



ДЕРЖАВНЕ
ПАТЕНТНЕ
ВІДОМСТВО

ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА ВІНАХІД

без проведення експертизи по суті
на підставі Постанови Верховної Ради України
№ 3769-XII від 23.XII. 1993 р.

Публікується
в редакції заявника

(54) СЦИНТИЛЯЦІЙНИЙ МАТЕРІАЛ НА ОСНОВІ МОНОКРИСТАЛА LIF

(21) 94020403

(22) 19.03.93

(24) 07.10.97

(46) 27.02.98. Бюл. № 1

(47) 07.10.97

(56) Авторское свидетельство СССР
№ 1304584, кл. G 01 T 1/202, 1985.

(72) Віноград Едуард Львович, Гаврін Володимир Миколайович, Горелецький Валентин Іванович, Красовицька Іна Моні-Мордківна, Кудін Олександр Михайлович, Мітчикін Анатолій Іванович, Пшуков Адам Музаріфович, Тарасов Володимир Олексійович, Угланова Валентина Володимирівна, Чаркіна Тамара Олександрівна, Шляхтуров Валерій Вікторович, Ейдельман Лев Георгійович

(73) Науково-дослідне відділення лужногалоїдних кристалів з дослідним виробництвом НТК "Інститут монокристалів" НАН України

(57) 1. Сцинтиляційний матеріал на основі монокристалла LIF, що містить активуючу добавку, о т л и ч а ю щ и й с я т е м, що в якості активуючої добавки містить оксиди поливалентних металів при наступному співвідношенні компонентів, мол. %:

Оксиди поливалентных металлов

$2,5 \cdot 10^{-3} - 4,5 \cdot 10^{-2}$

LIF

Остальное

2. Сцинтиляційний матеріал на основі монокристалла LIF по п. 1, о т л и ч а ю щ и й с я т е м, що в якості активуючої добавки містить оксид титана, при наступному співвідношенні компонентів, мол. %:

TiO₂

$7,5 \cdot 10^{-3} - 1,5 \cdot 10^{-2}$

LIF

Остальное

3. Сцинтиляційний матеріал на основі монокристалла LIF по п. 1, о т л и ч а ю щ и й с я т е м, що в якості активуючої добавки містить оксид ніобія, при наступному співвідношенні компонентів, мол. %:

Nb₂O₅

$2,5 \cdot 10^{-3} - 1,1 \cdot 10^{-2}$

LIF

Остальное

4. Сцинтиляційний матеріал на основі монокристалла LIF по п. 1, о т л и ч а ю щ и й с я т е м, що в якості активуючої добавки містить оксид вольфрама при наступному співвідношенні компонентів, мол. %:

WO₃

$1,1 \cdot 10^{-2} - 4,5 \cdot 10^{-2}$

LIF

Остальное

Предлагаемое изобретение относится к сцинтиляционным материалам на основе неорганических веществ, используемых в детекторах тепловых нейтронов, нейтрино, α - и β -излучения.

Известен эффективный, прозрачный к собственному излучению сцинтиляционный материал на основе монокристалла NaJ(Tl), используемый в детекторах рентгеновского и γ -излучения [1].

(19) UA (11) 21026 (13) A

Для регистрации тепловых нейтронов он не может быть использован в связи с малой величиной сечений захвата тепловых нейтронов ядрами ^{23}Na и ^{127}J ($\sigma(^{23}\text{Na}) = 0,56$ барн; $\sigma(^{127}\text{J}) = 5,6$ барн [1]).

Согласно оценкам, проведенным в [2], такой материал будет малоэффективным при регистрации солнечных нейтрино. Высокая гигроскопичность материала, требующая тщательной герметизации изготавливаемых на его основе детекторов, не позволяет использовать последние и для регистрации α - и β -частиц излучения.

Известен сцинтилляционный материал на основе монокристалла LiJ , активированного европием с содержанием EuJ_2 $5 \cdot 10^{-2}$ мол.%, широко используемый в детекторах тепловых нейтронов [3] благодаря высокому сечению захвата последних ядрами ^6Li ($\sigma(^6\text{Li}) = 950$ барн [1]).

