриевого граната, легированного ионами хрома и церия, в литературе до настоящего времени не было.

1.3.3. Фторидные сцинтилляторы с собственной люминесценцией

Составы на основе фтора обладают значительной шириной запрещенной зоны (~ 10 эВ). Многие из них обладают яркой собственной люминесценцией. Во фторидах обнаружены явления автолокализации экситонов и дырок [89], кросс-люминесценция [90] и другие интересные физические процессы.

1.3.3.1 Фторид бария

Собственная люминесценция BaF_2 в области ~ 300 нм связана с излучательным распадом АЛЭ [89-92]. Кинетика СЛ на этой длине волны представляется в виде суммы двух экспонент с временами высвечивания ~ 600 нс и ~ 4 мкс. Наличие двух времен высвечивания на одной длине волны авторы [92] связывают с распадами двух триплетных подуровней АЛЭ, расщепленных в кристаллическом поле. Согласно [56], время высвечивания сцинтилляции АЛЭ BaF_2 составляет 620 нс, световыход сцинтилляции - $\sim 10^4$ фотонов/МэВ, а максимум интенсивности сцинтилляции расположен на длине волны 310 нм.

Помимо этого, у BaF_2 обнаружена кросс-люминесценция с максимумом интенсивности в области 215 нм [90,93,94], соответствующая переходам между состояниями валентной зоны $2p(\text{F}^-)$ и верхней основной зоны $5p(\text{Ba}^{2+})$, между которыми имеется соответствующий энергетический зазор. Время высвечивания кросс-люминесценции BaF_2 рекордно мало и составляет 660 пс [56]. Согласно [56], световыход кросс-люминесценции BaF_2 составляет 1400 фотонов/МэВ.

1.3.3.2 Фторид церия

Собственная люминесценция фторида церия CeF_3 исследована в [95-101]. CeF_3 обладает двумя полосами СЛ с максимумами интенсивности в области 300 и 350 нм, которые имеют разные механизмы свечения. Согласно [97-100], полоса в области 300 нм относится к излучению ионов Ce^{3+} , расположенных в регулярных узлах кристаллической решетки. В то же время полоса в области 350 нм относится к излучению ионов Ce^{3+} , находящихся в участках кристаллической решетки,

геометрия которых искажена из-за близкого расположения дефектов. В соответствии с [97], время высвечивания ФЛ на длине волны 300 нм составляет ~20 нс, а на длине волны 340 нм – ~35 нс. Согласно [99], на длине волны 290 нм время высвечивания ФЛ составляет 17 нс.

Кинетика РЛ CeF_3 на длине волны 290 нм, возбуждаемая γ -квантами с энергией 511 кэВ, отличается от кинетики ФЛ. Распад РЛ описывается суммой трех экспонент с временами высвечивания 1,3 нс (45%), 6,5 нс (36%) и 19 нс (19%) [100].

1.3.4. Оксиды с собственной люминесценцией при комнатной температуре

Одним из первых предложенных оксидных сцинтилляторов на основе собственной люминесценции был CdWO_4 [102]. Достоинство сцинтилляторов на основе СЛ состоит в том, что при выращивании крупных (~1 м) кристаллов их сцинтилляционные свойства остаются однородными по объёму в отличие от кристаллов с активаторной сцинтилляцией, в которых из-за действия гравитационного поля в ходе выращивания кристалла концентрация активатора, а значит и сцинтилляционные характеристики, заметно различаются вверху и внизу ростовой були. Дополнительным достоинством оксидов на основе СЛ служит их химическая стойкость и негигроскопичность.

1.3.4.1 Германат висмута

Состав на основе германата висмута $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ предложен в работе [103]. Установлено, что максимум СЛ при комнатной температуре как под действием рентгеновского излучения с энергией квантов 50 кэВ, так и под действием ксеноновой лампы, расположен в области 480 нм. Время высвечивания СЛ сильно зависит от температуры, достигая 10 мкс при криогенных температурах. При комнатной температуре оно составляет ~300 нс. Механизм СЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ связан с излучательным распадом АЛЭ [104]. Обнаружена зависимость вида кинетики СЛ от мощности воздействия [104]. По данным [56], время высвечивания сцинтилляции $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ при комнатной температуре составляет 300 нс.

1.3.4.2 Вольфрамат свинца

Кристалл PbWO_4 (PWO) относится к группе вольфраматов, к которой также принадлежат CaWO_4 и CdWO_4 . PbWO_4 обладает неэлементарной полосой СЛ с максимумом интенсивности в области 420 нм при комнатной температуре [105,106]. Механизм СЛ PbWO_4 – распад АЛЭ [105,106]. Кристалл обладает малым временем высвечивания сцинтилляции – 6 нс [56]. Выход РЛ материала составляет 100 фотонов/МэВ [56].

1.4 Люминесценция диоксида кремния

Люминесценция диоксида кремния (SiO_2) в настоящий момент наиболее изучена по сравнению с люминесценцией других широкозонных оксидов. Интерес к исследованию SiO_2 значителен по причине того, что этот материал широко применяется в оптике, электронике, электротехнике, как конструкционный материал, и др. Помимо этого, SiO_2 является одним из наиболее распространённых на Земле веществ. Так, массовая доля кварца составляет ~12% от массы всей земной коры [107].

Известны следующие кристаллографические модификации SiO_2 : α -кварц, β -кварц, α - и β -тридимит, α - и β -кристобалит, кацит, коэзит и стишовит, а также стекольная, аморфная и высокодисперсная [108]. Модификации с литерой « α » обозначают модификации диоксида кремния, структуры которых принадлежат тетрагональной сингонии, а с литерой « β » - кубической. Структурный элемент почти всех как кристаллических, так и аморфных объёмных модификаций SiO_2 (за исключением стишовита) - тетраэдр SiO_4 [108]. Структурный элемент стишовита – октаэдр SiO_6 .

Многие механизмы люминесценции и иные свойства эксито-нов [110] и дефектов [111] в SiO_2 подробно изучены. В работе [112] показано, что люминесценция α -кварца под действием рентгеновского излучения и электронного пучка в области 480 нм при температуре 77 К является СЛ, связанной с распадом

АЛЭ. Люминесценция высокодисперсного SiO_2 связана как с распадом АЛЭ, так и с дефектами в объёме и на развитой поверхности частиц [112-116].

1.5. Взаимодействие центров люминесценции диоксида кремния с молекулами окружающего газа

В ходе исследований ФЛ высокодисперсного SiO_2 в атмосфере различных газов авторы работ [41,42] обнаружили, что помещение образца высокодисперсного SiO_2 в газы N_2 , O_2 , CO_2 и пары воды приводит к тушению его ФЛ, что свидетельствует о взаимодействии излучателей ФЛ с окружающим газом.

Авторы [41,42] исследовали ФЛ порошков Аэросил-90, Аэросил-150, Аэросил-200 и Аэросил-300 с площадью поверхности 90, 150, 200 и 300 $\text{м}^2/\text{г}$ соответственно. ФЛ возбуждалась лазерным излучением на длине волны 336 нм. Длительность импульса составляла 5 нс, плотность мощности на образце – 200 $\text{мкДж}/\text{см}^2$.

Исследовалась ФЛ на длине волны 371 нм, связанная с центрами люминесценции, расположенными на поверхности наночастиц SiO_2 . Установлено, что энергия ФЛ на 20% меньше в атмосфере N_2 , на 50% - в атмосфере O_2 , на 30% - в CO_2 и на 60% - в парах воды по сравнению с ФЛ в вакууме. Давление напускаемых газов составляло 10^{-3} атм, остаточное давление газов, остающееся после откачки, составляло 10^{-9} атм.

Авторы обнаружили, что в атмосферах некоторых газов изменилось время высвечивания ФЛ. Так, в атмосфере N_2 оно составило 80% от времени высвечивания в вакууме, в атмосфере O_2 – 40%, в CO_2 – 67%, а в атмосфере водяных паров оно не изменилось.

Приведенные результаты показывают наличие взаимодействия ЭВ диоксида кремния и молекул окружающих газов. По нашим сведениям, о сенсibilизации излучения молекул газа при их взаимодействии с поверхностью SiO_2 в литературе данных нет.

1.6 Передача энергии электронного возбуждения от экситонов в пористом кремнии молекулам кислорода окружающего газа

Возможность оптического возбуждения интеркомбинационных переходов между уровнями атомных частиц при передаче энергии электронного возбуждения от экситонов, создаваемых в твёрдом теле, впервые обнаружена в работе Д. Ковалева и др. [43] на примере возбуждения перехода $^3\Sigma-^1\Sigma$ молекул кислорода, адсорбированных на поверхности пористого кремния, в котором под действием лазерного излучения возбуждались экситоны. Была зарегистрирована ФЛ молекул O_2 на переходе $^1\Sigma-^3\Sigma$, а также усиление тушения ФЛ пористого кремния с ростом числа адсорбированных молекул.

Обширные исследования [43-55] позволили изучить многие свойства исследуемого процесса, а также обосновали возможность его биомедицинских применений. В работе [51] обнаружено фотовозбуждение свечения синглетного кислорода, находящегося в газовой фазе при комнатной температуре. Теория процесса на основе обменного взаимодействия представлена в [54,55]. На главную роль обменного взаимодействия в этих процессах указано также в работах [43-47].

1.7 Излучение молекулярного азота

Молекула N_2 и молекулярный ион N_2^+ обладают многими системами полос излучения. При атмосферном давлении главным образом наблюдаются полосы излучения второй положительной системы нейтральной молекулы N_2 и первой отрицательной системы молекулярного иона N_2^+ . Эти две системы полос наблюдались и в настоящей работе. По этой причине другие полосы излучения N_2 (первая, третья и четвертая положительная система, системы Вегарда-Каплана, Лаймана-Бёрджа-Гопфильда, Ван дер Циля и др.) здесь не обсуждаются.

1.7.1. Основное состояние молекулы N_2

Электронный терм основного состояния молекулы N_2 имеет конфигурацию $X^1\Sigma_g^+$ и чистый тип связи «b» по Гунду. Вращательный терм основного состояния $F^0(K)$ в этом случае вычисляется по следующей формуле: $F^0(K) = B_v^0 K(K + 1) -$

$D_v^0 K^2 (K + 1)^2$, где K – вращательное квантовое число, B_v^0 и D_v^0 – функции колебательного квантового числа v [117].

Колебательный терм $G^0(v)$ в этом случае может быть представлен как $G^0(v) = \omega^2(v + 1/2) - x(v + 1/2)^2$. Расстояние между колебательными уровнями, соответственно, вычисляется как $\Delta G(v) = G^0(v + 1) - G^0(v)$. Значения молекулярных констант для основного состояния приведены в Табл. 1-1. Значения молекулярных констант взяты из [118].

Табл. 1-1. Молекулярные константы состояния $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ в см^{-1}

v	0	1	2	3
B_v^0	1.9898	1.9720	1.8548	1.9364
D_v^0	$6.4 \cdot 10^{-6}$	-	$5.1 \cdot 10^{-6}$	$5.5 \cdot 10^{-6}$
$\Delta G(v)$	2329.66	2301.17	2272.61	2243.97

Энергия диссоциации молекулы N_2 из основного состояния $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ с вращательным квантовым числом, равным 0, в состояние $N(^4S) + N(^4S)$ составляет 9,7566 эВ, в $N(^4S) + N(^2D)$ – 12,1399 эВ, в $N(^2D) + N(^2D)$ – 14,52326 эВ [118]. Наименьшая энергия ионизации молекулы N_2 с вращательным квантовым числом, равным 0, при переходе из основного состояния $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ в основное состояние $X^2\Sigma_g^+$ невращающегося иона N_2^+ составляет 15,5813 эВ [118]. Энергия ионизации из основного состояния $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ с нулевым вращательным числом с возбуждением состояния $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$ с нулевым вращательным квантом равна 18,7635 эВ.

Табл. 1-2. Канты колебательных полос 2^+N_2 в нм по данным [118]

$v' \setminus v''$	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
0	337,14	357,69	380,49	405,94	434,36	466,73	503,15	545,2				
1	315,93	333,89	353,67	375,55	399,84	426,97	457,43	491,68	530,93			
2	297,68	313,6	330,9	350,05	371,06	394,3	420,05	449,02	481,47	517,93		
3	281,98	296,2	311,67	328,53	346,9	367,19	389,46	414,18	441,67	472,35	506,6	
4	268,7	281,43	295,32	310,4	326,81	344,6	364,17	385,79	409,48	435,5	464,94	497,64

1.7.2. Вторая положительная система полос излучения молекулы N₂

Вторая положительная система полос излучения нейтральной молекулы N₂ (далее 2⁺N₂) соответствует электронному переходу C³Π_u-B³Π_g. Оба состояния принадлежат к промежуточному типу связи [118]. Для слабого вращения их можно отнести к типу «а» по Гунду. Это означает, что расщепление, связанное со спин-орбитальным взаимодействием, превышает разность энергий соседних вращательных уровней. По мере увеличения вращения наблюдается переход к типу связи «b» по Гунду, который соответствует энергии спин-орбитального взаимодействия, меньшей, чем разность энергий ближайших вращательных уровней.

Табл. 1-3. Положения электронно-колебательных термов невозбужденных вращательных состояний молекулы N₂ относительно основного состояния X¹Σ_g⁺ с нулевыми значениями вращательных квантов по данным [119].

Колебательное квантовое число ν	Электронно- колебательный терм состояния B ³ Π _g , см ⁻¹	Электронно- колебательный терм состояния C ³ Π _u , см ⁻¹
0	59266,22	88941,24
1	60971,72	90936,19
2	62648,06	92877,77
3	64295,50	94753,03
4	65913,94	96536,12
5	67503,25	
6	69063,53	
7	70594,63	
8	72096,42	
9	73568,75	
10	75011,51	
11	76424,59	

Состояние $C^3\Pi_u$ обладает пятью колебательными подуровнями, состояние $B^3\Pi_g$ – двенадцатью. Колебательные полосы 2^+N_2 расположены в диапазоне 260-550 нм и имеют фиолетовое оттенение, канты тройные. В Табл. 1-2 приведены положения кантов колебательных полос 2^+N_2 по данным [118]. Основная интенсивность сосредоточена в линиях R - ветвей. Порог возбуждения этого излучения составляет 11,027 эВ [119].

В Табл. 1-3 приведены положения электронно-колебательных термов состояний $N_2(B^3\Pi_g)$ и $N_2(C^3\Pi_u)$ с нулевыми значениями вращательного квантового числа по данным [119]. За нулевой уровень энергии принято положение основного состояния $N_2(X^1\Sigma_g^+)$.

1.7.3. Первая отрицательная система полос излучения молекулярного иона N_2^+

Система полос соответствует электронному переходу $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$ однократно ионизованного иона молекулы азота N_2^+ . Оба состояния относятся к типу связи «b» по Гунду. Имеются P - и R - ветви. Каждая линия содержит 3 спиновые компоненты. Интенсивные полосы имеют фиолетовое оттенение, канты одинарные. Порог возбуждения этого излучения составляет 18,7635 эВ [118]. В Табл. 1-3 приведены канты полос этой системы.

Табл. 1-3. Канты колебательных полос $1^-N_2^+$ в нм по данным [118]

$v' \backslash v''$	0	1	2	3	4	5	6	7	8
0	391,44	427,81	470,92	522,83	586,47				
1	358,21	388,43	423,65	465,18	514,88	575,44			
2	330,80	356,39	385,79	419,91	459,97	507,66	565,31		
3	307,82	329,87	354,89	383,54	416,68	455,41	501,27	556,41	
4		307,64	329,34	353,83	381,81	414,05	451,59	495,79	548,55

1.8. Заключение к обзору литературы. Постановка задачи.

Из приведенного обзора литературы следует, что в настоящий момент метод ИКЛ исследования веществ активно применяется в физике твёрдого тела и геологии [6,13-27]. Особенности метода ИКЛ главным образом связаны с достаточно высокими пиковыми силами тока пучка – до ~ 1 кА, малыми длительностями импульсов – от субнаносекунд до десятков наносекунд, и кинетическими энергиями частиц пучка 100-300 кэВ, позволяющими выводить электроны в атмосферу и исследовать ИКЛ веществ на открытом воздухе.

Механизмы излучательных процессов при возбуждении ИКЛ, понимание которых определяет достоверность получаемой методом ИКЛ информации о веществе, могут быть подвержены сильному влиянию со стороны двух главных факторов – высокой плотности ЭВ, создаваемой сильноточным электронным пучком, и взаимодействием ЭВ, созданных в веществе электронным пучком, с окружающей атмосферой молекул воздуха на границе «воздух-поверхность твёрдого тела». Именно эти процессы исследуются в настоящей работе.

В качестве объекта исследования процессов, происходящих на границе воздух-поверхность, выбран высокодисперсный диоксид кремния, так как для этого материала ранее были обнаружены процессы взаимодействия центров люминесценции с окружающими газами [41,42]. В настоящей работе физические процессы при возбуждении ИКЛ высокодисперсного SiO_2 в атмосфере воздуха сопоставлены с излучательными процессами при бомбардировке электронами металлических мишеней в тех же условиях. Обнаружены различия в механизмах возбуждения излучения 2^+N_2 .

Как показано в обзоре литературы, разработка новых методов измерения нелинейных параметров сцинтилляции веществ и измерение с их помощью характеристик сцинтилляции конкретных материалов, в частности, со значительной шириной запрещенной зоны, представляет в настоящий момент значительный интерес [37-40].

В работе исследованы характеристики параметров возбуждения вещества, создаваемого электронным пучком, и определяется роль нелинейных

сцинтилляционных процессов. Для измерений параметров нелинейности ИКЛ предложен новый метод, позволяющий исследовать нелинейность сцинтилляции веществ с любой шириной запрещенной зоны. Корректность метода установлена экспериментально на основе анализа зависимости энергии излучения 2^+N_2 свободного воздушного промежутка от энергии рентгеновского излучения, возбуждаемого пучком электронов. При помощи предложенного метода исследована нелинейность ИКЛ ряда кристаллов, в частности, - BaF_2 и CeF_3 с шириной запрещенной зоны ~ 10 эВ, и впервые сделаны оценки зависимости выхода их сцинтилляции от плотности ЭВ. Показано влияние плотности ЭВ на спектр сцинтилляции вещества.

Сцинтилляторы в настоящий момент используются во многих отраслях науки, промышленности и медицины [56,57]. Несмотря на широкое распространение и многолетние исследования, теоретически возможные предельные параметры сцинтилляторов в настоящий момент не достигнуты [56,57,74]. Следовательно, создание и характеристика параметров новых сцинтилляторов и поиск способов улучшения их характеристик представляет собой актуальную научно-техническую задачу.

В работе определяются ограничения, накладываемые особенностями метода ИКЛ на измерение кинетики и спектральной плотности энергии сцинтилляции веществ. Используя полученные данные, исследованы спектрально-кинетические параметры и радиационные повреждения ряда новых сцинтилляционных материалов на основе оксиортосилликатов, оксиортованадатов и лютеций-иттриевого граната.

1.8.1 Цель работы

Цель работы – изучение излучательных процессов в твердом теле и газе при бомбардировке широкозонных веществ электронами с энергией 50-300 кэВ на воздухе при нормальных условиях. Установление в них роли взаимодействия ЭВ твердого тела с частицами газа и друг с другом при их высокой плотности. Определение на основе этих данных сцинтилляцион-ных характеристик ряда новых кристаллов.

1.8.2 Задачи, решаемые в работе

1. Исследовать спектрально-кинетические параметры ИКЛ при бомбардировке электронами свободного воздушного промежутка, мишеней из алюминия и высокодисперсного SiO_2 в атмосфере воздуха и выяснить механизмы наблюдаемых излучательных процессов.

2. Разработать метод исследования нелинейности зависимостей параметров ИКЛ широкозонных материалов от энергии пучка электронов.

3. Исследовать разработанным методом нелинейные характеристики ИКЛ кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 .

4. Определить ограничения, накладываемые на измерения спектрально-кинетических параметров сцинтилляции веществ, при их измерении методом ИКЛ и, используя эти данные:

а) определить спектрально-кинетические параметры ИКЛ новых составов $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^{3+}:\text{Li}^+:\text{Sc}^{3+}$, LuScSiO_5 , $\text{GdVO}_4:\text{Ca}^{2+}$ и $\text{YVO}_4:\text{Ca}^{2+}$,

б) исследовать радиационные повреждения, наведенные гамма-облучением, в сцинтилляторах LFS-3 и $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}:\text{Ce}:\text{Cr}$.

Глава 2. Техника и методика эксперимента

2.1. Возбуждение ИКЛ

Возбуждение ИКЛ в настоящей работе выполнялось электронами ускорителя РАДАН-ЭКСПЕРТ [120,121], изготовленного в Институте Электрофизики Уральского отделения РАН. Принцип действия ускорителя основан на явлении взрывной эмиссии электронов (ВЭЭ) [7,8].

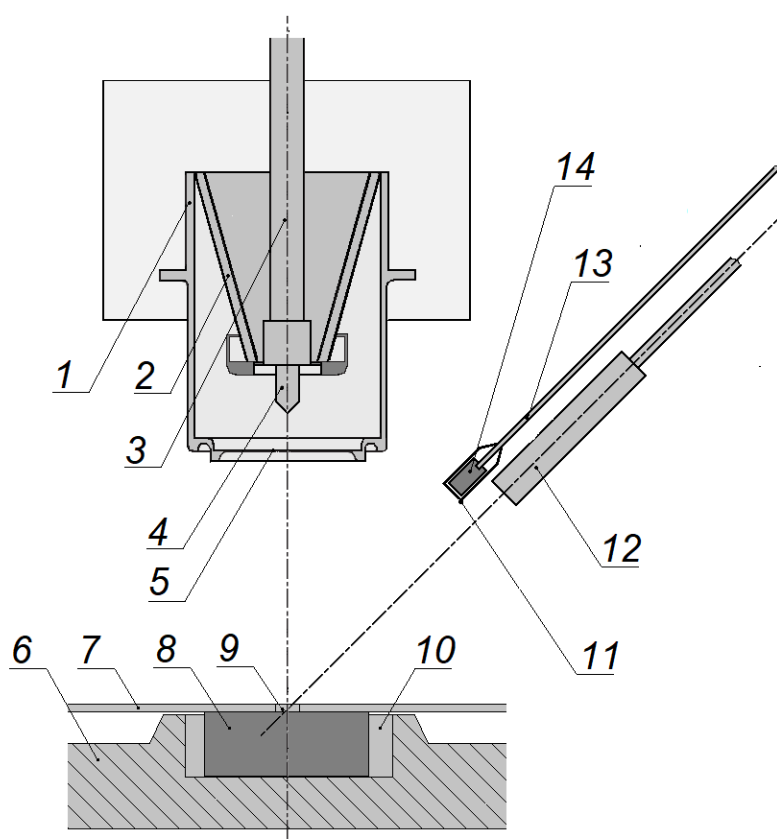


Рис. 2-1. Схема возбуждения ИКЛ: 1– заземлённый металлический корпус электронной трубки ИМАЗ-150Э; 2- стеклянный изолятор; 3-ввод высокого напряжения; 4-острый взрывоэмиссионный катод, 5-прострельный анод, жестко скрепленный с корпусом трубки (1); 6-дюралевый столик; 7-латунная фольга (заземлена); 8-исследуемый образец; 9-круглое отверстие в фольге (7) диаметром 7 мм; 10-цилиндрический паз в дюралевом столике; 11-алюминиевая фольга; 12-кварцевый оптоволоконный кабель для регистрации ИКЛ; 13-кварцевый оптоволоконный кабель для регистрации рентгеновского излучения; 14-пластиковый сцинтиллятор полистирол:по-поп+ π -терфинил для регистрации рентгеновского излучения.

На Рис. 2-1 представлена схема возбуждения ИКЛ. Напряжение амплитудой 150 кВ и временем нарастания 0,5 нс прикладывалось к высоковольтному вводу электронной трубки ИМА3-150Э (Рис. 2-1, 3) с частотой 1 Гц. На поверхности острейного вольфрамового катода (Рис. 2-1, 4) происходил электрический взрыв микронеоднородностей и ВЭЭ. В вакуумном промежутке между катодом и заземленным прострельным анодом из бериллиевой фольги (Рис. 2-1, 5) электронный пучок ускорялся в приложенном импульсном электрическом поле и затем через бериллиевую фольгу выводился в атмосферу. Система, изображенная на Рис. 2-1, помещалась в защитную свинцовую камеру со стенками толщиной 1 см (на рисунке не показана).

Исследуемые образцы (Рис. 2-1, 8) располагались параллельно аноду на расстоянии от него, равном 2 см. Образцы устанавливались на заземленный воронёный дюралевый столик (Рис. 2-1, 6), содержащий цилиндрический паз диаметром 28 мм (Рис. 2-1, 10). В ходе экспериментов, описанных в Гл. 3, в этот паз засыпался высокодисперсный порошок SiO_2 . Алюминиевая фольга в тех экспериментах накладывалась сверху порошка, и диаметр алюминиевого диска с точностью не хуже 1 мм совпадал с диаметром паза.

Для исследований излучения свободного воздушного промежутка столик (Рис. 2-1, 6) полностью убирался. Таким образом, пучок выводился в кубическое пространство со стороной ~ 10 см, заполненное воздухом при атмосферном давлении.

В ряде исследований, посвященных нелинейности ИКЛ (Гл. 4), образцы дополнительно накрывались латунной фольгой толщиной 250 мкм (Рис. 2-1, 7) и отверстием диаметром 7 мм (Рис. 2-1, 10) для создания одинаковых условий возбуждения ИКЛ у кристаллов, имеющих разные размеры. В остальных главах эта диафрагма не использовалась. Также в Гл. 4 исследовался образец $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, имеющий большой размер: его форма близка к цилиндрической диаметром 4 см и длиной 6 см. При исследовании ИКЛ этого материала также столик (Рис. 2-1, 6) был убран, так как все его место занимал образец. Была исследована ИКЛ как

образца самого по себе, так и накрытого латунной фольгой с отверстием (Рис. 2-1, 7) и стальной сеткой (не показана на Рис. 2-1).



Рис. 2-2. Функция распределения электронов ускорителя РАДАН-ЭКСПЕРТ по энергиям [121].

Сбор излучения ИКЛ выполнялся кварцевыми оптоволоконными кабелями (Рис. 2-1, 12) разной длины для измерений кинетики и спектров ИКЛ. Диаметр сердцевины всех использованных оптоволоконных кабелей составлял 1 мм. Измерение интенсивности рентгеновского излучения выполнялось сцинтилляционным датчиком на основе сцинтиллятора полистирол:попоп+ π -терфинил (Рис. 2-1, 14). Хорошо известно, что пластиковые сцинтилляторы этого типа обладают временем высвечивания сцинтилляции на уровне единиц нс. Сцинтиллятор был закрыт от оптического излучения тремя слоями алюминиевой фольги толщиной 10 мкм каждый. Такой заградительный фильтр пропускает рентгеновские фотоны с энергией от 4 кэВ и более.

Измерения параметров электронного пучка ускорителя РАДАН-ЭКСПЕРТ, выполненные в [120,121], показали, что приложение напряжения с указанными выше параметрами к трубке ИМА3-150Э приводит к серии импульсов электронов длительностью 1-2 нс каждый и временным промежутком между ними 4,5 нс.



Рис. 2-3. Фотография поперечного сечения электронного пучка электронов.

Плотность числа электронов в каждом импульсе составляет $(5-8) \times 10^{11}$ эл/см², пиковая плотность электрического тока – 60 А/см². Оценка выделения энергии в воде на расстоянии 10 и 25 см от выхода электронно-лучевой трубки, согласно [120,121], составляет значения 2,4 и ~0,6 кГр соответственно. Также в [120,121] измерена ФРЭЭ, представленная на Рис. 2-2.

Поперечное сечение пучка ускорителя было измерено с использованием пластин Fuji FD ImagePlate. На Рис. 2-3 приведен результат измерений однократного импульса. Пластина была завернута в алюминиевую фольгу толщиной 20 мкм. Перед пластиной была установлена стальная сетка с размером клетки 1 мм, изображение которой и можно наблюдать.

На Рис. 2-4 приведено распределение почернения пластины ImagePlate, изображенной на Рис. 2-3, вдоль направления, перпендикулярного оси электронного пучка. Штрихпунктирной линией показано наилучшее приближение наблюдаемой кривой функцией Гаусса с шириной на полувысоте ~1,1 см. Минимумы на Рис. 2-4 соответствуют расположению в этих местах стальной проволоки, поглощающей ионизирующее излучение. Почернение пластин

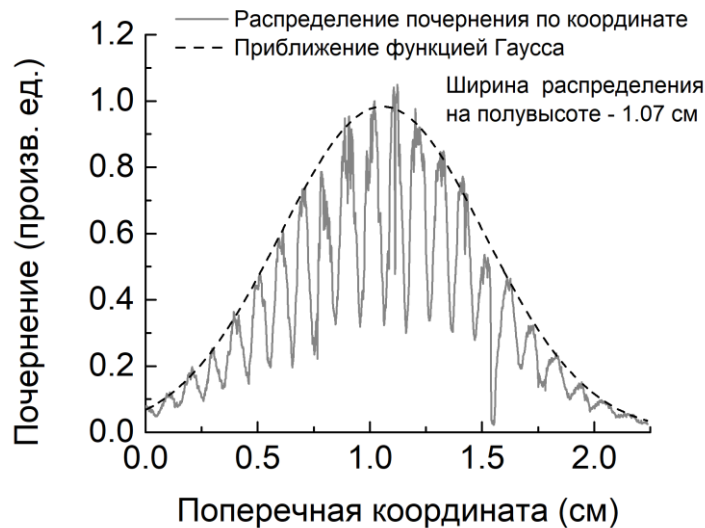


Рис. 2-4. Распределение почернения в пластине ImagePlate, вызванного однократным импульсом электронов, по координате (обработка Рис. 2-3).

ImagePlate пропорционально дозе поглощенного ионизирующего излучения. Видно, что поперечное сечение пучка имеет гауссов профиль.

2.2. Измерения спектров ИКЛ

Схема измерений спектрально-кинетических параметров ИКЛ приведена на Рис. 2-5. В экспериментах по измерению спектральной плотности энергии (спектра) ИКЛ для сбора излучения и передачи светового сигнала к измерительной аппаратуре использовался кварцевый оптический кабель диаметром 1 мм и длиной 1 м, имевший область прозрачности в диапазоне от 200 до ~2000 нм, направлявший излучение на входную щель спектрометра OCEAN-FLAME-S-XR1-ES, ширина которой была равна 25 мкм.

Спектральное разрешение спектрометра составляло 1-2 нм, спектральный диапазон - 200-1024 нм. Кривая спектральной чувствительности измерительной системы, состоящей из кварцевого оптокабеля длиной 1 м и спектрометра OCEAN FLAME-S-XR1-ES, измеренная при помощи эталонной дейтериево-галогеновой лампы OCEAN DH3-plus, приведена на Рис. 2-6.

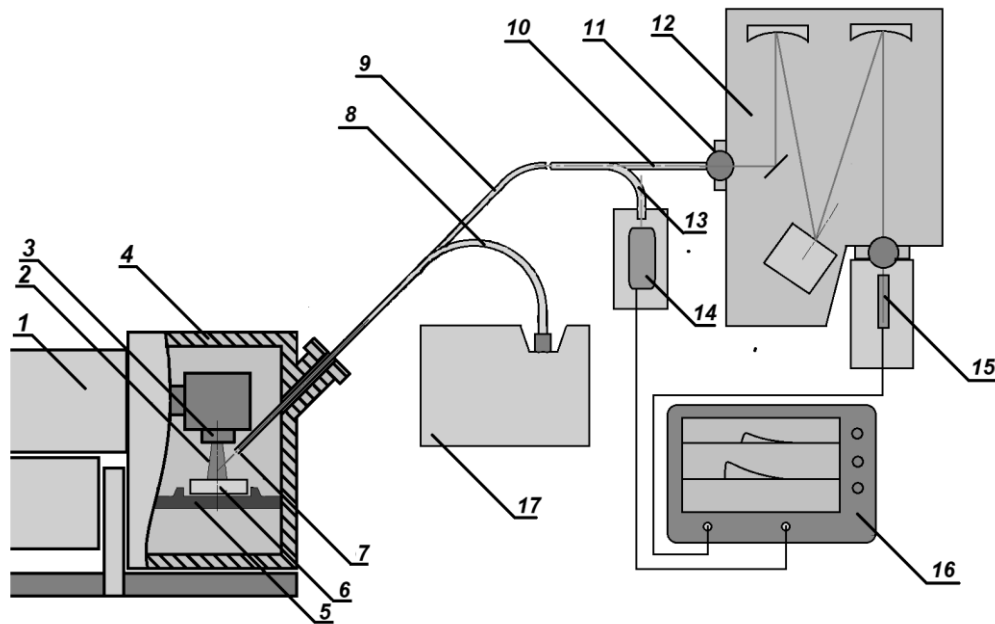


Рис. 2-5. Схема измерения спектров и кинетики ИКЛ: 1-ускоритель РАДАН-ЭКСПЕРТ; 2-пучок электронов; 3-вакуумный сильноточный диод ИМА3-150Э; 4-защитная свинцовая камера; 5-дюралевый столик; 6-образец; 7-входной край оптокабеля; 8-оптокабель длиной 1 м для измерения спектров ИКЛ; 9-оптокабель длиной 15 м для измерения кинетики ИКЛ и рентгеновского излучения; 10-оптокабель для измерения кинетики ИКЛ; 11-входная щель монохроматора; 12-монохроматор Solar TII MS2004; 13-оптокабель для измерения кинетики рентгеновского излучения; 14-ФЭУ-85; 15-ФЭУ Hamamatsu H3695-10; 16-Цифровой осциллограф; 17-спектрометр OCEAN FLAME-S-XR1-ES.

На кривой видны характерные особенности кремниевых фотоприёмников. Прибор имеет наибольшую чувствительность в видимой области (500-600 нм) и чувствительность в 20-30% от максимальной в области ближнего и дальнего ультрафиолета вплоть до длины волны 200 нм. Все спектры ИКЛ, приведенные в настоящей работе, скорректированы на спектральную чувствительность измерительной системы.

Также стоит отметить, что паразитной люминесценции измерительных оптических волокон под действием ионизирующего излучения, генерируемого при бомбардировке электронами исследуемых образцов, в пределах чувствительности измерительной аппаратуры обнаружено не было.

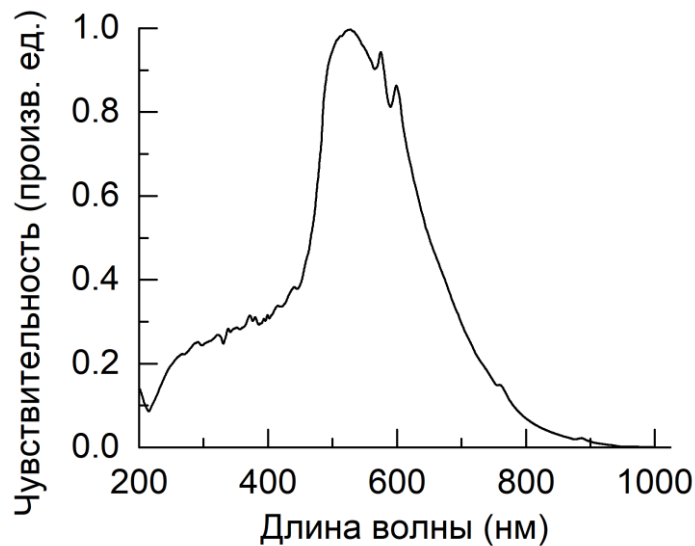


Рис. 2-6. Кривая спектральной чувствительности спектрометра OCEAN FLAME-S-XR1-ES с подсоединенным к нему кварцевым оптоволоконным кабелем длиной 1 м и диаметром 1 мм.

2.3. Измерения кинетики затухания ИКЛ

Для измерений зависимости интенсивности от времени (кинетики) ИКЛ был использован длинный кварцевый оптоволоконный кабель (Рис. 2-5, 9), состоящий из трех параллельных оптических каналов диаметром 1 мм каждый и одного канала диаметром 600 мкм. Все четыре канала имели одну длину – 15 м. Три канала оптоволоконна диаметром 1 мм были использованы для транспортировки излучения ИКЛ (Рис. 2-1, 12). Канал диаметром 600 мкм использовался для передачи сигнала рентгеновского излучения (Рис. 2-1, 13). Оси оптокабелей для измерения ИКЛ в защитной камере ускорителя (Рис. 2-1, 12 и Рис. 2-5, 7) были выстроены по углам правильного треугольника, а на входной щели монохроматора (Рис. 2-5, 11) они были выстроены в прямую линию, повторяющую форму щели.

Оптоволоконный кабель длиной 15 м был использован для того, чтобы удалить регистрирующую аппаратуру на максимально возможное в условиях проведения эксперимента расстояние от ускорителя электронов (10 м). Это позволило свести к минимуму влияние мощной электромагнитной наводки, возникающей при сильноточном субнаносекундном разряде. Так, амплитуда

наводки не превышала 0,1 мВ во всех измерениях. Излучение, вышедшее из оптокабеля, направлялось на входную щель монохроматора Solar TII MS2004 (Рис. 2-5, 12) с дифракционной решеткой (ДР) с плотностью штрихов 1200 штр/мм, светосилой 1:2,3 и обратной линейной дисперсией 4 нм/мм. За выходной щелью монохроматора (Рис. 2-5, 15) был установлен ФЭУ Hamamatsu H3695-10 с постоянной времени 0,7 нс. Фототок этого ФЭУ регистрировался цифровым осциллографом (Рис. 2-5, 16).

В большинстве измерений, проведенных в настоящей работе (исследование излучения свободного воздушного промежутка в Гл. 3, все измерения в Гл. 4 и большинство измерений в Гл. 5), использовался циф-ровой 4-х канальный осциллограф Tektronix MSO6-2500 BW с полосой пропускания 2,5 ГГц. В Гл. 3 для исследования излучения при бомбардировке электронами высокодисперсного SiO₂ и алюминия использовался цифровой осциллограф HP Infiniium 54835A с полосой пропускания 1,5 ГГц. Таким образом, измерительная система обладала временным разрешением ~1 нс. В единственном в работе пункте - п. 5.4 (Гл. 5) кинетика ИКЛ измерялась без оптокабеля длиной 15 м. Оптоволоконный кабель длиной 1 м направлял излучение на ФЭУ-85, фототок которого измерялся цифровым осциллографом Tektronix TDS2024C с полосой пропускания 200 МГц. Монохроматор в тех измерениях не использовался.

Зависимость интенсивности рентгеновского излучения от времени, измеряемая сцинтилляционным датчиком (Рис. 2-1, 14), определялась по зависимости интенсивности люминесценции пластикового сцинтиллятора от времени. Излучение сцинтилляции направлялось по параллельному оптоволоконному кабелю диаметром 600 мкм (Рис. 2-1, 13 и Рис. 2-5, 13) на вход ФЭУ-85 (Рис. 2-5, 14) с временным разрешением 8 нс, сигнал с которого записывался синхронно с сигналом ИКЛ другим каналом того же осциллографа (Рис. 2-5, 16). Запуск осциллографа осуществлялся по импульсу рентгеновского излучения.

Поглощение света в оптокабеле длиной 15 м приводит к тому, что спектральный диапазон транспортируемого излучения ограничивается в коротковолновой области длиной волны 250 нм.

Ускоритель электронов РАДАН-ЭКСПЕРТ действовал в частотном режиме. Частота следования импульсов составляла 1 Гц. Это позволяло осуществлять измерения в режиме накопления статистики. Все кривые, представленные в работе (как спектры, так и кинетика ИКЛ) – результат усреднения по меньше мере 10 измеренных зависимостей.

Глава 3. Излучение молекулярного азота при возбуждении ИКЛ

При прохождении электронного пучка с энергиями частиц 50-300 кэВ через промежуток, заполненной воздухом при атмосферном давлении, возбуждается излучение молекулярного азота. По-видимому, впервые на важность учета свечения воздуха при исследовании КЛ указали Биркс и Литтл [122]. Было отмечено, что этот процесс следует принимать во внимание при исследовании КЛ на воздухе, так как возникающие при этом явления могут исказить получаемую спектральную информацию о веществе. Активное использование в настоящее время метода ИКЛ, в частности, для анализа минералов [13-21] в целях геологических изысканий и для целей физики твердого тела [22-26], выполняемые, в частности, на воздухе при атмосферном давлении, требуют изучения особенностей этого процесса и их влияния на получаемые результаты.

3.1. Излучение свободного воздушного промежутка

Спектр излучения, возбуждаемого при прохождении электронным пучком свободного воздушного промежутка длиной 10 см при комнатной температуре и атмосферном давлении представлен на Рис. 3-1. В этих измерениях дюралевый столик-держатель образцов (Рис. 2-1, 6 и Рис. 2-5, 5) был удален из камеры.

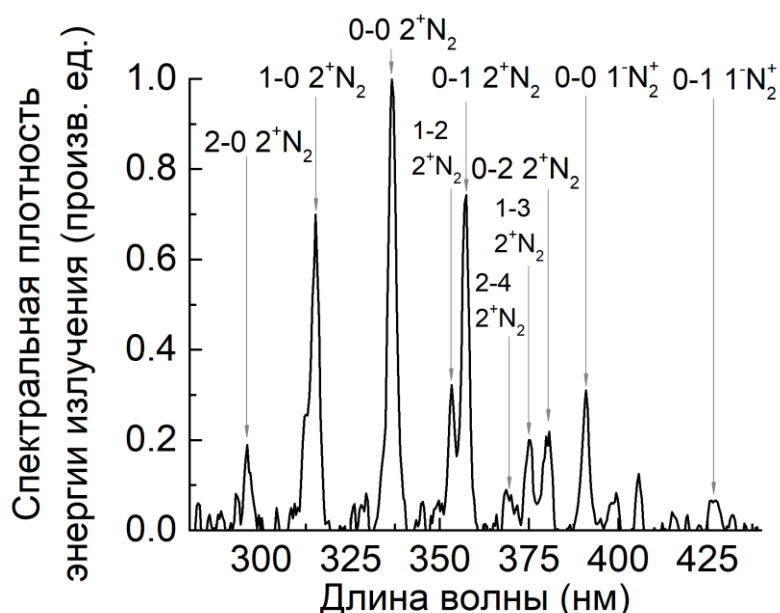


Рис. 3-1. Спектр излучения при прохождении электронного пучка через свободный воздушный промежуток.

Спектр состоит из полос излучения второй положительной системы молекулы N_2 (2^+N_2) и первой отрицательной системы полос молекулярного иона N_2^+ ($1^-N_2^+$). Максимумы на длинах волн 296, 315, 336, 353, 357, 369, 375 и 380 нм соответствуют колебательным переходам 2-0, 1-0, 0-0, 1-2, 0-1, 2-4, 1-3 и 0-2 системы полос 2^+N_2 . Полосы на 391 и 427 нм относятся к переходам 0-0 и 0-1 системы полос $1^-N_2^+$ [118]. Наибольшей интенсивностью обладает переход 0-0 2^+N_2 , наблюдаемый в области 337 нм.

Зависимость интенсивности излучения от времени на длине волны 337 нм, возбуждаемого при прохождении электронами свободного воздушного промежутка, представлена на Рис. 3-2 (а). Синхронно записанная зависимость интенсивности сцинтилляции рентгеновского датчика от времени приведена на Рис. 3-2 (б).

