

# **Идеи и представления о фундаментальных ограничениях спектрометрического качества неорганических сцинтилляторов**

**Кудин Александр Михайлович**

**Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины  
Проспект Ленина, 60, Харьков, Украина**

**Школа-семинар, Старый Салтов, 2013**

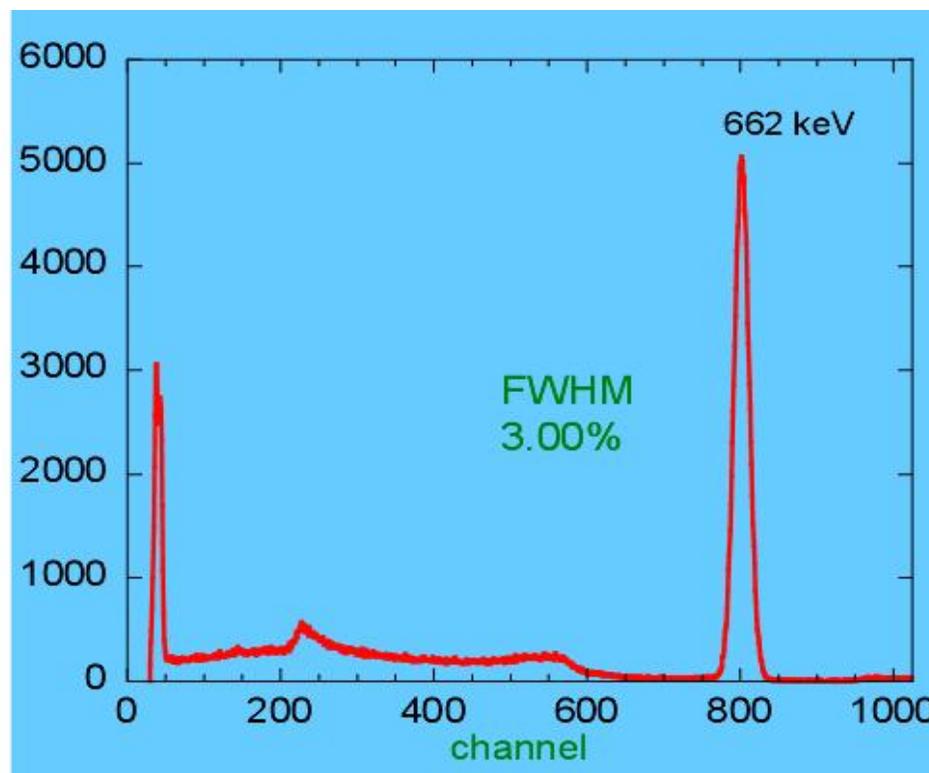
# Спектрометрические характеристики:

Световой выход

$$\frac{L}{E} = \frac{1}{\varepsilon} S G Q$$

Физический световой выход  
или сцинтилляционная  
эффективность  
(фот./МэВ; УЕСВ; %)

Энергетическое разрешение



Амплитудный спектр кристалла  
 $\text{LaBr}_3:\text{Ce}$  размером  $76 \times 76$  мм

Подробнее в: *Гринев Б.В. Сцинтилляционные кристаллы // Неорганическое материаловедение. – Киев: Наукова думка, 2008. - Т.2. - С. 357-362.*

# Сцинтилляционная эффективность:

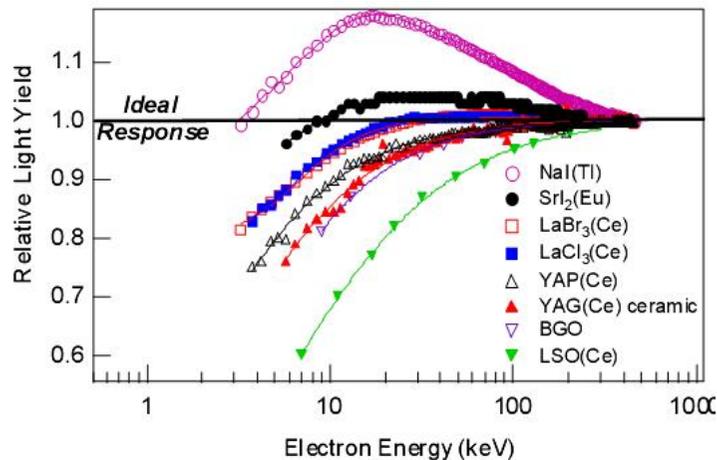
$$\frac{L}{E} = \frac{1}{\varepsilon} S G Q \quad (\text{в первом приближении})$$

$\varepsilon$  – средняя энергия образования  $e$ - $h$ -пары;

$S$  – эффективность миграционного этапа;

$G$  – коэффициент светосбора;

$Q$  – квантовый выход ЦС.