Недостатком этого материала является высокая (из-за большого значения эффективного атомного номера $Z_{\text{эфф}} = 52$) чувствительность к γ -фону, всегда сопровождающему нейтронное излучение. Кроме того активация йода нейтронным излучением по закону реакции (n, γ) , протекающей на ядрах ^{127}J сопровождается изменением амплитудного спектра за счет дополнительных сцинтилляций от ^{128}J . Существенным недостатком этого материала является еще большая по сравнению с NaJ гигроскопичность и меньшая химическая стойкость в присутствии влаги и кислорода [4]. Необходимость тщательной герметизации материала не позволяет использовать его в детекторах α - или β -излучения. Необходимо отметить также относительную прозрачность этого материала к собственному излучению из-за перекрытия полос поглощения и люминесценции активаторных ионов Eu^{2+} , что делает детектор большой массы практически непрозрачным. Этот недостаток, а также приобретение материалом коричневой окраски при малейшем нарушении герметичности контейнера [4] (что имеет место практически всегда при длительной эксплуатации детектора) исключает возможность использования кристаллов $\text{LiJ}(\text{Eu})$ в качестве сцинтилляционного материала в детекторах нейтрино, хотя эффективность взаимодействия последних с кристаллами LiJ почти вдвое, выше, чем с кристаллами NaJ [2].

Известно сообщение о сцинтилляционном материале на основе монокристалла LiF , активированного европием [5]. Этот материал, как и любой другой на основе кристаллов LiF , характеризуется высокой гигроскопичностью, отсутствием активации

фтора нейтронным излучением, низкой чувствительностью к γ -фону, (благодаря малой величине эффективного атомного номера $Z_{\text{эфф}} = 8,1$). Перечисленные достоинства материала $\text{LiF}(\text{Eu})$ позволяют использовать его

5 не только для регистрации тепловых нейтронов, но также и для регистрации α - и β -излучения. Однако данных ни о составе, ни о практическом применении сцинтиллятора $\text{LiF}(\text{Eu})$ не имеется.

10 Недостатком сцинтилляционного материала на основе кристалла $\text{LiF}(\text{Eu})$ является, как и в случае $\text{LiJ}(\text{Eu})$, недостаточная прозрачность к собственному излучению, что исключает возможность использования материала в детекторах нейтрино, хотя эффективность взаимодействия последних с кристаллом LiF в 3,2 раза выше, чем с кристаллом LiJ [2].

15 Известен сцинтилляционный материал на основе монокристалла LiF , активированного азотнокислым уранилом, предлагаемый для регистрации β -излучения с содержанием $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - 1 \cdot 10^{-3} - 5 \cdot 10^{-3}$ мол.% [6].

20 Как и $\text{LiF}(\text{Eu})$ данный материал не активируется нейтронным излучением, малочувствителен к γ -фону. Негигроскопичен, вследствие чего может быть использован для регистрации β -излучения в условиях контакта с атмосферой воздуха.

25 Недостатком этого материала является низкий световой выход α -сцинтилляций, вследствие чего он не может быть использован для регистрации α -частиц и нейтронов. Другим недостатком является плохая прозрачность к свету сцинтилляций, из-за перекрытия полос активаторного поглощения и излучения [6]. Вследствие этого, несмотря на высокий выход β -сцинтилляций (40% относительно $\text{CsJ}(\text{Tl})$), материал не может быть использован в детекторах большой массы, применяемых для регистрации солнечных нейтрино.

30 35 40 45 50 Нестабильность изотопов урана обуславливает достаточно ощутимый радиационный фон кристаллов $\text{LiF-UO}_2(\text{NO}_3)_2$, из-за чего они не могут быть использованы не только в детекторах нейтрино [2], но и в детекторах, регистрирующих β -излучение малой активности.

Наличие в сцинтилляционном импульсе компонента длительностью 300 мкс ограничивает также возможность применения материала для регистрации β -излучений высокой интенсивности.

55 В качестве прототипа нами выбран сцинтилляционный материал $\text{LiF-UO}_2(\text{NO}_3)_2$ [6].

Задачей изобретения является расширение диапазона регистрируемых излучений, повышение прозрачности к собственному свечению, снижение радиационного фона и уменьшение времени высвечивания сцинтилляционного материала на основе кристалла LIF.