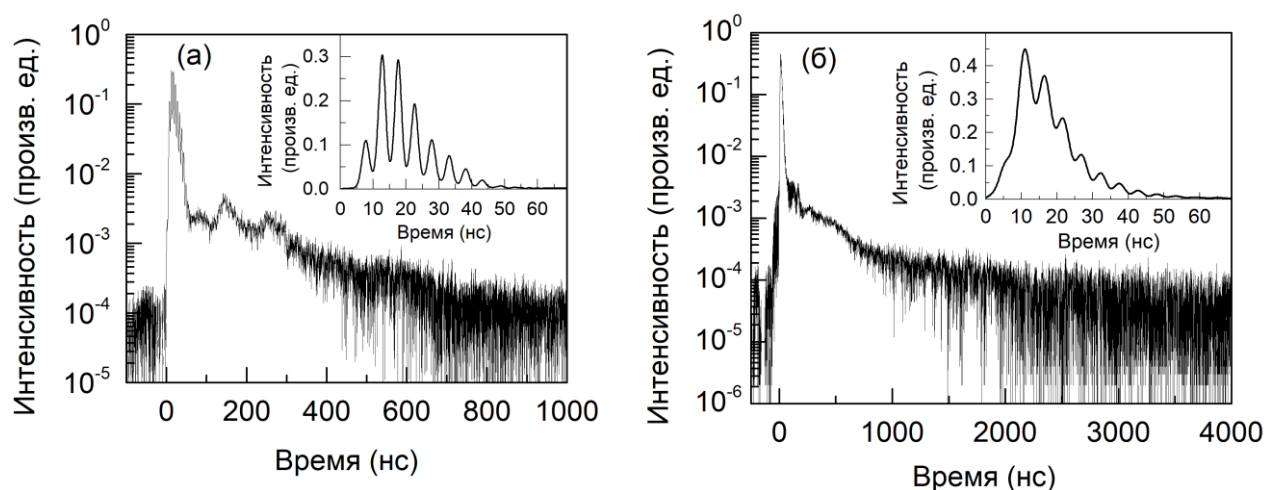


Рис. 3-2. Зависимости интенсивности излучения (а) 2^+N_2 в области 337 нм и сцинтилляционного датчика (б) от времени при прохождении электронного пучка через свободный воздушный промежуток. На вставках приведены участки этих же кривых в диапазоне времен 0-70 нс.

Из Рис. 3-2 (а) следует, что временная зависимость интенсивности 2^+N_2 имеет две составляющих: «быструю» и «медленную». Быстрая составляющая состоит из 9-10 импульсов длительностью ~ 1 нс каждый и временным промежутком между ними ~ 5 нс. Через ~ 50 нс интенсивность 2^+N_2 уменьшается в ~ 100 раз и быстрая составляющая прекращается. Длительность каждого пика быстрой составляющей

кинетики 2^+N_2 можно приближенно считать шириной аппаратной функции измерительной системы.

После окончания быстрой стадии пучка остаётся медленная составляющая, затухание которой происходит через ~ 1 мкс после начала импульса. Медленная компонента пучка выглядит как равномерный спад интенсивности, на фоне которого имеется ряд максимумов – через 85, 145, 255 и 590 нс после начала импульса.

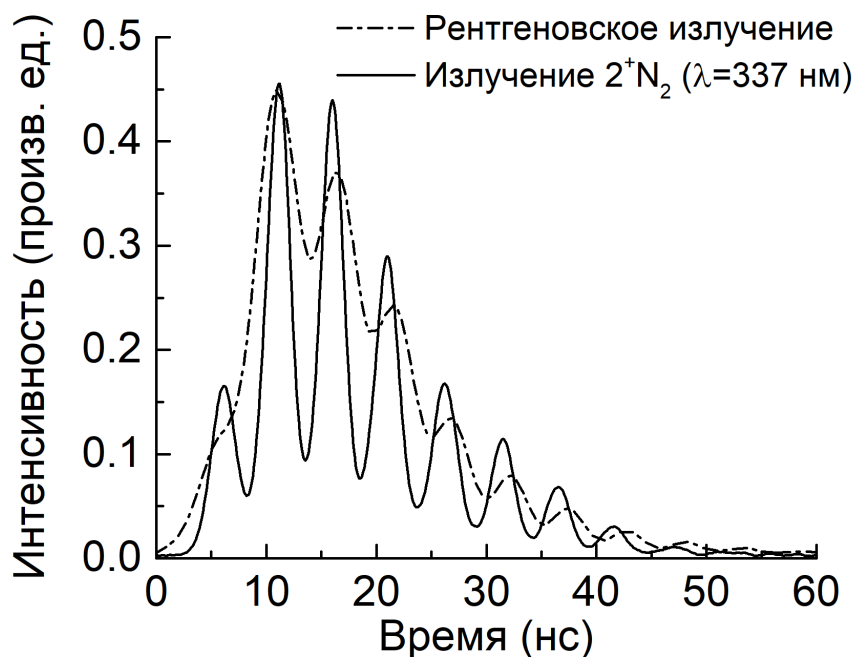


Рис. 3-3. Сопоставление зависимостей интенсивностей излучения молекулы N_2 от времени на длине волны 337 нм (сплошная линия) и сцинтилляции рентгеновского датчика (штрихпунктирная линия) от времени.

Зависимость интенсивности сцинтилляции рентгеновского датчика от времени (рис. 3-2. (б)), пропорциональная временной зависимости интенсивности рентгеновского излучения, генерируемого электронным пучком, также имеет быструю и медленную составляющие. Временное разрешение этих измерений, равное ~ 8 нс, ниже, чем измерений кинетики 2^+N_2 . Пики интенсивности в быстрой составляющей кинетики 2^+N_2 и рентгеновского излучения в целом совпадают (Рис 3-3), если учесть разное время отклика ФЭУ-85 и ФЭУ НЗ695-10.

Медленная компонента кинетики излучения рентгеновского датчика имеет длительность ~ 4 мкс, большую, чем длительность медленной компоненты

кинетики 2^+N_2 . По-видимому, причина этого в флуоресценции пластикового сцинтиллятора.

Источником рентгеновского излучения с энергией квантов более 4 кэВ при распространении электронов с энергией 50-300 кэВ через свободный воздушный промежуток служит тормозное излучение (ТИ). Действительно, длины волн излучения K_α -линий атомов N и O равны 31,6 и 23,62 Å [123], что соответствует энергиям фотонов 392 и 525 эВ. Следовательно, так как перед регистрирующим сцинтиллятором был установлен заградительный фильтр из алюминиевой фольги, пропускавший рентгеновские кванты только с энергией более 4 кэВ, рентгеновское излучение в линиях при прохождении электронами свободного воздушного промежутка в настоящей работе не регистрировалось.

Каждый импульс ТИ возникает и прекращается одновременно с появлением и исчезновением электронного пучка. Из Рис. 3-3 следует, что излучение 2^+N_2 возникает и прекращается одновременно с ТИ и, следовательно, синхронно с появлением и прекращением электронного пучка в газовом промежутке.

Доминирующим механизмом возбуждения $N_2(C^3\Pi_u)$ в газовом разряде низкого давления служит прямой электронный удар [124,125]. Возбуждение состояний с высокими значениями вращательных квантовых чисел происходит при столкновении молекулы N_2 с тяжелой частицей [125]. В то же время, вклад этих процессов в общую интенсивность излучения 2^+N_2 мал, так как основная её часть концентрируется в узких областях кантов колебательных полос, образованных линиями $R_{1,2,3}$ –ветвей с малыми значениями вращательного квантового числа [125].

При атмосферном давлении реализуются те же процессы, что и при низком давлении, но при этом сопровождающиеся более активным тушением возбужденных состояний молекулы N_2 [126]. Основная часть энергии излучения продолжает быть сконцентрированной в области кантов полос.

Следовательно, можно считать, что при прохождении мощного электронного пучка через воздушный промежуток при атмосферном давлении состояние $N_2(C^3\Pi_u)$ возбуждается главным образом прямым электронным ударом.

Этот факт подтверждается совпадением импульсов быстрой компоненты рентгеновского излучения и интенсивности 2^+N_2 (Рис. 3-3).

3.2. Механизм возбуждения излучения 2^+N_2 при бомбардировке электронами диоксида кремния и металлических мишеней на воздухе

При практическом использовании метода ИКЛ анализа веществ и, в частности, для анализа высокодисперсных сред, обладающих значительной площадью поверхности, возникает важный вопрос о том, как влияет атмосфера воздуха на электронные процессы в образцах, и насколько информация, получаемая методом ИКЛ, искажается взаимодействием конденсированных сред с частицами окружающей атмосферы.

Влияние молекул N_2 , O_2 , H_2O и CO_2 , входящих в состав окружающего образец газа, на ФЛ дефектов высокодисперсного SiO_2 , обнаружено в работах [41,42]. Авторы установили, что взаимодействие с этими газами приводит к тушению ФЛ высокодисперсного SiO_2 . Следовательно, окружающая атмосфера способна изменять ход люминесцентных процессов.

В текущем разделе приводятся результаты впервые проведенных исследований особенностей механизма возбуждения излучения молекулярного азота при бомбардировке электронами на воздухе мишеней из высокодисперсного диоксида кремния и алюминия, результаты которых опубликованы в работе [127].

В качестве мишеней использовались высокодисперсный порошок SiO_2 ORISIL-380 (удельная поверхность 380 ± 40 м²/г, массовая доля SiO_2 99,9%) и алюминиевая фольга толщиной 10 мкм. Материалы имеют близкие (более 90%) коэффициенты оптического отражения в области 300–450 нм [128,129]. Так, коэффициент диффузного отражения пиролитического аэрогеля SiO_2 на длине волны 266 нм составляет 99,7% [128], и коэффициент зеркального отражения алюминия в области 300–400 нм превышает 90% [129]. Так как вход в оптический кабель, через который регистрировалось излучение, находился достаточно близко к поверхности (на расстоянии менее 1 см), в то время как диаметр образцов

составлял ~ 3 см, можно считать, что между диффузным и зеркальным отражением нет существенной разницы.

Порошок SiO_2 засыпался в цилиндрический паз диаметром 28 мм и глубиной 5 мм в заземленном дюралевом столике (Рис. 2-1, 10). В ходе сравнения интенсивностей излучения в каждом измерении все геометрические параметры сохранялись одинаковыми. Так, диаметр области, засыпанной порошком SiO_2 , был равен диаметру алюминиевой фольги с точностью ~ 1 мм. С той же точностью совпадали расстояния от электронной трубки до поверхностей мишеней. Положение оптоволокон не менялось. Таким образом объемы воздуха между трубкой и мишенью, а также вклад в излучение отражения от поверхностей мишеней были одинаковы при бомбардировке SiO_2 и алюминия.

3.2.1. Спектр и кинетика излучения при бомбардировке электронами высокодисперсного диоксида кремния

Исследование спектров ИКЛ и ФЛ высокодисперсного SiO_2 было проведено нами в работе [130]. Люминесценция высокодисперсного SiO_2 характеризуется полосами шириной не менее 10 нм и при комнатной температуре связана с объемными и поверхностными дефектами [111-116]. При криогенных температурах наблюдается также собственная люминесценция, причиной которой служит распад АЛЭ [114].

Спектр ИКЛ SiO_2 представлен на Рис. 3-4 штрихпунктирной линией. Для установления характеристик излучения молекул N_2 , возбуждаемого при бомбардировке SiO_2 , спектр ИКЛ этого материала вычитался из общего спектра излучения.

Из Рис. 3-4 видно, что спектральная плотность энергии ИКЛ пиролитического аэрогеля SiO_2 существенно ниже, чем спектральная плотность излучения молекулярного азота, по причине, по-видимому, сильного рассеяния люминесценции в нанопорошке. Действительно, спектральная плотность энергии ИКЛ пиролитического аэрогеля SiO_2 не превышает 4% от спектральной плотности

энергии излучения N_2 в области 337 нм, и эта величина даёт максимальную оценку погрешности при разделении спектра на излучение ИКЛ и N_2 .

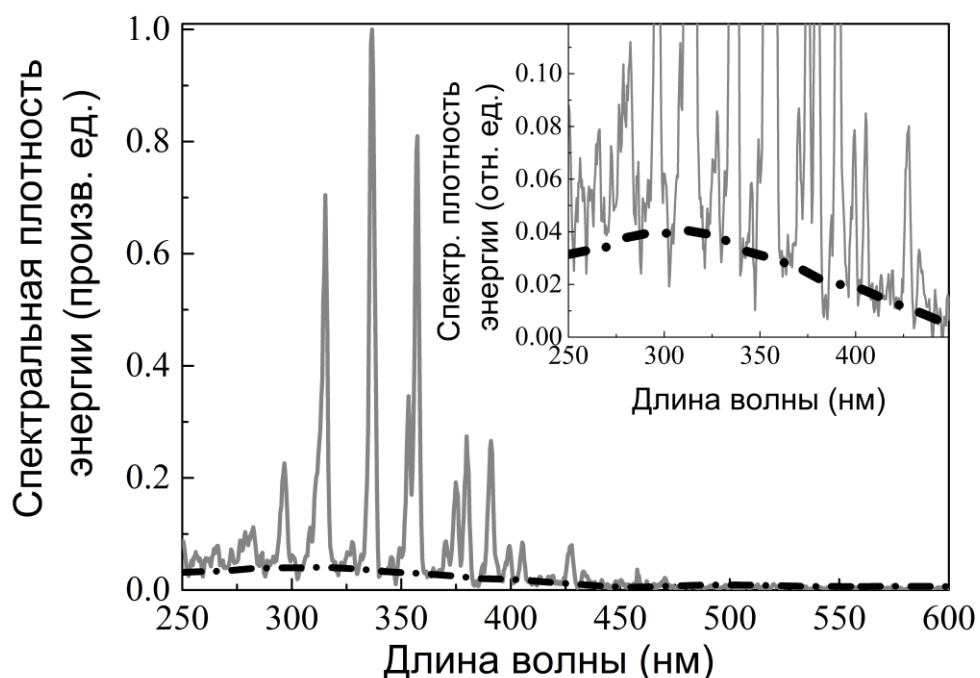


Рис. 3-4. Сплошная линия - спектр излучения при бомбардировке электронами пиролитического аэрогеля SiO_2 на воздухе при атмосферном давлении. Штрихпунктирная линия – спектр ИКЛ SiO_2 . Вставка: тот же спектр в увеличенном масштабе.

Таким образом, узкие полосы (шириной ~ 1 нм) относятся к излучению свободных молекул N_2 и N_2^+ . Их выделение на фоне ИКЛ SiO_2 проводилось специально разработанным с участием автора программным инструментом на основе метода Background класса TSpectrum [131,132], входящим в пакет обработки данных ROOT (CERN).

Сопоставление спектров излучения молекул N_2 и N_2^+ при бомбардировке электронным пучком мишеней из алюминия и SiO_2 представлено на Рис. 3-5. При бомбардировке металлических мишеней никакой люминесценции, кроме свечения свободных молекул N_2 и N_2^+ , не наблюдалось, и спектры излучения при бомбардировке металлов приводятся без специальной обработки.

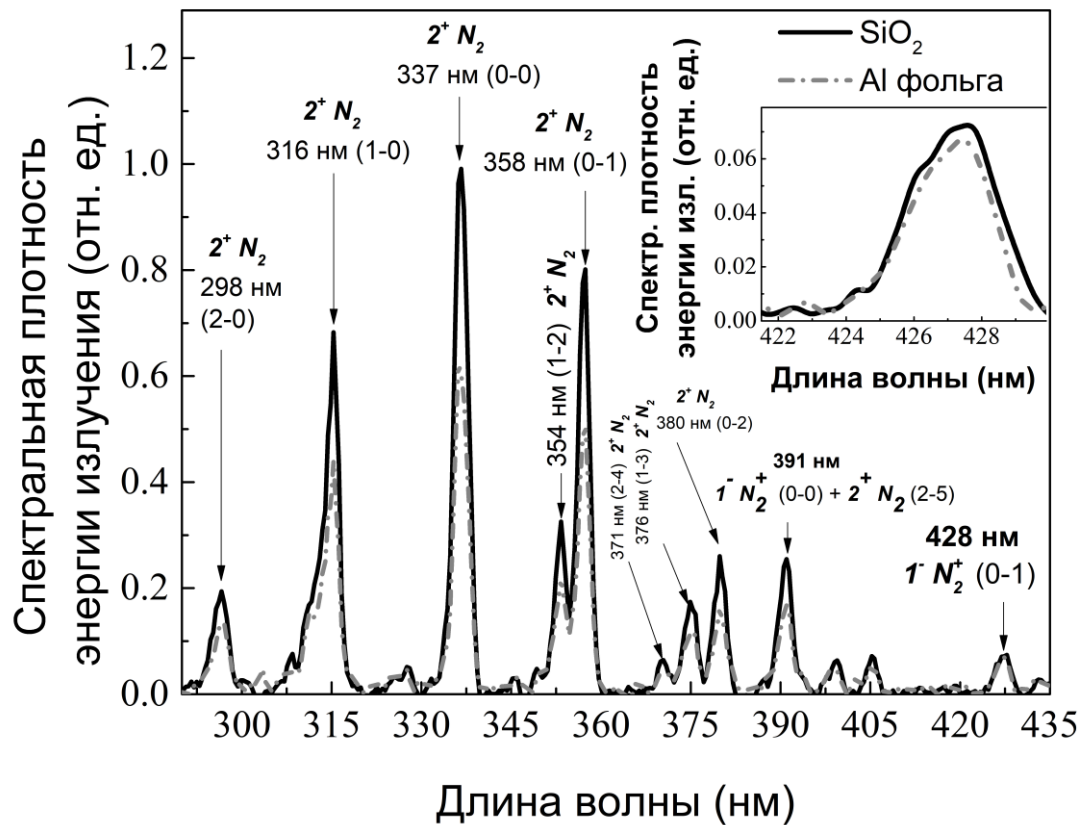


Рис. 3-5. Спектр излучения молекул N_2 и N_2^+ при бомбардировке электронами мишени из алюминиевой фольги (штрихпунктирная линия) и пиролитического аэрогеля SiO_2 (сплошная линия) в диапазоне 250–430 нм. Спектр ИКЛ SiO_2 вычтен из общего спектра излучения. Вставка: участок этого спектра в диапазоне 422–430 нм, соответствующем полосе (0-1) $1^- N_2^+$

Из Рис. 3-5 следует, что спектральная плотность энергии излучения на длинах волн 298, 316, 337, 354, 358, 371, 376 и 380 нм – большинства наблюдаемых полос $2^+ N_2$, а также полосы (0-0) $1^- N_2^+$ на длине волны 391 нм при бомбардировке SiO_2 - на 40–70% выше, чем при бомбардировке алюминия. Так, полоса в области 337 нм $\{(0-0) 2^+ N_2\}$ при бомбардировке электронами SiO_2 интенсивнее в ~1,7 раза, чем при бомбардировке алюминия. Как отмечено выше, обнаруженная разница спектральных плотностей энергии не может быть связана с ИКЛ пиролитического аэрогеля SiO_2 .

Объемы воздуха и геометрия измерения в обоих случаях были одинаковы, и различие светового потока из-за отражения от поверхностей мишеней минимизировано. Следовательно, наблюдаемая разница возникает благодаря

различию процессов взаимодействия электронного пучка и молекул N_2 с поверхностями мишеней.

Спектральная плотность энергии излучения при электронно-колебательном переходе $(0-1) 1^-N_2^+$ в области 428 нм, напротив, при бомбардировке алюминия и SiO_2 отличается не более, чем на $\sim 10\%$ (Рис. 3-5, вставка). В таком случае не может быть существенной разницы спектральных плотностей энергии и для полосы $(0-0) 1^-N_2^+$ в области 391 нм при бомбардировке SiO_2 и алюминия, так как переходы $0-0$ и $0-1$ происходят из одного электронно-колебательного состояния, и соотношение интенсивностей полос определяется только соотношением факторов Франка–Кондона [117]. Следовательно, можно предположить, что рост энергии излучения в области 391 нм происходит в результате наложения полосы $(2-5) 2^+N_2$.

Влияние отражения от поверхности металла на величину спектральной плотности энергии излучения молекулярного азота при бомбардировке электронами на воздухе (вклада отраженной от поверхности металла части светового потока) может быть выявлено при сопоставлении в одинаковых условиях параметров излучения молекул азота, возбуждаемого при бомбардировке металлов с разными коэффициентами отражения. Как уже упоминалось, коэффициент отражения алюминия в области 290-450 нм составляет более 90%. В то же время, в этой области коэффициент отражения меди составляет 40-60% и, следовательно, при сохранении всех остальных параметров измерений равными спектральная плотность энергии излучения молекулярного азота при бомбардировке электронами меди должна быть меньше, чем при бомбардировке алюминия.

Сопоставление спектров этих кривых приведено на Рис. 3-6, из которого следует, что спектральная плотность излучения полос молекулярного азота при бомбардировке алюминия на 30-50% выше, чем при бомбардировке меди, что подтверждает высказанное выше утверждение.

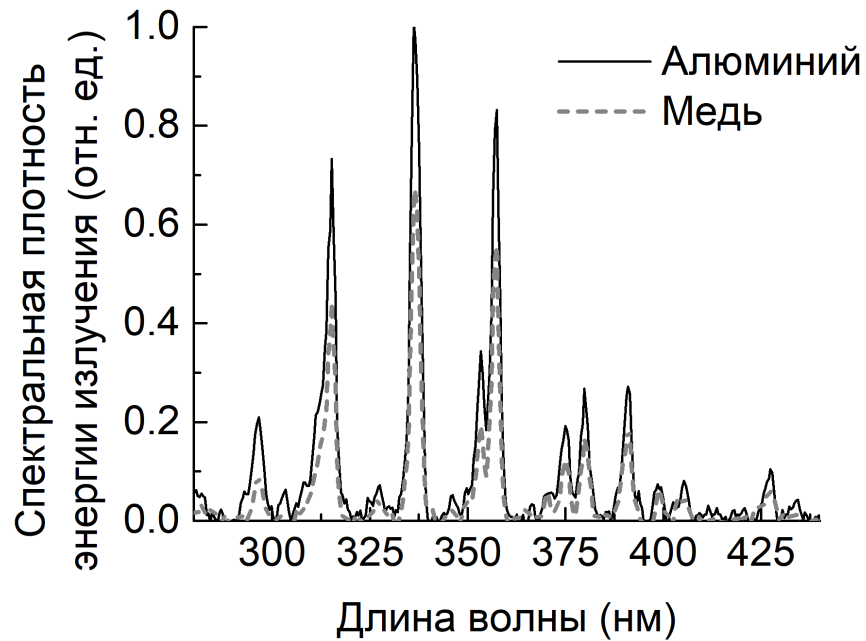


Рис. 3-6. Сопоставление спектров излучения молекулярного азота при бомбардировке электронами алюминия (сплошная линия) и меди (пунктирная линия) в атмосфере воздуха при атмосферном давлении.

Предмет дальнейших исследований – причина различия спектральных плотностей энергии излучения N_2 и N_2^+ при бомбардировке электронами SiO_2 и алюминия. Временные характеристики интенсивности излучения 2^+N_2 на длине волны 337 нм при бомбардировке SiO_2 и алюминия представлены на Рис. 3-7.

Кривые получены усреднением 80 осциллограмм. Импульсы излучения обладают шириной на полувысоте $\sim 1,5$ нс, как в случае алюминия, так и в случае SiO_2 , и совпадают по форме с импульсами излучения 2^+N_2 при прохождении свободного воздушного промежутка (Рис. 3-2, а). Разность этих кривых приведена на вставке на Рис. 3-7 (показан один импульс). Приведенные результаты дают независимое подтверждение того, что интенсивность излучения 2^+N_2 при бомбардировке электронами SiO_2 выше, чем при бомбардировке алюминия в тех же условиях. Этот факт был нами многократно проверен и подтвержден.

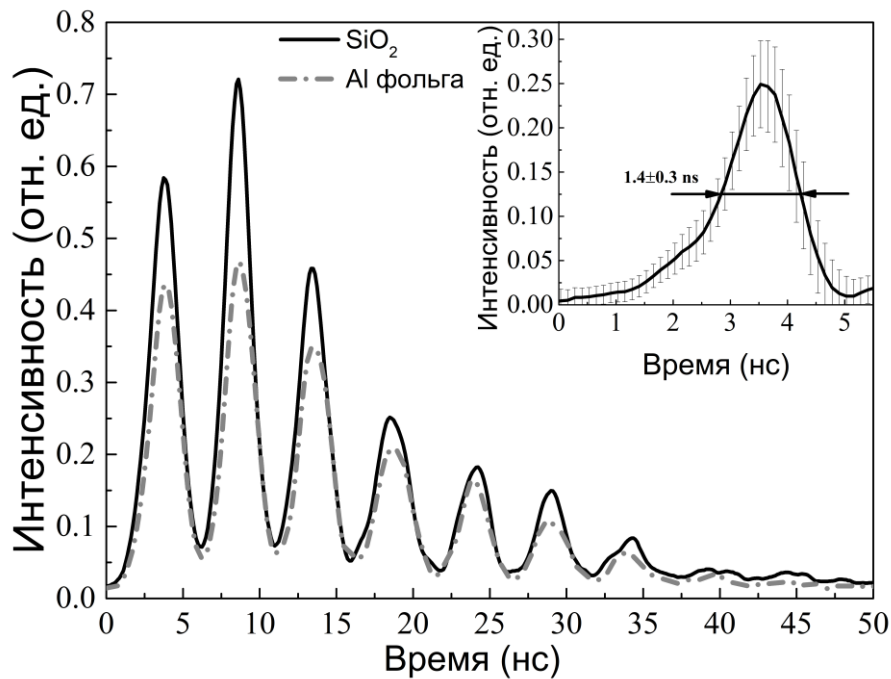


Рис. 3-7. Зависимость интенсивности излучения полосы (0-0) 2^+N_2 на длине волны 337 нм от времени при бомбардировке электронами мишени из алюминиевой фольги (штрихпунктирная линия) и пиролитического аэрогеля SiO_2 (сплошная линия). Вставка: разность интенсивностей полос 2^+N_2 на длине волны 337 нм при бомбардировке SiO_2 и алюминия (показан один импульс).

Длительность разностного импульса на полувысоте составляет $1,4 \pm 0,3$ нс. Полученные значения – верхняя оценка длительности каждого импульса ИКЛ и, следовательно, времени протекания изучаемого процесса, так как они близки к пределу временного разрешения измерений. Действительно, время нарастания и спада сигнала составляет менее 1 нс, что согласуется с предельными параметрами временного разрешения измерительной системы.

В качестве промежуточного итога можно сделать вывод, что при бомбардировке электронами высокодисперсного SiO_2 интенсивность излучения 2^+N_2 до ~2 раз выше, чем при бомбардировке алюминия в тех же условиях. Интенсивность 2^+N_2 при бомбардировке меди в тех же условиях меньше на ~30%, чем при бомбардировке алюминия. Мы связываем этот факт с меньшим коэффициентом оптического отражения меди в ультрафиолетовой области.

Таким образом, в настоящей работе обнаружено, что параметры взаимодействия молекул N_2 с поверхностью высокодисперсного SiO_2 отличаются от параметров взаимодействия с металлами.

3.2.2. Температурная зависимость параметров излучения 2^+N_2

Для установления природы наблюдаемого явления была измерена зависимость энергии излучения на длине волны 337 нм $\{(0-0) \text{ полоса } 2^+N_2\}$ от температуры при бомбардировке SiO_2 и алюминия. Дюралевый столик (Рис. 2-5, 5), к которому вблизи мишеней был прикреплен датчик температуры (платиновое термосопротивление), нагревался нихромовой проволокой, по которой пропусклся постоянный ток. Температура варьировалась в диапазоне 30–60 °С. Перед измерением при каждом значении температуры (T) установление равновесия происходило в течение 1 ч. Само измерение длилось также 1 ч. Для каждого значения T записывалось по ~100 осциллограмм зависимости интенсивности излучения от времени. Интеграл по времени от такой зависимости пропорционален энергии излучения, испускаемого при приложении одного импульса ГИН к ускорительной трубке. Каждая осциллограмма численно интегрировалась по времени, далее вычислялось среднее значение энергии излучения. Ошибка измерений вычислялась как среднеквадратичная погрешность среднего арифметического.

На Рис. 3-8 представлены зависимости энергии излучения на длине волны 337 нм от температуры при воздействии электронным пучком на SiO_2 и алюминий. Зависимости нормированы на значение энергии излучения при 30 °С. Видно, что их характер различается: при бомбардировке алюминия нагрев мишени приводит к увеличению энергии излучения, в то время как, при нагреве SiO_2 энергия излучения падает – при 60 °С она составляет ~70% от своего значения при 30 °С.

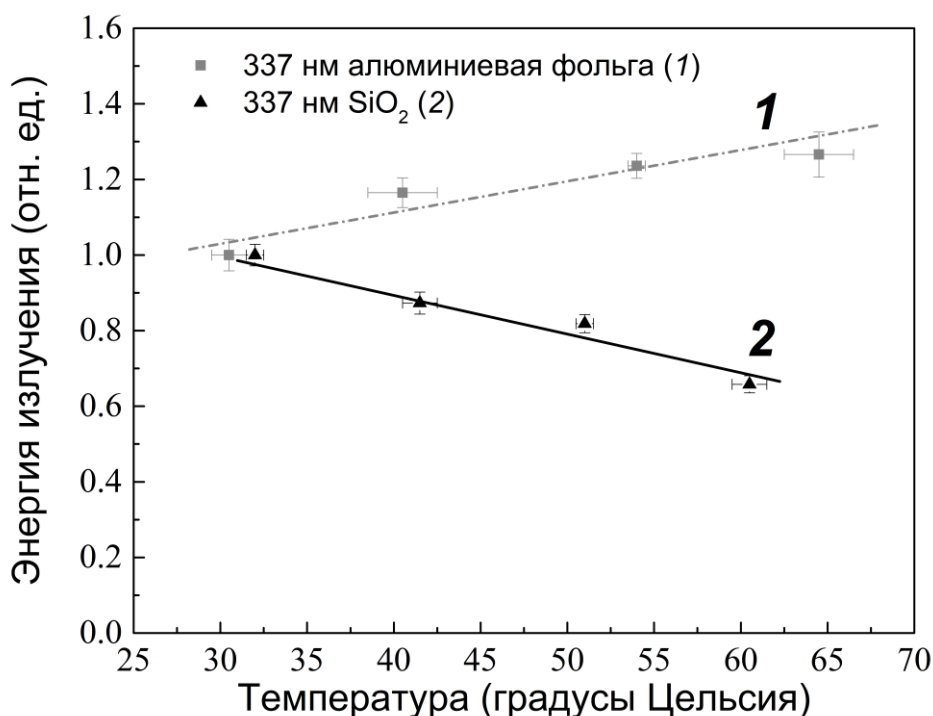


Рис. 3-8. Зависимость энергии излучения на длине волны 337 нм $\{(0-0) 2^+N_2\}$ от температуры мишеней: 1 – алюминий, 2 – пиролитический аэрогель SiO₂

Возбуждение излучения молекул N₂ и ионов N₂⁺ при бомбардировке алюминия осуществляется прямым ударом электронов исходного пучка, а также ударами вторичных электронов, рождающихся в газе и эмитируемых с поверхности мишени – алюминиевой фольги. Характеристики вторичной электронной эмиссии с поверхностей металлов слабо зависят от температуры [133]. Следовательно, изменения параметров процесса в ходе бомбардировки электронами металла при незначительном нагреве могут происходить только за счет процессов в газе. Запишем уравнение для плотности $n_c(t)$ молекул N₂ в состоянии C³Π_u

$$\frac{dn_c(t)}{dt} = - \left(A + (0,8k_{N_2} + 0,2k_{O_2})n_0(T) \right) n_c(t) + n_0(T)f(t) \quad (3.1)$$

Здесь $A = 2,5 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$ – коэффициент Эйнштейна [126,134] радиационного распада состояния N₂(C³Π_u); $n_0(T)$ – концентрация молекул воздуха, зависящая от температуры, $k_{N_2} = 0,11 \cdot 10^{-10} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$ и $k_{O_2} = 2,7 \cdot 10^{-10} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$ – константы скорости тушения состояния C³Π_u при столкновении с молекулами N₂ и O₂ при температуре газа 300 К [126,134], $f(t)$ – зависимость скорости возбуждения состояния C³Π_u от

времени, пропорциональная интенсивности электронного пучка. При температуре 300 К и давлении воздуха 1 атм $(0,8k_{N_2} + 0,2k_{O_2})n_0(T) = 1,5 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$. Тогда при условии $n_c(0) = 0$ и $t \geq 0$ решение (3.1) имеет вид

$$n_c(t) = n_0(T) \int_0^t dt' f(t') \exp\{-(0,8k_{N_2} + 0,2k_{O_2})n_0(T)(t - t')\} \quad (3.2)$$

Энергия излучения $E \sim \int_0^\infty n_c(t) dt$. Если считать, что импульс электронов имеет прямоугольную форму и длительность τ , т.е.

$$f(t) = \begin{cases} f_0, & 0 \leq t \leq \tau \\ 0, & t > \tau \end{cases} \quad (3.3)$$

То $E \sim \tau f_0 / (0,8k_{N_2} + 0,2k_{O_2})$ – не зависит от $n_0(T)$ при любой длительности электронного импульса. В то же время известно, что константы скоростей тушения излучающих состояний молекул уменьшаются с ростом температуры [135]. Таким образом, при возбуждении прямым ударом свободных электронов энергия излучения 2^+N_2 должна возрасти, что и наблюдается при бомбардировке электронами алюминия (Рис. 3-8).

3.2.3. Обсуждение механизма возбуждения 2^+N_2

Мы предполагаем, что нагрев SiO_2 на $30^\circ C$ также не приводит к существенным изменениям параметров вторичной электронной эмиссии, так как энергия связи электронов в $SiO_2 \sim 10$ эВ, а характерные тепловые энергии меньше на 2 порядка. Так, при нагреве кристалла MgO до $740^\circ C$ выход вторичных электронов падает лишь на $\sim 15\%$ [136]. Следовательно, только на основе перечисленных процессов (возбуждение молекул N_2 прямым ударом первичных электронов пучка, а также вторичных электронов газа и мишени) объяснить полученную температурную зависимость не удастся. Обнаруженный нами разный характер зависимостей энергии излучения от температуры указывает на различия в механизмах возбуждения излучения 2^+N_2 при бомбардировке электронами SiO_2 и алюминия.

В настоящей работе предлагается одна из возможных гипотез, позволяющая объяснить полученные результаты. Порог возбуждения $N_2(C^3\Pi_u)$ из основного состояния $X^1\Sigma_g^+$ – 11,03 эВ [118]. Эта энергия близка к энергиям создания экситонов и электронов проводимости в SiO_2 [110,137]. Ширина запрещенной зоны различных модификаций SiO_2 составляет 8–11,5 эВ [110,111,114,137]. Мы предполагаем, что при контакте молекулы N_2 в основном электронном состоянии с поверхностью SiO_2 , в объёме которого при облучении электронами возникли ЭВ – экситоны и электронно-дырочные пары, – возможна передача энергии от них молекулам окружающего газа с возвращением электрона SiO_2 в валентную зону и переходом молекулы в состояние $C^3\Pi_u$.

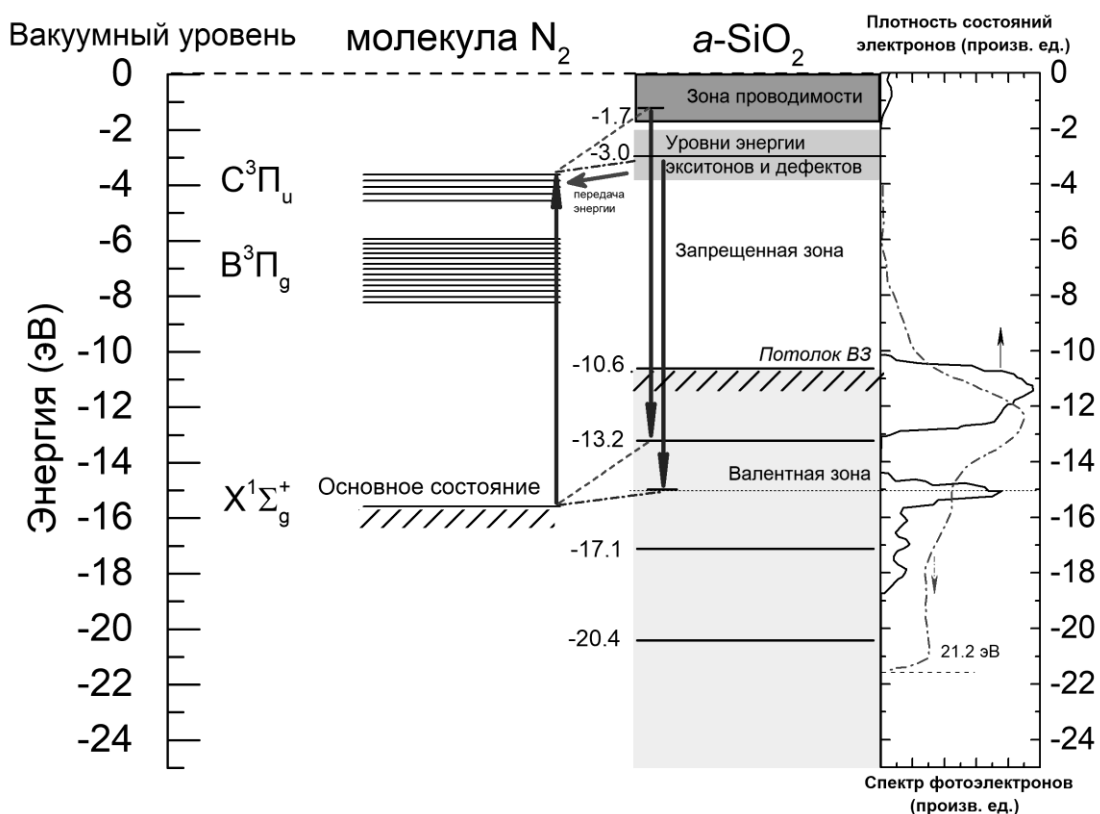


Рис. 3-9. Предполагаемая схема передачи энергии от ЭВ в SiO_2 молекулам N_2 окружающего газа. Положения электронно-колебательных уровней энергии N_2 взяты из [119], положения уровней энергии аморфного SiO_2 - из [138]. Сплошной линией справа дана вычисленная теоретически плотность состояний α -кварца, опубликованная в работе [139], а штрихпунктирной линией – спектр энергией фотоэлектронов, выбитых из аморфного SiO_2 под действием ультрафиолетового излучения с энергией квантов 21,2 эВ, взятый из работы [138].

Схема процесса представлена на Рис. 3-9. За нулевой уровень принята энергия свободного электрона с нулевой кинетической энергией. Минимальная энергия для выбивания электрона из молекулы N_2 , равная первому потенциалу ионизации, равна 15,5813 эВ [118]. Минимальная энергия для выбивания электрона из аморфного SiO_2 , согласно [138], составляет 10,6 эВ. Положения электронно-колебательных уровней энергии молекулы N_2 взяты из работы [119], положения уровней энергии SiO_2 взяты из [138]. К сожалению, такие сведения имеются только для аморфной модификации SiO_2 , а для высокодисперсного порошка SiO_2 в литературе таких данных нет. По этой причине для качественного анализа изучаемых процессов на Рис. 3-9 приведены положения уровней аморфного SiO_2 . Также на Рис. 3-9 представлены результаты вычислений плотности электронных состояний α -кварца, взятые из работы [139], и спектр кинетических энергий фотоэлектронов аморфного SiO_2 , выбитых под действием монохроматического ультрафиолетового излучения с энергией фотонов 21,2 эВ, измеренный в работе [138]. Кинетические энергии фотоэлектронов приведены в шкале, в которой из значения измеренной кинетической энергии фотоэлектрона вычтено значение энергии возбуждающего фотона. В таком виде кривая описывает плотность состояний электронов в валентной зоне SiO_2 . Видно, что на качественном уровне кривая зависимости интенсивности потока фотоэлектронов от их энергии близка к вычисленной кривой плотности состояний электронов в кристаллическом α -кварце.

На Рис. 3-9 стрелками приведены предположительные переходы в SiO_2 , энергия которых достаточна для возбуждения излучения 2^+N_2 . На рисунке показаны два возможных сценария, которые следуют из приведенных схем уровней. Первый сценарий включает электрон вблизи дна зоны проводимости SiO_2 и дырку в валентной зоне в области максимума плотности состояний с энергией - 13,2 эВ, рекомбинация которых приводит к тому, что энергия, выделившаяся при этом, идет на возбуждение перехода $N_2(X^1\Sigma_g^+ \rightarrow C^3\Pi_u)$. Второй сценарий включает передачу энергии молекуле N_2 от экситона, дырка которого расположена в нижней

валентной зоне с максимумом плотности состояний при энергии -14 эВ. Этот механизм представляет собой обмен, близкий к резонансному (Рис. 3-9).

В настоящей работе мы не претендуем на точное описание механизма наблюдаемого явления, а лишь кратко приводим возможные на наш взгляд процессы, которые могут его инициировать. Так, в возбуждении 2^+N_2 , в принципе, могут участвовать и иные механизмы передачи энергии как от электронов, локализованных на дефектах, так и при переходах между уровнями энергии электронов в зоне проводимости SiO_2 .

Явление, близкое к предлагаемому процессу по своему механизму, - передача энергии от пористого кремния молекулам кислорода окружающего газа - обнаружен и подробно изучен [43-55]. В этих исследованиях показано, что экситоны в пористом кремнии передают энергию молекулам O_2 путем обменного взаимодействия. При этом возбуждается интеркомбинационный переход $O_2(^3\Sigma) \rightarrow O_2(^1\Delta)$. Предложенная в настоящей работе гипотеза заключается в том, что при взаимодействии молекул N_2 с ЭВ в SiO_2 , созданных электронным пучком, в таких молекулах N_2 также возбуждается интеркомбинационный переход $N_2(X^1\Sigma_g^+) \rightarrow N_2(C^3\Pi_u)$, и излучательный распад из возбужденного состояния $C^3\Pi_u$ этих молекул N_2 приводит к возникновению дополнительного светового потока по отношению к излучению молекул N_2 , возбужденных прямыми электронными ударами.

В двух предложенных сценариях процесса (Рис. 3-9) передача энергии более ~14 эВ маловероятна из-за существенного меньшей плотности состояний электронов и дырок, имеющих такую энергию. Действительно, энергии, передаваемой в процессах на Рис. 3-9, достаточно для возбуждения $N_2(C^3\Pi_u)$ из $N_2(X^1\Sigma_g^+)$, но недостаточно — для $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$, порог возбуждения которого — 18,75 эВ [118]. Это объясняет, почему энергии излучения полос $1^-N_2^+$ практически одинаковы при бомбардировке SiO_2 и алюминия, в отличие от энергий излучения 2^+N_2 .

Интенсивность излучения при распаде АЛЭ в α -кварце, пропорциональная их концентрации, резко падает при росте температуры [110,140]. Аналогичный процесс происходит и в высокодисперсном SiO_2 [113,114]. Следовательно, обнаруженная зависимость от температуры характерна именно для ЭВ в SiO_2 . Таким образом, учет передачи энергии от ЭВ SiO_2 молекулам азота, по крайней мере качественно, объясняет полученные результаты.

Следует отметить, что эффективность обсуждаемого процесса возбуждения 2^+N_2 сопоставима с эффективностью возбуждения прямым электронным ударом. Действительно, интенсивность излучения 2^+N_2 при бомбардировке SiO_2 в 1,5-2 раза выше, чем при бомбардировке металла.