Было много попыток объяснить  $nPR$  коэффициентами  $S$ ,  $G$ ,  $\varepsilon$

но не  $Q$ .  $G(x, y, z, t_{RC})$

**J.Q. Grim (USA)**

From interband photon density response to scintillation: adding tracks, gradients,  
and high-energy electrons

**R.T. Williams (USA)**

Interband photon density response: light yield and nonlinearity without electron  
tracks

**F. Gao (USA)**

Microscopic Mechanisms of Electron-Hole Generation and Their Spatial  
Distribution in Inorganic Scintillators

**M. Moszynski (Poland)**

Absolute light output of scintillators

$$\frac{L}{E} = \frac{1}{\varepsilon} S G Q$$

$\varepsilon$  – средняя энергия образования  
 $e-h$  пары

**G.Bizarri** (USA)  
Physics of bright halide scintillators

**A.N. Vasil'ev** (Russia)  
Recombination and capture of carriers in ionizing particle tracks with complex structure

$$\frac{L}{E} = \frac{1}{\varepsilon} S G Q$$

$\varepsilon$  – средняя энергия образования  
 $e-h$  пары

**P.Erhart** (Sweden), **D.Aberg** (USA)

Carrier self-trapping in NaI and SrI<sub>2</sub> from first principles calculations

**S. Kerisit** (USA)

Mechanisms of scintillator radiation response: Insights from Monte Carlo simulations

**K.B. Ucer** (USA)

Picosecond time-resolved studies of scintillation materials and processes

**A.Vedda** (Italy)

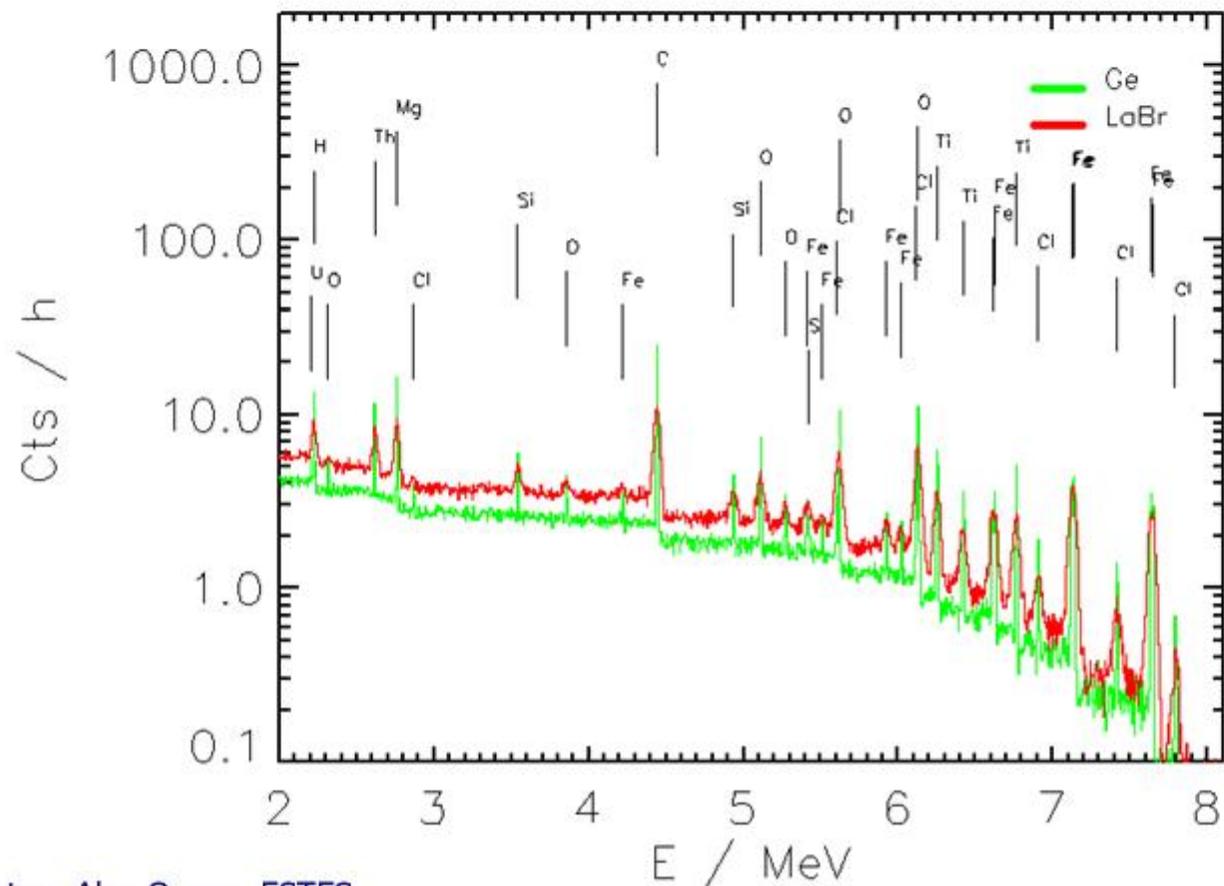
Center-trap aggregations in oxide scintillators