Поставленная задача достигается тем, что сцинтилляционный материал на основе активированного кристалла LIF, согласно изобретению, в качестве активирующей добавки содержит оксиды поливалентных металлов при следующем соотношении компонентов, мол. %:

Оксиды поливалентных металлов	$2,5 \cdot 10^{-3} - 4,5 \cdot 10^{-2}$
LIF	Остальное

Возникновение сцинтилляций в заявляемом материале обусловлено наличием активаторных металл-кислородных центров, ответственных за свечение в сине-фиолетовой области спектра (430–370 нм). Природа этих центров детально не изучена. Можно предположить, что в кристаллах LIF, легированных оксидами поливалентных металлов осуществляется прямой тип активации по Зейтцу, поскольку спектральный состав сцинтилляций совпадает со спектральным составом фотолюминесценции, возбуждаемой в активаторной полосе поглощения. При этом перенос энергии к активаторным центрам свечения равновероятен при облучении α -частицами и β -излучением. Спектральный состав сцинтилляций близок (примесь Nb_2O_5 – максимальная интенсивность при длине волны $\lambda_{max} = 370$ нм) или совпадает (примесь TiO_2 – $\lambda_{max} = 400$ нм; примесь WO_3 – $\lambda_{max} = 430$ нм) с областью максимальной чувствительности широко применяемых в сцинтилляционной технике фотоумножителей.

Экспериментально установлено, что при регистрации β -излучения (BI-207, $E_\beta = 0,975$ мэВ) и α -частиц (Am-241, $E_\alpha = 5,5$ мэВ) световые выходы β -сцинтилляций C_β и α -сцинтилляций C_α достигают максимального значения при концентрациях в кристалле LIF добавки оксида в количестве: для TiO_2 – $7,5 \cdot 10^{-3} - 1,5 \cdot 10^{-2}$ мол. %; для Nb_2O_5 – $2,5 \cdot 10^{-3} - 1,1 \cdot 10^{-2}$ мол. %; для WO_3 – $1,1 \cdot 10^{-2} - 4,5 \cdot 10^{-2}$ мол. % (для величины C_β) и $3,6 - 4,5 \cdot 10^{-2}$ мол. % (для величины C_α), как это хорошо видно на приведенных фиг. 1 и 2 и из таблицы. При этом величина C_β в области плато (фиг. 1 и табл.) для кристаллов LIF- TiO_2 и LIF- Nb_2O_5 составляет 4% относительно C_β кристалла CsJ-Tl, а для кристалла LIF- WO_3 7%, что соответственно в 10 и 6 раз

меньше величины прототипа с содержанием активатора $UO_2(NO_3)_2$ $5 \cdot 10^{-3}$ мол. %. Величина C_α в области плато (фиг. 2 и табл.) составляет, соответственно 1 и 2,2% относительно C_α кристалла CsJ-Tl, что превосходит C_α прототипа в 5 раз для добавок TiO_2 и Nb_2O_5 и в 11 раз для добавки WO_3 .

При концентрациях TiO_2 до $7,5 \cdot 10^{-3}$ мол. % и Nb_2O_5 до $2,5 \cdot 10^{-3}$ мол. % величины C_β и C_α , а также при концентрациях WO_3 до $1,1 \cdot 10^{-2}$ мол. % величины C_β и при концентрациях WO_3 до $3,6 \cdot 10^{-3}$ мол. % величины C_α снижаются вследствие недостаточности концентрации центров свечения, создаваемых соответствующими оксидами. При концентрациях Nb_2O_5 более $1,1 \cdot 10^{-2}$ мол. % и WO_3 более $4,5 \cdot 10^{-3}$ мол. % снижение световых выходов β - и α -сцинтилляций обусловлено концентрационным тушением активаторных центров. Для концентраций TiO_2 более $1,5 \cdot 10^{-2}$ мол. % система LIF- TiO_2 перестает быть монокристаллом и представляет собою поликристаллическую структуру, плохо прозрачную к свету сцинтилляций, что и обуславливает снижение величины C_β и C_α .

Экспериментально установлено, что хотя величины C_β для заявляемого материала меньше таковых для прототипа, тем не менее таких величин C_β достаточно для обеспечения хорошей разрешающей способности крупногабаритных детекторов на основе заявляемого материала благодаря высокой прозрачности последнего и однородности (равномерности) распределения величин C_β по его объему. Так, например, энергетическое разрешение детектора размером $150 \times 150 \times 300$ мм при β -возбуждении ($E = 10$ мэВ) составляет (не превышает) $\sim 15\%$ для всех кристаллов LIF, активированных оксидами поливалентных металлов, что свидетельствует о перспективности использования заявляемого материала в качестве сцинтиллятора для регистрации нейтрино.

Экспериментально установлено, что введение в качестве активатора в кристаллы LIF оксидов поливалентных металлов способствует такому превышению величины C_α заявляемого материала над величиной C_α прототипа, которое обеспечивает достаточную чувствительность заявляемого материала к нейтронному излучению – для всех активированных кристаллов амплитудные спектры сцинтилляций от плутоний-бериллиевого источника нейтронов имеют ярко выраженный максимум, отвечающий полно-