Полученные данные показывают, что механизм ИКЛ широкозонных материалов в атмосфере воздуха может существенно отличаться от механизма их ИКЛ в вакууме, что необходимо учитывать при исследовании веществ методом ИКЛ.

3.3. Выводы к главе 3.

- Возбуждение излучения 2^+N_2 при прохождении электронами с энергиями 100-300 кэВ свободного воздушного промежутка и при бомбардировке алюминия на воздухе при атмосферном давлении осуществляется главным образом прямым электронным ударом.
- При бомбардировке электронами с энергиями 100-300 кэВ высокодисперсного диоксида кремния на воздухе при атмосферном давлении помимо возбуждения излучения 2^+N_2 прямым электронным ударом происходит также возбуждение некоторым иным механизмом с эффективностью, сопоставимой с эффективностью возбуждения прямым электронным ударом.
- Этим механизмом может быть передача энергии от неравновесных ЭВ диоксида кремния - электронно-дырочных пар, экситонов и др. путем обменного взаимодействия с молекулами N_2 , расположенными вблизи его поверхности.

Положение, выносимое на защиту по итогам гл. 3:

При бомбардировке электронами высокодисперсного SiO_2 на воздухе при нормальных условиях интенсивность излучения полос 2^+N_2 на 50-70% превышает их интенсивность при бомбардировке алюминия в тех же условиях. Дополнительное возбуждение 2^+N_2 не осуществляется прямым электронным ударом и объясняется передачей энергии от электронных возбуждений, создаваемых в SiO_2 электронным пучком, молекулам N_2 при их контакте с поверхностью SiO_2 .

Глава 4. Нелинейность ИКЛ

Электрон с энергией 50-300 кэВ формирует в веществе ионизационный трек - область, в которой сконцентрированы созданные пучком ЭВ [37-40,58,60,63,66,68-70,73]. К особенностям этого образования относятся высокая объёмная плотность ЭВ (до 10^{22} эдп/см³ [37-40,68-70], здесь и далее ЭДП – электронно-дырочная пара) и её неравномерное пространственное распределение как вдоль длины трека, так и вдоль его радиуса.

Высокие плотности ЭВ, при которых становится существенным их взаимодействие между собой, вместе с сильной пространственной неоднородностью их концентрации служат причиной многих нелинейных сцинтилляционных явлений: непропорциональности выхода сцинтилляции в зависимости от энергии ионизирующей частицы [37-40,66,68,69,73], различия её кинетических параметров при возбуждении квантами разных энергий [39,40] и др. Причинами нелинейности сцинтилляции служат главным образом процессы взаимодействия между несколькими ЭВ, роль которых становится значительной при достижении объёмной плотностью ЭВ некоторых достаточно высоких значений. Предыдущие исследования показывают [37-40], что явления нелинейности сцинтилляции, как правило, наблюдаются при достижении ЭВ объёмной плотности 10^{16} - 10^{18} эдп/см³.

Оценки объёмной плотности ЭВ, создаваемых наносекундными электронными пучками с энергиями 300-400 кэВ, выполнены в работах [23,140]. Так, согласно [140], бомбардировка электронным пучком ускорителя Febetron-706 (Field Emission Corp., McMinnville, Oregon) длительностью 3 нс, плотностью энергии воздействия $(7 \pm 3) \cdot 10^{16}$ эВ/см² при плотности потока электронов $(1,7 \pm 0,7) \cdot 10^{11}$ эл/см² с кинетической энергией 420 ± 20 кэВ кристаллов NaI и KI приводит к формированию в этих кристаллах распределения ЭВ со средней плотностью $\sim 10^{17}$ эдп/см³ [140,141].

Согласно [23], бомбардировка кристалла CsCl электронным пучком взрывоэмиссионного ускорителя ГИН-600, генерирующего импульсы длительностью 3 нс с кинетической энергией частиц 250 кэВ при пиковой плотности тока пучка 130 А/см^2 , приводит к выделению в кристалле энергии $2,6 \cdot 10^{19} \text{ эВ/см}^2$, что соответствует плотности электронов в пучке $\sim 10^{14} \text{ частиц/см}^2$ и формированию средней плотности ЭВ, равной $2 \cdot 10^{18} \text{ эдп/см}^3$.

Приведенные оценки показывают, что при возбуждении ИКЛ конденсированных сред могут наблюдаться нелинейные сцинтилляционные процессы. В настоящей главе изложен метод исследования нелинейных свойств сцинтилляции конденсированных сред на основе измерения зависимости параметров ИКЛ от интенсивности и энергии рентгеновского излучения, испускаемого при бомбардировке образца электронным пучком. Обоснована теоретически и подтверждена экспериментально для условий настоящей работы прямая пропорциональность между энергией электронного пучка и энергией генерируемого им рентгеновского излучения, благодаря которой возможно по энергии рентгеновского излучения измерять энергию возбуждающего пучка.

Используя эту связь, получены зависимости энергии и выхода ИКЛ от энергии электронного пучка для хорошо изученных сцинтилляторов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, PbWO_4 , CeF_3 и BaF_2 с яркой СЛ. В результате сопоставления нелинейной зависимости выхода ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ с зависимостью выхода ФЛ этого кристалла от плотности электронно-дырочных пар, опубликованной в литературе, проведены оценки зависимостей объёмных плотностей ЭВ, усреднённых по возбужденному объёму кристалла, от энергии возбуждающего электронного пучка. Выполнены оценки зависимостей выхода ИКЛ от плотности ЭВ для исследованных материалов. Результаты настоящей главы опубликованы в работе [143].

4.1. Измерение полной кинетической энергии электронного пучка по энергии его тормозного излучения

4.1.1. Связь энергии тормозного излучения и энергии пучка электронов

Интенсивность рентгеновского излучения измерялась сцинтилляционным датчиком (Рис. 2-1, 11,13,14), который крепился на расстоянии 3 см от оси пучка. Датчик состоял из пластикового сцинтиллятора поли-стирол: попоп+ π -терфинил (рис. 1, 14), закрытого двумя слоями алюминиевой фольги общей толщиной 20 мкм (рис. 1, 11). Фольга пропускала рентгеновские кванты с энергией более 4 кэВ, полностью подавляя видимую составляющую излучения.

В основе механизма ВЭЭ лежит электрический взрыв микронеоднородностей поверхности катода, к которым относятся микроострия, микрократеры и др. [8]. Эти микронеоднородности, расположенные на поверхности одного и того же катода, имеют разные геометрические размеры. Электрический взрыв разных по размеру микронеоднородностей приводит к значительным флуктуациям полного числа N электронов в генерируемом пучке и, следовательно, к существенному разбросу значений полной кинетической энергии пучка E_b .

Эти случайные флуктуации можно рассматривать как самопроизвольную «перестройку» энергии пучка в достаточно широких пределах, приводящую к тому, что значения полной энергии электронного пучка в каждом импульсе оказываются заметно меняющимися случайным образом. Это означает, что одновременное измерение энергии пучка электронов и характеристик ИКЛ в серии из многих импульсов, когда набирается необходимая статистика различных значений E_b , позволяет определить зависимость характеристик ИКЛ от параметров пучка. Именно такой способ предложен и реализован в настоящей работе [143].

Связь параметров ИКЛ и характеристик пучка определялась в результате синхронной записи зависимостей интенсивности $I_x(t)$ рентгеновского излучения и интенсивности ИКЛ $I_l(t)$ от времени. Интегрирование этих кривых по времени даёт пары значений, пропорциональных энергии рентгеновского излучения E_x и энергии люминесценции E_l для каждого импульса ИКЛ:

$$E_X = \int_0^\infty I_X(t)dt \quad , \quad (4.1)$$

$$E_l = \int_0^\infty I_l(t)dt \quad . \quad (4.2)$$

В работе установлено, что анализ $\sim 10^3$ таких значений для разных E_X позволяет с достаточной точностью выяснить связь E_l и E_X для исследуемого материала. Можно приближенно считать, что при бомбардировке твёрдых тел пучком электронов с энергией 100-300 кэВ и воздушного промежутка при атмосферном давлении главным источником рентгеновских квантов служит ТИ [64,144]. В этом случае энергия рентгеновского излучения E_X , генерируемого в промежутке, равна энергии W ТИ. Учет вклада характеристического излучения существенно не изменяет полученные ниже зависимости. Далее показано, что энергия W ТИ в условиях настоящего эксперимента пропорциональна полной энергии электронного пучка E_b .

ТИ излучалось при прохождении электронами воздушного промежутка и при их торможении в объёме исследуемых кристаллов. Основным каналом потерь энергии электронов с кинетической энергией менее 1 МэВ в веществе являются потери на ионизацию [63]. Простое приближенное выражение для ионизационных потерь энергии электрона при распространении в веществе на единицу длины среды даётся формулой Бете-Блоха (1.1).

Уравнение (1.1) имеет аналитическое решение, если считать множитель $\xi(I, E) = \ln[1,16 (E + 2,8I)/I]$ мало меняющимся, как это предложено в работе [145]. С начальным условием $E(0) = E_0$ решение (1.1) имеет вид

$$E(x) \approx \left(E_0^2 - 4\pi e^4 \rho_e \xi(I, E_0) x \right)^{1/2} . \quad (4.3)$$

В этом приближении глубина проникновения электрона L в вещество оценивается как

$$L = \frac{E_0^2}{4\pi e^4 \rho_e \xi(I, E_0)} \quad . \quad (4.4)$$

Потери энергии электрона на ТИ вычисляются как $\left(\frac{-dE}{dx}\right)_{Bremss.} = \frac{E}{X_0}$ [63], где X_0 – радиационная длина, порядок величины которой составляет единицы см и более. Используя (4.3), можно вычислить полную энергию $w(E_0)$ ТИ, испускаемого одним электроном с начальной энергией E_0 , по формуле $w(E_0) = \int_0^L E(x)dx$. Результат этого вычисления:

$$w(E_0) = \frac{E_0^3}{6\pi e^4 \rho_e \xi(I, E_0) X_0} . \quad (4.5)$$

Таким образом, энергия ТИ одиночного электрона пропорциональна 3-ей степени его начальной кинетической энергии. Пусть $f(E)$ – ФРЭЭ пучка в расчете на одну частицу, N – полное число электронов в пучке. При нормировке $\int_0^{E_{0max}} f(E_0) dE_0 = 1$ полная кинетическая энергия пучка E_b вычисляется по формуле $E_b = N \int_0^{E_{0max}} f(E_0) E_0 dE_0$. Следовательно, полная энергия тормозного излучения W вычисляется как

$$W = N \int_0^{E_{0max}} f(E_0) w(E_0) dE_0 = \frac{N}{6\pi e^4 \rho_e \xi(I, E_0) X_0} \int_0^{E_{0max}} f(E_0) E_0^3 dE_0 . \quad (4.6)$$

Из (4.6) видно, что, в общем случае, прямой пропорциональности между W и E_b нет. В то же время, если ФРЭЭ от импульса к импульсу меняется незначительно, а флуктуирует главным образом число электронов N , такая пропорциональность появляется, что показано далее.

Средняя кинетическая энергия электрона $\langle E_0 \rangle$ определяется как $\langle E_0 \rangle = \int_0^{E_{0max}} f(E_0) E_0 dE_0$. Следовательно, полная кинетическая энергия электронного пучка вычисляется как $E_b = N \langle E_0 \rangle$. Третий момент ФРЭЭ имеет вид $\langle E_0^3 \rangle = \int_0^{E_{0max}} f(E_0) E_0^3 dE_0$. Эта величина, как и $\langle E_0 \rangle$, зависит только от вида ФРЭЭ. Если ФРЭЭ для разных импульсов сохраняется постоянной, то $\langle E_0 \rangle$ и $\langle E_0^3 \rangle$ в них тоже одинаковы. Выражение (4.6) для $W(E_b)$ выражается через $\langle E_0 \rangle$ и $\langle E_0^3 \rangle$ в виде

$$W = E_b \frac{\langle E_0^3 \rangle}{6\pi e^4 \rho_e \xi(I, E_0) X_0 \langle E_0 \rangle} . \quad (4.7)$$

Из (4.7) видно, что в случае неизменности ФРЭЭ в разных импульсах, если в каждом из них флуктуирует только N , энергия ТИ пучка W прямо пропорциональна его полной кинетической энергии E_b . Это соотношение верно для таких энергий электронов, для которых основные потери энергии в веществе идут на ионизацию.

Главная причина флуктуаций ФРЭЭ взрывоэмиссионного диода – разброс формы и амплитуды приложенного к нему ускоряющего напряжения [146]. Согласно измерениям, проведенным в [120], флуктуации амплитуды импульсного напряжения ускорителя РАДАН-ЭКСПЕРТ, прикладываемого к ВЭЭ-диоду ИМАЗ-150Э, малы и не превышают $\sim 7\%$.

Из приведенного анализа следует, что в настоящем эксперименте энергия W ТИ электронного пучка прямо пропорциональна полной кинетической энергии пучка E_b , и регистрация зависимостей характеристик ИКЛ исследуемых веществ от энергии рентгеновского излучения позволяет установить зависимость параметров ИКЛ от E_b . Далее проводится экспериментальное измерение связи E_b и E_X , позволяющее проверить описанные теоретические выкладки.

4.1.2. Экспериментальная проверка корректности измерений полной энергии электронного пучка

Проверка корректности измерения энергии пучка по энергии генерируемого им рентгеновского излучения была выполнена на основе анализа зависимости $E_l(E_X)$ для излучения молекул N_2 , возбуждаемого при прохождении пучка электронов через свободный воздушный промежуток, не содержащий твердых мишеней. В этом случае образец (Рис. 2-1, 8), столик (Рис. 2-1, 6) и диафрагма (Рис. 2-1, 9) были убраны, и электронный пучок распространялся в пустом воздушном промежутке длиной ~ 10 см.

Спектр исследуемого излучения приведен на Рис. 3-1. Наиболее интенсивное свечение относится к полосе (0-0) 2^+N_2 , основная часть которой расположена в

области 337 нм. В Гл. 3 показано, что возбуждение 2^+N_2 при бомбардировке свободного воздушного промежутка осуществляется главным образом прямым электронным ударом.

Известно, что зависимость сечения возбуждения состояний атомных частиц прямым электронным ударом от энергии налетающего электрона в случае интеркомбинационных переходов имеет острый максимум в области порога возбуждения E_{thr} этого состояния, который для $N_2(C^3\Pi_u)$ равен 11,032 эВ [118]. На Рис. 4-1 приведены сечения возбуждения излучения молекулы N_2 на длине волны 337,1 нм и однократной ионизации этой молекулы прямым электронным ударом, взятые из [147,148]. Также эти зависимости измерялись в работе [149].

Из Рис. 4-1 видно, что возбуждение 2^+N_2 осуществляется преимущественно электронами с энергией вблизи порога возбуждения. Также видно, что вероятность возбуждения существенно быстрее спадает с ростом энергии налетающего электрона, чем вероятность ионизации.

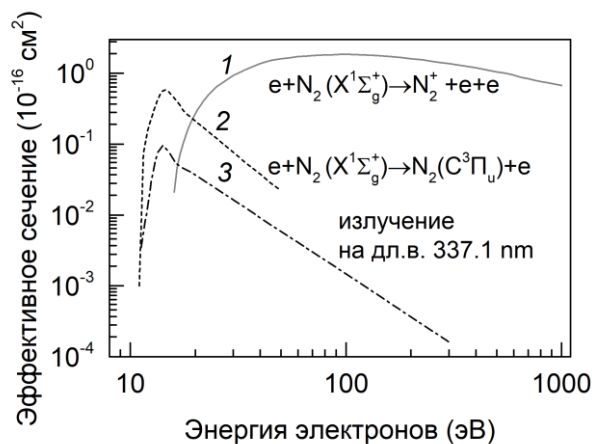


Рис. 4-1. Сечения процессов, вызываемых в молекуле N_2 прямым электронным ударом (по данным [147,148]): (1) - сплошная линия – однократной ионизации N_2 с формированием иона N_2^+ ; (2) – штриховая линия - сечение возбуждения состояния $N_2(C^3\Pi_u)$; (3) – штрихпунктирная линия – сечение возбуждения излучения (0-0) 2^+N_2 ($\lambda = 337.1$ нм).

Согласно [148,149], сечение ионизации молекулы N_2 превышает сечение возбуждения состояния $N_2(C^3\Pi_u)$ при всех энергиях выше 20 эВ. Следовательно,

первичные электроны пучка с энергиями 100-300 кэВ вызывают главным образом ионизацию молекул N_2 и O_2 , а возбуждение излучательных состояний молекул происходит в результате прямых ударов вторичных электронов, которые имеют энергии, близкие к E_{thr} .

Известно, что ФРЭЭ вторичных электронов не зависит от ФРЭЭ первичных электронов пучка [67,150]. Согласно [150], сечение рождения вторичного электрона $\sigma(E_s, E_p)$ с энергией E_s под действием первичного электрона с энергией E_p имеет следующий вид:

$$\sigma(E_s, E_p) = C(E_p) / \left(1 + (E_s/\hat{E})^{2.1}\right), \quad (4.8)$$

где $\hat{E}$ – некоторый параметр, получаемый авторами [150] из экспериментальных данных. $\hat{E}$ имеет смысл энергии вторичного электрона E_s , при которой сечение $\sigma(E_s, E_p)$ падает в 2 раза. Для молекулы N_2 при значении $E_p = 100$ эВ параметр $\hat{E}$ равен 12,7 эВ, а при значении $E_p = 2$ кэВ - $\hat{E} = 14,1$ эВ. Видно, что при изменении E_p на порядок значения $\hat{E}$ меняются менее чем на 15%. Также видно, что значения $\hat{E}$ близки к порогу возбуждения состояния $N_2(C^3\Pi_u)$. Остальные каналы потерь энергии первичного пучка не играют существенной роли, и ими можно пренебречь [135,151].

Оценим среднее число вторичных электронов N_{se}^S , создаваемых в атмосферном воздухе электроном с начальной кинетической энергией $\langle E_0 \rangle$. По причине малого вклада процессов возбуждения (Рис. 4-1) почти вся энергия первичного электрона уходит на ионизацию газа, то есть $N_{se}^S \langle E_0 \rangle / I$, где I – средняя энергия, требуемая для ионизации одной частицы (т.н. «средняя цена ионизации»), равная в случае воздуха 35 эВ [151]. Подавляющее большинство вторичных электронов имеет энергию, близкую к порогу возбуждения $N_2(C^3\Pi_u)$. От ФРЭЭ первичных электронов не зависит как ФРЭЭ вторичных электронов, так и величина I [151]. Действительно, по закону сохранения энергии можно приблизительно считать, что I есть сумма потенциала ионизации молекулы (15,58 эВ для N_2 [118] и

12,06 эВ для O_2 [152]) и среднего значения $\hat{E}$ (12–15 эВ для N_2 и 18–20 эВ для O_2 [150]). Следовательно, полное число вторичных электронов N_{Se} можно оценить как $N_{Se} N \times N_{Se}^S = E_b/I$.

Приведенные аргументы показывают, что N_{Se} прямо пропорционально E_b и, следовательно, число N_{2+N_2} фотонов 2^+N_2 , испущенных за один импульс электронов, прямо пропорционально полному числу вторичных электронов N_{Se} . Это означает, что N_{2+N_2} так же пропорционально E_b . Энергия излучения 2^+N_2 равна $E_{2+N_2} = \hbar\omega N_{2+N_2}$, где $\hbar\omega$ – энергия светового кванта, из чего следует, что E_{2+N_2} прямо пропорционально E_b .

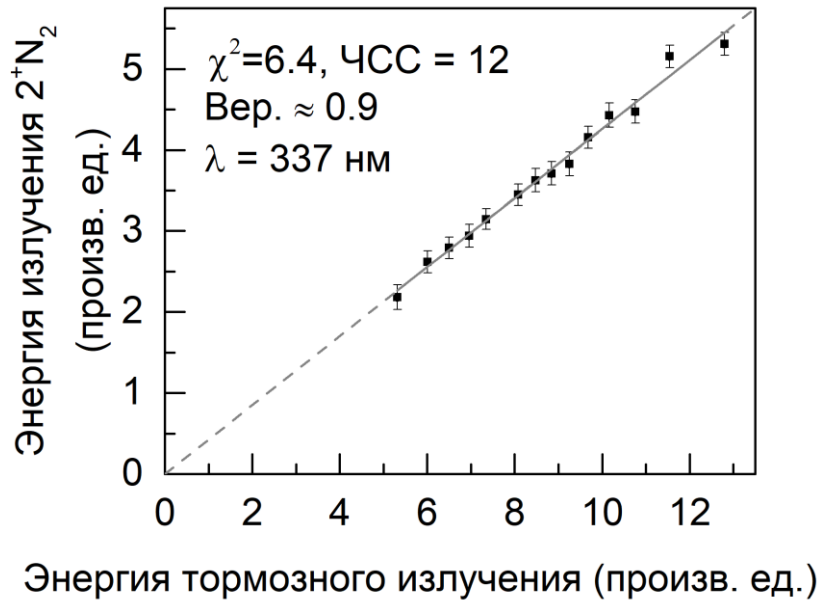


Рис. 4-2. Точки - зависимость энергии излучения молекулы N_2 на длине волны 337 нм от энергии ТИ при прохождении электронами свободного воздушного промежутка; сплошная линия – наилучшее приближение этой зависимости линейной функцией (4.9). Значение $\chi^2 = 6,4$, число ст. свободы – 12, вероятность достоверности линейной зависимости $\sim 0,9$.

Для энергии ИКЛ свободного воздушного промежутка E_l в области излучения 2^+N_2 , очевидно, $E_l = E_{2+N_2}$, то есть зависимость $E_l(E_X)$ для свободного воздушного промежутка должна представлять из себя прямую пропорциональность между E_l и E_X , если E_X прямо пропорционально E_b . Таким

образом, измерение зависимости $E_l(E_X)$ для свободного воздушного промежутка на длинах волн 2^+N_2 позволяет проверить корректность метода измерения энергии электронного пучка и выяснить, имеется ли в конкретных экспериментальных условиях прямая пропорциональность между E_b и E_X . Экспериментальная зависимость $E_l(E_X)$ для ИКЛ свободного воздушного промежутка в области 337 нм, соответствующей полосе 0-0 2^+N_2 , изображена точками на Рис. 4-2. Зависимость интенсивности $I_l(t)$ излучения 2^+N_2 в области 337 нм от времени при прохождении свободного воздушного промежутка представлена на Рис. 3-2 (а). Относящаяся к ней зависимость интенсивности $I_X(t)$ рентгеновского излучения от времени изображена на Рис. 3-2 (б). На Рис. 3-2 представлены результаты усреднения кривых $I_l(t)$ и $I_X(t)$, измеренных в 2800 отдельных импульсах.

Для каждой из этих 2800 кривых $I_l(t)$ и $I_X(t)$ были вычислены пары значений E_l и E_X по формулам $E_l = \int_0^{t_{max}} I_l(t)dt$ и $E_X = \int_0^{t_{max}} I_X(t)dt$, где $t_{max} = 5$ мкс. Полученные 2800 пар (E_X, E_l) были отсортированы по W и разбиты на группы по 200 пар (E_X, E_l) . Для каждой из групп были вычислены средние значения и стандартные отклонения величин E_X и E_l . Результат этих вычислений приведен точками на Рис. 4-2. Сплошная линия – наилучшее приближение полученных данных линейной функцией (4.9), где a^f и b^f – подгоночные параметры.

$$E_l^f = a^f W + b^f \quad , \quad (4.9).$$

В целях проверки правильности теоретических гипотез для описания экспериментальных данных в работе использован критерий χ^2 . Значение величины χ^2 вычисляется по формуле

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{N_m} \left(\frac{E_l^i - E_l^f}{\sigma_l^i} \right)^2 \quad . \quad (4.10),$$

где E_l^i – средняя энергия люминесценции, вычисленная для i -ой группы, σ_l^i – её стандартное отклонение, E_l^f – энергия люминесценции, вычисленная теоретически в соответствии с проверяемой гипотезой при том же значении энергии

электронного пучка, N_m - число групп, на которые разбито множество экспериментальных точек.

В настоящей работе под вероятностью гипотезы понимается значение её фактора значимости [153,154], равного интегралу распределения χ^2 от полученного по формуле (4.10) значения χ^2 до бесконечности при данном значении числа степеней свободы выборки (ЧСС):

$$P(\chi^2, \text{ЧСС}) = \int_{\chi^2}^{\infty} \frac{1}{2^{\frac{\text{ЧСС}}{2}} \Gamma(\frac{\text{ЧСС}}{2})} (\chi^2)^{\frac{\text{ЧСС}}{2}-1} e^{-\frac{\chi^2}{2}} d\chi^2 \quad (4.11),$$

где $\Gamma(x)$ – гамма-функция, ЧСС $N_m - N_{params}$, где N_{params} – число подгоночных параметров наилучшего приближения.

Для экспериментальных данных на Рис. 4-2 значение χ^2 , вычисленное по формуле (4.10) в случае приближения зависимости $E_l(E_X)$ линейной функцией (4.9), равно 6,4 при ЧСС=12. Вероятность этой гипотезы, полученная по формуле (4.11), равна 90%. Следовательно, зависимость $E_l(E_X)$ для свободного воздушного промежутка, изображенная на Рис. 4-2, демонстрирует прямую пропорциональность.

Таким образом, для излучения (0-0) полосы 2^+N_2 обнаружена прямая пропорциональность между E_X и E_l , что подтверждает корректность предложенного метода измерения энергии электронного пучка и показывает, что энергия рентгеновского излучения E_X в условиях настоящего эксперимента прямо пропорциональна полной кинетической энергии электронного пучка E_b .

Бомбардировка электронами металлической мишени приводит к тому, что основная часть ТИ генерируется уже не в газовом промежутке, а при торможении электронов в металле. Сохранится ли прямая пропорциональность между E_l для 2^+N_2 и E_X в этом случае? Ответ на этот вопрос дан на Рис. 4-3.

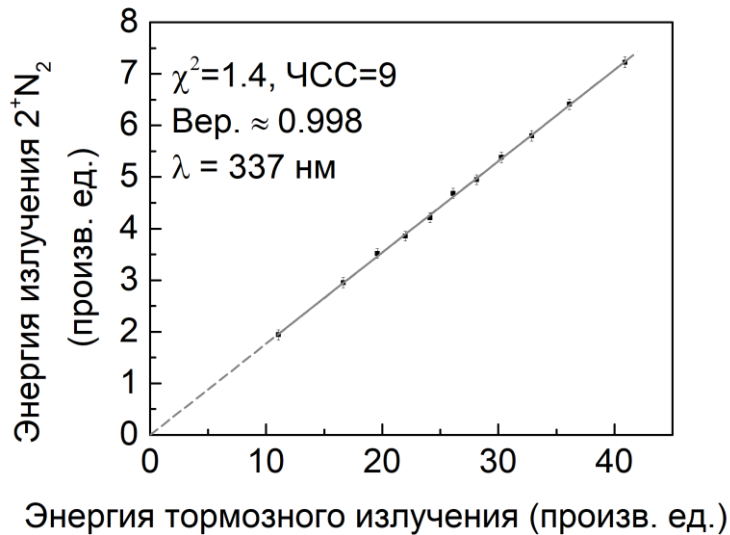


Рис. 4-3. Точки - зависимость энергии полосы излучения (0-0) 2^+N_2 на длине волны 337 нм от полной энергии пучка электронов при бомбардировке дюралевого столика на воздухе; сплошная линия – наилучшее приближение этой зависимости линейной функцией (4.9). Значение $\chi^2 = 1,4$, число ст. свободы – 9, вероятность достоверности линейной зависимости $\sim 0,998$.

На Рис. 4-3 изображена зависимость $E_l(E_x)$, полностью аналогичная представленной на Рис. 4-2, записанная при бомбардировке электронами дюралевого столика (Рис. 2-1, 6 и Рис. 2-5, 5) в атмосфере воздуха. Также исследовано излучение (0-0) 2^+N_2 на длине волны 337 нм. Было выполнено 4569 измерений, сгруппированных в группы по 400 пар (E_l, E_x) . Наилучшее приближение линейной функцией (4.9) дает значение $\chi^2 = 1,4$ при ЧСС = 9, что, согласно (4.11), соответствует вероятности 99,8%. Следовательно, и при бомбардировке металла E_l излучения 2^+N_2 прямо пропорционально E_x . Более высокая достоверность этой зависимости по сравнению с приведенной на Рис. 4-2 связана с тем, что при бомбардировке электронами металла на воздухе интенсивность как рентгеновского излучения, так и свечения молекулярного азота выше на порядок по сравнению с таковыми для свободного воздушного промежутка.

Так как излучение 2^+N_2 возбуждается прямым электронным ударом и, следовательно, его энергия прямо пропорциональна энергии пучка электронов, то

и энергия рентгеновского излучения при бомбардировке исследуемых материалов, как и в случае свободного воздушного промежутка, прямо пропорциональна полной энергии пучка электронов. Полученный результат также свидетельствует, что возможные искажения, вызванные нелинейностью пластикового сцинтиллятора, как и другие нелинейные искажения, возникающие при измерении энергии электронного пучка предложенным методом, в условиях настоящей работы незначительны.

Результаты эксперимента подтверждают, что измеренные в настоящей работе зависимости $E_l(E_x)$ для ИКЛ исследуемых веществ соответствуют для них зависимостям $E_l(E_b)$, и, таким образом, предложенная методика может быть использована для исследования нелинейных зависимостей параметров ИКЛ от полной кинетической энергии электронного пучка.

4.2. Характеристики ИКЛ кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4

В настоящей главе исследуется нелинейность собственной люминесценции широкозонных сцинтилляторов, не содержащих активаторов люминесценции. Кристаллы $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) и PbWO_4 (PWO) были выращены ОАО ВНИИСИМС, г. Александров. Кристалл CeF_3 выращен в Институте Кристаллографии АН СССР, BaF_2 - в ГОИ им. С. И. Вавилова. Эти вещества обладают хорошо изученной яркой СЛ при комнатной температуре [89-106]. Образец $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ имел форму цилиндра (ростовой були) диаметром 4 см и длиной 6 см. Кристалл BaF_2 имел форму квадратной пластины толщиной 4 мм и стороной 1 см, CeF_3 – цилиндра высотой 4 мм и диаметром 1 см, PbWO_4 – форму куба со стороной 1 см.

Спектры ИКЛ кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, CeF_3 и BaF_2 представлены на Рис. 4-4. Спектр ИКЛ PbWO_4 записать не удалось из-за её слабой интенсивности. Напомним, что спектры сняты с использованием оптоволоконного кабеля длиной 1 м, в то время как нелинейные характеристики и кинетика ИКЛ сняты при помощи оптического кабеля длиной 15 м. Нелинейные характеристики ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, CeF_3

и BaF_2 записаны в одинаковой геометрии с использованием круговой диафрагмы. Из-за малой интенсивности ИКЛ PbWO_4 её нелинейные характеристики были записаны без использования диафрагмы. Соответственно, точность измерений зависимости выхода ИКЛ PbWO_4 от плотности электронно-дырочных пар ниже, чем для CeF_3 и BaF_2 , и соответствующие кривые приводятся в работе для качественного анализа.

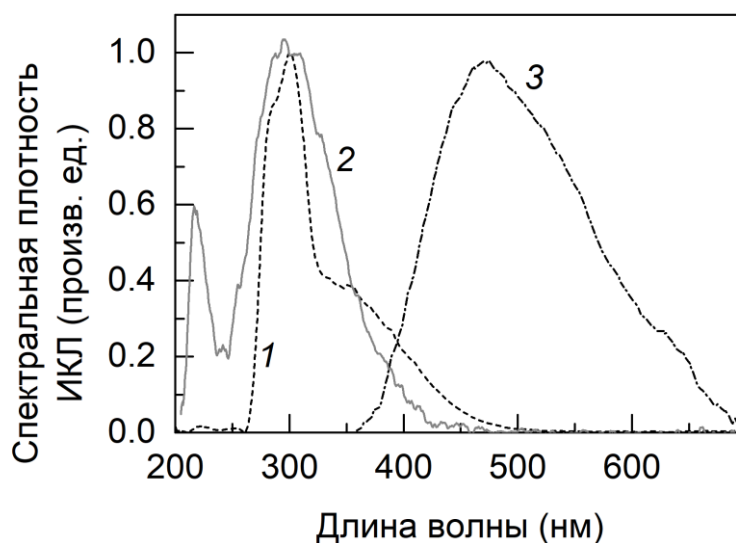


Рис. 4-4. Спектры ИКЛ кристаллов CeF_3 (1 - штриховая линия), BaF_2 (2 - сплошная линия) и $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (3 – штрихпунктирная линия).

Кристалл BaF_2 обладает СЛ двух типов: медленной люминесценцией АЛЭ [89,91], имеющей время высвечивания ~ 800 нс, и сверхбыстрой кросс-люминесценцией со временем высвечивания 660 пс [90,93,94]. В настоящей главе у кристалла BaF_2 исследуются только свойства медленной ИКЛ, которая возникает при распаде АЛЭ. Кросс-люминесценция BaF_2 , лежащая в области длин волн короче 250 нм, не пропускается оптоволоконным кабелем длиной 15 м, и, соответственно, регистрируется только свечение АЛЭ в области 250-500 нм.

Кристалл CeF_3 обладает СЛ двух типов [94-100]. Люминесценция первого типа связана с переходами между уровнями ионов Ce^{3+} , расположенных в регулярных областях кристаллической решетки, имеет мак-симум спектральной

плотности энергии в области 300 нм и время высвечивания на уровне 20 нс при комнатной температуре [98]. Люминесценция второго типа связана с переходами между уровнями ионов Ce^{3+} , расположенных в узлах кристаллической решетки, искаженных из-за того, что они находятся вблизи дефектов, и имеет максимум в области 350 нм при времени высвечивания при комнатной температуре ~36 нс.

СЛ $\text{Bi}_3\text{Ge}_4\text{O}_{12}$ и PbWO_4 связана с распадом АЛЭ и лежит в видимой области [103-106]. Максимум спектра СЛ $\text{Bi}_3\text{Ge}_4\text{O}_{12}$ расположен в области 480 нм [103], а PbWO_4 – 450 нм [105,106]. При комнатной температуре время высвечивания СЛ $\text{Bi}_3\text{Ge}_4\text{O}_{12}$ составляет ~300 нс [102], а PbWO_4 – менее 6 нс [105,106].

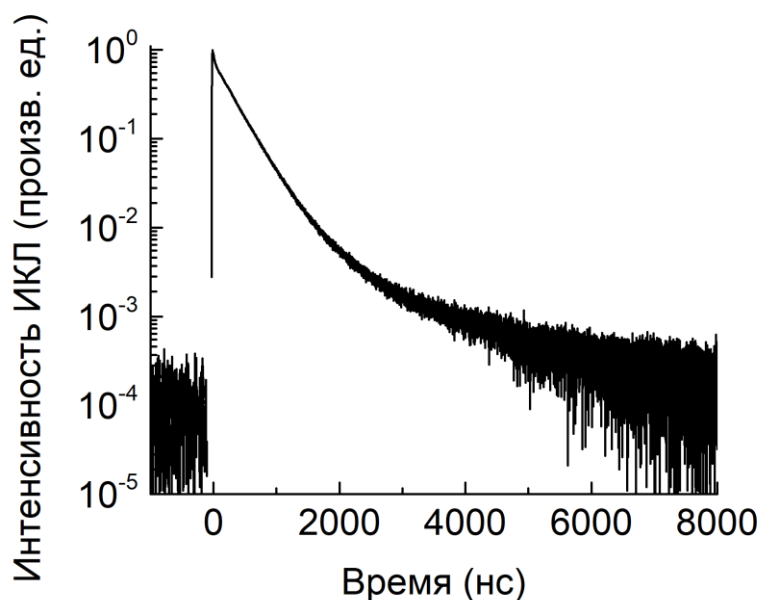


Рис. 4-5. Зависимость интенсивности ИКЛ кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ от времени, записанная в 0-ом порядке дифракционной решетки монохроматора.

4.3. Нелинейность ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

На Рис. 4-5. представлена кинетика ИКЛ кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, записанная в 0-ом порядке дифракционной решетки (ДР) монохроматора. В этом измерении кристалл не был накрыт никакими дополнительными приспособлениями, ограничивающим электронный пучок. Для исследования крупного образца $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ предметный столик (Рис. 2-1, 6 и Рис. 2-5, 5) был убран. Образец

$\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ имел диаметр поперечного сечения ~ 4 см, что превышает диаметр пучка электронов, равный ~ 2 см (Рис. 2-4). В ходе исследований ИКЛ этого кристалла возник вопрос о влиянии пространственного электрического заряда, который может формироваться вблизи поверхности крупного диэлектрического образца.

Было предположено, что из-за крупного размера диэлектрического образца может быть затруднено рассасывание пространственного электрического заряда, что может приводить к его накоплению и, следовательно, к искажению люминесцентной информации, которая может отличаться от таковой, полученной для образца того же вещества, накрытого металлическими приспособлениями.

Действительно, при накрытии образца заземленной металлической пластиной с малым отверстием или металлической сеткой может заметно измениться по сравнению с ненакрытым крупным кристаллом конфигурация электрического потенциала в промежутке между выходным окном ускорительной трубки и образцом. Из-за этого могут измениться параметры электронного пучка и, следовательно, возбуждения вещества, внося погрешность при сравнении параметров.

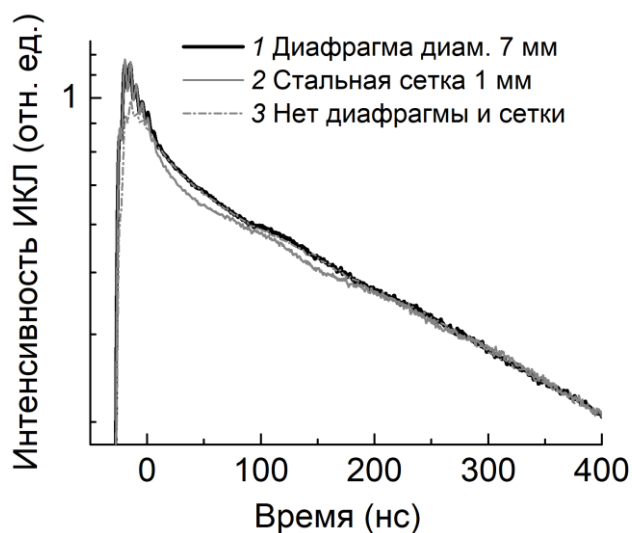


Рис. 4-6. Кинетика ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в 0-ом порядке монохроматора в случае, когда 1- кристалл был накрыт латунной диафрагмой; 2-стальной сеткой; 3-не был накрыт никакими приспособлениями.

Для выяснения влияния этих факторов на результаты измерений мы сравнили параметры ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, не накрытого никакими ограничивающими электронный пучок приспособлениями, с параметрами ИКЛ того же образца, накрытого латунной фольгой толщиной 250 мкм с отверстием диаметром 7 мм (эта диафрагма изображена на Рис. 2-1, 7), и кристалла, накрытого стальной сеткой с диаметром проволоки 250 мкм, имеющей квадратную клетку со стороной 1 мм. Сетка и фольга были заземлены.

Сопоставление кинетики ИКЛ в этих условиях приведено на Рис. 4-6. Серия пиков в начальный момент времени относится к быстрой компоненте излучения 2^+N_2 (Рис. 3-2). Видно, что после её прекращения кинетика ИКЛ кристалла, не накрытого никакими приспособлениями, и кристалла, накрытого латунной фольгой, совпадают. В то же время, в течение первых 300 нс кинетика ИКЛ кристалла, накрытого сеткой, несколько отличается, имея меньшую интенсивность. После 300 нс все три зависимости от времени сравниваются.

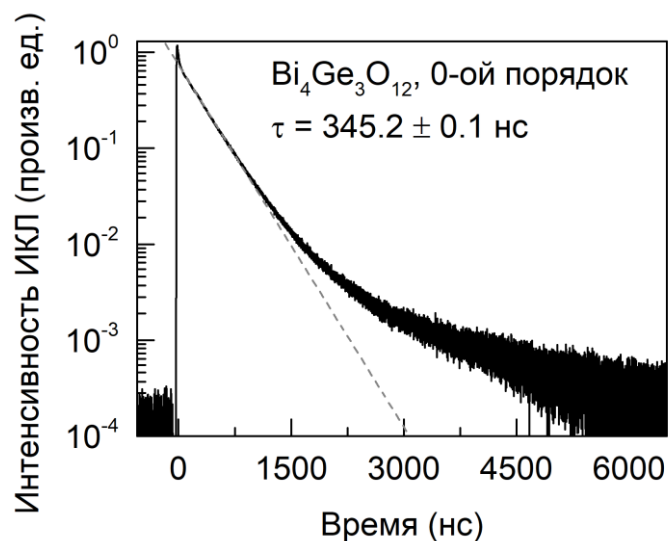


Рис. 4-7. Зависимость интенсивности ИКЛ от времени кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ с латунной диафрагмой диаметром 7 мм в 0-ом порядке монохроматора. Штриховая линия – наилучшее приближение экспериментальной кривой затухания функцией (4.13).

Таким образом, из Рис. 4-6 следует, что использование диафрагмы (Рис. 2-1, 7) не влияет на параметры кинетики ИКЛ, в то время как накрытие образца

стальной сеткой искажает её в начальные ~200-300 нс. Установление причин этого явления выходит за рамки настоящей работы.

Зависимость интенсивности ИКЛ от времени для кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, записанная в 0-ом порядке ДР монохроматора, когда кристалл был накрыт латунной фольгой диаметром 7 мм, приведена на Рис. 4-7, а на длине волны 505 нм – на Рис. 4-8. Штриховыми линиями на рисунках показаны кривые наилучшего приближения данных функцией вида

$$I(t) = a \exp(-t/\tau) \quad , \quad (4.13)$$

где a и τ – подгоночные параметры. Видно, что в диапазоне 0-1200 нс затухание ИКЛ обеих кривых экспоненциально с близкими временами высвечивания $\tau \approx 350$ нс.

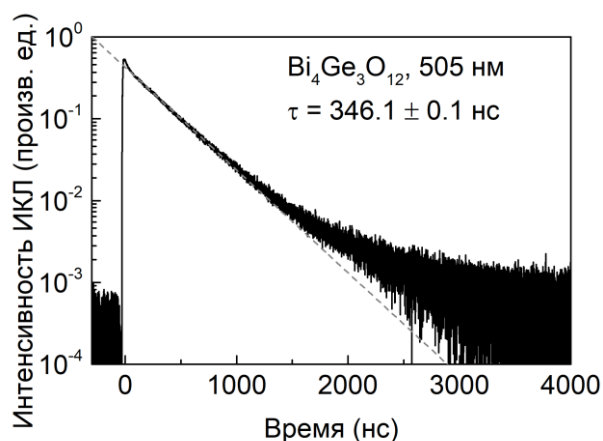


Рис. 4-8. Зависимость интенсивности ИКЛ на длине волны 505 нм от времени кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ с латунной диафрагмой диаметром 7 мм

Наличие у электронного пучка медленной микросекундной компоненты (Рис. 3-2) приводит к искажениям кинетики ИКЛ. На Рис. 4-6 в области 100 нс заметны искажения, несколько отличающие люминесцентный распад $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ от экспоненциального. Эти искажения не влияют на точность вычисления энергии ИКЛ, если интегрирование по времени в выражении (4.2) выполняется до полного затухания излучения. Так, в настоящей работе кривые затухания ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ интегрировались в диапазоне 0-8 мкс.