$$\frac{L}{E} = \frac{1}{\varepsilon} S G Q$$

**S** – эффективность переноса энергии

# Регистрация сложных спектров

**Simulated in orbit spectra measured by a 6.5 cm × 6.5 cm diameter Ge crystal and an 8 cm diameter LaBr detector**



Mercury mission

Courtesy Alan Owens, ESTEC

# Improvement of $\gamma$ -ray energy resolution of $\text{LaBr}_3:\text{Ce}^{3+}$ scintillation detectors by $\text{Sr}^{2+}$ and $\text{Ca}^{2+}$ co-doping

M. S. Alekhin,<sup>1</sup> J. T. M. de Haas,<sup>1</sup> I. V. Khodyuk,<sup>1</sup> K. W. Krämer,<sup>2</sup> P. R. Menge,<sup>3</sup> V. Ouspenski,<sup>4</sup> and P. Dorenbos<sup>1</sup>

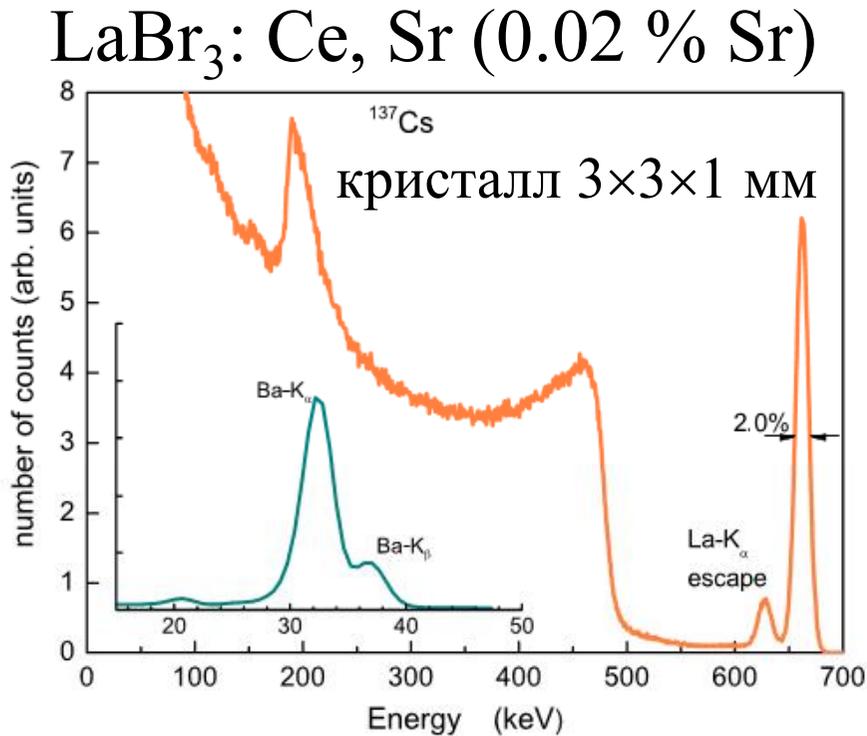
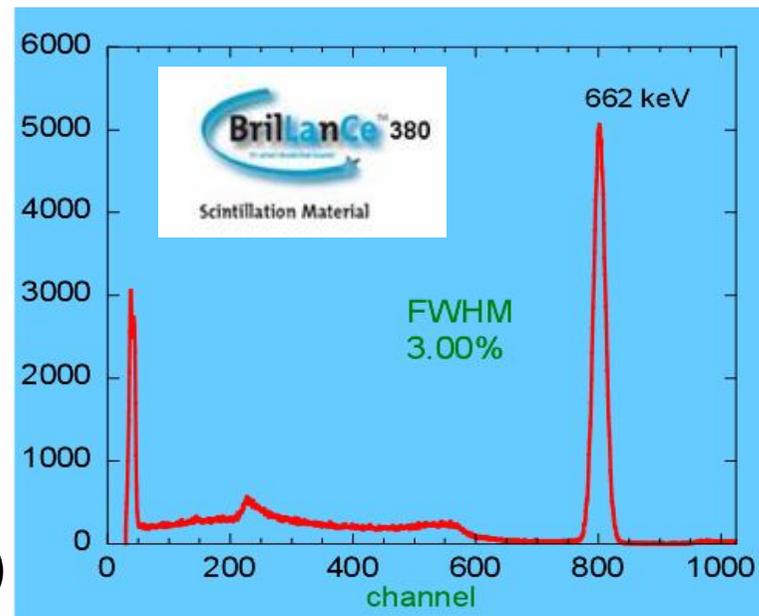
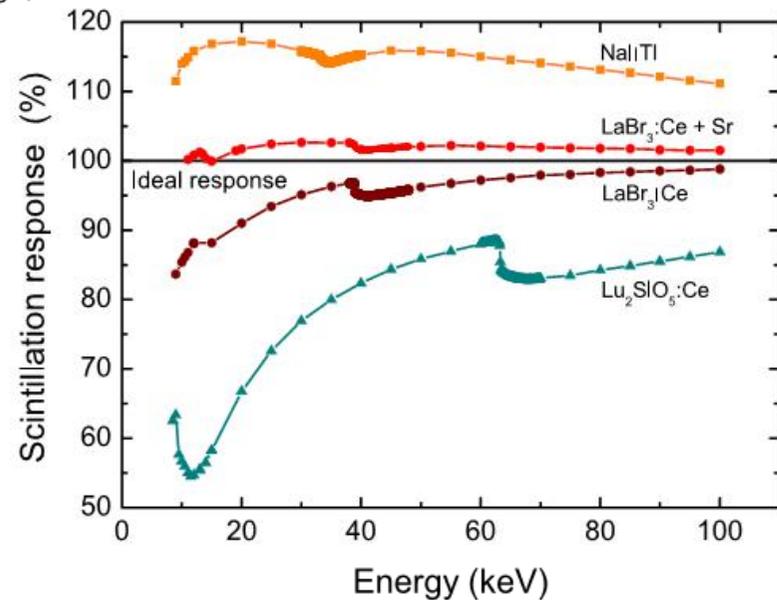