На Рис. 4-9 приведены зависимости энергии ИКЛ в произвольных единицах от энергии электронного пучка в произвольных единицах для кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, не накрытого никакими ограничивающими электронный пучок приспособлениями, а также для того же образца, накрытого латунной фольгой с круглым отверстием диаметром 7 мм и стальной сеткой, записанные в 0-ом порядке ДР монохроматора.

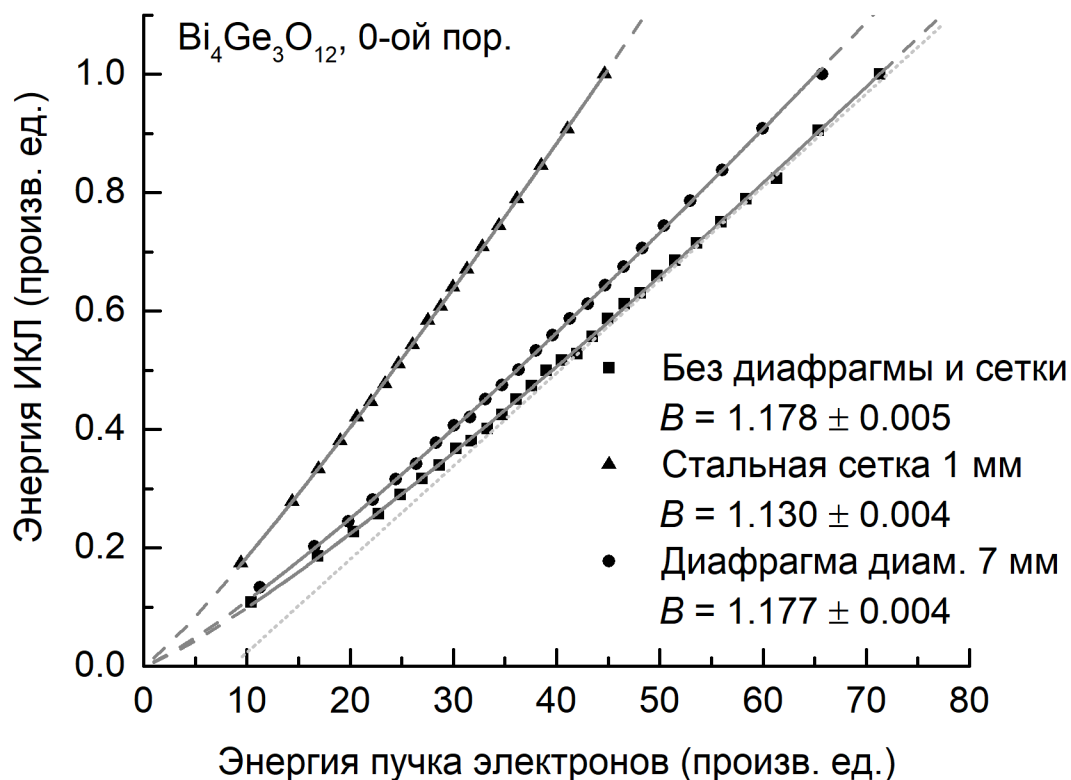


Рис. 4-9. Зависимости интенсивности ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ от энергии пучка электронов в случае, когда кристалл не был ничем накрыт (квадраты), был накрыт стальной сеткой (треугольники) и латунной фольгой толщиной 250 мкм с круглым отверстием диаметром 7 мм. Сплошные линии — наилучшие приближения по формуле (4.11). Точками для демонстрации нелинейности полученных зависимостей изображена прямая линия.

Процедура получения кривых на Рис. 4-9 аналогична процедуре нахождения зависимости на Рис. 4-2. Для каждой кривой измеренные 1000-6000 пар (E_b, E_l) сортировались по E_b , а затем разбивались на группы по 50-200 пар. В каждой группе вычислялись средние значения энергий E_l и E_b и их стандартные

отклонения. Подробности эксперимента для каждой кривой представлены в Табл. 4-1. Кривые на Рис. 4-9 нелинейны. Действительно, рассмотрим аппроксимацию экспериментальных данных степенной функцией вида

$$E_l = AE_b^B \quad (4.14),$$

где A и B – подгоночные параметры. Далее в настоящей работе под параметром нелинейности зависимости $E_l(E_b)$ понимается показатель степени B , полученный наилучшим приближением экспериментальных данных степенной функцией (4.14).

Табл. 4-1. Параметры нелинейности ИКЛ крупного (диаметр 4 см) кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, измеренные в различных условиях

Особенности измерения	Длина волны, нм	Число измерений пар $E_l(E_b)$	Число групп	B , параметр получен наилучшим приближением формулой (4.14)	Время высвечивания ИКЛ, нс	χ^2 , ЧСС*	Вероятность**, %
Кристалл ничем не накрыт	0-й пор.	5736	28	1.178 ± 0.005	346.1 ± 0.4	36, 26	9
	505	2075	20	1.236 ± 0.007	343.8 ± 0.4	22, 18	24
Кристалл накрыт стальной сеткой (диаметр проволоки 250 мкм, размер клетки 1 мм)	0-ой пор.	4004	19	1.130 ± 0.004	363.7 ± 0.1	6.5, 17	90
	505	1573	22	1.136 ± 0.01	363.5 ± 0.2	21, 20	40
Кристалл накрыт латунной фольгой толщиной 250 мкм с отверстием диаметром 7 мм	0-ой пор.	4899	24	1.177 ± 0.004	345.2 ± 0.1	31, 22	10
	505	1149	22	1.207 ± 0.012	346 ± 1	29, 20	9

*ЧСС-число степеней свободы в распределении χ^2

**Значение распределения χ^2 , вычисленное по формуле (4.11).

Аппроксимация экспериментальных данных зависимостью (4.14) также изображена на Рис. 4-9. Результаты вычислений даны в Табл. 4-1. Там же даны значения χ^2 , вычисляемые по формуле (4.10) и вероятности этих гипотез, вычисленные по формуле (4.11).

Из Табл. 4-1 видно, что для всех исследованных кривых $B > 1$. Таким образом их можно считать сверхлинейными (возрастание E_l с увеличением E_b опережает линейный рост). Также из Табл. 4-1. следует, что приближение зависимостей $E_l(E_b)$ функцией (4.14) не является вполне точным. Действительно, оно достаточно точно только для кристалла, накрытого сеткой в 0-ом порядке (вероятность соответствующей зависимости составляет 90%). Для остальных измерений вероятность не превышает 25%.

Так как кривые, приведенные на Рис. 4-1, получены в настоящей работе впервые, мы не проводим подробных исследований точной формы измеренных зависимостей $E_l(E_b)$. Выражение (4.14) описывает некоторую обобщенную форму зависимости, игнорируя её тонкие детали, которые, вообще говоря, могут описывать взаимодействие ЭВ между собой.

С другой стороны, выражение (4.14) правильно описывает сверхлинейный характер зависимостей $E_l(E_b)$. Действительно, рассмотрим такую зависимость для кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в 0-ом порядке ДР, измеренную с использованием латунной диафрагмы. Аппроксимация полученных результатов выражением (4.14) дает значение $\chi^2 = 31$ при ЧСС = 22 и, следовательно, вероятность этой зависимости составляет ~10% (Табл. 4-1). В то же время, наилучшее приближение этих же данных линейной функцией (4.9) дает значение $\chi^2 = 238$ при ЧСС = 22, и вероятность составляет $4.4 \cdot 10^{-36}$ %. Следовательно, приближение нелинейной функцией (4.14) описывает, хоть и достаточно грубо, полученные данные, в то время как приближение прямой пропорциональностью (4.9) вообще никак не соответствует эксперименту.

Иллюстрация этого факта приведена на Рис. 4-10, на котором изображен участок зависимости $E_l(E_b)$ для кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в 0-ом порядке ДР,

измеренной с использованием латунной диафрагмы в таком масштабе, в котором видны величины погрешностей измерения. Также изображены наилучшие приближения экспериментальных данных степенной функцией (4.14) и линейной функцией (4.9).

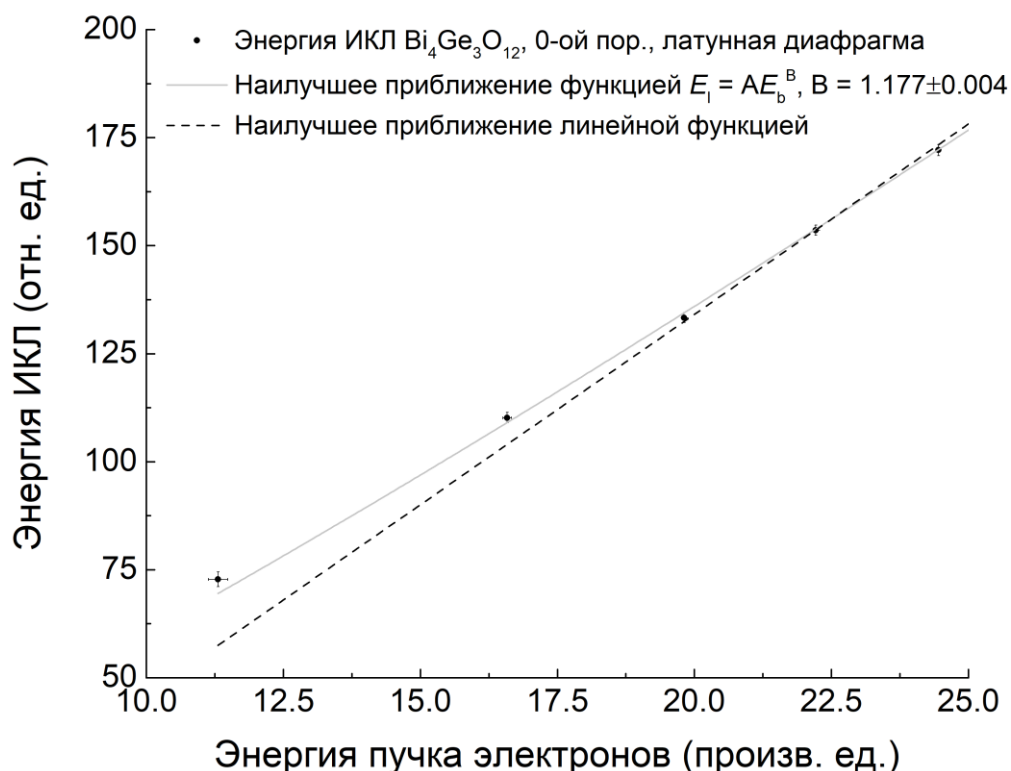


Рис. 4-10. Участок экспериментальной зависимости $E_l(E_b)$ собственной ИКЛ кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, записанной в 0-ом порядке ДР при накрытии кристалла латунной диафрагмой с отверстием диаметром 7 мм - точки; наилучшее приближение этой зависимости степенной функцией (4.14) - сплошная линия и линейной функцией (4.9) - штрихпунктирная линия.

Из Рис. 4-10 видно, что приближение степенной сверхлинейной функцией проходит достаточно близко к экспериментальным точкам, не описывая при этом малые отклонения от этой зависимости, что и приводит к тому, что вероятность этой гипотезы не очень высока – 10%. В то же время линейная функция проходит на значительном удалении от экспериментальных точек, превышающем значение погрешности измерений более чем в 10 раз, и не описывает даже сравнительно грубые детали зависимости $E_l(E_b)$. В п. 4.7.1 приложения к настоящей главе

(см. с. 119) приводится доказательство того, что погрешность измерений зависимости $E_l(E_b)$ вычислена правильно, на основе статистических характеристик полученных данных.

Из Табл. 4-1 видно, что параметр B в пределах ошибки измерения одинаков при измерениях на одних и тех же длинах волн для нелинейности ИКЛ кристалла, не накрытого никакими приспособлениями, и накрытого латунной диафрагмой. Это, с одной стороны, подтверждает повторяемость измерений нелинейности ИКЛ, выполняемых предложенным методом, демонстрируя его применимость, с другой – показывает, что нелинейные параметры ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, измеренные с использованием латунной диафрагмы (Рис. 2-1, 7), равны в пределах погрешности параметрам нелинейности ИКЛ этого материала, измеренным без специальных приспособлений. Следовательно, латунная диафрагма не искажает параметра нелинейности ИКЛ и может быть использована при измерении нелинейностей ИКЛ кристаллов разных размеров. Также полученные результаты подтверждают, что параметр нелинейности B , полученный наилучшим приближением экспериментальных зависимостей $E_l(E_b)$ кривой (4.14), может быть использован в качестве приближенной характеристики для сравнения нелинейности ИКЛ разных материалов.

Из Табл. 4-1 видно, что параметры нелинейности ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, накрытого стальной сеткой, заметно отличаются от параметров B ИКЛ того же кристалла, как накрытого латунной диафрагмой, так и ничем не накрытого. Это же выполняется и для кинетики ИКЛ. Следовательно, стальная сетка вносит существенные искажения как в кинетику, так и в нелинейные характеристики ИКЛ, и далее в работе не будет использована.

С другой стороны, латунная диафрагма (Рис. 2-1, 7) не меняет существенно образом как параметры кинетики, так и характеристики нелинейности ИКЛ и, следовательно, может быть использована для того, чтобы обеспечить одинаковые условия измерений для образцов с разными размерами. При этом, так как торможение основной части электронов происходит в материале диафрагмы,

одинаковым образом для всех кристаллов обеспечивается измерение энергии рентгеновского излучения пучка.

4.4. Сопоставление нелинейности выхода ИКЛ и ФЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

Важнейшей характеристикой сцинтилляции является её выход Y , вычисляемый как $Y = E_l/E_{exc}$, где E_l – энергия люминесценции и E_{exc} – энергия поглощенного веществом ионизирующего излучения. В случае, если размер образца превышает размер возбуждающего электронного пучка, и, следовательно, вся его энергия идет на возбуждение сцинтилляции, выход ИКЛ вычисляется как

$$Y_{CL} = E_l/E_b \quad (4.15),$$

где E_b – полная кинетическая энергия пучка электронов. Зависимость $Y_{CL}(E_b)$ для собственной ИКЛ кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в 0-ом порядке ДР приведена на Рис. 4-11.

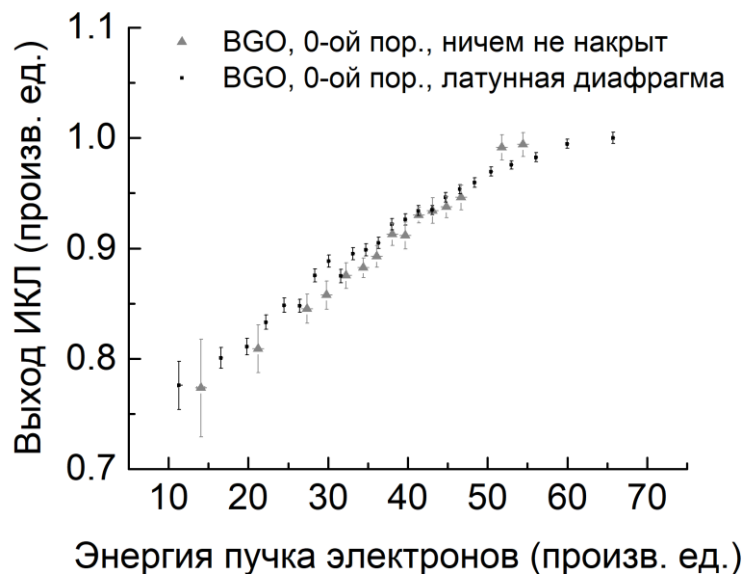


Рис. 4-11. Зависимость выхода ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ от энергии электронного пучка, записанная в 0-ом порядке ДР, в случае, когда кристалл не был накрыт никакими ограничивающими электронный пучок приспособлениями (треугольники) и был накрыт латунной фольгой толщиной 250 мкм с круглым отверстием диаметром 7 мм (квадраты).

Если кристалл накрыт диафрагмой с отверстием, диаметр которого меньше диаметра пучка, то выражение (4.15), вообще говоря, неприменимо. Действительно, в этом случае ИКЛ возбуждается только теми электронами, которые прошли через отверстие в диафрагме. Остальные же электроны

поглощаются в материале диафрагмы и приводят только к испусканию рентгеновского излучения, не давая вклада в ИКЛ. С другой стороны, рентгеновский датчик (Рис. 2-1, 11,13,14) измеряет полную кинетическую энергию всего электронного пучка – как той части, которая прошла диафрагму, так и той части, которая в ней затормозилась.

Правильное значение выхода ИКЛ при бомбардировке электронами образцов, накрытых диафрагмой, получится, если в выражении (4.15) использовать в качестве энергии возбуждения E_{exc} энергию только той части электронного пучка, которая проходит через диафрагму. Эта энергия в работе не измерялась. С другой стороны, если энергия электронов, прошедших диафрагму, прямо пропорциональна полной энергии электронного пучка E_b , то тогда в выражении (4.15) можно использовать и полную энергию электронов.

На Рис. 4-11 зависимость выхода ИКЛ кристалла $Vi_4Ge_3O_{12}$ от энергии пучка, измеренная без диафрагмы, сопоставлена с зависимостью отношения E_l/E_b от E_b для ИКЛ кристалла $Vi_4Ge_3O_{12}$, накрытого латунной диафрагмой с отверстием диаметром 7 мм. В остальных условиях измерений совпадали. Из Рис. 4-11 видно, что, несмотря на то, что полная энергия электронного пучка E_b не равна той энергии, которую поглощает образец, накрытый диафрагмой, зависимости близки в пределах ошибки измерений.

Следовательно, в пределах точности измерений настоящей работы можно считать, что энергия части пучка электронов, прошедших круговую диафрагму, прямо пропорциональна полной энергии электронного пучка и зависимости E_l/E_b от E_b , измеренные для кристаллов, накрытых латунной диафрагмой, можно считать прямо пропорциональными зависимостям выхода ИКЛ $Y_{CL}(E_b)$.

Каждый быстрый электрон пучка создаёт в веществе ионизационный трек [37-40,58,60,63,66,68-70,73]. Расстояние Δr между треками, можно оценить, зная их примерное число в каждом импульсе ($N \sim 10^{10}$ - 10^{12} [120]) и площадь поперечного сечения пучка ($S \sim 3 \text{ см}^2$, см. Рис. 2-4). Тогда $\Delta r \sim \sqrt{S/N} \sim 10$ -100 нм. Оценки радиуса

треков дают значение в несколько нанометров [37-40,58,60,63,66,68-70,73], а длина диффузии ЭВ в течение ~ 1 нс оценивается как ~ 100 нм [68].

Следовательно, можно считать, что при воздействии мощного электронного пучка взаимная диффузия ЭВ, принадлежащих соседним трекам, приводит к тому, что, в первом приближении, плотность ЭВ становится одинаковой во всех точках кристалла, в которые проникают электроны возбуждающего пучка. Таким образом, можно приближенно считать, что характерные для трека отдельной частицы резкие радиальные градиенты плотности ЭВ при возбуждении ИКЛ не возникают, а формируется объёмное распределение ЭВ, близкое к однородному.

Объёмное распределение ЭВ, близкое к равномерному, реализуется также при возбуждении ультрафиолетовым (УФ) излучением. Действительно, область его фокусировки не может быть меньше нескольких длин волн и имеет диаметр ≥ 1 мкм. Внутри этого объёма, характерный размер которого на несколько порядков больше диаметра одиночного ионизационного трека и существенно превышает длины диффузии ЭВ, также реализуется возбуждение с объёмной плотностью, близкой к однородной по всему объёму. Приведённые аргументы позволяют сделать вывод о том, что для оценки параметров возбуждения, создаваемого мощным электронным пучком, можно считать, что процессы, вызываемые в веществе воздействием мощного ионизирующего лазерного излучения и мощного электронного пучка, очень близки. Так, в работе [73] отмечено, что основные нелинейные свойства сцинтилляции возникают на том этапе эволюции ЭВ, на котором их энергия становится близкой к ширине запрещенной зоны.

Для приближенной качественной оценки параметров нелинейности зависимости выхода ИКЛ исследуемых веществ от плотности ЭВ мы принимаем гипотезу о том, что для кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ зависимости выхода ИКЛ и выхода ФЛ от объёмной плотности ЭВ под действием излучения с энергией фотона 5,9 эВ одинаковы. Ширина запрещенной зоны $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ составляет 4,2 эВ [104] и, следовательно, под действием этого излучения в кристалле формируется

неравновесный плотный газ электронно-дырочных пар, как и в случае бомбардировки его сильно-точным электронным пучком.

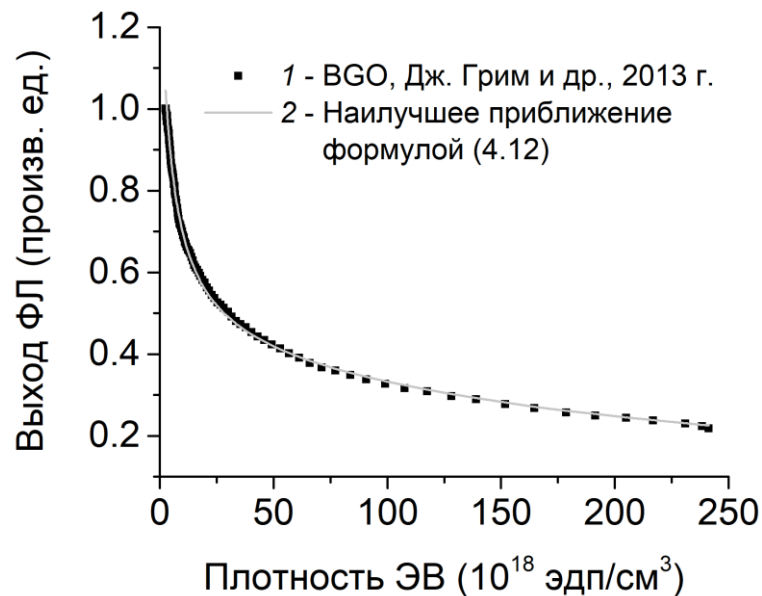


Рис. 4-12. 1- Зависимость выхода собственной ФЛ кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ от объёмной плотности ЭВ, созданных импульсами лазерного излучения на длине волны 210 нм, опубликованная в работе [28]; 2- Наилучшее приближение этой зависимости выражением (4.16), соответствующие коэффициенты $a_1 \dots a_4$ приведены в Табл. 4-2.

Принятая гипотеза безусловно является приближенной и не учитывает многие процессы, которые не возбуждаются под действием фотонов с энергией 5,9 эВ (ионизация внутренних электронных оболочек, формирование в веществе электронов с энергией ~ 100 кэВ, опустошение остовных зон и др.). С другой стороны, так как большинство нелинейных сцинтилляционных процессов обусловлены в первую очередь взаимодействием между ЭВ, имеющими энергии, близкие к ширине запрещенной зоны [73], использованное приближение даёт по крайней мере качественное описание исследуемых процессов.

Нелинейная зависимость выхода собственной ФЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ от плотности ЭВ под действием лазерного излучения длительностью 0,5 пс на длине волны 210 нм измерена в работе [28] и приведена на Рис. 4-12. ФЛ записывалась напрямую на ФЭУ интегрально по длине волны. Для дальнейшего анализа необходимо

превратить экспериментальную зависимость на Рис. 4-12, снятую в отдельных точках, в аналитическую кривую. Для этого используется простая теория нелинейности сцинтилляции, развитая в работе [37], в которой получено следующее аналитическое выражение для выхода сцинтилляции из данной области вещества, в котором объёмная плотность ЭВ равна n :

$$Y = \frac{a_1 + a_2 n}{1 + a_3 n + a_4 n^2} \quad (4.16).$$

Формула (4.16) получена в работе [37] в приближении того, что люминесцентный распад для данного вещества описывается одноэкспоненциальной функцией. Для кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ это приближение правомерно (Рис. 4.6-4.8). Параметры $a_1 \dots a_4$ в (4.16) вычисляются через константы вещества. Формулы для их вычисления приведены в [37].

К сожалению, в настоящий момент значения многих констант, необходимых для установления связи Y и n , как в случае кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, так и многих других сцинтилляторов, неизвестны [37-40]. Для получения аналитического выражения $Y(n)$ для $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ мы выполнили наилучшее приближение зависимости выхода ФЛ этого кристалла от плотности ЭВ выражением (4.16), где коэффициенты $a_1 \dots a_4$ служили подгоночными параметрами. Полученные параметры даны в Табл. 4-2.

Табл. 4-2. Параметры наилучшего приближения экспериментальных данных зависимости $Y(n)$ выхода ФЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, опубликованной в работе [28].

Параметр в формуле (4.16)	Результат наилучшего приближения
a_1	1.44 ± 0.06
a_2	$(0.10 \pm 0.02) \times 10^{-18} \text{ см}^3$
a_3	$(0.24 \pm 0.03) \times 10^{-18} \text{ см}^3$
a_4	$(9.2 \pm 2.5) \times 10^{-40} \text{ см}^6$

Далее, основываясь на предположении о том, что зависимости выхода ФЛ и ИКЛ сцинтилляции кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ от плотности ЭВ одинаковы и имеют вид, изображенный на Рис. 4-12, оказывается возможным сделать оценку зависимости средней плотности ЭВ, создаваемой электронным пучком, от полной энергии электронного пучка.

В работе [155] установлено, что взрывоэмиссионные субнаносекундные электронные пучки обладают сильным кулоновским расталкиванием. В [155] дана следующая оценка. При кинетической энергии электронов в 100 кэВ, силе тока 100 А и радиусе пучка 2 см плотность тока пучка составляет 8 А/см², плотность электронов в пучке - $3 \cdot 10^9$ см⁻³, скорость электронов v_t вдоль направления движения равна $2 \cdot 10^{10}$ см/с, а поперечная скорость v_p , возникающая из-за кулоновского расталкивания, - $6 \cdot 10^9$ см/с. Таким образом, тангенс угла разлета пучка составляет 0,3, а соответствующий угол разлета равен 17°. Согласно этим оценкам, на расстоянии в ~1 см пучок расширяется на ~6 мм.

Существенная роль кулоновского расталкивания в настоящем эксперименте подтверждается сверхлинейным характером зависимости $E_l(E_b)$. Действительно, согласно Рис. 4-12, с ростом плотности возбуждения выход люминесценции $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ падает. В то же время, с возрастанием E_b измеренный в настоящей работе выход ИКЛ (Рис. 4-11) возрастает. Следовательно, с ростом E_b плотность электрического тока пучка обязана уменьшаться, уменьшая таким образом создаваемую плотность ЭВ. Так как ФРЭЭ пучка изменяется незначительно, этот процесс возможен только в результате увеличения кулоновского расталкивания между электронами, которое тем сильнее, чем больше число N электронов в пучке. Согласно [155], компонента скорости электронов v_p , перпендикулярная направлению пучка, и возникающая благодаря расталкиванию, пропорциональна $\sqrt{N}$ и, следовательно, пропорциональна $\sqrt{E_b}$.

Если считать, что плотность тока пучка падает с ростом E_b из-за кулоновского расталкивания, то создаваемая плотность электронно-дырочных пар n может быть выражена следующим образом:

$$n(E_b) = \frac{c_1}{c_2 + E_b} \quad (4.17),$$

где c_1 и c_2 – некоторые параметры. Действительно, если принять, в соответствии с выводами [155], что $v_p \sim \sqrt{E_b}$, то увеличение площади поперечного пучка, вызванное кулоновским расталкиванием, можно оценить как $\delta S \sim (v_p \delta t)^2$, где $\delta t = \delta l / v_t$ – время пролета электронов расстояния δl от катода до мишени. Так как $v_p \ll v_t$, а значение v_t определяется стабильной ФРЭЭ, значение δt для разных N можно считать не меняющимся. Так как $n \sim \delta S^{-1}$, то, следовательно, в этом случае $n \sim E_b^{-1}$. Именно такое поведение зависимости $n(E_b)$ заложено в выражение (4.17).

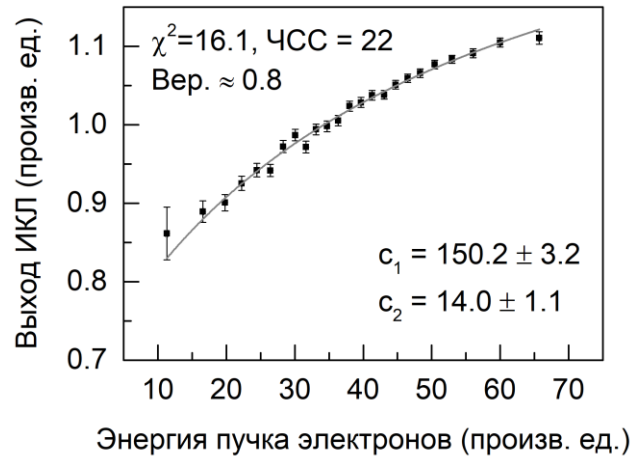


Рис. 4-13. Точки – экспериментальная зависимость выхода ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, накрытого латунной диафрагмой, в 0-ом порядке ДР, от энергии пучка электронов (как на Рис. 4.11); сплошная линия – наилучшее приближение экспериментальных данных выражением (4.18).

Если представить зависимость выхода люминесценции от плотности ЭВ кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в виде выражения (4.16) с коэффициентами, приведенными в Табл. 4-2, а величину n выразить через энергию пучка по формуле (4.17), то зависимость выхода ИКЛ от энергии пучка может быть выражена в виде

$$Y_{CL}(E_b) = \frac{a_1 + a_2[c_1/(c_2 + E_b)]}{1 + a_3[c_1/(c_2 + E_b)] + a_4[c_1/(c_2 + E_b)]^2} \quad (4.18).$$

Выражение (4.18) имеет два подгоночных параметра - c_1 и c_2 . Варьируя значения этих величин, можно получить наилучшее приближение экспериментальной зависимости $Y_{CL}(E_b)$ этой кривой.

Результат наилучшего приближения кривой (4.18) экспериментальных данных зависимости $Y_{CL}(E_b)$ для кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, накрытого латунной фольгой толщиной 250 мкм с отверстием диаметром 7 мм, в 0-ом порядке ДР монохроматора даёт значения подгоночных параметров $c_1 = 150,2 \pm 3,2$ и $c_2 = 14,0 \pm 1,1$, кривая приведена на Рис. 4-13. Для этой аппроксимации значение $\chi^2 = 16,1$ при ЧСС = 22 и, следовательно, вероятность равна 80%. Используя эти значения, можно вычислить зависимость средней по объёму плотности ЭВ от энергии электронного пучка E_b в кристалле $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, которая изображена на Рис. 4-14.

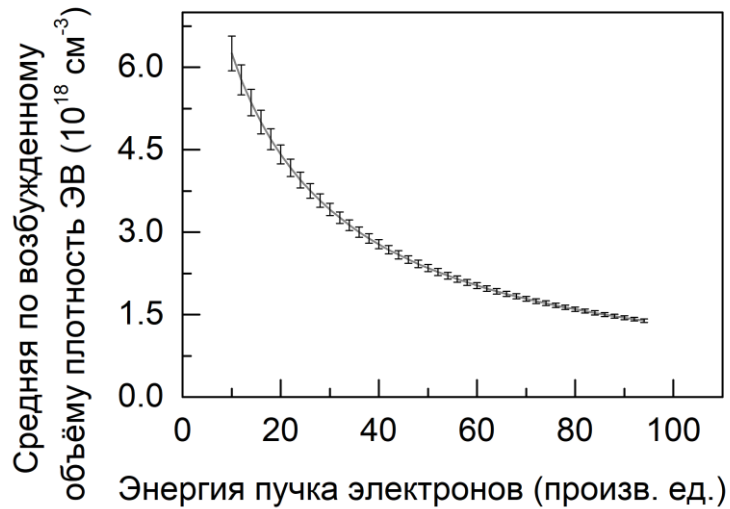


Рис. 4-14. Оценка зависимости средней плотности ЭВ, созданной в кристалле $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ под действием электронного пучка.

Кривая $n(E_b)$, приведенная на Рис. 4-14, имеет спадающий вид с ростом E_b , что согласуется со сверхлинейным характером измеренных зависимостей $E_l(E_b)$. На Рис. 4-14 приведена только статистическая погрешность. На этом рисунке изображена плотность ЭВ, усреднённая по некоторому объёму возбуждения,

близкому по порядку величины к тому объёму, в который проникают электроны возбуждающего пучка, значение которого в настоящий момент известно только приближенно, по порядку величины. Соответственно, точное значение систематической погрешности измерения плотности ЭВ на Рис. 4-14 также в настоящий момент неизвестно. Следовательно, полученная кривая представляет из себя оценку плотности ЭВ, создаваемой пучком, по порядку величины.

В то же время, из Рис. 4-14 следует, что средняя по возбужденному объёму плотность ЭВ, создаваемых в $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ пучком электронов ускорителя РАДАН-ЭКСПЕРТ, лежит в диапазоне $(6,0-1,5) \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$, что совпадает с оценками других авторов [23,141]. Среднее значение средней по объёму плотности ЭВ $\langle n \rangle$, вычисляемое по кривой на Рис. 4-14 по формуле $\langle n \rangle = \left(\frac{1}{E_{b_max} - E_{b_min}} \right) \cdot \int_{E_{b_min}}^{E_{b_max}} n(E_b) dE_b$, где E_b – энергия пучка электронов, E_{b_max} и E_{b_min} – её наибольшее и наименьшее значения, составляет $2,7 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$.

В п. 4.7.3 приложения к настоящей главе (см. с. 127) приведены оценки распределения объёмной плотности ЭВ с учетом сложной многопиковой формы ФРЭЭ, которая имеет определяющее влияние на распределение плотности ЭВ по глубине проникновения электронов. Из этих оценок следует, что в разных областях кристалла при одном и том же значении E_b плотность ЭВ может существенно различаться и значительно отстоять от среднего значения. В то же время, среднее значение плотности ЭВ, характерное для большинства возбужденных областей кристалла, по-видимому, близко к приведенному на Рис. 4-14. Также в п. 4.7.3 показано, что, несмотря на существенную погрешность абсолютного значения плотности ЭВ, погрешность относительных изменений кривой $n(E_b)$ с изменением E_b существенно меньше и соответствует статистической погрешности, так как при разных E_b благодаря постоянству ФРЭЭ пространственное распределение плотности ЭВ имеет одну и ту же форму.

4.5. Нелинейность ИКЛ CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4

В настоящем пункте развитый метод измерений нелинейности ИКЛ применяется для исследования нелинейности СЛ кристаллов CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 . На Рис. 4-15 представлены зависимости энергии ИКЛ в 0-ом порядке ДР (интегрально по λ) от энергии электронного пучка для кристаллов CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 . Сплошными линиями изображены наилучшие приближения измеренных зависимостей степенной функцией (4.14). Измеренные показатели нелинейности ИКЛ составляют $1,072 \pm 0,011$ (CeF_3), $1,282 \pm 0,007$ (BaF_2) и $1,080 \pm 0,020$ (PbWO_4). Подробности даны в Табл. 4-3.

Табл. 4-3. Характеристики нелинейности ИКЛ исследованных кристаллов, измеренные в одинаковых условиях с использованием латунной диафрагмы

кристалл	Z	M, а.е.м	ρ , г/см ³ [156]	I^a , эВ	E_g , эВ	β^b	λ , нм	Время высвечи- вания ИКЛ, нс	Нелинейность зависимости $E_l(E_b)$	
									B^c	χ^2 , ЧСС ^{c)}
$\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$	529	1246	7,13	176,2	4,2 [104]	2,38 [104]	0-ой пор.	345 $\pm$ 0,1	1,177 $\pm$ 0,004	31,1,22
							505	345 $\pm$ 0,1	1,207 $\pm$ 0,012	28,8,20
PbWO_4	188	455	8,28	186,9	4,6 [157]	2,35 [157]	0-ой пор	2,8 $\pm$ 0,1	1,080 $\pm$ 0,020	21,5,18
							420	2,9 $\pm$ 1	1,073 $\pm$ 0,018	32,8,20
CeF_3	85	197	6,16	158,6	10,6 [158]	≈ 1 [158]	0-ой пор.	23,1 $\pm$ 0,5	1,072 $\pm$ 0,011	26,3,15
							300	13,4 $\pm$ 0,7	1,149 $\pm$ 0,019	27,8,19
							350	36,7 $\pm$ 0,6	1,275 $\pm$ 0,015	20,6,19
BaF_2	74	175	4,8	174,7	10,7 [94]	2 [94]	0-ой пор.	712 $\pm$ 1	1,282 $\pm$ 0,007	13,2,17
							300	728 $\pm$ 2	1,301 $\pm$ 0,012	37,0,19
							390	720 $\pm$ 2	1,317 $\pm$ 0,012	20,2,19

^{a)} Средний потенциал ионизации вещества, входящий в выражение (1.1), и вычисленный при помощи системы ESTAR [159];

^{b)} Порог рождения ЭДП

^{c)} Результат наилучшего приближения экспериментальных данных формулой (4.14);

^{c)} Число степеней свободы выборки

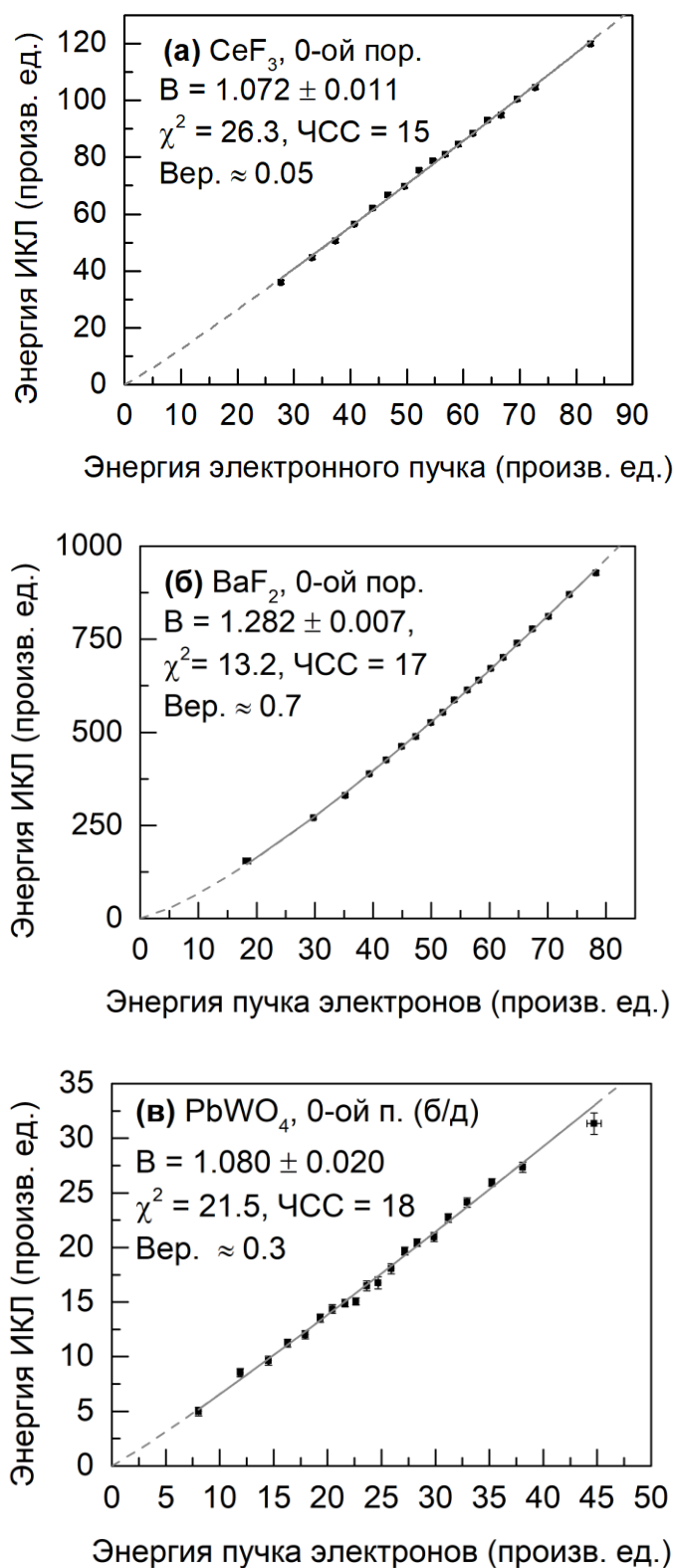


Рис. 4-15. Точки: экспериментальные зависимости $E_l(E_b)$ для ИКЛ кристалла CeF₃ (а), BaF₂ (б) и PbWO₄ (г) в 0-ом порядке ДР; Сплошные линии – наилучшее приближение экспериментальных данных степенной функцией (4.14).

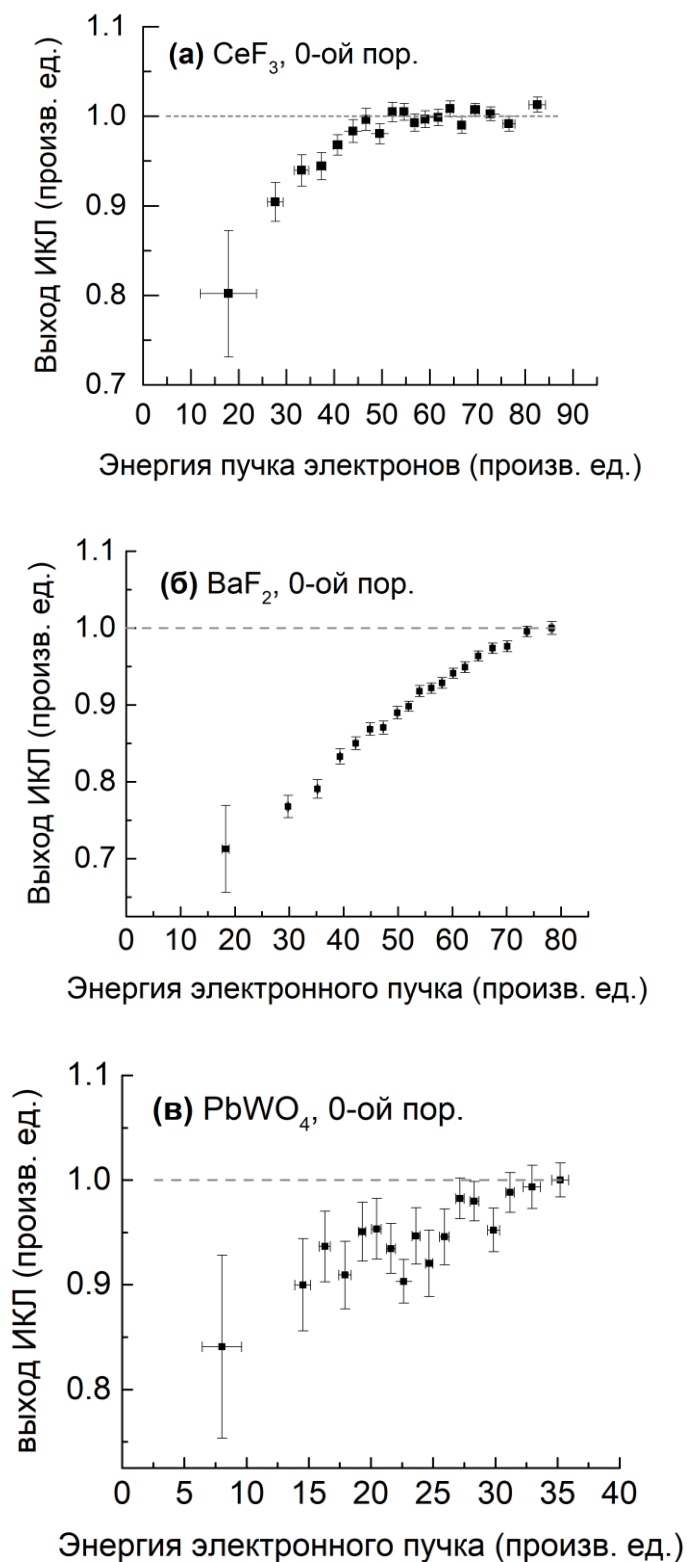


Рис. 4-16. Зависимости выхода ИКЛ от энергии электронного пучка для кристаллов CeF_3 (а), BaF_2 (б) и PbWO_4 (в). ИКЛ записана в 0-ом порядке ДР монохроматора.

Видно, что эти кривые также, как и обсуждаемые выше зависимости $E_l(E_b)$ для ИКЛ кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, сверхлинейны. Аналогичные зависимости получены и на отдельных длинах волн: 420 нм (PbWO_4), 300 и 390 нм (BaF_2), 300 и 350 нм (CeF_3). Результаты этих измерений также приведены в Табл. 4-3. Кинетика ИКЛ исследованных материалов приведена в Гл. 4. Из Табл. 4-3 следует, что $B > 1$ для всех исследованных материалов на всех длинах волн. Действительно, из Табл. 4-3 видно, что сверхлинейный характер - универсальное свойство зависимостей $E_l(E_b)$, измеренных в настоящей работе. Аналогичный сверхлинейный характер зависимости интенсивности ИКЛ от максимальной амплитуды электрического тока взрывоэмиссионного пучка электронов был также обнаружен в работах [23,24] для кристаллов ZnS , BaF_2 , BeO и Al_2O_3 .

На Рис. 4-16 представлены зависимости выхода ИКЛ кристаллов CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 от полной энергии электронного пучка, вычисленные из данных, представленных на Рис. 4-15, по формуле (4.15). Все зависимости нормированы на максимальное значение выхода ИКЛ. Как и зависимость $Y_{CL}(E_b)$ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, эти кривые имеют вид возрастающих функций с выпуклостью, направленной вверх. Интересная особенность кристалла CeF_3 состоит в том, что зависимость $Y_{CL}(E_b)$ выходит на постоянное значение при энергии пучка электронов более 50 ед, в то время как соответствующие зависимости для кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, BaF_2 и PbWO_4 монотонно возрастают при всех E_b .

Зависимости выхода ИКЛ от энергии электронов для люминесценции CeF_3 на длинах волн 300 и 350 нм, имеющих разные механизмы, различны. Этот факт следует из Рис. 4-17. Действительно, формы кривых заметно различаются, что согласуется с различием механизмов СЛ этих полос. Так, форма зависимости $Y_{CL}(E_b)$ в области 300 нм совпадает с таковой в 0-ом порядке ДР (Рис. 4-16, а), в то время как форма зависимости в области 350 нм напоминает таковые для BaF_2 (Рис. 4-16, б) и PbWO_4 (Рис. 4-16, в), записанные в 0-ом порядке ДР.

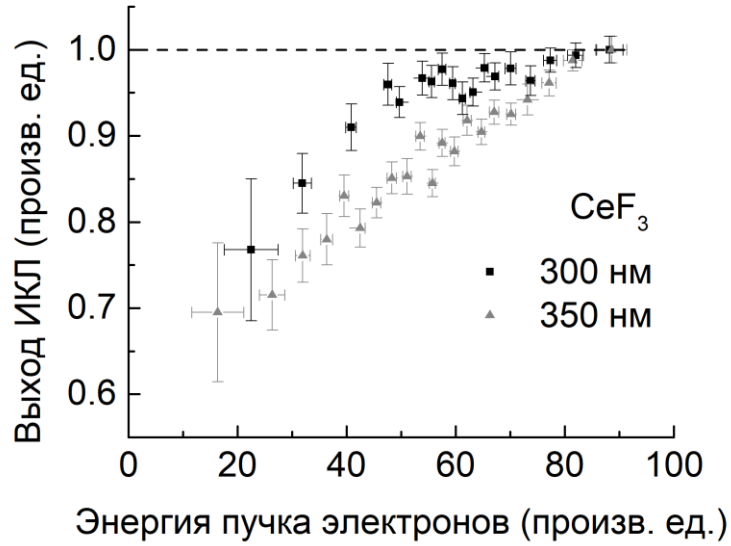


Рис. 4-17. Зависимости выхода ИКЛ кристалла CeF_3 от энергии электронного пучка на длинах волн 300 нм (квадраты) и 350 нм (треугольники).

Плотность возбуждения n может быть представлена в виде [37,38,66]:

$$n = \frac{E^{exc}}{V\beta E_g} \quad , \quad (4.19)$$

где E^{exc} – поглощенная энергия ионизирующего излучения, V – объём, в котором она поглощена, βE_g – средняя энергия, требующаяся для создания одной электронно-дырочной пары, где E_g – ширина запрещенной зоны и $\beta = 2...3$ – безразмерный параметр. В условиях настоящей работы можно считать, что $V = \pi r^2 \langle R \rangle$, где R – пробег электронов, усредненный по ФРЭЭ, и r – радиус электронного пучка. Так как характеристики возбуждающего электронного пучка одинаковы при измерении всех кристаллов, а различие из-за разницы их размеров устранено использованием диафрагмы, то, используя выражение (4.19), можно связать плотность возбуждения n_c , создаваемую в некотором кристалле c , с плотностью n_{BGO} ЭВ в кристалле $\text{Vi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, возникающей под действием того же пучка электронов:

$$n_c = n_{BGO} \frac{\langle R \rangle_{BGO} \beta_{BGO} E_{g_{BGO}}}{\langle R \rangle_c \beta_c E_{g_c}} \quad (4.20),$$

где $\langle R \rangle_{BGO}$ и $\langle R \rangle_c$ – усредненные по ФРЭЭ пучка пробеги электронов в $Bi_4Ge_3O_{12}$ и кристалле c , $\beta_{BGO} E_{g_{BGO}}$ и $\beta_c E_{g_c}$ – средние энергии рождения электронно-дырочных пар для кристалла $Bi_4Ge_3O_{12}$ и кристалла c соответственно. Из (4.20) следует, что для правильного вычисления n_c требуется получить отношение $\langle R \rangle_{BGO} / \langle R \rangle_c$. Отношение $\beta_{BGO} E_{g_{BGO}} / \beta_c E_{g_c}$ может быть взято из литературных источников, в которых исследуется явление размножения ЭВ («фотонное умножение»). Выражение для среднего по ФРЭЭ пробега электрона $\langle R \rangle_c$ имеет следующий вид

$$\langle R \rangle_c = \int_0^{E_{max}} f(E_0) R_c(E_0) dE_0 \quad (4.21),$$

где $R_c(E_0)$ – пробег электрона с энергией E_0 . В п. 4.7.4 приложения к настоящей главе на с. 129 даны оценки погрешностей при вычислении $\langle R \rangle_{BGO} / \langle R \rangle_c$, выполненные разными способами. В работе принят способ вычисления этого соотношения, основанный на использовании аналитического выражения (4.4) для длины трека L , вносящий, как показано в п. 4.7.4, погрешность не более 4%. Усредненная по ФРЭЭ длина трека электрона в кристалле c имеет вид

$$\langle L \rangle_c = \int_0^{E_{max}} f(E_0) L_c(E_0) dE_0 \quad (4.22).$$

Если считать, что в выражении (4.4) коэффициент $\xi(I_c, E_0) \approx \xi(I_c, \langle E_0 \rangle)$, где $\langle E_0 \rangle$ – средняя энергия пучка электронов, равная 150 кэВ, то этот член можно вынести из-под знака интеграла. В результате упрощения получается следующее соотношение:

$$\langle L \rangle_c = \frac{1}{4\pi e^4 \rho_e^c \xi(I_c, \langle E_0 \rangle)} \int_0^\infty E_0^2 f(E_0) dE \quad (4.23)$$

Из (4.23) следует, что подынтегральная функция одинакова для всех кристаллов, измеренных в одинаковых условиях, и равна второму моменту ФРЭЭ. Следовательно, в выражении $\langle L \rangle_{BGO} / \langle L \rangle_c$ она сокращается:

$$\frac{\langle L \rangle_{BGO}}{\langle L \rangle_c} = \frac{\rho_e^c \xi(I_c, \langle E_0 \rangle)}{\rho_e^{BGO} \xi(I_{BGO}, \langle E_0 \rangle)} \quad (4.24).$$

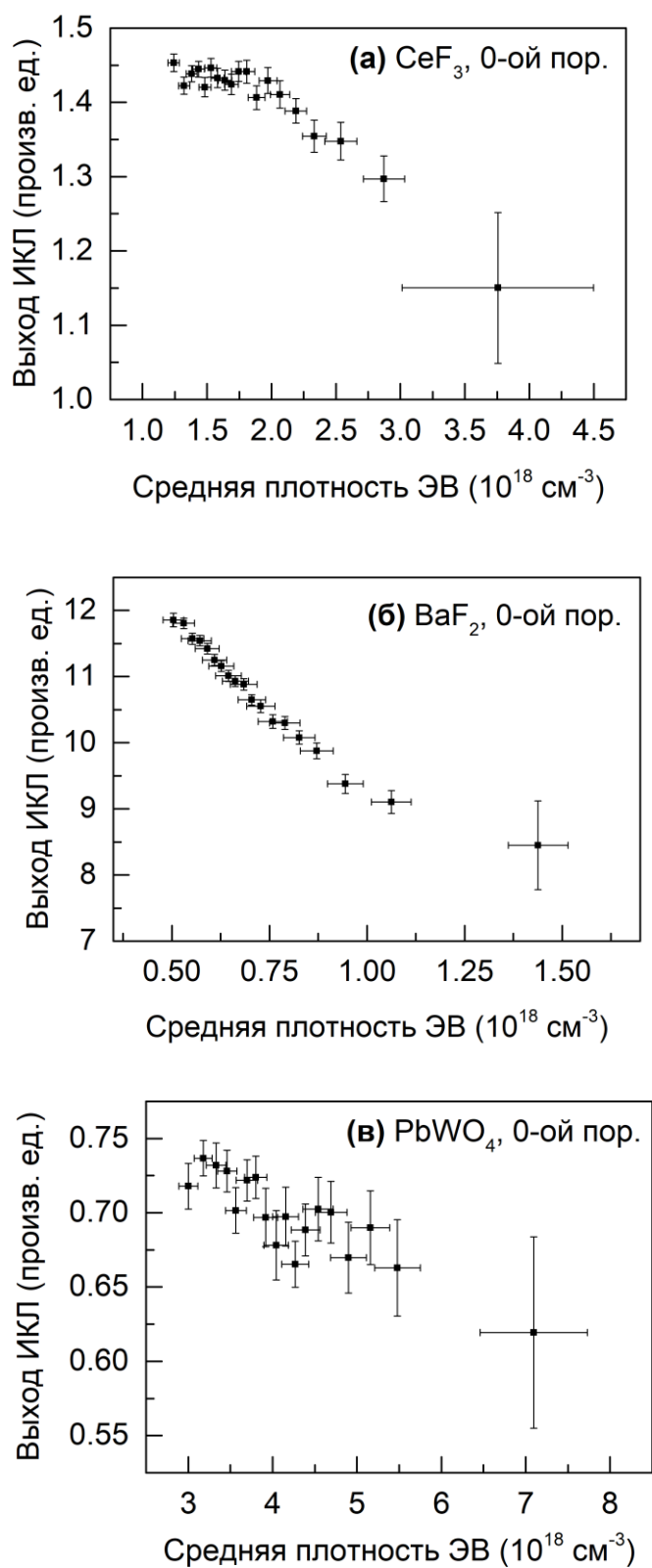


Рис. 4-18. Зависимости выхода ИКЛ от средней объёмной плотности ЭВ для кристалла CeF_3 (а), BaF_2 (б) и PbWO_4 (в).

Параметры кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 , использованные для вычислений по формуле (4.20), приведены в Табл. 4-3. Подставляя (4.24) в (4.20), получаем связь плотности возбуждения n_c в кристалле с плотностью ЭВ в кристалле $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, создаваемых электронным пучком с одинаковой энергией:

$$n_c = n_{BGO} \frac{\beta_{BGO} E_{g_{BGO}} \rho_e^{BGO} \xi(I_{BGO}, \langle E_0 \rangle)}{\beta_c E_{g_c} \rho_e^c \xi(I_c, \langle E_0 \rangle)} \quad (4.25).$$

Используя соотношение (4.25), были сделаны оценки зависимости выхода ИКЛ кристаллов CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 от средней объёмной плотности ЭВ. Эти кривые представлены на Рис. 4-18. Из приведенных изображений видно, что полученные зависимости для разных кристаллов различны. Действительно, в диапазоне средних объёмных плотностей ЭВ $(1,0 \div 1,8) \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ выход ИКЛ кристалла CeF_3 близок к постоянному, а затем практически линейно спадает. В то же время выход ИКЛ BaF_2 спадает монотонно с ростом плотности ЭВ. В пределах ошибки измерений выход ИКЛ PbWO_4 также монотонно спадает с ростом n .

Сопоставление зависимостей выхода ИКЛ кристалла BaF_2 от плотности ЭВ на длинах волн 300 и 390 нм представлено на Рис. 4-19. Природа люминесценции BaF_2 на этих длинах волн одинакова и связана с излучательным распадом АЛЭ. Из Рис. 4-19 следует, что обе зависимости совпадают друг с другом в пределах ошибки измерений. В то же время, зависимости выхода ИКЛ CeF_3 на длинах волн 300 и 350 нм, соответствующих полосам свечения разной природы, различны (Рис. 4-20) так же, как и зависимости выхода от энергии пучка (Рис. 4-17).

В работе [28] по виду зависимости выхода ФЛ от плотности ЭВ исследованные образцы были разделены на материалы, в которых доминирует тушение, вызванное двухчастичными и трёхчастичными взаимодействиями ЭВ. К первой группе авторы отнесли СЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ и CdWO_4 , а также активаторную ФЛ NaI:Tl при возбуждении на длине волны 210 нм (при возбуждении на длине волны 203 нм авторы заявляют о смешанной зависимости с доминированием 3-его порядка). К группе кристаллов с трёхчастичным тушением ЭВ авторы отнесли СЛ SrI_2 и CsI , а также люминесценцию Cs:Tl при возбуждении на длине волны 203 нм.

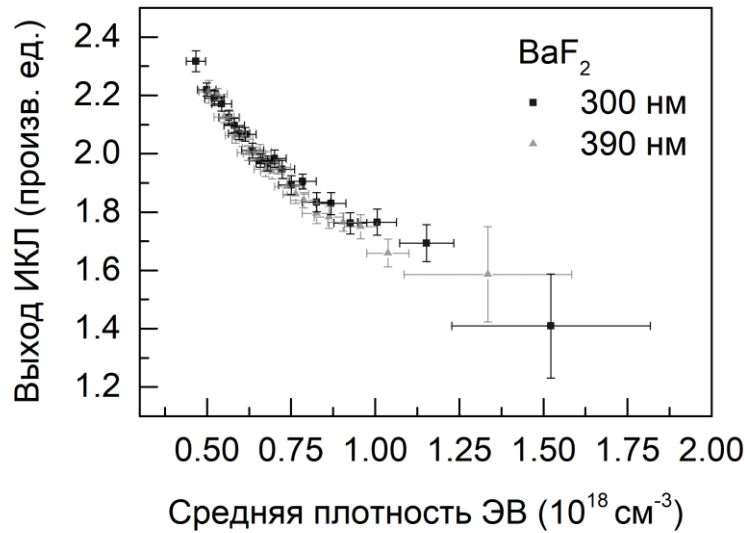


Рис. 4-19. Зависимости выхода ИКЛ BaF_2 от средней объёмной плотности на длинах волн 300 нм (квадраты) и 390 нм (треугольники).

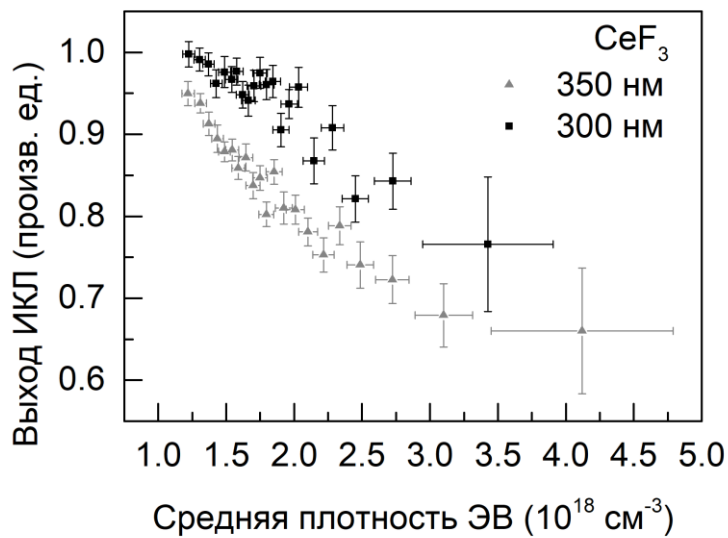


Рис. 4-20. Зависимости выхода ИКЛ CeF_3 от средней объёмной плотности на длинах волн 350 нм (треугольники) и 300 нм (квадраты).

Используя эту классификацию, можно сгруппировать полученные кривые и сделать определенные выводы о механизмах тушения ИКЛ. Действительно, зависимости $Y_{CL}(n)$ для кристалла BaF_2 как в 0-ом порядке ДР, так и на длинах волн 300 и 390 нм, а также для кристалла PbWO_4 в 0-ом порядке ДР имеют вид, качественно повторяющий зависимость $Y(n)$ для $\text{Vi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$. Эти кривые выглядят

как монотонно спадающие функции n с выпуклостью, направленной вниз. Такой же вид имеет кривая $Y_{CL}(n)$ для CeF_3 на длине волны 350 нм, относящаяся к ИКЛ ионов Ce^{3+} , расположенных в искаженных узлах кристаллической решетки. В то же время, зависимости $Y_{CL}(n)$ для CeF_3 в 0-ом порядке ДР и на длине волны 300 нм (СЛ ионов Ce^{3+} , расположенных в регулярных узлах кристаллической решетки), имеют качественно иной вид с выпуклостью, направленной вверх. Эти зависимости похожи на кривую $Y(n)$ для СЛ SrI_2 [28].

Несмотря на то, что абсолютные значения средней плотности ЭВ, полученные в настоящей работе, имеют значительную погрешность, относительный ход зависимости и сравнение этих кривых для разных кристаллов измерены с точностью, достаточной для соответствующих выводов. Наиболее достоверным в работе является сопоставление зависимостей $Y_{CL}(n)$ для разных длин волн одного и того же кристалла, так как они выполнены при полном сохранении всех параметров измерений.

Следовательно, из сравнения полученных результатов с выводами [28] можно сделать вывод, что тушение люминесценции АЛЭ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, BaF_2 и PbWO_4 , а также люминесценции ионов Ce^{3+} в искаженных узлах решетки CeF_3 при высоких плотностях ЭВ могут происходить в результате безызлучательного тушения при двухчастичных взаимодействиях ЭВ. В то же время, тушение люминесценции ионов Ce^{3+} в регулярных узлах решетки CeF_3 происходит по иному механизму, который, по-видимому, включает тушение при трехчастичных взаимодействиях ЭВ.

4.6. Выводы к главе 4.

- На основе теоретического анализа установлено, что постоянство ФРЭЭ пучка приводит к прямой пропорциональности энергии рентгеновского излучения E_X , возбуждаемого пучком, его полной кинетической энергии E_b . Прямая пропорциональность между E_X и E_b подтверждена экспериментально, как следствие прямой пропорциональности между E_X и энергией E_{2+N_2} излучения 2^+N_2 , возбуждаемого при прохождении электронного пучка через воздушный промежуток.
- Предложен метод измерения нелинейных параметров ИКЛ, в основе которого лежит прямая пропорциональность между E_X и E_b . Одновременное измерение E_X и параметров ИКЛ позволяет измерять зависимость свойств ИКЛ от параметров возбуждающего электронного пучка. Так как энергия взрывоэмиссионного электронного пучка подвержена значительным флуктуациям, для получения зависимости $E_l(E_b)$ необходима запись $\sim 10^3$ пар (E_l, E_b) ИКЛ исследуемого вещества.
- Исследованы параметры нелинейности ИКЛ кристаллов-сцинтилляторов с яркой собственной люминесценцией: CeF_3 , BaF_2 , $PbWO_4$ и $Bi_4Ge_3O_{12}$. Установлено, что зависимости $E_l(E_b)$ этих материалов приближенно описываются степенной функцией вида $E_l = AE_b^B$, причем для всех исследованных кривых $B > 1$, то есть полученные зависимости сверхлинейны. Причиной этого служит кулоновское расталкивание, возрастающее при увеличении числа частиц в электронном пучке и приводящее к падению плотности тока пучка с ростом числа электронов и полной энергии пучка.
- Используя зависимость выхода ФЛ от плотности ЭВ для кристалла $Bi_4Ge_3O_{12}$, опубликованную в литературе, сделана оценка зависимости средней объёмной плотности ЭВ, создаваемых в этом кристалле, при возбуждении ИКЛ. Значения средней плотности ЭВ составили $(1 \div 7) \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Получены оценки зависимостей выхода ИКЛ Y_{CL} от средней объёмной плотности ЭВ n для кристаллов CeF_3 , BaF_2 и

PbWO₄. Так, в частности, для кристалла CeF₃ зависимости $Y_{CL}(n)$ для полос ИКЛ, имеющих разную физическую природу, различны: излучение в области 300 нм, относящееся к ионам Ce³⁺ в регулярных узлах кристаллической решетки, имеет зависимость $Y_{CL}(n)$ с выпуклостью, направленной вверх, в то время как излучение в области 350 нм, относящееся к ионам церия в искаженных областях решетки, имеет зависимость $Y_{CL}(n)$ с выпуклостью, направленной вниз.

Положения, выносимые на защиту по итогам гл. 4:

- При неизменности функции распределения электронных пучков по энергиям в разных импульсах и энергиях электронов 100-300 кэВ энергия рентгеновского излучения электронного пучка при торможении в газе и твердом теле прямо пропорциональна его полной кинетической энергии. Этот факт может быть использован для измерения полной энергии пучка электронов по энергии возбуждаемого им рентгеновского излучения.
- Зависимости энергии E_l ИКЛ кристаллов Bi₄Ge₃O₁₂, PbWO₄, CeF₃ и BaF₂ от энергии импульсного сильноточного взрывоэмиссионного электронного пучка E_b приближенно описываются степенной функцией $E_l(E_b) \sim E_b^B$. Показатели нелинейности B для интегрального по длине волны излучения для этих кристаллов равны $1,177 \pm 0,004$, $1,08 \pm 0,02$, $1,072 \pm 0,011$ и $1,282 \pm 0,007$, соответственно. То, что $B > 1$, объясняется возрастанием кулоновского расталкивания электронов пучка с ростом их числа в каждом импульсе, приводящем к снижению с ростом E_b средней объёмной плотности создаваемых им электронных возбуждений, которое сопровождается ростом выхода ИКЛ.

4.7. Приложение к главе 4

4.7.1. Оценка статистических параметров ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$

Для проверки правильности вычисления погрешностей измерений энергии пучка электронов и энергии ИКЛ в настоящем пункте приводится ряд фактов о статистике значений E_b и E_l . На Рис. 4-21 приведена выборочная функция распределения числа результатов измерения энергии электронного пучка E_b при бомбардировке электронами кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, накрытого латунной фольгой толщиной 250 мкм с отверстием диаметром 7 мм. Из рисунка видно, что это распределение близко к функции Гаусса.

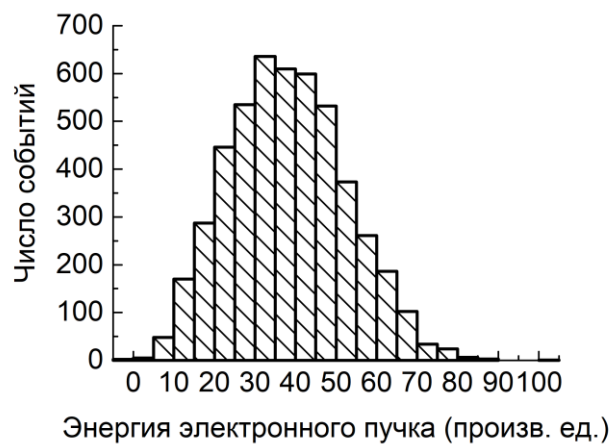


Рис. 4-21. Выборочная функция распределения энергий электронного пучка при бомбардировке электронами кристалла $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, накрытого латунной диафрагмой толщиной 250 мкм с отверстием диаметром 7 мм. Общее число измерений – 4899.

На Рис. 4-22 приведена соответствующая эксперименту на Рис. 4-21 выборочная функция распределения энергий E_l ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$. Видно, что кривая несколько отличается от гауссианы и имеет асимметричный вид. Эта особенность согласуется с тем фактом, что E_l , является величиной, зависимой от E_b .

В п. 4.3 описан способ получения зависимости $E_l(E_b)$, используемый в настоящей работе. Он основан на разбиении исходного массива пар (E_b, E_l) на некоторое число групп. Процедура этого разбиения такова:

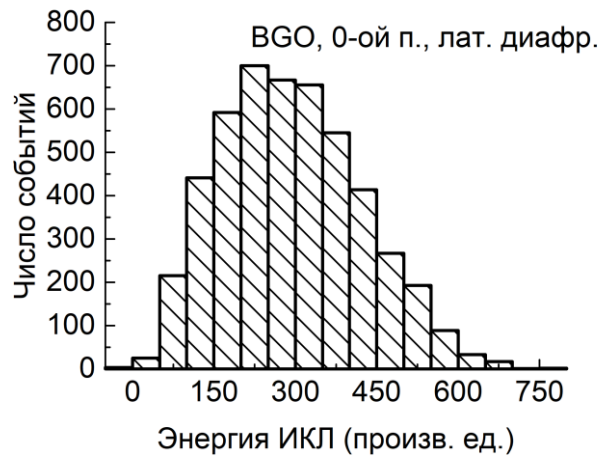


Рис. 4-22. Выборочная функция распределения энергий ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в 0-ом порядке ДР, кристалл был закрыт латунной диафрагмой с отверстием диаметром 7 мм. Общее число измерений – 4899.

сначала массив пар (E_b, E_l) сортируется по возрастанию значений E_b . Затем пары группируются по 50-400 пар. В конце в рамках каждой из групп вычисляется среднее значение и стандартное отклонение величин E_b и E_l , которые принимаются как значения измеряемых параметров и их погрешности соответственно.

Для анализа точности погрешностей следует исследовать статистические параметры выборок в рамках этих групп, о чем далее и идёт речь. Существенно, что при разбиении исходного отсортированного по возрастанию значений E_b массива пар (E_b, E_l) на небольшие группы по 50-400 пар (E_b, E_l) в рамках каждой из групп выборочные функции распределения величин E_b и E_l отличаются от распределения всего измеренного массива.

Так, для значений E_b выборочную функцию распределения в пределах каждой группы можно приблизительно считать постоянной («прямоугольной»). Действительно, для примера на Рис. 4-23 приведена выборочная функция распределения для двухсот значений E_b , входящих в одну из групп, относящихся к той же серии измерений, что измерения, статистика которых представлена на Рис. 4-20 и Рис. 4-21.

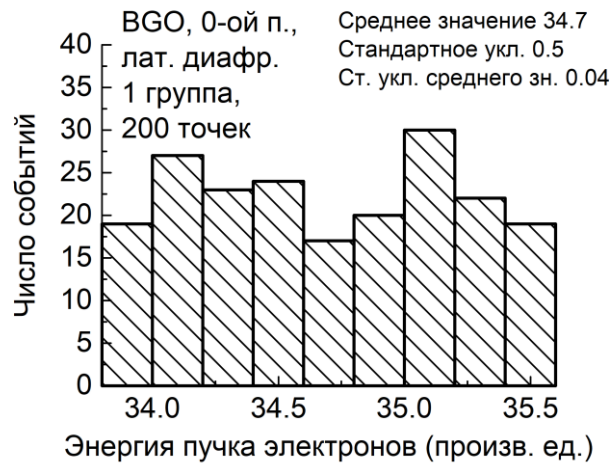


Рис. 4-23. Выборочная функция распределения энергий электронов пучка в рамках одной группы из 200 событий

Видно, что выборочная функция распределения E_b в пределах этой группы имеет значение, близкое постоянному с точностью $\sim 20\%$. Соответствующие этим энергиям пучка значения E_l (Рис. 4-24) имеют выборочное распределение, напоминающее функцию Гаусса, имея, однако, некоторую ассиметрию, так же, как и на Рис. 4-22.

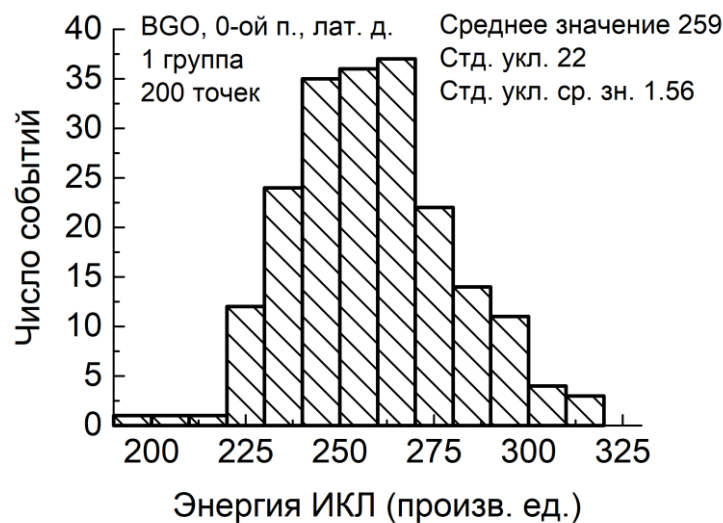


Рис. 4-24. Выборочная функция распределения энергий ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в нулевом порядке ДР, кристалл был закрыт латунной диафрагмой с отверстием диаметром 7 мм в рамках одной группы из 200 событий

Согласно закону больших чисел в форме Хинчина (ЗБЧ), для любой последовательности независимых (в совокупности) и одинаково распределенных случайных величин с конечным первым моментом среднее арифметическое этих

величин стремится к их математическому ожиданию с увеличением числа измерений в смысле сходимости «почти наверное» - [153].

Важным условием применения ЗБЧ служит неизменность функции распределения измеряемых величин в течение эксперимента от его начала до его конца – именно в этом случае выполняются условия ЗБЧ. Проверка того, не изменяется ли функция распределения величин E_b и E_l в процессе измерений и, следовательно, выполняются ли условия ЗБЧ, сделана следующим образом. Группа из 200 измерений, выборочная функция распределения которой изображена на Рис. 4.23-4.24, разбита на две подгруппы пар, E_l по 100 пар измерений в каждой, измеренных последовательно. Затем для каждой из этих двух подгрупп вычислены свои выборочные функции распределения как для E_b , так и для E_l . Их сопоставление приведено на Рис. 4-25 и 4-26.

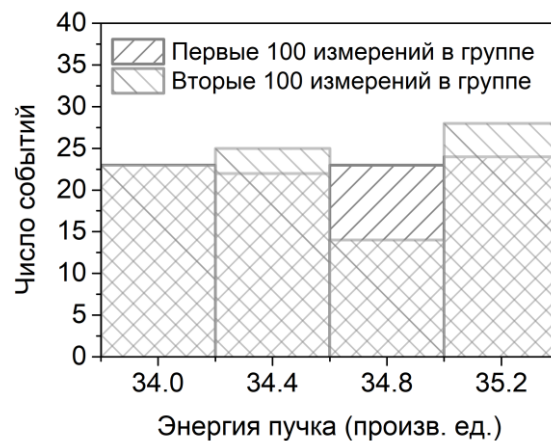


Рис. 4-25. Сопоставление выборочных функций распределения энергий электронов пучка в двух последовательных подгруппах по 100 измерений в каждой, входящих в группу, распределение значений в которой представлено на Рис. 4-23.

Для получения кривых на Рис. 4-25 и 4-26 сортировка измерений по величине E_b не производилась – они располагались в том случайном порядке, в котором они были измерены. Исходный полный массив пар, E_l разбивался на группы по тем же значениям E_b , что и отсортированный массив. В каждой из этих групп порядок следования значений был сохранен тем же, что и при измерениях, для сохранения статистических свойств этих распределений, которые и изучаются.

На Рис. 4-25 представлено сопоставление выборочных функций распределения энергий пучка для двух последовательно измеренных подгрупп по 100 измерений в каждой в рамках одной группы, содержащей 200 измерений, выборочная функция распределения значений E_b для которой представлена на Рис. 4-23.

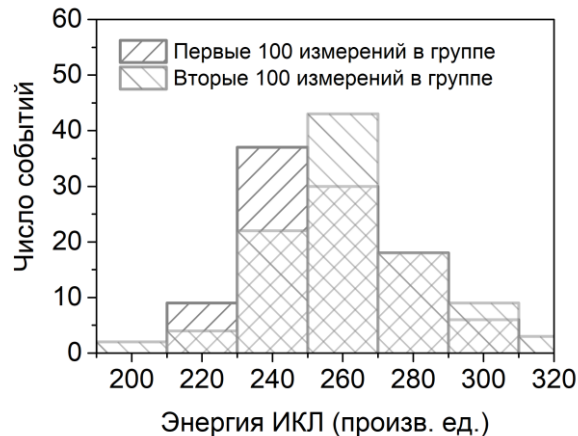


Рис. 4-26. Сопоставление выборочных функций распределения энергий ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ с диафрагмой в нулевом порядке ДР в двух последовательных подгруппах по 100 измерений в каждой, входящих в группу, распределение значений в которой представлено на Рис. 4-24.

Сопоставление выборочных функций распределения энергий ИКЛ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в нулевом порядке ДР (кристалл был закрыт латунной диафрагмой с отверстием диаметром 7 мм) для подгрупп значений энергии электронного пучка, распределение которых приведено на Рис. 4-25, представлено на Рис. 4-26.

Из Рис. 4-25 видно, что в целом, выборочные функции распределения значений E_b для двух последовательных подгрупп близки и повторяют распределение на Рис. 4-23, близкое к постоянному. Выборочные распределения на Рис. 4-26 также близки друг к другу и качественно повторяют распределение на Рис. 4-24.

Следовательно, можно считать, что на уровне точности измерений в настоящей работе условия ЗБЧ выполнены и, следовательно, средние арифметические значения E_b и E_l в рамках каждой группы близки к значениям математических ожиданий этих величин.

Точность приближения выборочных средних значений к математическим ожиданиям E_b и E_l определяется как среднеквадратичная ошибка среднего

значения [153,154], вычисляемая как $\sigma_p/\sqrt{N_p}$, где величина σ_p – стандартное отклонение среднего значения - $\sigma_p = \frac{1}{N_p-1} \sum_{i=1}^{N_p} (X_i - \langle X \rangle)^2$, X_i – i-ое экспериментальное значение в рамках данной группы, а среднее значение определяется как $\langle X \rangle = \frac{1}{N_p} \sum_{i=1}^{N_p} X_i$. В обеих формулах N_p – число элементов в группе. Величина σ_p используется в настоящей работе в качестве погрешности измерений.

4.7.2. Оценки параметров глубины проникновения электронов в исследуемые кристаллы

Величина объёма, в котором сконцентрированы ЭВ, созданные электронным пучком, определяется пробегом R электронов в исследуемом веществе. Современный способ вычисления R предоставляется системой NIST ESTAR [159]. Зависимости R в приближении CSDA (Continuous-Slowing-Down Approximation, пер. с англ. «Приближение непрерывного торможения») от начальной кинетической энергии электрона E_0 для кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 в диапазоне энергий 0-300 кэВ, вычисленные при помощи системы ESTAR [159], представлены на Рис. 4-27.

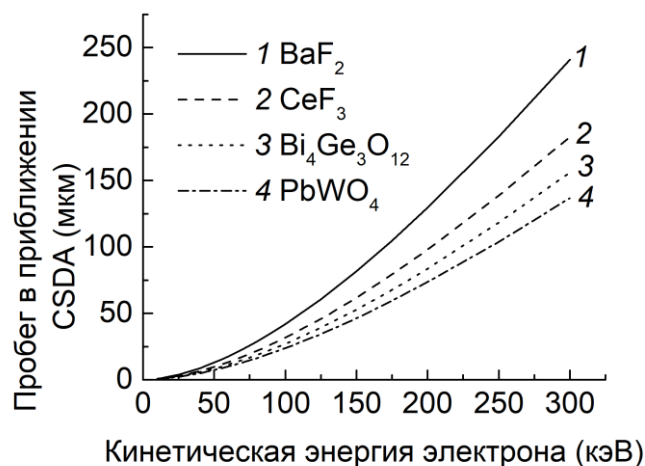


Рис. 4-27. Пробеги электронов в приближении CSDA в кристаллах 1-BaF₂, 2-CeF₃, 3-Bi₄Ge₃O₁₂, 4-PbWO₄.

Из Рис. 4-27 следует, что наибольший пробег имеют электроны с энергией 300 кэВ в кристалле BaF_2 , и он равен 250 мкм. Минимальный пробег таких электронов демонстрирует кристалл PbWO_4 , для которого R при 300 кэВ равен 137 мкм.

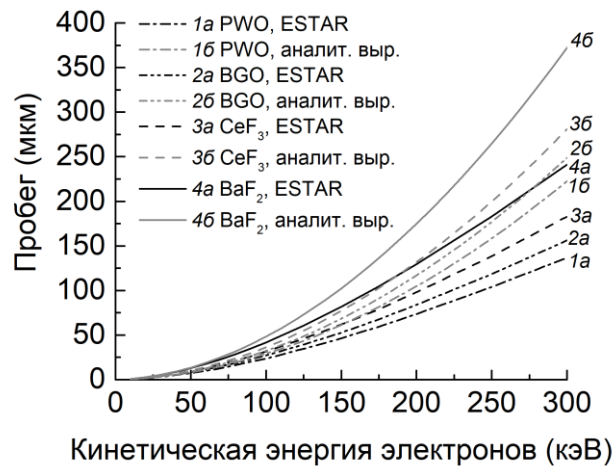


Рис. 4-28. Пробеги электронов в кристаллах 1- PbWO_4 , 2- $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, 3- CeF_3 , 4- BaF_2 , вычисленные в приближении CSDA (а) и по аналитической формуле (4.4) – (б).

Также пробег электронов в среде может быть вычислен по аналитической формуле (4.4). Отличие этого выражения от более точных вычислений на Рис. 4-27 состоит в том, что в (4.4) пренебрегается рассеянием электронов и изменением параметра $\xi(E_0) = \ln[1,16 (E_0 + 2,8I)/I]$.

Сопоставление зависимостей CSDA-пробега от энергии налетающих электронов, изображенных на Рис. 4-27, с кривыми, вычисленными по формуле (4.4), приведены на Рис. 4-28. Величины, полученные по аналитической формуле (4.4), больше, чем более точные значения, вычисленные методом CSDA. В то же время, кривые $L(E_0)$ и $R(E_0)$ имеют одинаковое качественное поведение.

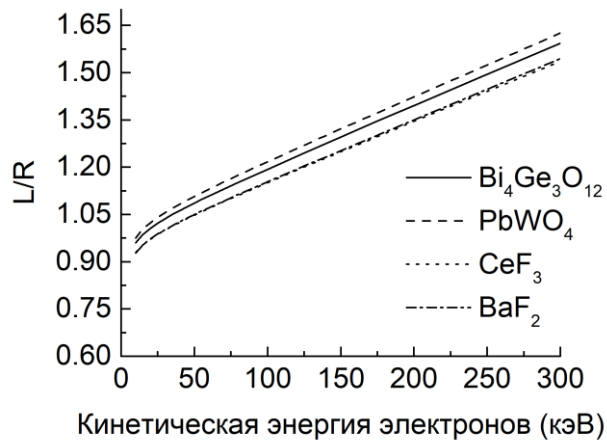


Рис. 4-29. Отношение пробегов электронов R , вычисленных в приближении CSDA, к длинам трека электронов L , вычисленным по формулам (4.4), для кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, PbWO_4 , CeF_3 и BaF_2 .

Действительно, на Рис. 4-29 представлена зависимость отношения L/R от начальной кинетической энергии налетающего электрона. Видно, что эти отношения близки друг к другу: разница L/R для исследованных веществ составляет не более $\sim 10\%$. Этот факт означает, что различие в методах вычисления L и R не зависит от типа материала и, следовательно, вычисления по формуле (4.4) правильно отражают соотношение пробегов в разных веществах для электронов с одинаковыми энергиями.

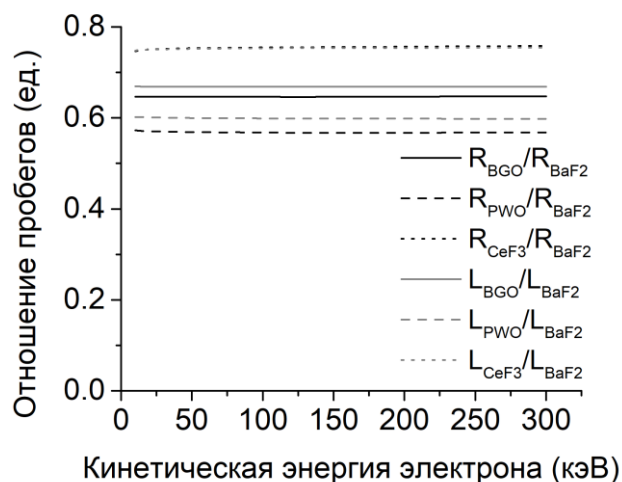


Рис. 4-30. Отношения пробегов электронов в кристаллах $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, PbWO_4 и CeF_3 к пробегу в BaF_2 , вычисленные методом CSDA и по формуле (4.4).

Этот вывод подтверждается тем, что отношения пробегов в разных материалах к пробегу в BaF_2 , вычисленные методом CSDA и по аналитической формуле (4.4), отличаются не более, чем на 7%, что следует из Рис. 4-30.

4.7.3. Оценка пространственного распределения возбуждения, создаваемого пучком электронов в исследуемых кристаллах

В пункте 4.4 настоящей главы приведены аргументы в пользу того, что объёмное распределение ЭВ при воздействии на конденсированные среды электронного пучка ускорителя РАДАН-ЭКСПЕРТ может приближенно рассматриваться как равномерное по объёму возбуждения. Такое распределение ЭВ формируется из-за значительного количества электронов в пучке (10^{10} - 10^{12}) и влияния диффузии ЭВ, которые вместе приводят к перекрытиям треков отдельных электронов.

Существенным фактором, влияющим на пространственное распределение плотности ЭВ, является немонахроматичность пучка возбуждающих электронов. Действительно, электроны с разными энергиями имеют разный пробег, что приводит к накоплению ЭВ, возбужденных электронами с разными начальными кинетическими энергиями, на разных глубинах внутри вещества.

ФРЭЭ электронов ускорителя РАДАН-ЭКСПЕРТ $f(E_0)$ имеет сложную форму с несколькими максимумами (Рис. 2-2). Энергии электронов лежат в диапазоне 50-300 кэВ. Оценим, как ФРЭЭ может влиять на размер возбужденной области. Для простоты будем исследовать процессы только вдоль одной пространственной координаты, направленной перпендикулярно поверхности кристалла. Это правомерно, так как поперечный размер пучка (~ 2 см, Рис. 2-4) много больше глубины проникновения электронов (~ 200 мкм, Рис. 4-27).

Для простоты предположим, что каждый электрон создает в веществе возбужденную область, распределение плотности ЭВ в которой вдоль длины постоянно. Рассмотрим малый интервал начальных энергий электронов dE_0 . Число электронов dN в интервале $(E, E + dE)$ вычисляется как $dN = \left(\frac{df}{dE}\right) dE$. Если считать, что плотность ЭВ, создаваемая каждым электроном вдоль длины,

постоянна, её вклад dn в общую плотность n ЭВ прямо пропорционален $EdN/R(E)$, где $R(E)$ – пробег электронов с данной энергией. Следовательно,

$$n(E_0) = \int_{\infty}^{E_0} \frac{E}{R(E)} \frac{df}{dE} dE \quad . \quad (4.26).$$

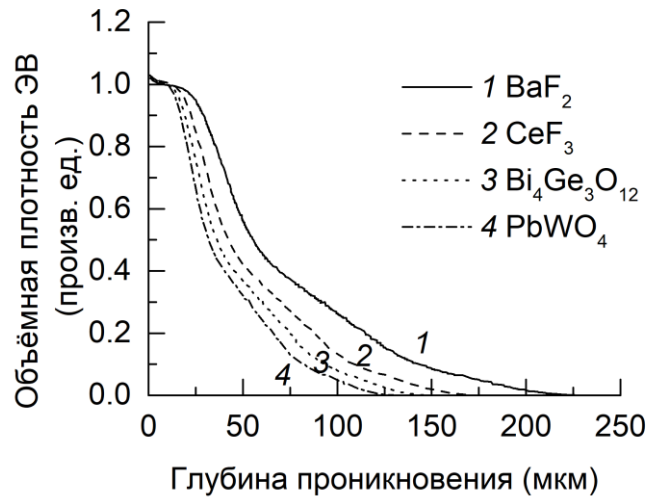


Рис. 4-31. Оценка распределения плотности ЭВ по глубине проникновения электронов в кристаллах BaF₂ (1), CeF₃ (2), Bi₄Ge₃O₁₂ (3) и PbWO₄ (4) в предположении, что каждый электрон создает область с постоянной плотностью ЭВ по глубине.

Если в выражении (4.26) использовать в качестве $R(E_0)$ пробег электрона в CSDA-приближении (Рис. 4-27), распределение n плотности ЭВ по глубине для кристаллов BaF₂, CeF₃, Bi₄Ge₃O₁₂ и PbWO₄ будет иметь вид, представленный на Рис. 4-31.

Из Рис. 4-31 следует, что для всех кристаллов форма распределения плотности ЭВ отличается от прямоугольной, что говорит о существенном влиянии вида ФРЭЭ на форму этой зависимости и несущественном – типа кристалла, который выражается главным образом в разнице среднего потенциала ионизации вещества I , а также атомного номера, атомной массы и плотности. В то же время, приближенно, для качественных оценок по порядку величины это распределение можно считать прямоугольным.

Из Рис. 4-31 видно, что полученные формы зависимостей $n(x)$ одинаковы для всех исследованных материалов: BaF₂, CeF₃, Bi₄Ge₃O₁₂ и PbWO₄, несмотря на

различие в потенциалах ионизации этих кристаллов. Это означает, что одним из наиболее существенных факторов, определяющих распределение плотности ЭВ по координате, можно считать сложную немонахроматическую структуру ФРЭЭ возбуждающего пучка, которая, как показано в настоящей главе, может считаться мало меняющейся от импульса к импульсу.

Следовательно, оценки, выполненные в настоящем пункте, позволяют считать, что относительные изменения плотности ЭВ при разных значениях полной энергии пучка не изменяют вида пространственного распределения плотности ЭВ. Также эти пространственные распределения можно считать практически одинаковыми для всех исследованных кристаллов.

Таким образом погрешность относительных изменений в зависимости $n(E_b)$ для $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ и погрешности пересчета этой зависимости на другие кристаллы не ожидаются значительными. Проверить их могут только прямые эксперименты, которые в настоящий момент недоступны.

4.7.4. Оценка точности определения отношения пробегов в исследованных кристаллах

В пункте 4.5 показано, что для вычисления средней плотности ЭВ, создаваемой в некотором кристалле c , через плотность ЭВ, создаваемую тем же электронным пучком в кристалле $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, необходимо вычислить для этих материалов соотношение пробегов $\langle R \rangle_{BGO} / \langle R \rangle_c$, усредненных по ФРЭЭ пучка.

Приведем три способа вычисления $\langle R \rangle_{BGO} / \langle R \rangle_c$. Первый – на основе пробегов электронов, полученных в CSDA-приближении. В этом случае

$$\langle R \rangle_c = \int_0^{E_{max}} f(E_0) R_c(E_0) dE_0 \quad , \quad (4.27),$$

где $R_c(E)$ – зависимость пробега электрона в некотором кристалле c от начальной энергии, $f(E)$ – ФРЭЭ пучка электронов. Второй предлагаемый способ основан на использовании аналитического выражения (4.4) для длины трека L . Выражение для усредненной по ФРЭЭ длины трека в кристалле c имеет аналогичный вид:

$$\langle L \rangle_c = \int_0^{E_{max}} f(E_0) L_c(E_0) dE_0 \quad (4.28).$$

Если считать, что в выражении (4.4) коэффициент $\xi(I_c, E_0) \approx \xi(I_c, \langle E_0 \rangle)$, где $\langle E_0 \rangle$ – средняя энергия пучка электронов, равная 150 кэВ, то этот член выносится из-под знака интеграла. Результат имеет следующий вид:

$$\langle L \rangle_c = \frac{1}{4\pi e^4 \rho_e^c \xi(I_c, \langle E_0 \rangle)} \int_0^\infty E_0^2 f(E_0) dE \quad (4.29)$$

Из (4.29) следует, что при постоянстве ФРЭЭ подынтегральная функция одинакова для всех кристаллов, измеренных в одинаковых условиях и равна второму моменту ФРЭЭ. Следовательно, в выражении $\langle L \rangle_{BGO} / \langle L \rangle_c$ она сокращается:

$$\frac{\langle L \rangle_{BGO}}{\langle L \rangle_c} = \frac{\rho_e^c \xi(I_c, \langle E_0 \rangle)}{\rho_e^{BGO} \xi(I_{BGO}, \langle E_0 \rangle)} \quad (4.30).$$

Табл. 4-4. Сопоставление отношения средних пробегов электронов в кристаллах CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 к среднему пробегу электронов в кристалле $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, вычисленных разными способами.

Кристалл	$\langle R \rangle$, мкм	$\langle R \rangle / \langle R \rangle_{BGO}$	$\langle L \rangle / \langle L \rangle_{BGO}$	Δ , мкм	Δ / Δ_{BGO}	I^a , эВ
$\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$	55	1	1	36	1	176.2
BaF_2	84	1.55	1.50	56	1.53	174.7
CeF_3	64	1.17	1.13	42	1.17	158.6
PbWO_4	48	0.88	0.89	32	0.88	186.9

^{a)} Вычислено при помощи системы ESTAR [159].

Параметры кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 , использованные для вычислений по формуле (4.30), приведены в Табл. 4-3. Третий способ основан на вычислении ширины распределений плотности ЭВ на полувысоте Δ_c , изображенных на Рис. 4-31.

Сопоставление результатов вычисления отношения среднего пробега в кристаллах CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 к среднему пробегу в кристалле $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ представлено в Табл. 4-4. Из приведенных результатов видно, что различие значений, полученных разными методами, не превышает 4%.

Глава 5. Измерение параметров новых сцинтилляторов методом ИКЛ

В настоящий момент параметры известных сцинтилляторов (выход, время высвечивания, амплитудное разрешение, радиационная стойкость, стоимость производства и др.) не достигают своих теоретически предсказанных предельных значений [56,74]. В то же время сцинтилляторы всё шире применяются на практике, и требования к ним возрастают [56,57,74], так что поиск и исследование сцинтилляторов со всё более высокими параметрами служит актуальной научно-технической задачей.

В настоящей главе описаны результаты исследования методом ИКЛ сцинтилляционных характеристик ряда новых сцинтилляторов, выращенных в Лаборатории Физики роста кристаллов ИОФАН им. А. М. Прохорова. Метод ИКЛ обладает рядом преимуществ перед иными способами измерения сцинтилляционных характеристик. Действительно, для измерений методом ИКЛ нет необходимости в работе с опасными радиоактивными веществами. Более того, в связи с высокой опасностью радиоактивные препараты с высокой активностью (10^3 МБк и более) становятся малодоступными, несмотря на то, что только такие препараты дают достаточно мощный поток ионизирующего излучения, требуемый для измерения спектральной плотности энергии и радиационной стойкости сцинтилляторов.

В этой связи возможность измерения этих параметров при облучении мощным импульсным электронным пучком имеет практическую ценность, так как установки ИКЛ, с одной стороны, обладают высокой мощностью воздействия, позволяющей исследовать люминесцентные свойства веществ с высоким соотношением сигнал/шум, с другой - не требуют получения специальных разрешений для их хранения и использования. Таким образом, исследования границ применимости метода ИКЛ для измерений сцинтилляционных параметров веществ представляют значительный практический интерес.

5.1. Измерение параметров сцинтилляции методом ИКЛ

5.1.1. Измерение спектров сцинтилляции методом ИКЛ

Важнейшим параметром сцинтиллятора является спектральная плотность энергии его сцинтилляции (спектр). Важность этой характеристики связана с тем, что именно спектр определяет тип и параметры фотоприёмника (ФЭУ, фотодиод, МРРС и др.), который требуется для регистрации сцинтилляции данного материала. Также спектр показывает, какие полосы люминесценции возбуждаются при том или ином типе сцинтилляции, давая информацию о её механизме.

В Гл. 4 было показано, что ИКЛ в общем случае является нелинейным процессом. Действительно, изменение полной энергии возбуждающего электронного пучка изменяет в веществе плотность ЭВ, от которой нелинейно зависит интенсивность каждой из полос люминесценции. На примере кристалла CeF_3 было показано, что полосы с разным механизмом люминесценции могут иметь разную зависимость от плотности ЭВ. Это, в частности, означает, что спектр ИКЛ этого кристалла, вообще говоря, различен при возбуждении электронным пучком разных энергий. Спектр люминесценции может измениться еще сильнее, если возбуждающее ионизирующее излучение будет иметь другую природу и энергию. Так, в работе [99] обнаружена разница в спектрах люминесценции CeF_3 под действием рентгеновского излучения с энергией квантов 35 кэВ и 511 кэВ.

В то же время, если сцинтиллятор обладает только одной полосой люминесценции (другие полосы могут иметь малую по сравнению с основной полосой интенсивность или вообще отсутствовать), то, в общем, спектр ИКЛ может совпадать со спектром РЛ, в частности, под действием гамма-излучения. Так, кристалл $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ и его разновидности обладают яркой полосой люминесценции в области 405 нм [62] и слабой полосой в области 550 нм, интенсивность которой может быть меньше интенсивности основной полосы в ~ 100 раз. Соответственно, с точностью до нескольких процентов можно считать, что спектр ИКЛ различных разновидностей $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ совпадает со спектром этого кристалла под действием гамма-излучения с точностью несколько процентов [160,161]. Следовательно, в этом случае метод ИКЛ может быть использован для исследования спектральных

свойств сцинтилляции веществ. Вместе с тем, в процессе анализа результатов следует обязательно принимать во внимание эффекты нелинейности сцинтилляции, особенно, если образец имеет несколько полос люминесценции разной природы.

5.1.2. Измерение кинетики сцинтилляции методом ИКЛ

Кинетические (временные) характеристики являются наряду со спектром важнейшими параметрами сцинтилляции. Наносекундная длительность быстрой составляющей электронного пучка (Рис. 3-2) позволяет измерять времена высвечивания до единиц наносекунд. В то же время, медленная составляющая электронного пучка искажает кинетику ИКЛ, что необходимо учитывать при анализе экспериментальных результатов. Далее приведены результаты исследования этих искажений на примере кинетики ИКЛ хорошо известных кристаллов-сцинтилляторов CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 , нелинейность ИКЛ которых была исследована в Гл. 4.

5.1.2.1 Кинетика ИКЛ CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4

Кинетика ИКЛ кристаллов CeF_3 , BaF_2 и PbWO_4 , нелинейность ИКЛ которых исследовалась в Гл. 4, приведена в настоящем пункте. В текущей главе параметры этих кристаллов приводятся первыми, так как на их примере можно проследить искажения кинетики сцинтилляции, вызванные особенностями метода ИКЛ. Измерения ИКЛ этих составов были выполнены аналогично таковым, описанным в Гл. 4. Кристаллы CeF_3 и BaF_2 были накрыты латунной фольгой толщиной 250 мкм с круглым отверстием диаметром 7 мм. Кристалл PbWO_4 кубической формы со стороной 1 см не был накрыт и располагался на дюралевом предметном столике (Рис. 2-1, 6).

На Рис. 5-1 приведена кинетика ИКЛ кристалла CeF_3 на длинах волн 300 и 350 нм, соответствующих двум разным по природе полосам люминесценции. Видно, что кинетика ИКЛ обеих полос имеет три хорошо различимых участка.

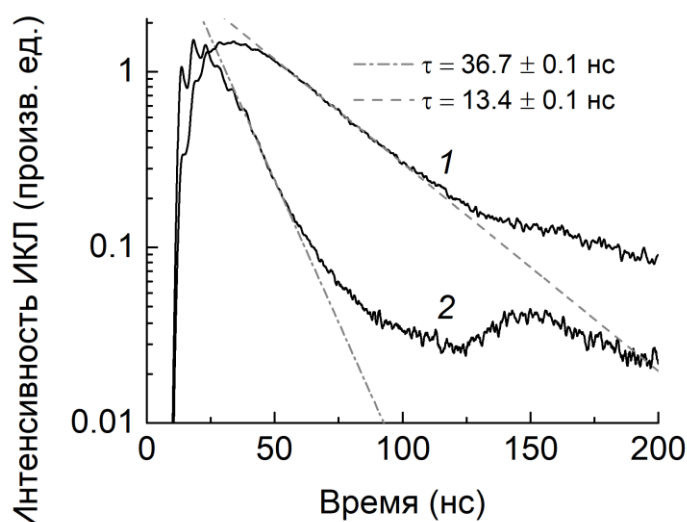


Рис. 5-1. Кинетика ИКЛ кристалла CeF_3 для двух разных полос излучения на длинах волн 350 нм (1) и 300 нм (2). Прямые линии показывают наилучшие приближения одноэкспоненциальной функцией (4.10).

Первый участок состоит из разгорания люминесценции и перехода через максимум интенсивности. При этом наблюдаются характерные пики, соответствующие быстрой составляющей электронного пучка. Далее быстрая составляющая прекращается и следует «свободный» распад ЭВ кристалла – люминесценция после прекращения воздействия. Для полосы в области 350 нм свободный распад близок к экспоненциальному со временем высвечивания $\tau = 36,7 \pm 0,1$ нс. Для полосы в области 300 нм он, вообще говоря, неэкспоненциальный. Оценка времени высвечивания даёт $\tau \approx 13$ нс. Далее следует участок с искажением кинетики и характерными «горбами» через ~ 160 нс после начала импульса. Важно отметить, что эти «горбы» вызваны медленной составляющей электронного пучка, и их не следует путать с реальными особенностями кинетики ИКЛ.

Через 100-150 нс после начала излучения, как видно из Рис. 5-1, интенсивность ИКЛ, возбуждаемой действием быстрой компоненты пучка, падает на 1-2 порядка и сравнивается с интенсивностью ИКЛ, возбуждаемой медленной компонентой. Наблюдаемые особенности («горбы») – артефакты измерений и вызваны пиками на зависимости тока пучка от времени. Действительно, эти

особенности присутствуют как в излучении 2^+N_2 , так и в рентгеновском излучении (Рис. 3-2).

Из Рис. 5-1 следует, что промежуток, в котором возможно измерение параметров кинетики ИКЛ в настоящей работе, ограничивается временами от единиц нс до ~ 100 нс. Далее происходит искажение результатов из-за наличия медленной компоненты электронного пучка. Пример измерения более длинных времен высвечивания ИКЛ (более 100 нс) представляет случай $Bi_4Ge_3O_{12}$ (Рис. 4-7 и 4-8) и BaF_2 .

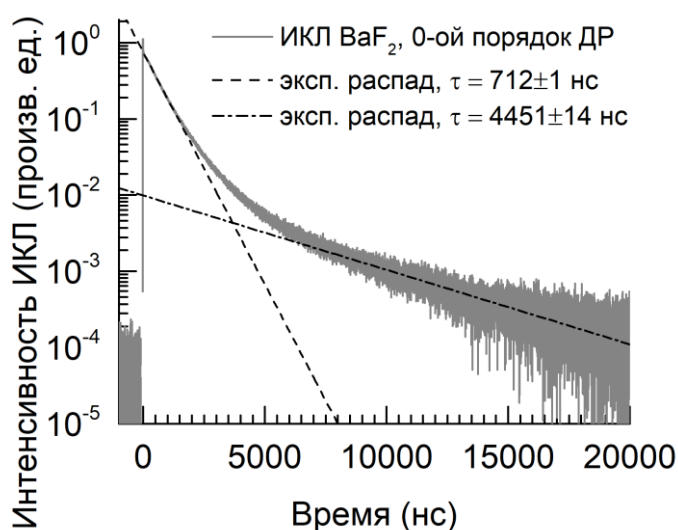


Рис. 5-2. Зависимость интенсивности ИКЛ BaF_2 от времени в 0-ом порядке ДР монохроматора.

Зависимость интенсивности ИКЛ BaF_2 в нулевом порядке ДР монохроматора от времени представлена на Рис. 5-2. Штриховой линией показано наилучшее приближение одноэкспоненциальной функцией (4.13) с $\tau = 712 \pm 1$ нс, штрихпунктирной – с $\tau = 4451 \pm 14$ нс. Переход на микросекундную кинетику осуществляется после 5 мкс. К этому моменту электронный пучок полностью прекращается (Рис. 2-3) и, следовательно, происходит свободный распад.

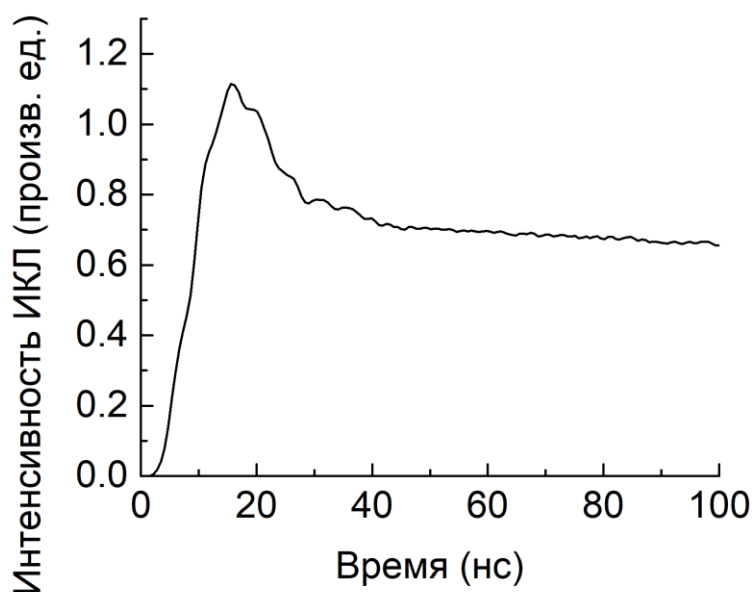


Рис. 5-3. Первые 100 нс зависимости интенсивности ИКЛ BaF_2 от времени в 0-ом порядке ДР монохроматора (вся кривая изображена на Рис. 5-2).

На Рис. 5-3. представлены первые 100 нс кривой, изображенной на Рис. 5-2. Импульс ИКЛ в первые 30 нс связан со сверхбыстрой кросс-люминесценцией BaF_2 [59,93,94]. Максимум кросс-люминесценции расположен в области 215 нм, и основная его часть не распространяется через оптоволоконный кабель длиной 15 м. В то же время, некоторая малая длинноволновая часть его регистрируется, если измерять ИКЛ в 0-ом порядке ДР монохроматора. Действительно, в кинетике ИКЛ на длине волны 300 нм этот кратковременный импульс отсутствует (Рис. 5-4). Время высвечивания ИКЛ на длине волны 300 нм составляет 728 ± 2 нс и близко ко времени высвечивания в 0-ом порядке (Рис. 5-2). Полученное значение согласуется с результатами исследования сцинтилляции BaF_2 под действием ионизирующего излучения других типов [56]. Таким образом, метод ИКЛ позволяет исследовать кинетику ИКЛ при временах высвечивания более 100 нс.

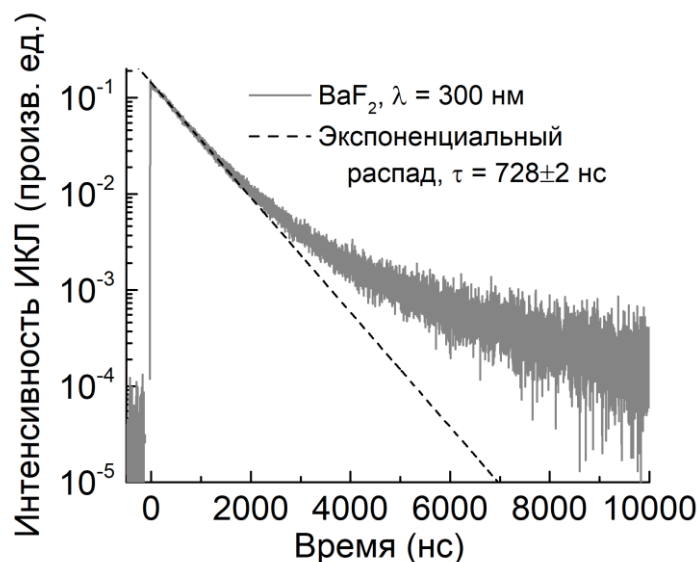


Рис. 5-4. Зависимость интенсивности ИКЛ BaF₂ от времени на длине вол-ны 300 нм

На Рис. 5-5 приведена кинетика ИКЛ PbWO₄ в нулевом порядке ДР, а на Рис. 5-6 – на длине волны 420 нм. Кристалл PbWO₄ имеет время высвечивания в области единиц нс [56]. По этой причине в его кинетике ИКЛ проявляется структура быстрой составляющей электронного пучка (Рис. 2-3). Результаты измерения времени высвечивания на спаде каждого импульса быстрой компоненты и затем усредненные, даны в Табл. 4-3.

Выполненные исследования кинетики ИКЛ показывают, что наименьшее возможное время высвечивания, измеряемое методом ИКЛ в настоящей работе, составляет единицы нс. Действительно, меньшие времена высвечивания требуют точного знания формы зависимости силы тока пучка от времени, более узкой аппаратной функции измерительной системы и др. Также из кинетики ИКЛ PbWO₄ видны искажения, вносимые формой зависимости тока пучка ускорителя РАДАН-ЭКСПЕРТ от времени.

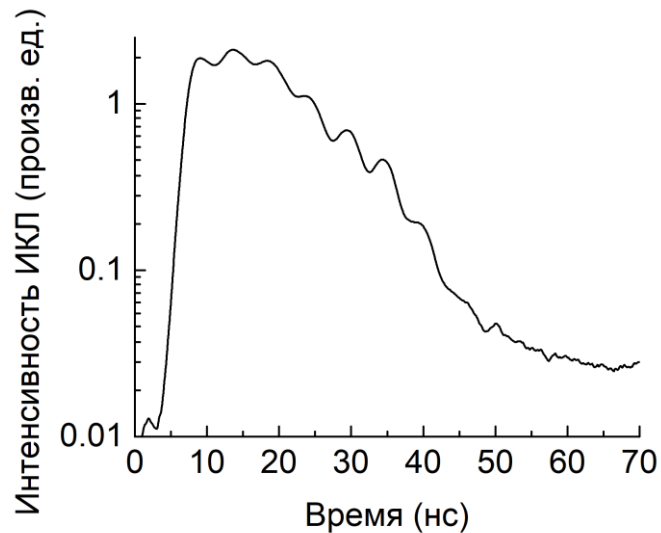


Рис. 5-5. Зависимость интенсивности ИКЛ PbWO_4 от времени в 0-ом порядке ДР монохроматора.

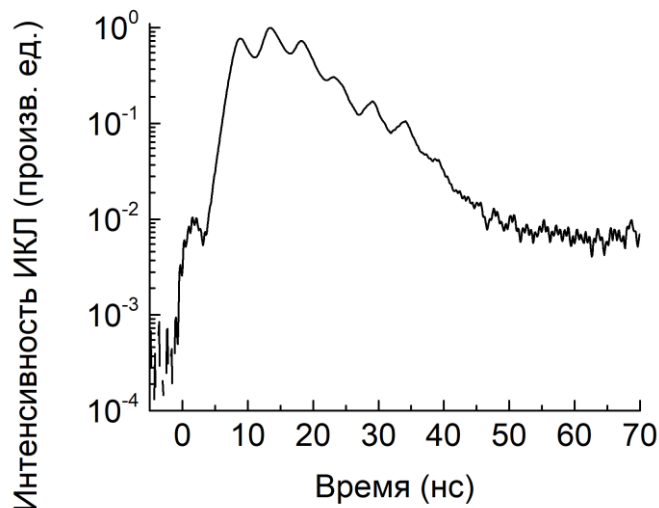


Рис. 5-6. Зависимость интенсивности ИКЛ PbWO_4 от времени на длине волны 420 нм.

5.1.2.2 Сопоставление кинетики ИКЛ и РЛ сцинтиллятора LFS-3

Приведенный выше анализ позволяет сделать вывод, что измерения кинетики сцинтилляции методом ИКЛ для сцинтилляторов с временами высвечивания $2 \div 100$ нс возможны при условии принятия во внимание искажений, вносимых формой импульса электронов. В настоящем пункте проводится сопоставление кинетики ИКЛ кристалла LFS-3, являющегося разновидностью кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^{3+}$ с рядом дополнительных катионных добавок, изменяющих

конфигурацию дефектов по сравнению со стехиометрическим $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^{3+}$ и заметно повышающих световыход, радиационную стойкость и ростовые характеристики (уменьшение вероятности растрескивания при выращивании крупных кристаллов) при понижении времени высвечивания с 44 до 35 нс [79]. Главная примесь, улучшающая характеристики кристалла – добавка ионов Ca^{2+} , которые создают в структуре Lu_2SiO_5 кислородные вакансии.

Спектр ИКЛ LFS-3 представлен на Рис. 5-7. Максимум спектральной плотности энергии излучения расположен в области 405 нм.

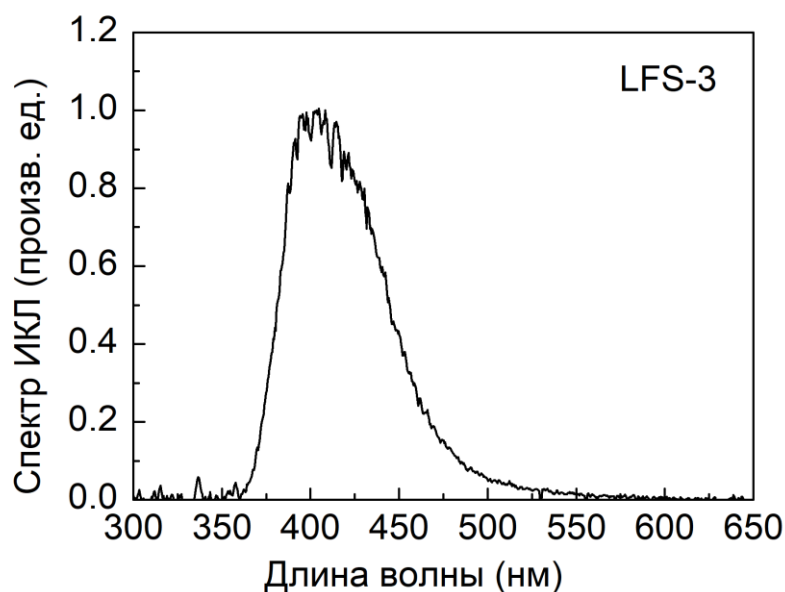


Рис. 5-7. Спектр ИКЛ кристалла LFS-3

Сопоставление кинетики ИКЛ LFS-3 на длине волны 405 нм, соответствующей максимуму интенсивности ИКЛ, с РЛ этого кристалла под действием гамма-квантов с энергией 660 кэВ, представлено на Рис. 5-8.

Зависимость интенсивности РЛ LFS-3 от времени опубликована в работе [79]. Кривая измерена методом время-коррелированного счета фотонов. Возбуждение осуществлялось гамма-квантами с энергией 660 кэВ, испускаемыми источником ^{137}Cs . Время высвечивания РЛ по данным [79] составляет $35,4 \pm 1,2$ нс. Время высвечивания ИКЛ, полученное наилучшим приближением кривой (1) на Рис. 5-8 даёт значение $36,2 \pm 0,1$ нс. Видно, что это значение совпадает со временем

высвечивания РЛ кристалла LFS-3 в пределах ошибки измерений. Сопоставление кинетики ИКЛ и РЛ обсуждается в работах [161,162].

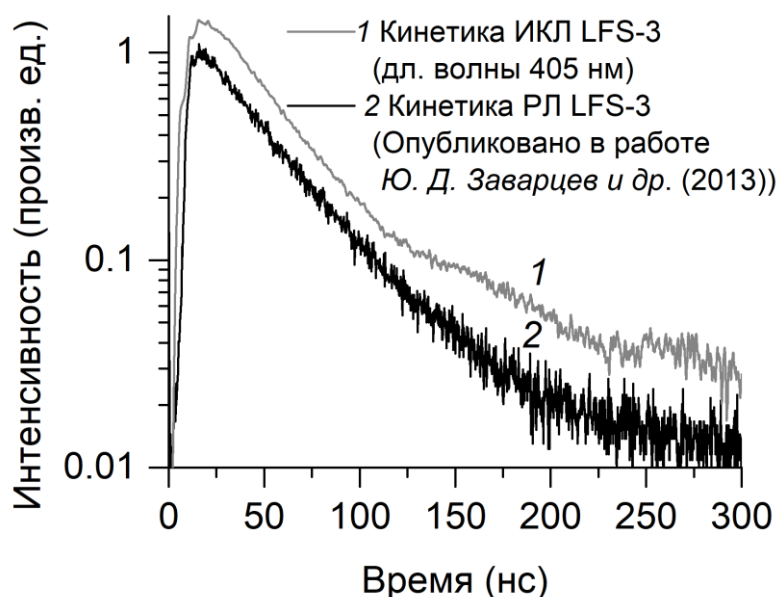


Рис. 5-8. Зависимость интенсивности ИКЛ на длине волны 405 нм (1) и РЛ под действием гамма-квантов с энергией 660 кэВ (2) сцинтиллятора LFS-3. Кинетика РЛ взята из работы [79].

5.2. ИКЛ $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^{3+}:\text{Li}^+:\text{Sc}^{3+}$

Как уже упоминалось, дополнительное легирование разными наборами катионных примесей хорошо зарекомендовавшего себя сцинтиллятора $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^{3+}$ может ещё сильнее улучшить его сцинтилляционные и ростовые характеристики. Так, на этом пути в случае состава LFS-3 был достигнут успех [79]. В настоящем пункте исследуются параметры ИКЛ кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^{3+}$, дополнительно легированного ионами Li^+ и Sc^{3+} . Интерес к легированию ионами Li^+ вызван тем, что они, как и ионы Ca^{2+} , приводят к созданию в структуре Lu_2SiO_5 кислородных вакансий. В то же время, так как электрический заряд иона лития в два раза меньше заряда иона кальция, каждый ион лития должен создавать в 2 раза больше кислородных вакансий в структуре Lu_2SiO_5 и, следовательно, ещё сильнее укорачивать время высвечивания. Результаты этих исследований опубликованы в работе [163].

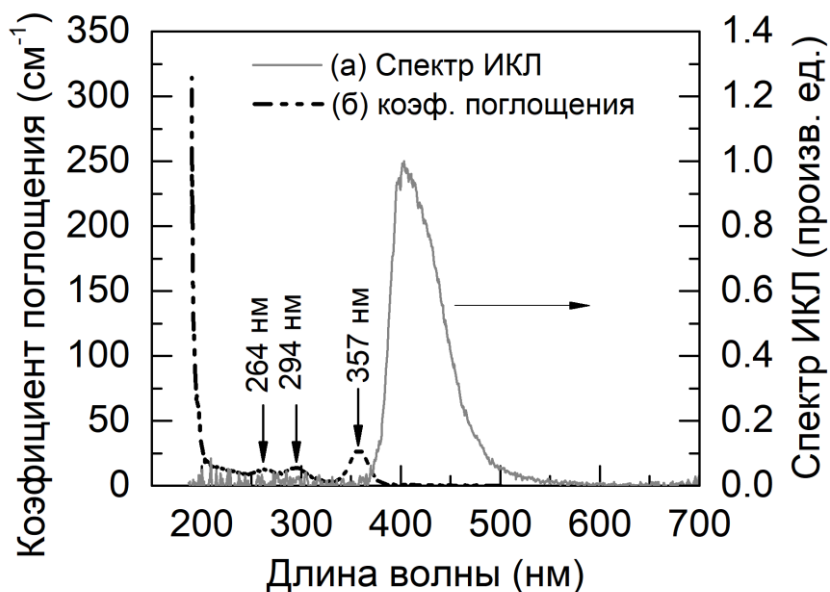


Рис. 5-9. Спектр поглощения (а) и ИКЛ (б) кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Li}:\text{Sc}:\text{Ce}$

Кристалл $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Li}:\text{Sc}:\text{Ce}$ был выращен методом Чохральского в Лаборатории физики роста кристаллов ИОФАН им. А. М. Прохорова из иридиевого тигля в атмосфере, состоящей из 99,9% аргона и 0,1% кислорода. Концентрация катионных примесей в расплаве составляла следующие величины: Ce^{3+} - 0,1 ат. %, Sc^{3+} - 0,25 ат. %, Li^+ - 0,5 ат. %.

На Рис. 5-9 представлены спектр поглощения и спектр ИКЛ кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Li}:\text{Sc}:\text{Ce}$. Полосы поглощения на длинах волн 264, 294 и 357 нм относятся к ионам $\text{Ce}^{3+}(4f^1(^2F_{5/2}) \rightarrow 5d^1(^3T_{2g} \text{ и } ^2E))$ [164,165]. Спектр ИКЛ $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Li}:\text{Sc}:\text{Ce}$ в пределах погрешности повторяет спектр ИКЛ кристалла LFS-3 (Рис. 5-7). Можно видеть, что дополнительное легирование влияет на спектры ИКЛ $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ незначительно. Примеры кинетики ИКЛ на длинах волн 405 и 550 нм приведены на Рис. 5-10.

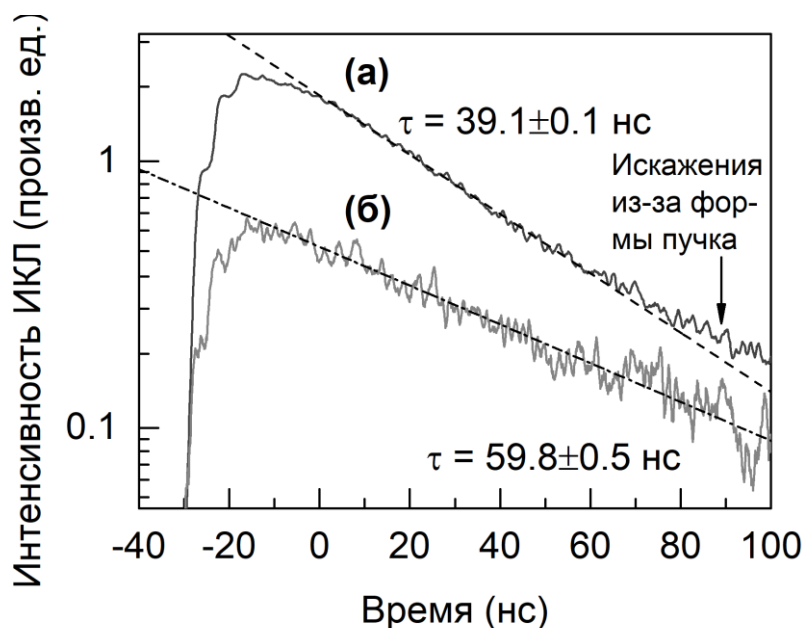


Рис. 5-10. Кинетика ИКЛ $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Li:Sc:Ce}$ на длинах волн 405 нм (а) и 550 нм (б).

Видно, что на длинах волн 405 и 550 нм время высвечивания ИКЛ разное: на длине волны 405 нм оно составляет $39,1 \pm 0,1$ нс, а на длине волны 550 нм — $59,8 \pm 0,5$ нс. Одновременно с этим, спектральная плотность энергии ИКЛ на 550 нм меньше, чем на 405 нм, примерно в ~ 100 раз (Рис. 5-9). Согласно [166], полосы излучения в области 405 и 550 нм различны по природе. Они, по аналогии с полосами люминесценции CeF_3 на длинах волн 300 и 350 нм, согласно [166], связаны с излучательными переходами между ионами Ce^{3+} , расположенными в неискаженных областях кристаллической решетки Lu_2SiO_5 (полоса на длине волны 405 нм) и вблизи дефектов (полоса на длине волны 550 нм).

Также из Рис. 5-10 видно, что в определенный момент времени начинают проявляться искажения свободного распада ИКЛ из-за медленной компоненты электронного пучка. В этой области (более 60 нс на Рис. 5-10) исследовать кинетику ИКЛ уже нельзя.

На Рис. 5-11 приведена зависимость времени высвечивания кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Li:Sc:Ce}$ от длины волны. Времена высвечивания определялись так же, как и на Рис. 5-10. Помимо этого, на Рис. 5-11 приведена для сравнения зависимость

времени высвечивания ФЛ этого же образца, измеренная В. И. Власовым (Лаборатория Физики роста кристаллов ИОФАН им. А. М. Прохорова). Возбуждение ФЛ осуществлялось под действием лазерного излучения на длине волны 337 нм, генерируемого импульсным азотным лазером ЛГИ-503. Подробности эксперимента описаны в работе [163].

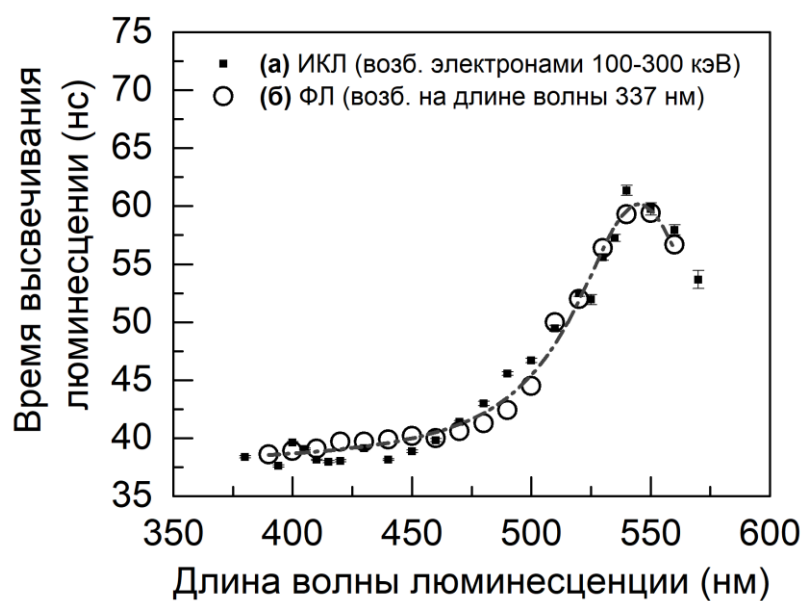


Рис. 5-11. Зависимости времен высвечивания люминесценции кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Li}:\text{Sc}:\text{Ce}$ от длины волны: (а) ИКЛ; (б) ФЛ.

Из Рис. 5-11 видно, что зависимости времени высвечивания ИКЛ и ФЛ кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Li}:\text{Sc}:\text{Ce}$ от длины волны в целом совпадают. Этот факт означает, что воздействие ионизирующего излучения высокой мощности не влияет на длительность сцинтилляции этого кристалла.

Также полученные данные свидетельствуют о том, что состав $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Li}:\text{Sc}:\text{Ce}$ несколько выигрывает по времени высвечивания у стехиометрического кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ без дополнительных добавок, но проигрывает кристаллу LFS-3, в состав которого входят ионы Ca^{2+} . Физические причины этого явления исследованы в работе [167], где показано, что внедрение ионов Ca^{2+} приводит к наиболее эффективному формированию в структуре Lu_2SiO_5 кислородных вакансий.

Кислородные вакансии являются оптически-активными дефектами. Так, в частности, они приводят к появлению дополнительного оптического поглощения в диапазоне 200-300 нм, которого у кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Li:Sc:Ce}$ нет (Рис. 5-9). Возможной причиной незначительности изменения кинетических параметров сцинтилляции состава $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Li:Sc:Ce}$ по сравнению со стандартным $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce}$ может быть тот факт, что ионы Li^+ слабо встраиваются в кристаллическую решетку Lu_2SiO_5 и, следовательно, не приводят к формированию кислородных вакансий меньшей концентрации, чем ионы Ca^{2+} .

5.3. ИКЛ LuScSiO_5

Высокие сцинтилляционные характеристики кристалла $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce}$ и его разновидностей делают привлекательными дальнейший поиск сцинтилляторов класса редкоземельных оксиортосилликатов. В то же время, составы, в которых ионы Ce^{3+} выступают в роли активирующей примеси, не содержащейся в основном веществе, обладают существенным недостатком – сегрегацией (неоднородностью концентрации) активирующих ионов по высоте ростовой були, вызванной действием силы гравитации. В результате этого химические составы верхней, средней и нижней частей ростовой були могут существенно отличаться по концентрации активатора и дополнительных примесей, что сильно ограничивает максимальный размер сцинтиллятора, который может быть эффективно использован.

В то же время в физике высоких энергий становятся востребованы сцинтилляторы всё больших размеров, так как при высокой энергии ускоряемые частицы обладают высокой проникающей способностью и, следовательно, вероятность их детектирования небольшими сцинтилляторами оказывается слишком малой. Одним из возможных решений этой проблемы служит использование сцинтилляторов, обладающих яркой собственной люминесценцией. Так, к ним относятся $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, PbWO_4 и ReVO_4 (Re- редкоземельный ион) и др.

До настоящего времени был известен только один состав класса редкоземельных оксиортосилликатов, имеющий яркую собственную люминес-

ценцию при комнатной температуре, - Sc_2SiO_5 [81]. Недостатком этого материала является его сравнительно низкая массовая плотность ($3,2 \text{ г/см}^3$), в то время как для детектирования частиц высокой энергии этот параметр является принципиальным.

В настоящей работе впервые исследуется ИКЛ нового сцинтиллятора LuScSiO_5 , обладающего яркой собственной люминесценцией и плотностью $5,47 \text{ г/см}^3$. Кристалл LuScSiO_5 был выращен методом Чохральского в Лаборатории физики роста кристаллов ИОФАН им. А. М. Прохорова из иридиевого тигля в атмосфере, состоящей из 99,5% аргона и 0,5% кислорода. Исходные реактивы имели высокую химическую чистоту. Массовая доля основного вещества реактива Lu_2O_3 составляла 99,99%, Sc_2O_3 – 99,995% и SiO_2 – 99,985%. Результаты работы опубликованы в статье [168].

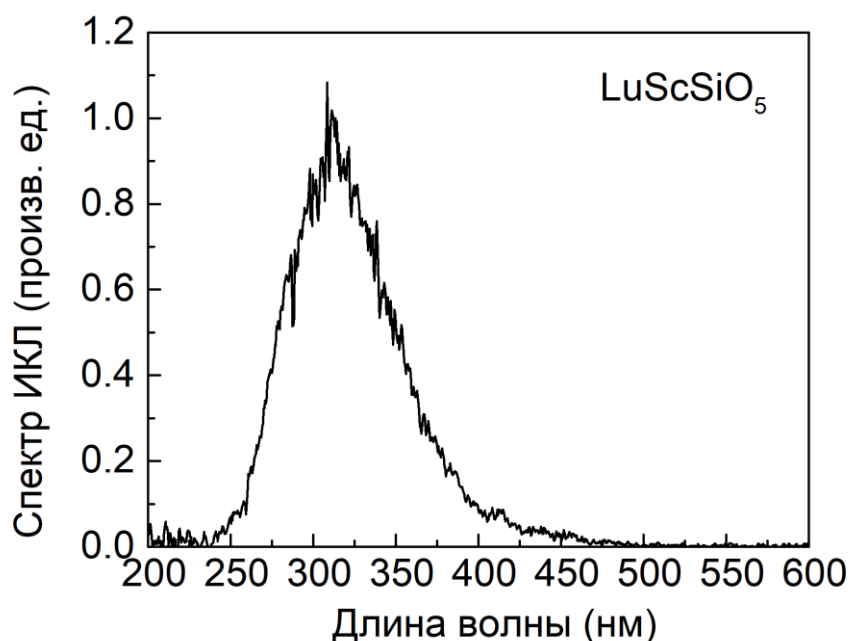


Рис. 5-12. Спектр ИКЛ кристалла LuScSiO_5 .

Спектр ИКЛ LuScSiO_5 представлен на Рис. 5-12. Кристалл обладает достаточно яркой ИКЛ и РЛ (выход РЛ под действием гамма-квантов с энергией 660 кэВ составляет 13500 фотонов/МэВ). Так как никаких активаторов люминесценции в процессе роста добавлено не было, наблюдаемое свечение можно классифицировать как собственную люминесценцию. Максимум

спектральной плотности энергии ИКЛ LuScSiO_5 расположен на длине волны 310 нм. Кинетика ИКЛ на этой длине волны представлена на Рис. 5-13. Время высвечивания ИКЛ на этой длине волны в течение первых 1500 нс составляет 990 ± 1 нс. Затем осуществляется переход на несколько более медленную кинетику.

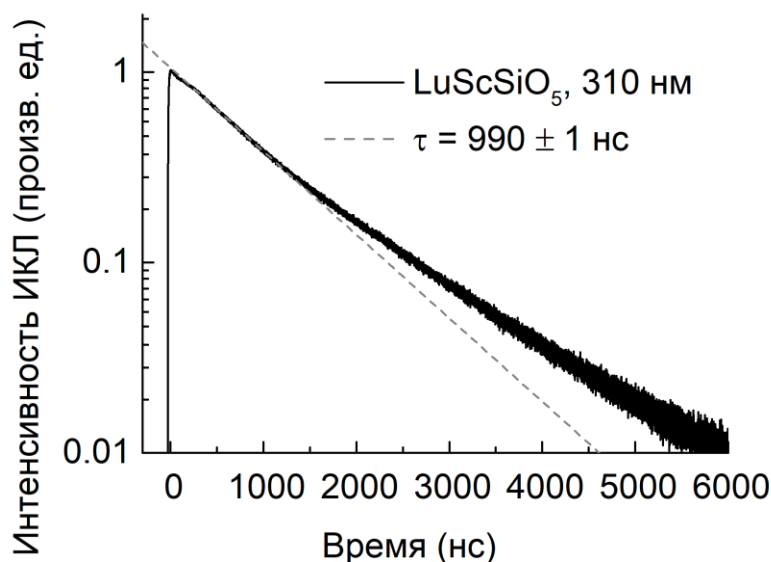


Рис. 5-13. Кинетика ИКЛ кристалла LuScSiO_5 на длине волны 310 нм.

Время высвечивания РЛ этого кристалла под действием гамма-квантов с энергией 660 кэВ составляет 900 ± 90 нс. Таким образом, времена высвечивания РЛ и ИКЛ кристалла LuScSiO_5 равны в пределах ошибки измерений. К достоинствам кристалла относится то, что он негигроскопичен и химически стоек, а также обладает амплитудным разрешением $13 \pm 2\%$. Механизм собственной люминесценции этого материала в настоящий момент не ясен и будет исследован в последующих работах. Стоит отметить, что по спектрально-кинетическим параметрам СЛ этого кристалла близка к СЛ Sc_2SiO_5 и Sc_2O_3 , механизм которой, по данным [81,82], может быть связан с туннельной рекомбинацией электронно-дырочных пар, захваченных на дефектах.

5.4. ИКЛ $\text{GdVO}_4:\text{Ca}^{2+}$ и $\text{YVO}_4:\text{Ca}^{2+}$

Помимо $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ и PbWO_4 , хорошо известными сцинтилляторами с яркой собственной люминесценцией являются кристаллы класса редкоземельных оксиортованадатов ReVO_4 , где Re – редкоземельный ион. Эти составы обладают сравнительно длинными временами высвечивания на уровне десятков микросекунд, что делает их неприменимыми для многих задач. Таким образом поиск способов уменьшения времени высвечивания этих составов представляет значительный интерес, тем более, что эти материалы имеют достаточно большой выход сцинтилляции и сравнительно дешёвы. Так, YVO_4 обладает $\tau = 38$ мкс. Сокращение времени высвечивания $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ путём дополнительного легирования ионами Ca^{2+} [79] поставило вопрос о том, приведет ли введение ионов Ca^{2+} и, следовательно, дополнительных кислородных вакансий, в редкоземельные ванадаты также к уменьшению длительности их сцинтилляции.

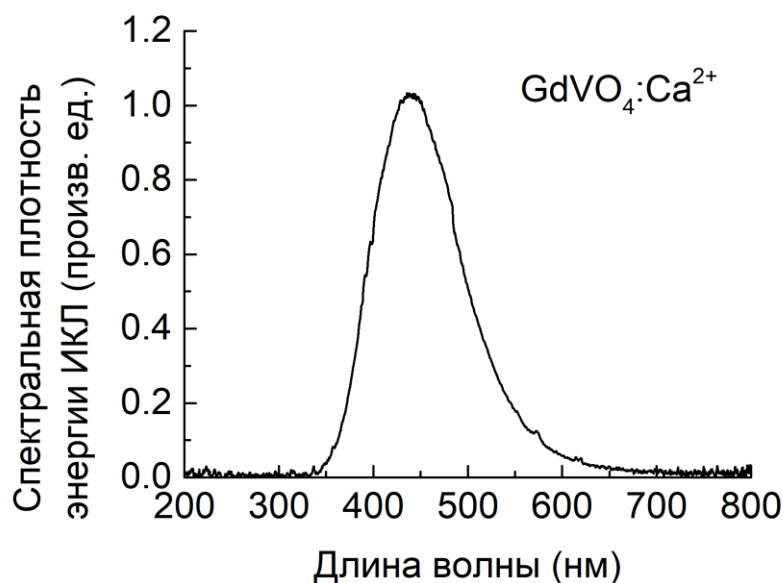


Рис. 5-14. Спектр ИКЛ кристалла $\text{GdVO}_4:\text{Ca}^{2+}$

Кристаллы YVO_4 , $\text{YVO}_4:\text{Ca}^{2+}$ и $\text{GdVO}_4:\text{Ca}^{2+}$ были выращены методом Чохральского в Лаборатории физики роста кристаллов ИОФАН им. А. М. Прохорова из иридиевого тигля. В качестве исходных реактивов

использовались порошки V_2O_5 , Y_2O_3 , Gd_2O_3 и CaO . Для уменьшения образования центров окраски на основе ионов V^{4+} рост кристаллов происходил в специальной защитной атмосфере с повышенным содержанием кислорода $98,7\%N_2+1,3\%O_2$. Результаты работы опубликованы в статье [169]. Кристалл YVO_4 без дополнительного легирования в процессе роста пошёл «винтом». В то же время, кристаллы $YVO_4:Ca^{2+}$ и $GdVO_4:Ca^{2+}$ выросли ровными без трещин и изменения формы.

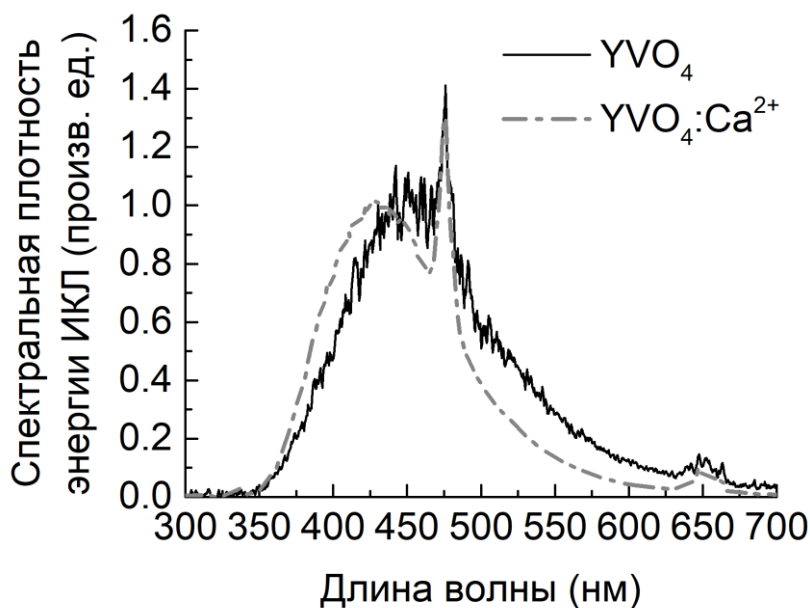


Рис. 5-15. Спектр ИКЛ номинально чистого кристалла YVO_4 (сплошная линия) и кристалла $YVO_4:Ca^{2+}$ (штрихпунктирная линия).

На Рис. 5-14 представлен спектр ИКЛ кристалла $GdVO_4:Ca^{2+}$. Максимум спектральной плотности ИКЛ находится на длине волны 440 нм. На Рис. 5-15 представлено сопоставление спектров номинально чистого кристалла YVO_4 без дополнительного легирования и легированного ионами Ca^{2+} . Видно, что спектры несколько различаются. Так, максимум спектральной плотности ИКЛ номинально чистого YVO_4 лежит в области 450 нм, в то время как максимум спектральной плотности ИКЛ $YVO_4:Ca^{2+}$ располагается на длине волны 430 нм. Пики в области 477 и 550 нм мы связываем с неконтролируемыми примесями, попавшими в виде

загрязнений исходных реактивов. Можно видеть, что в спектре ИКЛ $\text{GdVO}_4:\text{Ca}^{2+}$ эти полосы отсутствуют.

На Рис. 5-16 представлена кинетика ИКЛ кристаллов $\text{GdVO}_4:\text{Ca}^{2+}$ и $\text{YVO}_4:\text{Ca}^{2+}$. Схема измерений в этом эксперименте отличалась от всех остальных измерений по кинетике ИКЛ в настоящей работе. Кварцевый оптический кабель длиной 1 м и диаметром 1 мм направлял излучение ИКЛ сразу на вход ФЭУ-85, фототок которого измерялся цифровым осциллографом Tektronix TDS2024C с полосой пропускания 200 МГц. Расположение ФЭУ рядом с ускорителем вызывало значительные искажения в течение первых 1-2 мкс после возбуждения ИКЛ. Так как кристаллы YVO_4 и GdVO_4 обладают люминесценцией длительностью несколько мкс и более, наводка не приводила к искажениям измеренной кинетики. Наилучшее приближение кривых на Рис. 5-16 по формуле (4.11) дает значения времен высвечивания 5 ± 1 мкс ($\text{GdVO}_4:\text{Ca}^{2+}$) и 12 ± 1 мкс ($\text{YVO}_4:\text{Ca}^{2+}$).

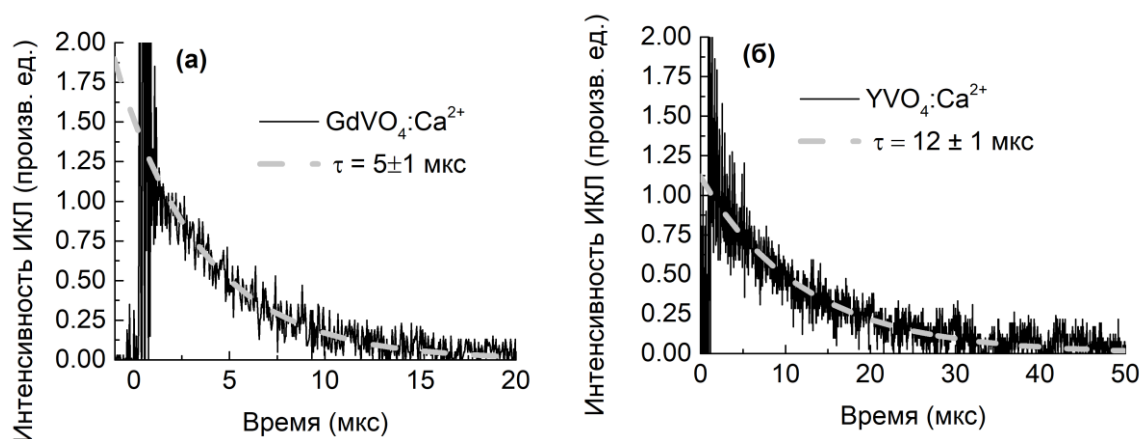


Рис. 5-16. Кинетика ИКЛ кристалла $\text{GdVO}_4:\text{Ca}^{2+}$ (а) и $\text{YVO}_4:\text{Ca}^{2+}$ (б).

Время высвечивания РЛ нелегированного YVO_4 составляет 38 мкс [170]. Следовательно, введение примеси Ca^{2+} приводит к уменьшению времени высвечивания кристалла YVO_4 в ~ 4 раза. Механизм этого явления будет обсуждаться в дальнейших публикациях.

5.5. Исследование деградации сцинтилляционных свойств кристаллов методом ИКЛ

5.5.1. Радиационная деградация оптических свойств нестехиометрических кристаллов-сцинтилляторов $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}:\text{Ce}:\text{Cr}$

Для целей колориметрии частиц высокой энергии представляют существенный интерес кристаллы крупных размеров (диаметр – 10 см, длина ~1 м) на основе редкоземельных гранатов. При этом с выращиванием таких стехиометрических гранатов возникают существенные проблемы, так как для стехиометрических кристаллов оказывается чрезвычайно высокой вероятность растрескивания в процессе роста и послеростового охлаждения.

Табл. 5-1. Спецификация исследованных кристаллов LuYAG

Номер образца	Соотношение матричных компонентов в исходном расплаве (химическая и кристаллохимическая формула)	Легирующие ионы	Плотность кристалла, г/см ³
1	$\text{Lu}_{3,01}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$ $\{\text{Lu}_3\}[\text{Al}_{1,973}]\text{Al}_3\text{O}_{11,96}$	Ce^{3+} , Cr^{3+}	6,70
2	$\text{Lu}_{1,96}\text{Y}_{1,05}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$ $\{\text{Lu}_{1,953}\text{Y}_{1,047}\}[\text{Al}_{1,973}]\text{Al}_3\text{O}_{11,96}$	Ce^{3+} , Cr^{3+}	5,94
3	$\text{Lu}_{1,51}\text{Y}_{1,5}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$ $\{\text{Lu}_{1,505}\text{Y}_{1,495}\}[\text{Al}_{1,973}]\text{Al}_3\text{O}_{11,96}$	Ce^{3+} , Cr^{3+}	5,62
4	$\text{Lu}_{1,51}\text{Y}_{1,5}\text{Sc}_{0,06}\text{Al}_{4,93}\text{O}_{12}$ $\{\text{Lu}_{1,505}\text{Y}_{1,495}\}[\text{Sc}_{0,06}\text{Al}_{1,913}]\text{Al}_3\text{O}_{11,96}$	Ce^{3+} , Cr^{3+}	5,64

Одним из путей решения этой проблемы служит использование нестехиометрических расплавов. В лаборатории Физики роста кристаллов ИОФАН им. А.М. Прохорова были выращены крупные (диаметром ~100 мм и длиной до ~1 м) кристаллы $\text{Ce,Cr:Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$, с концентрацией ионов Ce^{3+} ~0,08 ат.% и Cr^{3+} ~0,005 ат.% и кристалл, дополнительно легированный Sc^{3+} в концентрации ~2 ат.%. Выращенные кристаллы не проявили склонности к образованию трещин.

Спецификация исследованных кристаллов приведена в Табл. 5-1. Результаты исследований опубликованы в работе [171].

Фигурными скобками в Табл. 5-1 ($\{\}$) обозначены элементы в додекаэдрической позиции, квадратными ($[\]$) - в октаэдрической и без скобок — в тетраэдрической позиции. В идеальной кристаллической решетке граната ионы Lu^{3+} и Y^{3+} занимают додекаэдрические позиции, ионы Sc^{3+} и Al^{3+} занимают октаэдрические позиции [83].

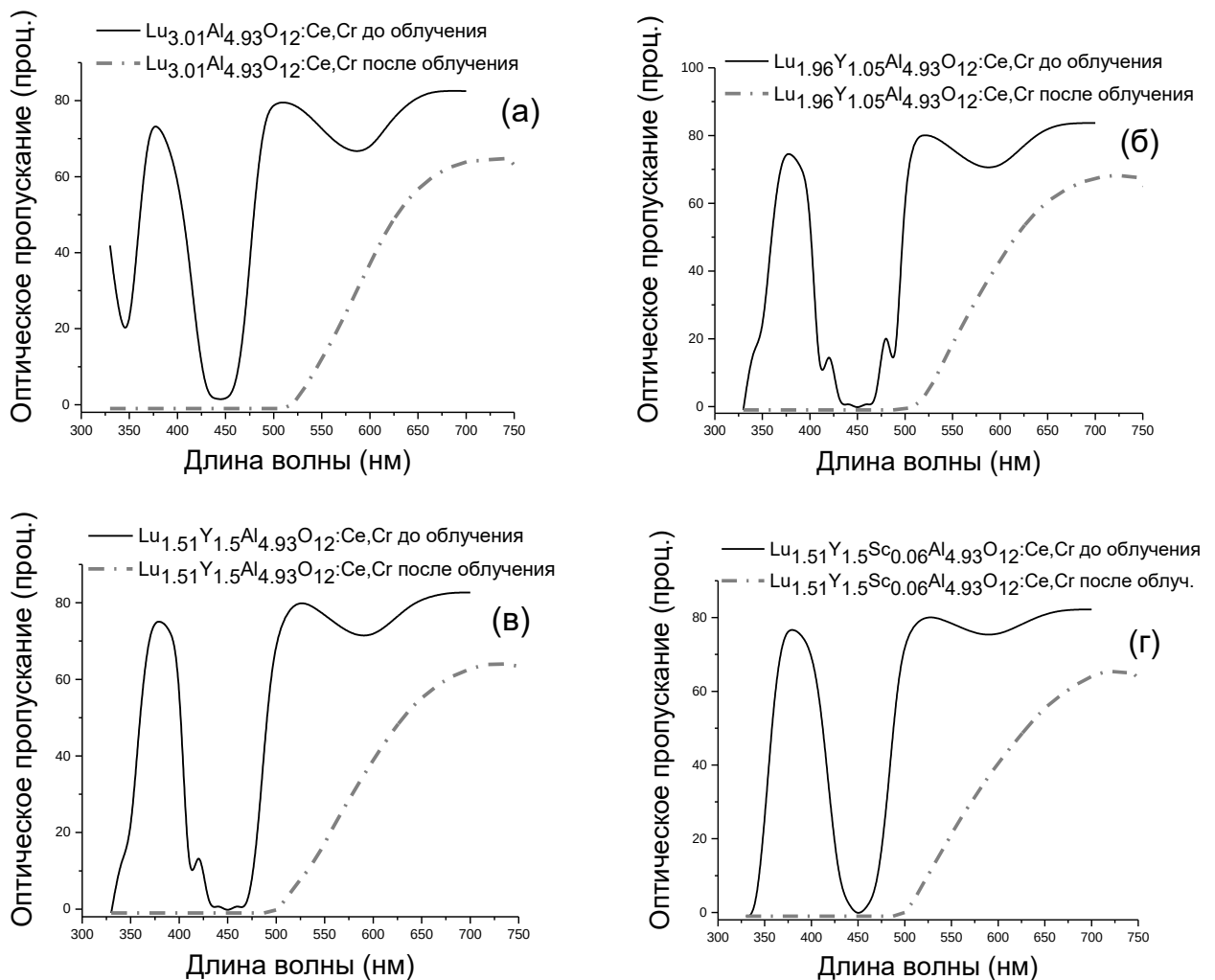


Рис. 5-17. Спектры ОП кристаллов $\text{Lu}_{3.01}\text{Al}_{4.99}\text{O}_{12}$ (а), $\text{Lu}_{1.96}\text{Y}_{1.05}\text{Al}_{4.99}\text{O}_{12}$ (б), $\text{Lu}_{1.51}\text{Y}_{1.5}\text{Al}_{4.99}\text{O}_{12}$ (в) и $\text{Lu}_{1.51}\text{Y}_{1.5}\text{Sc}_{0.06}\text{Al}_{4.93}\text{O}_{12}$ (г), активированных ионами Ce^{3+} и Cr^{3+} , до (сплошная линия) и после (штрихпунктирная линия) облучения гамма-излучением при поглощенной дозе 45 Мрад.

Радиационная стойкость кристаллов исследовалась по изменению спектров ИКЛ и оптического пропускания (ОП) исследованных образцов в результате

действия гамма-излучения источника ^{60}Co с максимальной мощностью 4 крад/мин. Спектры ОП кристаллов были записаны до и через 1 день после облучения их гамма-излучением дозой 45 Мрад спектрофотометром Shimadzu UV-3101PC.

Спектры ОП приведены на Рис. 5-17. Полоса поглощения в области 450 нм в спектре ОП всех кристаллов до облучения гамма-квантами соответствует поглощению ионов Ce^{3+} , а в районе 580 нм – поглощению ионов Cr^{3+} .

Из Рис. 5-17 видно, что после воздействия гамма-излучения все образцы потеряли прозрачность в области 300-500 нм, а в диапазоне 500-700 нм спектры ОП утратили индивидуальную для каждого образца структуру и стали одинаковы. Этот факт означает, что под действием гамма-излучения во всех кристаллах возникли одинаковые центры окраски.

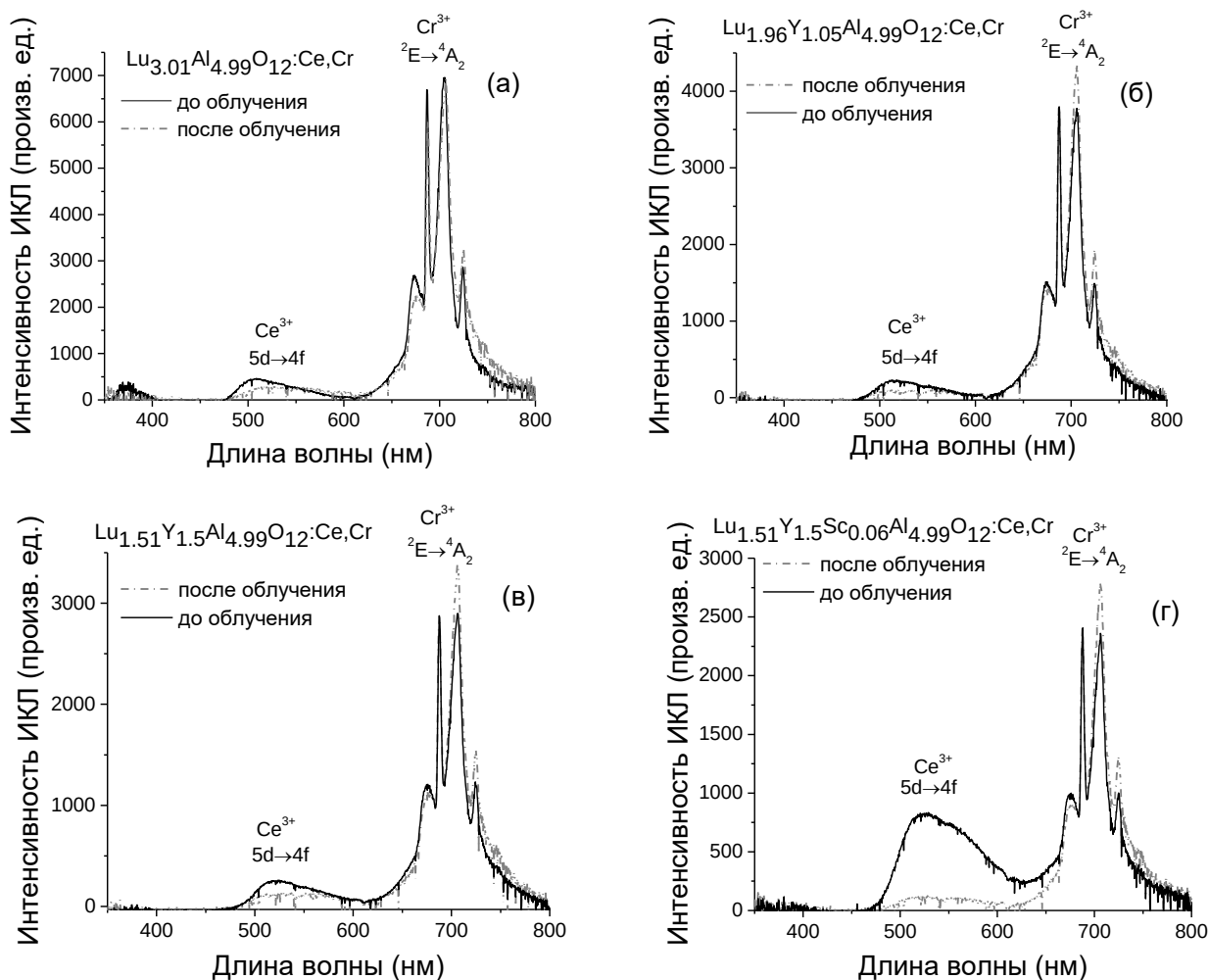


Рис. 5-18. ИКЛ-спектры кристаллов $\text{Lu}_{3.01}\text{Al}_{4.99}\text{O}_{12}$ (а), $\text{Lu}_{1.96}\text{Y}_{1.05}\text{Al}_{4.99}\text{O}_{12}$ (б), $\text{Lu}_{1.51}\text{Y}_{1.5}\text{Al}_{4.99}\text{O}_{12}$ (в) и $\text{Lu}_{1.51}\text{Y}_{1.5}\text{Sc}_{0.06}\text{Al}_{4.93}\text{O}_{12}$ (г), активированных ионами Ce^{3+} и Cr^{3+} , до (сплошная линия) и после (штрихпунктирная линия) облучения гамма-излучением при поглощенной дозе 45 Мрад.

На рис. 5-18 изображены спектры ИКЛ кристаллов до облучения гамма-излучением и на 1090 день после облучения. Все спектры нормированы на максимальные спектральные плотности энергии ИКЛ. Полосы ИКЛ в области 480-610 нм обусловлены переходом $5d \rightarrow 4f$ иона Ce^{3+} , а в области 610-800 нм - переходом $^2E \rightarrow ^4A_2$ иона Cr^{3+} .

Изменение спектра ИКЛ в результате воздействия гамма-излучения проявляется в уменьшении относительной интенсивности полосы Ce^{3+} по отношению к интенсивности полосы, соответствующей ионам Cr^{3+} . Этот факт - свидетельство нарушения сцинтилляционного механизма исследованных кристаллов в результате гамма-облучения.

Для кристалла $\text{Lu}_{3,01}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}:\text{Ce},\text{Cr}$ относительная интенсивность полосы Cr^{3+} возрастает в 1,6 раза, для кристалла $\text{Lu}_{1,96}\text{Y}_{1,05}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}:\text{Ce},\text{Cr}$ – 2,2 раза, для $\text{Lu}_{1,51}\text{Y}_{1,5}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}:\text{Ce},\text{Cr}$ – 1,9 раза и для кристалла $\text{Lu}_{1,51}\text{Y}_{1,5}\text{Sc}_{0,06}\text{Al}_{4,93}\text{O}_{12}:\text{Ce},\text{Cr}$ – в 8 раз.

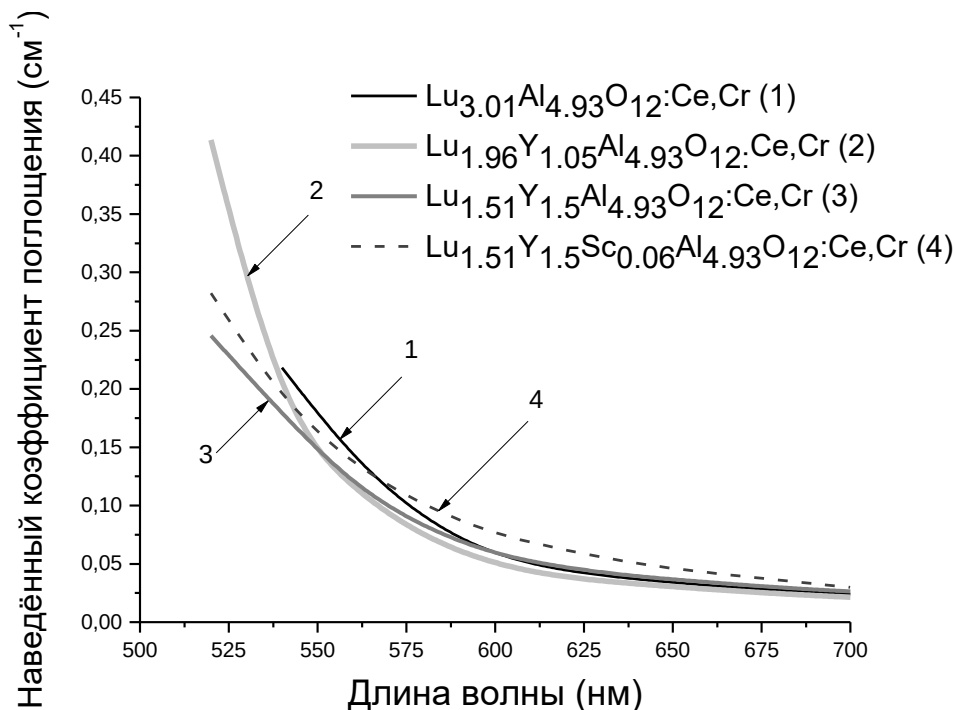


Рис. 5-19. Коэффициенты поглощения, наведенные в кристаллах $\text{Lu}_{3,01}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$ (1), $\text{Lu}_{1,96}\text{Y}_{1,05}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$ (2), $\text{Lu}_{1,51}\text{Y}_{1,5}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$ (3) и $\text{Lu}_{1,51}\text{Y}_{1,5}\text{Sc}_{0,06}\text{Al}_{4,93}\text{O}_{12}$ (4), активированных ионами Ce^{3+} и Cr^{3+} , в результате облучения гамма-излучением источника ^{60}Co при поглощенной дозе 45 Мрад.

На Рис. 5-19 изображены спектры наведенного поглощения, индуцированного в результате действия гамма-излучения при поглощенной дозе в 45 Мрад. Видно, что для исследуемых образцов наибольший показатель наведенного поглощения $\sim 0,43 \text{ см}^{-1}$ в диапазоне 525-700 нм наблюдается у $\text{Lu}_{1,96}\text{Y}_{1,05}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}:\text{Ce},\text{Cr}$. Другие исследованные кристаллы имеют примерно одинаковый коэффициент наведенного поглощения, максимальное значение которого составляет $0,25\text{-}0,35 \text{ см}^{-1}$ в диапазоне 525-700 нм. Эта величина значительно превышает величины коэффициентов поглощения, наведенных ионизирующим излучением для стехиометрических образцов [85,86], что говорит об ухудшении радиационной стойкости нестехиометрических кристаллов типа LuYAG по сравнению со стехиометрическими.

Известно, что высокая концентрация ионов Ce^{3+} и Cr^{3+} в кристаллах и стёклах может повышать их радиационную стойкость [87]. В то же время, из данных, представленных на Рис. 5-16 и 5-17 видно, что оптические свойства исследованных образцов $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$ подвержены значительной радиационной деградации после облучения их гамма-излучением дозой 45 Мрад, несмотря на высокую концентрацию Ce^{3+} и примесь Cr^{3+} . Вместе с тем, крупные (диаметром $\sim 100 \text{ мм}$) кристаллы-гранаты $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$ имеют меньшую склонность к растрескиванию в процессе роста и послеростового охлаждения, чем кристаллы, выращенные из стехиометрических расплавов.

Перечисленные явления могут быть объяснены наличием в исследованных кристаллах значительного количества анионных (кислородных) вакансий. Действительно, из формулы $\text{Lu}_{3,01}\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$ следует, что 0,027 формульных единиц (ф.е.) не занято ионами Al^{3+} и 0,04 ф.е. не занято ионами O^{2-} . Предположительно вакансии облегчают перемещение, в частности, термодиффузию ионов в объёме кристаллов в процессе роста и при остывании расплава, снимая термические напряжения. Благодаря этому становится возможным выращивать крупные (диаметром $\sim 100 \text{ мм}$) кристаллы.

В то же время, наличие кислородных вакансий ухудшает радиационную стойкость кристаллов $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}$ по сравнению со стехиометрическими

кристаллами LuYAG. Хорошо известно [56], что кислородные вакансии являются ловушками для электронов. Захват кислородной вакансией свободного электрона, возникающего под действием ионизирующего излучения, приводит к формированию центра окраски – F-центра [56].

В оксидных кристаллах радиационные повреждения возникают в виде дефектов по Френкелю «кислородная вакансия+междузельный атом кислорода» [56]. В нестехиометрических кристаллах из-за более «рыхлой» кристаллической решетки, в которой имеются пустоты, число радиационно-индуцированных центров окраски, ухудшающих сцинтилляционные свойства, может быть больше.

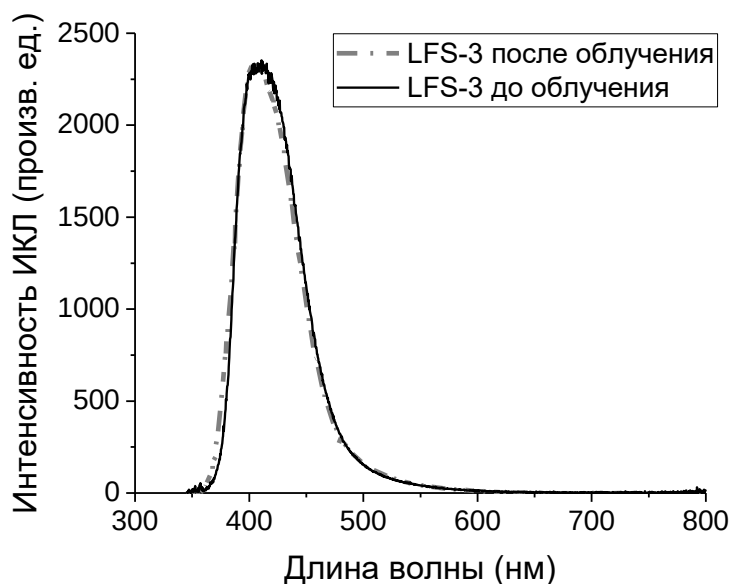


Рис. 5-20. Спектр ИКЛ кристалла LFS-3 до (сплошная линия) и через 6 лет после (штрихпунктирная линия) облучения пучком протонов с энергией 155 МэВ и плотностью потока частиц $4,4 \cdot 10^{12}$ частиц/см².

5.5.2. Радиационная деградация оптических свойств нестехиометрического кристалла-сцинтиллятора LFS-3

Химический состав кристалла LFS-3 также является нестехиометрическим [79]. Настоящий пункт посвящен исследованию радиационной стойкости этого состава. По аналогии с п. 5.5.1, сравним спектры ИКЛ и ОП LFS-3 до и после облучения пучком протонов энергией 155 МэВ и плотностью потока частиц

$4,4 \cdot 10^{12}$ частиц/см². На рис. 5-20 представлен спектр ИКЛ кристалла LFS-3 до и через 6 лет после облучения пучком протонов с энергией 155 МэВ и плотностью потока частиц $4,4 \cdot 10^{12}$ частиц/см². Облученный и необлученный кристаллы - элементы одной и той же ростовой були. Облученный кристалл был вырезан из нижней, а необлученный – из средней её части. Можно видеть, что формы спектров ИКЛ кристалла LFS-3 до и после облучения отличается незначительно, в отличие от лютеций-иттриевых гранатов $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}:\text{Ce}:\text{Cr}$.

В п. 5.1 показано, что кристаллы группы $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}$ обладают полосами люминесценции двух типов: в области 400 нм и в области 550 нм. Согласно [166], последняя полоса связана с дефектами, и возрастание в спектре ИКЛ её спектральной плотности энергии может свидетельствовать о росте числа дефектов структуры Lu_2SiO_5 и, следовательно, так может проявиться радиационное повреждение этого кристалла. Из Рис. 5-20 следует, что эти повреждения в случае LFS-3 не наблюдаются в пределах точности измерений в настоящей работе (относительная погрешность $\leq 10\%$), из чего можно сделать вывод о том, что деградации сцинтилляционного механизма LFS-3 при данных радиационных нагрузках не обнаружено.

На Рис. 5-21 (а) представлены измеренные без участия автора в Лаборатории взаимодействия излучения с веществом ОЯФА ФИАН и опубликованные в работе [79] спектры ОП кристалла LFS-3 до и после облучения пучком протонов энергией 155 МэВ и плотностью потока частиц $4,4 \cdot 10^{12}$ частиц/см², любезно предоставленные авторами работы. На Рис. 5-21 (б) представлена спектральная зависимость коэффициента поглощения, наведенного в кристалле LFS-3 под воздействием облучения. В области 425-600 нм наведенный коэффициент поглощения не превышает $0,002 \text{ см}^{-1}$, что находится на пороге чувствительности спектрофотометра.

Ранее было показано [79], что спектры ОП LFS-3 не изменились через 30, 115 и 297 дней после облучения протонами при данных радиационных нагрузках. Из Рис. 5-20 и 5-21 можно заключить, что кристалл LFS-3 стоек по отношению к

разрушающему воздействию пучка протонов с энергией 155 МэВ и плотностью потока частиц $4,4 \cdot 10^{12}$ частиц/см².

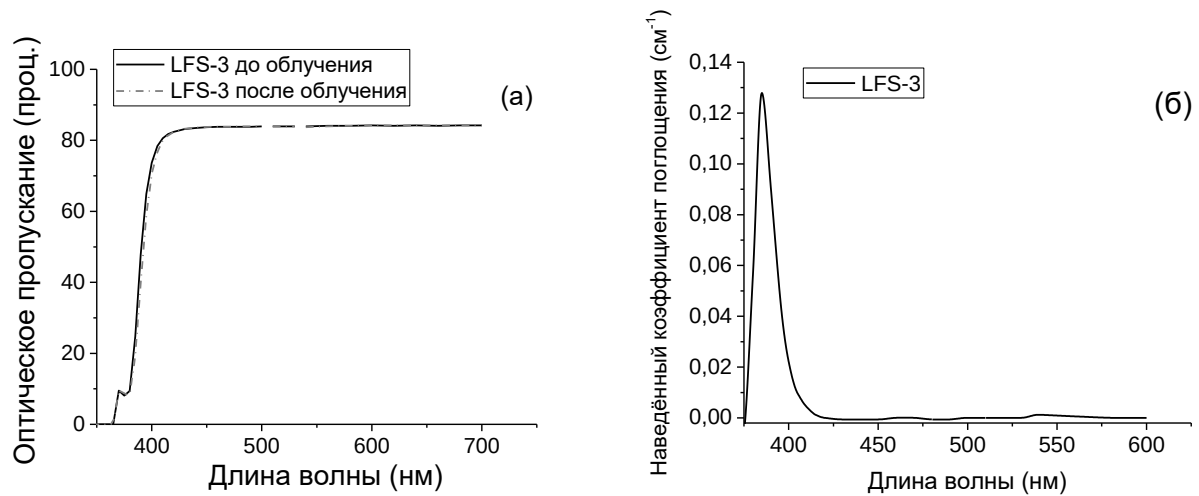


Рис. 5-21. (а) Спектры ОП кристалла LFS-3 до (сплошная линия) и после (штрихпунктирная линия) облучения пучком протонов с энергией 155 МэВ и флуенсом $4,4 \cdot 10^{12}$ частиц/см²; (б) Коэффициент поглощения, наведенный в кристалле LFS-3 под воздействием облучения протонами (вычислен по данным, изображенным на рис. 6-5 (а)). Результаты взяты из работы [79].

Полученный результат можно связать с тем, что кристалл LFS-3 обладает особой конфигурацией дефектов, обусловленных примесью Ca^{2+} . Результат этой работы опубликован в работе [172].

5.6. Выводы к главе 5.

- На основе анализа кинетики и нелинейности ИКЛ сцинтилляторов CeF_3 , BaF_2 , $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, PbWO_4 и LFS-3 и сопоставления этих параметров с параметрами сцинтилляции, возбуждаемой другими типами ионизирующего излучения, проанализирована применимость метода ИКЛ для исследования спектрально-кинетических характеристик сцинтилляции и найдены его ограничения. Ограничения на измерения сцинтилляционных параметров методом ИКЛ связаны с явлениями нелинейности ИКЛ и особенностями зависимости параметров возбуждающего электронного пучка от времени.

В условиях настоящей работы кинетика ИКЛ может быть исследована у материалов со временем высвечивания сцинтилляции $2 \div 100$ и более ~ 300 наносекунд. Кинетика ИКЛ с временами высвечивания в промежутке 100-300 нс испытывает сильные искажения. Спектр сцинтилляции совпадает со спектром ИКЛ в случае, если вещество имеет одну полосу люминесценции, либо несколько с одинаковым значением нелинейности ИКЛ, либо если полосы с иными значениями нелинейности имеют пренебрежимо малую интенсивность.

- Используя полученные результаты, методом ИКЛ измерены спектрально-кинетические свойства новых сцинтилляторов $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce:Sc:Li}$, $\text{GdVO}_4\text{:Ca}$, $\text{YVO}_4\text{:Ca}$ и LuScSiO_5 . Введение ионов Li^+ в $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce}$ приводит к незначительному изменению времени высвечивания, а введение ионов Ca^{2+} в YVO_4 и GdVO_4 уменьшает его в ~ 4 раза.

- Методом ИКЛ исследована деградация сцинтилляционных свойств нестехиометрических кристаллов $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}\text{:Ce:Cr}$ и LFS-3. Обнаружена существенная радиационная деградация ($\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}\text{:Ce:Cr}$) и её отсутствие у кристалла LFS-3.

Положение, выносимое на защиту по итогам гл. 5:

- Спектральная плотность энергии и время высвечивания τ сцинтилляции веществ могут быть определены методом ИКЛ при учете нелинейностей полос ИКЛ и зависимости тока возбуждающего пучка от времени. Кристалл LuScSiO_5 обладает $\tau = 990 \pm 1$ нс, $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Sc:Li}$ - $\tau = 39.1 \pm 0.1$ нс, $\text{GdVO}_4\text{:Ca}$ - $\tau = 5 \pm 1$ мкс и $\text{YVO}_4\text{:Ca}$ - $\tau = 12 \pm 1$ мкс.

Заключение

1. В результате спектрально-кинетических исследований излучения при бомбардировке электронами высокодисперсного SiO_2 на воздухе обнаружено, что излучение 2^+N_2 возбуждается не только прямым электронным ударом первичных и вторичных электронов, но и некоторым иным механизмом. На это указывают следующие факты: при бомбардировке электронами высокодисперсного SiO_2 на воздухе интенсивность излучения 2^+N_2 выше на 40-70%, чем при бомбардировке алюминия, и температурная зависимость энергии излучения 2^+N_2 в этих случаях имеет разный вид.
2. Так как ширина запрещенной зоны SiO_2 (8,0-11,5 эВ) близка к порогу возбуждения 2^+N_2 (11,03 эВ), дополнительный механизм возбуждения 2^+N_2 может состоять в передаче энергии от ЭВ SiO_2 молекулам N_2 при их обменном взаимодействии вблизи границы « SiO_2 – окружающая атмосфера».
3. Разработан способ измерения нелинейных характеристик сцинтилляции, не имеющий ограничений по ширине запрещенной зоны исследуемых веществ, основанный на одновременном измерении энергии рентгеновского излучения и энергии ИКЛ. Достоверность метода подтверждена экспериментально на основе анализа зависимости энергии излучения 2^+N_2 от энергии рентгеновского излучения при прохождении электронного пучка через свободный воздушный промежуток.
4. Используя разработанный метод, исследованы зависимости энергии ИКЛ кристаллов $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, PbWO_4 , CeF_3 и BaF_2 от энергии электронного пучка. Все полученные зависимости сверхлинейны. Этот факт объясняется ростом кулоновского расталкивания сильноточного электронного пучка с ростом числа электронов в импульсе.
5. Оценены средние плотности ЭВ, создаваемых электронным пучком в исследованных материалах. Значения по порядку величины составляют 10^{18} - 10^{19} см^{-3} , что соответствует характерным значениям плотности ЭВ, при которой в сцинтилляционных материалах наблюдается сильное тушение люминесценции, вызванное взаимодействием ЭВ.

6. Получены оценки зависимостей выхода ИКЛ PbWO_4 , CeF_3 и BaF_2 от средней плотности ЭВ. Для кристалла CeF_3 обнаружен разный характер этих зависимостей для полос ИКЛ с разным механизмом излучения.

7. Показано, что метод ИКЛ может быть использован для измерения спектра и времени высвечивания сцинтилляции веществ с учетом явления нелинейности сцинтилляции и вида зависимости тока пучка электронов от времени. Измерены спектрально-кинетические параметры ИКЛ новых кристаллов-сцинтилляторов $\text{Lu}_2\text{SiO}_5\text{:Ce:Sc:Li}$, LuScSiO_5 , $\text{GdVO}_4\text{:Ca}^{2+}$ и $\text{YVO}_4\text{:Ca}^{2+}$ и исследованы радиационные повреждения нестехиометрических кристаллов $\text{Lu}_{3,01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4,99}\text{O}_{12}\text{:Ce:Cr}$ и LFS-3.

Список условных сокращений

КЛ - катодолюминесценция

ИКЛ – импульсная катодолюминесценция

РЛ – радиолюминесценция

ФЛ - фотолюминесценция

СЛ – собственная люминесценция

ЭВ – электронные возбуждения

АЛЭ – автолокализованный экситон

ФРЭЭ – функция распределения электронов по энергиям

ГИН – генератор импульсного напряжения

ВЭЭ – взрывная эмиссия электронов

ТИ – тормозное излучение

2^+N_2 – вторая положительная система полос излучения молекулы азота N_2

$1^-N_2^+$ – первая отрицательная система полос излучения однократного молекулярного иона азота N_2^+

ЭДП – электронно-дырочная пара

ЧСС – число степеней свободы статистической выборки

ЦПТ – центральная предельная теорема

ДР – дифракционная решетка

ОП – оптическое пропускание вещества

CSDA - Continuous-Slowing-Down Approximation

Благодарности

Автор приносит глубокую благодарность научному руководителю Сергею Юрьевичу Савинову за блестящее руководство научной работой и обеспечение всем необходимым для её выполнения, а также за переданный автору бесценный опыт, знания и поддержку. Автор также приносит благодарность сотрудникам кафедры Электрофизики факультета Проблем физики и энергетики МФТИ (НИУ) и отдела Оптики низкотемпературной плазмы отделения Оптики ФИАН. Особую благодарность автор приносит сотрудникам ФИАН Валентину Алексеевичу Козлову, Михаилу Васильевичу Завертяеву, Сергею Николаевичу Цхаю, Александру Игоревичу Ерохину, Михаилу Игоревичу Данилкину, Александру Григорьевичу Мозговому, Михаилу Викторовичу Белову, Сергею Николаевичу Андрееву, Владимиру Николаевичу Очкину, Алексею Алексеевичу Петрову, Сергею Сергеевичу Гиже, Мариям Зиннуровне Зиятдиновой, Владимиру Владимировичу Миславскому и Андрею Александровичу Родионову, сотрудникам ИОФАН Александру Иосифовичу Загуменному и Юрию Дмитриевичу Заварцеву.

Автор приносит глубокую благодарность Владимиру Николаевичу Махову за тщательное прочтение рукописи и ценнейшие замечания.

Литература.

- [1] E. Wiedemann Uber Flourescenz and Phosphorescenz // Ann. d. Physik und Chemie, N. F. – 1888. – Т. 34. С. 446.
- [2] E. Wiedemann Zur Mechanik des Leuchtens // Ann. d. Physik und Chemie, N. F., – 1889. – Т. 37. – С. 177.
- [3] С.И. Вавилов Вступительное слово на совещании по вопросам люминесценции 5-10 октября 1944 г. // Известия АН СССР, Серия Физическая. – 1945. – Т. 9. – С. 277.
- [4] Физика: Энциклопедия. / Под ред. А.М. Прохорова. – Большая Российская энциклопедия. - 2003. – 944 с.
- [5] М. Д. Галанин Люминесценция молекул и кристаллов // М.:ФИАН. - 1999. –200 с.
- [6] В. И. Соломонов, С. Г. Михайлов Импульсная катодолюми-несценция и ее применение для анализа конденсированных веществ // Екатеринбург: УРО РАН. - 2003. –184 с.
- [7] Месяц Г. А. Импульсная энергетика и электроника // М.:Наука. – 2004. – 704 с.
- [8] Месяц Г. А. Взрывная электронная эмиссия //М.: Физматлит. – 2011. – 300 с.
- [9] Ковальчук Б. М., Месяц Г. А., Шпак В. Г. Генератор высоковольтных субнаносекундных электронных пучков //ПТЭ. – 1976. – №. 6. – С. 73.
- [10] Б. М. Ковальчук, Г. А. Месяц, Б. Н. Семин, В. Г. Шпак Сильноточный наносекундный ускоритель для исследования быстропротекающих процессов //Приборы и техника эксперимента. – 1981. – №. 4. – С. 15-18.
- [11]. Б. М. Ковальчук, Г. А. Месяц, В. Г. Шпак Получение мощных суб– наносекундных пучков в диоде со взрывной эмиссией: книга: Разработка и применение источников интенсивных электронных пучков // Новосибирск:Наука, 1976. – 191с.

[12] Г. А. Месяц, С. Г. Михайлов, В. В. Осипов, В. И. Соломонов Импульсная катодолюминесценция минералов // Письма в ЖТФ. – 1992. – Т. 18. – №. 3. – С. 87–90.

[13] В. В. Бехтерев, В. В. Осипов, В. И. Соломонов Люминесценция минералов под действием мощных наносекундных электронных пучков // Геофизика. – 1994, №. 6. – С. 37–46.

[14] Е. Х. Бакшт, А. Г. Бураченко, В. Ф. Тарасенко Импульсная катодолюминесценция алмаза, кальцита, сподумена и флюорита под воздействием электронного пучка субнаносекундной длительности // Письма в Журнал технической физики. – 2010. – Т. 36, № 21. – С. 102–110.

[15] В. Ф. Тарасенко, В. И. Соломонов, Е. Ф. Полисадова, А. Г. Бураченко, Е. Х. Бакшт Люминесценция кристаллов сподумена и граната, возбуждаемая субнаносекундным и наносекундным электронными пучками //Журнал технической физики. – 2012. – Т. 82. – Вып. 5. – С. 144.

[16] В. М. Лисицын, Е. Ф. Полисадова, Д. Т. Валиев, О. В. Павлов Спектрозональный люминесцентный метод анализа минералов с временным разрешением // Журнал прикладной спектроскопии. – 2011. – Т. 78. – №. 3. С. 448-453.

[17] В. М. Лисицын, Л. А. Лисицына, В. И. Олешко, Е. Ф. Полисадова, А. Н. Яковлев Импульсный спектрозональный люминесцентный анализ материалов // Известия Международной АН Высшей школы. – 2004. – Т. 2. – №28. – С.134.

[18] В. М. Лисицын, Е. Ф. Полисадова, Д. Т. Валиев Импульсная катодолюминесценция кристаллов кальцита различного генезиса // Неорганические материалы. – 2012. – Т. 48. №. 7. С. 844.

[19] Жиличева О. М. Особенности спектров полевых шпатов, исследованных методом импульсной катодолюминесценции // «Новые идеи в

науках о Земле». Тезисы VI международной конференции МГГРУ. Москва. – 2003. – Т. 2. – С. 22.

[20] Жиличева О. М. Спектры импульсной катодолуминесценции полевых шпатов из пород Хибинского массива // Материалы XXI Всероссийского семинара по геохимии магматических пород КНЦ РАН. Апатиты, 2003. С.25.

[21] Минеева Р. М., Сперанский А. В., Титков С. В., Жиличева О. М., Бершов Л. В., Богатилов О. А., Кудрявцева Г. П. Спектроскопические и морфологические характеристики алмазов из кимберлитовой трубки им. В. П. Гриба // ДАН. – 2004. – Т.394. № 3. С. 384-388.

[22] Осипов В. В., Соломонов В. И., Спирина А. В., Иванов М. Г., Орлов А. Н. Люминесценция оксида иттрия, активированного неодимом //Оптика и спектроскопия. - 2009. - Т. 106, № 1. - С. 83 - 88.

[23] Лущик Ч. Б. и др. Рекомбинационное создание катионных экситонов и тушение кросслюминесценции в кристаллах CsCl при больших плотностях возбуждения //Физика твердого тела. – 2000. – Т. 42. – №. 6. – С. 1020-1025.

[24] Lushchik A. et al. Creation and clustering of Frenkel defects at high density of electronic excitations in wide-gap materials //Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2012. – Т. 277. – С. 40-44.

[25] Ogorodnikov I. N. et al. Cathodoluminescence kinetics of $\text{Li}_6\text{GdB}_3\text{O}_9$ crystals //Journal of Luminescence. – 2015. – Т. 158. – С. 252-259.

[26] Киселева М. С., Огородников И. Н., Яковлев В. Ю. Кинетика импульсной катодолуминесценции кристаллов ортобората лития-гадолиния, легированного примесью церия //Физика твердого тела. – 2019. – Т. 61. – №. 5. – С. 881-886.

[27] Бураченко А. Г. "Импульсная катодолуминесценция и излучение Вавилова-Черенкова диэлектриков и полупроводников при возбуждении пучком

убегающих электронов." // Автореферат диссертации на соискание степени кандидата физико-математических наук, Томск,- 2018.

[28] Grim J. Q. et al. Nonlinear quenching of densely excited states in wide-gap solids //Physical Review B. – 2013. – Т. 87. – №. 12. – С. 125117.

[29] Pustovarov V. A., Krymov A. L., Zinin E. I. Time-resolved luminescence of scintillation crystals under excitation by high intensity synchrotron radiation //Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1995. – Т. 359. – №. 1-2. – С. 336-338.

[30] Terekhin M. A. et al. Effect of quenching processes on the decay of fast luminescence from barium fluoride excited by VUV synchrotron radiation //Physical Review B. – 1995. – Т. 52. – №. 5. – С. 3117-3121.

[31] Kirm M. et al. Influence of excitation density on luminescence decay in $Y_3Al_5O_{12}$: Ce and BaF_2 crystals excited by free electron laser radiation in VUV //physica status solidi (c). – 2005. – Т. 2. – №. 1. – С. 649-652.

[32] Kirm M. et al. Behaviour of scintillators under XUV free electron laser radiation //Journal of luminescence. – 2008. – Т. 128. – №. 5-6. – С. 732-734.

[33] Krzywinski J. et al. Saturation of a Ce: $Y_3Al_5O_{12}$ scintillator response to ultra-short pulses of extreme ultraviolet soft X-ray and X-ray laser radiation //Optical Materials Express. – 2017. – Т. 7. – №. 3. – С. 665-675.

[34] Kirm M. et al. Exciton-exciton interactions in $CdWO_4$ irradiated by intense femtosecond vacuum ultraviolet pulses //Physical Review B. – 2009. – Т. 79. – №. 23. – С. 233103.

[35] Wolszczak W., Dorenbos P. Nonproportional response of scintillators to alpha particle excitation //IEEE Transactions on Nuclear Science. – 2017. – Т. 64. – №. 6. – С. 1580-1591.

[36] Wei K. et al. Nonlinear characteristics of several scintillators studied by 70 MeV electron pulse excitation //Applied Radiation and Isotopes. – 2020. – T. 156. – C. 108992.

[37] Bizarri G. et al. An analytical model of nonproportional scintillator light yield in terms of recombination rates //Journal of Applied Physics. – 2009. – T. 105. – №. 4. – C. 044507.

[38] Singh J. Study of nonproportionality in the light yield of inorganic scintillators //Journal of Applied Physics. – 2011. – T. 110. – №. 2. – C. 024503.

[39] Lu X. et al. Coupled rate and transport equations modeling proportionality of light yield in high-energy electron tracks: CsI at 295 K and 100 K; CsI: Tl at 295 K //Physical Review B. – 2015. – T. 92. – №. 11. – C. 115207.

[40] Lu X. et al. Energy-dependent scintillation pulse shape and proportionality of decay components for CsI: Tl: Modeling with transport and rate equations //Physical Review Applied. – 2017. – T. 7. – №. 1. – C. 014007.

[41] Spallino L. et al. Insight into the defect–molecule interaction through the molecular-like photoluminescence of SiO₂ nanoparticles //RSC advances. – 2016. – T. 6. – №. 95. – C. 93010-93015.

[42] Spallino L. et al. Environment assisted photoconversion of luminescent surface defects in SiO₂ nanoparticles //Applied Surface Science. – 2017. – T. 420. – C. 94-99.

[43] Kovalev D. et al. Resonant electronic energy transfer from excitons confined in silicon nanocrystals to oxygen molecules //Physical review letters. – 2002. – T. 89. – №. 13. – C. 137401.

[44] Gross E. et al. Spectrally resolved electronic energy transfer from silicon nanocrystals to molecular oxygen mediated by direct electron exchange //Physical Review B. – 2003. – T. 68. – №. 11. – C. 115405.

[45] Fujii M. et al. Generation of singlet oxygen at room temperature mediated by energy transfer from photoexcited porous Si //Physical Review B. – 2004. – Т. 70. – №. 8. – С. 085311.

[46] Fujii M. et al. Time-resolved photoluminescence studies of the energy transfer from excitons confined in Si nanocrystals to oxygen molecules //Physical Review B. – 2005. – Т. 72. – №. 16. – С. 165321.

[47] Kovalev D., Fujii M. Silicon nanocrystals: photosensitizers for oxygen molecules //Advanced Materials. – 2005. – Т. 17. – №. 21. – С. 2531-2544.

[48] Тимошенко В. Ю. и др. Кремниевые нанокристаллы как фотосенсибилизаторы активного кислорода для биомедицинских применений //Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2006. – Т. 83. – №. 9. – С. 492-495.

[49] Константинова Е. А. и др. ЭПР-диагностика фотосенсибилизированной генерации синглетного кислорода на поверхности нанокристаллов кремния //Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2007. – Т. 85. – №. 1. – С. 65-68.

[50] Константинова Е. А., Демин В. А., Тимошенко В. Ю. Исследование процесса генерации синглетного кислорода в ансамблях фотовозбужденных нанокристаллов кремния методом электронного парамагнитного резонанса //Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2008. – Т. 134. – №. 3. – С. 557-566.

[51] Гонгальский М. Б. и др. Детектирование синглетного кислорода, образующегося при фотовозбуждении нанокристаллов пористого кремния методом фотолюминесценции //Физика и техника полупроводников. – 2010. – Т. 44. – №. 1. – С. 92-95.

[52] Gongalsky M. B. et al. Photosensitized generation of singlet oxygen in porous silicon studied by simultaneous measurements of luminescence of nanocrystals

and oxygen molecules //Journal of Applied Physics. – 2011. – Т. 110. – №. 1. – С. 013707.

[53] Osminkina L. A. et al. Silicon nanocrystals as photo-and sono-sensitizers for biomedical applications //Applied Physics B. – 2011. – Т. 105. – №. 3. – С. 665-668.

[54] Samosvat D. M. et al. Singlet oxygen generation mechanism in the presence of excited nanoporous silicon //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2018. – Т. 1124. – №. 3. – С. 031025.

[55] Самосват Д. М. и др. Механизм генерации синглетного кислорода в присутствии возбужденного нанопористого кремния //Письма в Журнал технической физики. – 2018. – Т. 44. – №. 11. – С. 53-62.

[56] Lecoq P., Gektin A., Korzhik M. Inorganic Scintillators for Detector Systems: Physical Principles and Crystal Engineering. – Springer, 2016.

[57] Nikl M., Yoshikawa A. Recent R&D trends in inorganic single-crystal scintillator materials for radiation detection //Advanced Optical Materials. – 2015. – Т. 3. – №. 4. – С. 463-481.

[58] Васильев А. Н., Михайлин В. В. Введение в спектроскопию диэлектриков. Часть II //Учебное пособие, НИИЯФ МГУ. – 2008. – 238 С.

[59] Rodnyi P. A. Core–valence luminescence in scintillators //Radiation measurements. – 2004. – Т. 38. – №. 4-6. – С. 343-352.

[60] Вайсбурд Д. И., Семин Б. Н. Фундаментальная люминесценция ионных кристаллов при наносекундном облучении плотными электронными пучками //Доклады Академии наук. – Российская академия наук, 1980. – Т. 254. – №. 5. – С. 1112-1116.

[61] Нокс Р. Теория экситонов. – 1966.

[62] M. Leone, S. Agnello, R. Boscaino, M. Cannas, F.M. Gelardi, Chapter 1 - Optical absorption, luminescence, and ESR spectral properties of point defects in silica,

Editor(s): Hari Singh Nalwa, Silicon-Based Material and Devices, Academic Press, 2001, Pages 1-50

[63] Клайнкнехт К. Детекторы корпускулярных излучений: Пер. с нем. – Мир, 1990.

[64] Иванов С. А., Щукин Г. А. Рентгеновские трубки технического назначения // Л.:Энергоатомиздат, Ленингр. отд-ние, 1989. - 200 с.: ил.

[65] Bethe H. A. et al. Quantum Mechanics of One-and Two-Electron Atoms. – 1957.

[66] Payne S. A. et al. Nonproportionality of scintillator detectors: Theory and experiment //IEEE Transactions on Nuclear Science. – 2009. – Т. 56. – №. 4. – С. 2506-2512.

[67] Мотт Н., Мессии Г. Теория атомных столкновений. – М.: Мир, 1969. – С. 756.

[68] G. Bizarri, W. W. Moses, J. Singh, A. N. Vasil'ev, R. T. Williams The role of different linear and non-linear channels of relaxation in scintillator non-proportionality //Journal of Luminescence. – 2009. – Т. 129. – №. 12. – С. 1790-1793.

[69] Moses W. W. et al. The origins of scintillator non-proportionality //IEEE Transactions on Nuclear Science. – 2012. – Т. 59. – №. 5. – С. 2038-2044.

[70] Vaisburd D. I., Evdokimov K. E. Creation of excitations and defects in insulating materials by high-current-density electron beams of nanosecond pulse duration //physica status solidi (c). – 2005. – Т. 2. – №. 1. – С. 216-222.

[71] Katz L., Penfold A. S. Range-energy relations for electrons and the determination of beta-ray end-point energies by absorption //Reviews of Modern Physics. – 1952. – Т. 24. – №. 1. – С. 28-44.

[72] Антонов-Романовский В. В. Кинетика фотолюминесценции кристаллофосфоров. – Наука, 1966 – 324 с.

[73] Vasil'ev A. N. From luminescence non-linearity to scintillation non-proportionality //IEEE Transactions on Nuclear Science. – 2008. – Т. 55. – №. 3. – С. 1054-1061.

[74] Rodnyi P. A., Dorenbos P., Van Eijk C. W. E. Energy loss in inorganic scintillators //physica status solidi (b). – 1995. – Т. 187. – №. 1. – С. 15-29.

[75] Ананьева Г., Коровкин А., Меркулаева Т., Морозова А., Петров М., Савинова И., Феофилов П., Изв. Акад. Наук. СССР, Неорг. Матер. – 1981. – Т. 17. – С. 1037.

[76] Takagi K., Fukazawa T. Cerium-activated Gd_2SiO_5 single crystal scintillator //Applied Physics Letters. – 1983. – Т. 42. – №. 1. – С. 43-45.

[77] Melcher C. L., Schweitzer J. S. Cerium-doped lutetium oxyorthosilicate: a fast, efficient new scintillator //IEEE Transactions on Nuclear Science. – 1992. – Т. 39. – №. 4. – С. 502-505.

[78] Zavartsev Y. D., Koutovoi S. A., Zagumennyi A. I. Czochralski growth and characterisation of large $\text{Ce}^{3+}:\text{Lu}_2\text{SiO}_5$ single crystals co-doped with Mg^{2+} or Ca^{2+} or Tb^{3+} for scintillators //Journal of Crystal Growth. – 2005. – Т. 275. – №. 1-2. – С. e2167-e2171.

[79] Ю. Д. Заварцев, М. В. Завертяев, А. И. Загуменный, А. Ф. Зерроук, В. А. Козлов, С. А. Кутовой, LFS-3 - Новый радиационно-стойкий сцинтиллятор для электромагнитных калориметров //Краткие сообщения по физике Физического института им. ПН Лебедева Российской Академии Наук. – 2013. – №. 2. С. 13-20.

[80] Кулесский А. Р. и др. Радиолюминесценция и сцинтилляционные свойства монокристаллов силикатов иттрия и редкоземельных элементов //Ж. прикл. спектр. – 1988. – Т. 48. – №. 4. – С. 650-653.

[81] Иванов В. Ю. и др. Собственная люминесценция редкоземельных оксиортосиликатов //Физика твердого тела. – 2008. – Т. 50. – №. 9. – С. 1628-1634.

[82] Lushchik A. et al. Luminescence of free and self-trapped excitons in wide-gap oxides //Journal of luminescence. – 2000. – Т. 87. – С. 232-234.

[83] Nikl M. et al. Development of LuAG-based scintillator crystals—a review //Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials. – 2013. – Т. 59. – №. 2. – С. 47-72.

[84] Mares J. A. et al. Scintillation Properties of Ce^{3+} - and Pr^{3+} -Doped LuAG, YAG and Mixed $\text{Lu}_x\text{Y}_{1-x}\text{AG}$ Garnet Crystals//IEEE Transactions on Nuclear Science. – 2012. – Т. 59. – №. 5. – С. 2120-2125.

[85] Derdzyan M. V. et al. Radiation hardness of LuAG: Ce and LuAG: Pr scintillator crystals //Journal of Crystal Growth. – 2012. – Т. 361. – С. 212-216.

[86] Dissertori G. et al., 2012 IEEE Nuclear Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC), Anaheim, CA, 2012 (IEEE, New York, 2012), p. 305.

[87] Загуменный А. И. и др., Влияние состава на спектральные характеристики кристаллов граната $\text{Cr}^{4+}:\text{Y}_x\text{Lu}_{3-x}\text{Al}_5\text{O}_{12}$ //Физика твердого тела. – 1996. – Т. 38. - Н. 9. - С. 2837-2844.

[88] Stokowski S. E., Randles M. H., Morris R. C. Growth and characterization of large Nd, Cr: GSGG crystals for high-average-power slab lasers //IEEE journal of quantum electronics. – 1988. – Т. 24. – №. 6. – С. 934-948.

[89] Beaumont J. H. et al. An investigation of trapped holes and trapped excitons in alkaline earth fluorides //Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences. – 1970. – Т. 315. – №. 1520. – С. 69-97.

[90] Rodnyi P. A. Core–valence luminescence in scintillators //Radiation measurements. – 2004. – Т. 38. – №. 4-6. – С. 343-352.

[91] Call P. J., Hayes W., Kabler M. N. Optical detection of exciton EPR in fluorite crystals //Journal of Physics C: Solid State Physics. – 1975. – Т. 8. – №. 4. – С. L60.

[92] Lindner R., Williams R. T., Reichling M. Time-dependent luminescence of self-trapped excitons in alkaline-earth fluorides excited by femtosecond laser pulses //Physical Review B. – 2001. – Т. 63. – №. 7. – С. 075110.

[93] Александров Ю. М., Махов В. И., Родный П. А., Сырейщи-кова Т. И. и Якименко М. Н. Собственная люминесценция BaF₂ при импульсном возбуждении синхротронным излучением // Физика твердого тела. – 1984. – Т. 26. - №9 – С. 2865-2867.

[94] Aleksandrov Y. M. et al. Exciton and electron-hole mechanisms for electronic excitation multiplication in alkaline earth fluoride crystals //Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1987. – Т. 261. – №. 1-2. – С. 158-160.

[95] Anderson D. F. Properties of the high-density scintillator cerium fluoride //IEEE Transactions on Nuclear Science. – 1989. – Т. 36. – №. 1. – С. 137-140.

[96] Pedrini C. et al. One-and two-photon spectroscopy of Ce³⁺ ions in LaF₃-CeF₃ mixed crystals //Journal of Physics: Condensed Matter. – 1992. – Т. 4. – №. 24. – С. 5461.

[97] Wojtowicz A. J. et al. Stoichiometric cerium compounds as scintillators. I. CeF₃ //IEEE transactions on nuclear science. – 1992. – Т. 39. – №. 4. – С. 494-501.

[98] Wojtowicz A. J. et al. Optical spectroscopy and scintillation mechanisms of Ce_xLa_{1-x}F₃ //Physical Review B. – 1994. – Т. 49. – №. 21. – С. 14880-14895.

[99] Nikl M. et al. Decay kinetics of Ce³⁺ ions under gamma and KrF excimer laser excitation in CeF₃ single crystals //Journal of Physics: Condensed Matter. – 1995. – Т. 7. – №. 31. – С. 6355-6364.

[100] Auffray E. et al. Extensive studies on CeF₃ crystals, a good candidate for electromagnetic calorimetry at future accelerators //Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1996. – Т. 383. – №. 2-3. – С. 367-390.

[101] Kamenskikh I. et al. Decay kinetics of CeF_3 under VUV and X-ray synchrotron radiation //Symmetry. – 2020. – T. 12. – №. 6. – C. 914.

[102] Gillette R. H. Calcium and Cadmium Tungstate as Scintillation Counter Crystals for Gamma-Ray Detection //Review of Scientific Instruments. – 1950. – T. 21. – №. 4. – C. 294-301.

[103] Weber M. J., Monchamp R. R. Luminescence of $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$: Spectral and decay properties //Journal of Applied Physics. – 1973. – T. 44. – №. 12. – C. 5495-5499.

[104] Itoh M., Katagiri T. Intrinsic luminescence from self-trapped excitons in $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ and $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$: Decay kinetics and multiplication of electronic excitations //Journal of the Physical Society of Japan. – 2010. – T. 79. – №. 7. – C. 074717.

[105] Itoh M., Horimoto M., Fujita M. Luminescence decay of PbWO_4 crystals under different excitation conditions //Journal of Physics: Condensed Matter. – 2002. – T. 15. – №. 2. – C. 193.

[106] Itoh M., Sakurai T. Composite nature of the self-trapped exciton luminescence in PbWO_4 //physica status solidi (b). – 2005. – T. 242. – №. 6. – C. R52-R54.

[107] Götze J. Application of cathodoluminescence microscopy and spectroscopy in geosciences //Microscopy and Microanalysis. – 2012. – T. 18. – №. 6. – C. 1270-1284.

[108] А. Вест, «Химия твёрдого тела. Теория и приложения: В 2-х ч., Ч. 1», М.:Мир, 1988. – 558 с.

[109] Hobbs L. W. et al. Local topology of silica networks //Philosophical Magazine A. – 1998. – T. 78. – №. 3. – C. 679-711.

[110] Trukhin A. N. Excitons in SiO_2 : a review //Journal of non-crystalline solids. – 1992. – T. 149. – №. 1-2. – C. 32-45.

[111] Skuja L. Optically active oxygen-deficiency-related centers in amorphous silicon dioxide //Journal of NON-crystalline Solids. – 1998. – Т. 239. – №. 1-3. – С. 16-48.

[112] Трухин А. Н., Плаудис А. Э. Исследование собственной люминесценции SiO₂ // Физика твёрдого тела. – 1979. – Т. 21, №. 4. – СС. 1109-1113.

[113] Glinka Y. D. et al. Photoluminescence spectroscopy of silica-based mesoporous materials //The Journal of Physical Chemistry B. – 2000. – Т. 104. – №. 36. – С. 8652-8663.

[114] Glinka Y. D., Lin S. H., Chen Y. T. Time-resolved photoluminescence study of silica nanoparticles as compared to bulk type-III fused silica //Physical Review B. – 2002. – Т. 66. – №. 3. – С. 035404.

[115] Aboshi A. et al. Influence of thermal treatments on the photoluminescence characteristics of nanometer-sized amorphous silica particles //The Journal of Physical Chemistry C. – 2007. – Т. 111. – №. 24. – С. 8483-8488.

[116] Carbonaro C. M. et al. On the origin of blue and UV emission bands in mesoporous silica //AIP Conference Proceedings. – American Institute of Physics, 2014. – Т. 1624. – №. 1. – С. 15-22.

[117] Герцберг Г. Спектры и строение двухатомных молекул: Пер. с англ //М.: ИЛ. – 1949.

[118] Lofthus A., Krupenie P. H. The spectrum of molecular nitrogen //Journal of physical and chemical reference Data. – 1977. – Т. 6. – №. 1. – С. 113-307.

[119] Diecke G. H. and Heath F., Johns Hopkins Spectrosc. Rep. #17, The Johns Hopkins University, Baltimore, Maryland (1959).

[120] Афанасьев В. Н. и др. Параметры электронных пучков, генерируемых ускорителями РАДАН-220 и РАДАН-ЭКСПЕРТ //Приборы и техника эксперимента. – 2005. – №. 5. – С. 88-92.

[121] Solomonov V. I. et al. CLAVI pulsed cathodoluminescence spectroscopy //Laser physics. – 2006. – Т. 16. – №. 1. – С. 126-129.

[122] Birks J. B., Little W. A. Cathodoluminescence of Air, Quartz and Metal Films //Nature. – 1954. – Т. 174. – №. 4419. – С. 82-83.

[123] Блохин М. А., Швейцер И. Г., Рентгеноспектральный справочник// М.:Наука - 1982 - 376 С

[124] Howorth J. R. The excitation mechanism for the $C^3\Pi_u$ state of nitrogen in glow discharge //Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics. – 1972. – Т. 5. – №. 2. – С. 402.

[125] Очкин В. Н., Савинов С. Ю., Соболев Н. Н. Механизмы формирования распределения электронно-возбужденных молекул по колебательно-вращательным уровням в газовом разряде //Труды ФИАН. М.: Наука. – 1985. – Т. 157. – С. 6-85.

[126] Pancheshnyi S. V., Starikovskaia S. M., Starikovskii A. Y. Collisional deactivation of N_2 ($C^3\Pi_u$, $v=0, 1, 2, 3$) states by N_2 , O_2 , H_2 and H_2O molecules //Chemical Physics. – 2000. – Т. 262. – №. 2-3. – С. 349-357.

[127] Завертяев М. В., Козлов В. А., Пестовский Н. В., Петров А. А., Родионов А. А., Савинов С. Ю., Цхай С. Н., Заварцев Ю. Д., Загумен-ный А. И. , Кутовой С. А., Излучение молекулярного азота при бомбардировке электронами пиролитического аэрогеля SiO_2 и алюминия //Письма в Журнал экспериментальной и теоретической физики. – 2019. – Т. 110. – №. 10. – С. 652-657.

[128] Cone M. T. et al. Diffuse reflecting material for integrating cavity spectroscopy, including ring-down spectroscopy //Applied optics. – 2015. – Т. 54. – №. 2. – С. 334-346.

[129] Лебедева В. В. Экспериментальная оптика.—4-е изд.—М.: Физический факультет МГУ им. МВ Ломоносова, 2005.—282 с.

[130] Kozlov V. A., Kutovoi S. A., Mislavskii V. V., Pestovskii N. V., Petrov A. A., Rodionov A. A., Savinov S. Yu., Tskhai S. N., Zagumennyi A. I., Zavartsev Yu. D., and Zavertyaev M. V., Effect of Pressing on Luminescence Spectra of Fumed Silica //Journal of Russian Laser Research. – 2019. – Т. 40. – №. 1. – С. 42-47.

[131] Morhac M. et al. Background elimination methods for multidimensional coincidence γ -ray spectra //Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1997. – Т. 401. – №. 1. – С. 113-132.

[132] <https://root.cern.ch/doc/v608/classTSpectrum.html>.

[133] Bruining H., Physics and applications of secondary electron emission, McGraw Hill Book Co, inc. London: Pergamon Press LTD., N.Y. (1954).

[134] Valk F. et al. Measurement of collisional quenching rate of nitrogen states N_2 ($C^3\Pi_u$, $v=0$) and //Journal of Physics D: Applied Physics. – 2010. – Т. 43. – №. 38. – С. 385202.

[135] Словецкий Д. И. Механизмы химических реакций в неравновесной плазме. – М.:Наука. – 1980. – 310 С.

[136] Johnson J. B., McKay K. G. Secondary electron emission of crystalline MgO //Physical Review. – 1953. – Т. 91. – №. 3. – С. 582-587.

[137] Alexandrov Yu. M., Vishnjakov V. M., Makhov V. N., Sidorin K K., Trukhin A. N., Yakimenko M. N., Electronic properties of crystalline quartz excited by photons in the 5–25 eV range //Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 1989. – Т. 282. – №. 2-3. – С. 580-582.

[138] Ibach H., Rowe J. E. Electron orbital energies of oxygen adsorbed on silicon surfaces and of silicon dioxide //Physical Review B. – 1974. – Т. 10. – №. 2. – С. 710-718.

[139] Li Y. P., Ching W. Y. Band structures of all polycrystalline forms of silicon dioxide //Physical Review B. – 1985. – Т. 31. – №. 4. – С. 2172-2179.

[140] Трухин А. Н. Люминесценция автолокализованного экситона в кристаллическом и стеклообразном диоксиде кремния //Физика твердого тела. – 1991. – Т. 33. – №. 10. – С. 2888-2895.

[141] Dietrich H. B. et al. Kinetics of self-trapped holes in alkali-halide crystals: Experiments in NaI (Tl) and KI (Tl) //Physical Review B. – 1973. – Т. 8. – №. 12. – С. 5894.

[142] Williams R. T. et al. Spectrophotometric System for Transient Observation of Solids under Pulsed Electron Irradiation //Review of Scientific Instruments. – 1969. – Т. 40. – №. 10. – С. 1361-1362.

[143] Belov M. V., Koutovoi S. A., Kozlov V. A., Pestovskii N. V., Savinov S. Yu., Zagumennyi A. I., Zavartsev Yu. D. and Zavertyaev M. V., Measurement of non-linearity in the cathodoluminescence yield for non-doped scintillators // Journal of Applied Physics. – 2021. – Т. 130. – №. 23. – С. 233101.

[144] Костыря И. Д., Тарасенко В. Ф. Мягкое рентгеновское излучение при наносекундном диффузном разряде в воздухе атмосферного давления //Журнал технической физики. – 2010. – Т. 80. – №. 2. – С. 111-117.

[145] Jaffe J. E. Energy and length scales in scintillator nonproportionality //Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 2007. – Т. 580. – №. 3. – С. 1378-1382.

[146] Месяц Г. А. Эктоны. Часть 3 // Екатеринбург: УИФ «Наука», – 1993, – 264 с.

[147] Itikawa Y. Cross sections for electron collisions with nitrogen molecules //Journal of physical and chemical reference data. – 2006. – Т. 35. – №. 1. – С. 31-53.

[148] Shemansky D. E., Ajello J. M., Kanik I. Electron Excitation Function of the N₂ Second Positive System //The Astrophysical Journal. – 1995. – Т. 452. – С. 472.

[149] Скубенич В. В., Повч М. М., Запесочный И. П. Возбуждение двухатомных молекул при столкновениях с моноэнергетическими электро-нами // Химия высоких энергий. – 1977. – Т. 11. - №. 2. – С. 116-120.

[150] Opal C. B., Peterson W. K., Beaty E. C. Measurements of secondary-electron spectra produced by electron impact ionization of a number of simple gases //The Journal of Chemical Physics. – 1971. – Т. 55. – №. 8. – С. 4100-4106.

[151] Коновалов В. П. Деградационный спектр электронов в азоте, кислороде и воздухе //Журнал технической физики. – 1993. – Т. 63. – №. 3. – С. 23-33.

[152] Krupenie P. H. The spectrum of molecular oxygen //Journal of Physical and Chemical Reference Data. – 1972. – Т. 1. – №. 2. – С. 423-534.

[153] В. Н. Тутубалин, Теория вероятностей и случайных процессов, - М.:Изд-во МГУ, 1992. - 400 с.

[154] Ивченко Г. И., Медведев Ю. И. Математическая статистика // М.: Книжный дом «Либроком», 2020. – 352 с.

[155] Рыбка Д. В. и др. О расталкивании электронов пучка //Краткие сообщения по физике Физического института им. П. Н. Лебедева Российской Академии Наук. – 2007. – №. 9. – С. 9-14.

[156] Владимиров С. В., Кафтанов В. С., Нилов А. Ф., Семенов Ю. А., Смолянкин В. Т., Ушаков В. И., Горонков О. А., Звонарев Е. Н., Козлов О. И., Маширев В. П., Шаталов В. В., Басиев Т. Т., Конюшкин В. А., Осико В. В., Панашвили А. Г., Скворцов В. Н. Характеристики сцинтилляционных кристаллов BaF₂ // Атомная энергия. Том 90, вып. 1. — 2001. — С. 49—55.

[157] Спасский Дмитрий Андреевич, Люминесценция вольфрамов при возбуждении синхротронным излучением в области фундаментального

поглощения // Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук, Москва, МГУ им. М.В. Ломоносова, 2001 г.

[158] Glukhov R. A. et al. Simulation of energy conversion and transfer in CeF_3 after VUV photon absorption // Journal of alloys and compounds. – 1998. – Т. 275. – С. 488-492.

[159] <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR-u.html>

[160] Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Очкин В. Н., Пестовский Н. В., Петров А. А., Савинов С. Ю. Сопоставление спектров катодо-и гамма-люминесценции сцинтилляционных кристаллов // Письма в ЖТФ. – 2014. – Т. 40. – №. 10.

[161] Kozlov V. A., Ochkin V. N., Pestovskii N. V., Petrov A. A., Savinov S. Yu., Zagumennyi A. I. and Zavertyaev M. V. Pulsed cathodo-luminescence and γ -luminescence of scintillation crystals // Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2015. – Т. 653. – №. 1. – С. 012017.

[162] Загуменный А. И., Лобанов А. Н., Михайлов А. В., Очкин В. Н., Пестовский Н. В., Петров А. А., Савинов С. Ю. Сопоставление времен затухания катодо-и гамма-люминесценции сцинтилляционных кристаллов // Краткие сообщения по физике Физического института им. П. Н. Лебедева Российской Академии Наук. – 2015. – Т. 42. – №. 1.

[163] Belov M. V., Kozlov V. A., Kutovoi S. A., Pestovskii N. V., Savinov S. Yu., Vlasov V. I., Zagumennyi A. I., Zavartsev Yu. D. & Zavertyaev M. V. Wavelength-Resolved Photoluminescence and Cathodoluminescence Decay Times of LSO:Ce Scintillator CO-Doped with Lithium and Scandium // Journal of Russian Laser Research. – 2021. – Т. 42. – №. 3. – С. 313-317.

[164] Zorenko Y. et al. Growth and luminescent properties of Lu_2SiO_5 : Ce and $(\text{Lu}_{1-x}\text{Gd}_x)_2\text{SiO}_5$: Ce single crystalline films // Journal of crystal growth. – 2011. – Т. 337. – №. 1. – С. 72-80.

[165] Zorenko Y. et al. Growth and luminescent properties of Lu_2SiO_5 and Lu_2SiO_5 : Ce single crystalline films //IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. – IOP Publishing, 2010. – Т. 15. – №. 1. – С. 012010.

[166] Jia Y. et al. Ab initio study of luminescence in Ce-doped Lu_2SiO_5 : The role of oxygen vacancies on emission color and thermal quenching behavior //Physical Review Materials. – 2018. – Т. 2. – №. 12. – С. 125202.

[167] Белов М. В., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кондратюк В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю. Влияние дефектов на сцинтилляционные свойства кристаллов оксиортосиликатов Ce: Sc: LFS //Краткие сообщения по физике Физического института им. П. Н. Лебедева Российской Академии Наук. – 2017. – Т. 44. – №. 8. – С. 25-33.

[168] Белов М. В., Заварцев Ю. Д., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю. Сцинтилляционные характеристики новых кристаллов LuScSiO_5 //Краткие сообщения по физике Физического института им. П. Н. Лебедева Российской Академии Наук. – 2021. – Т. 48. – №. 4. – С. 3-8.

[169] Андреев С. Н., Белов М. В., Заварцев Ю. Д., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Козлов В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Савинов С. Ю. Выращивание и исследование сцинтилляционных свойств кристаллов-ортованадатов Ca:GdVO_4 и Ca:YVO_4 //Краткие сообщения по физике Физического института им. П. Н. Лебедева Российской Академии Наук. – 2018. – Т. 45. – №. 6. – С. 29-36.

[170] Fujimoto Y. et al. Comparative study of optical and scintillation properties of YVO_4 , $(\text{Lu}_{0.5}\text{Y}_{0.5})\text{VO}_4$, and LuVO_4 single crystals //Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. – 2011. – Т. 635. – №. 1. – С. 53-56.

[171] Андреев С. Н., Завертяев М. В., Заварцев Ю. Д., Загуменный А. И., Козлов В. А., Пестовский Н. В., Кутовой С. А., Петров А. А., Савинов С. Ю.

Исследование радиационной деградации оптических свойств нестехиометрических кристаллов $\text{Lu}_{3.01-x}\text{Y}_x\text{Al}_{4.99}\text{O}_{12}$, допированных ионами Ce^{3+} , Cr^{3+} , и Sc^{3+} , под действием гамма-излучения //Краткие сообщения по физике Физического института им. П. Н. Лебедева Российской Академии Наук. – 2016. – Т. 43. – №. 10. – С. 38-47.

[172] Заварцев Ю. Д., Завертяев М. В., Загуменный А. И., Зерроук А. Ф., Козлов В. А., Кутовой С. А., Пестовский Н. В., Петров А. А., Савинов С. Ю. Природа радиационной стойкости кристаллов-оксиортосиликатов LFS, допированных ионами Ce, Sc, Ca и Y //Краткие сообщения по физике Физического института им. П. Н. Лебедева Российской Академии Наук. – 2016. – Т. 43. – №. 11. – С. 31-38.