FIG. 4. Pulse height spectrum of a  $^{137}\text{Cs}$  source measured with a  $\text{Sr}^{2+}$  co-doped  $\text{LaBr}_3:5\%\text{Ce}$  crystal and a Hamamatsu R6231-100 super bi-alkali PMT. The inset shows the 10–50 keV region on a reduced vertical scale.

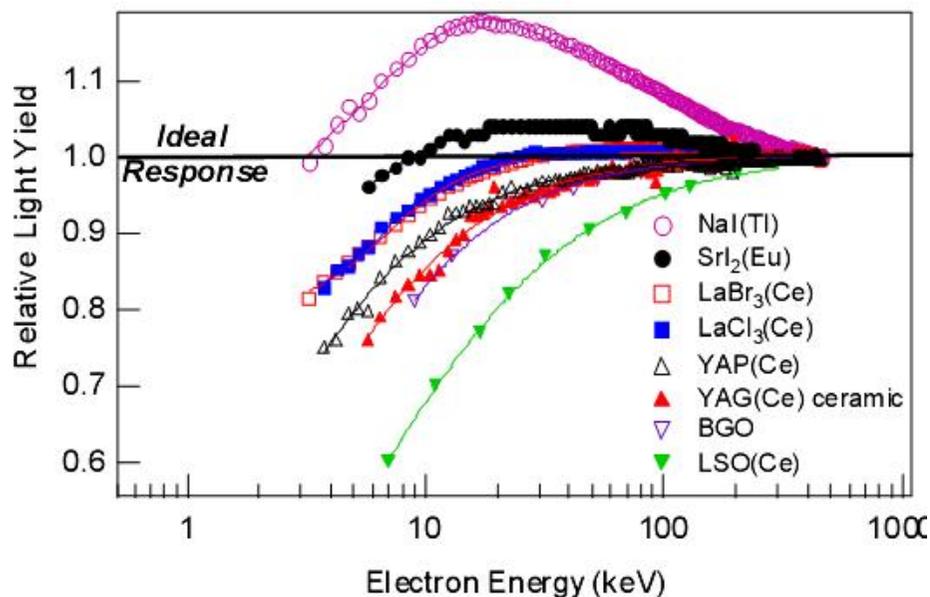
**$\text{LaBr}_3:\text{Ce}$**   
**3" x 3"**  
**(5% Ce)**



# Эволюция представлений об $R$

Теоретические представления

$$R_c^2 = R_n^2 + R_{inh}^2 + R_{tr}^2$$



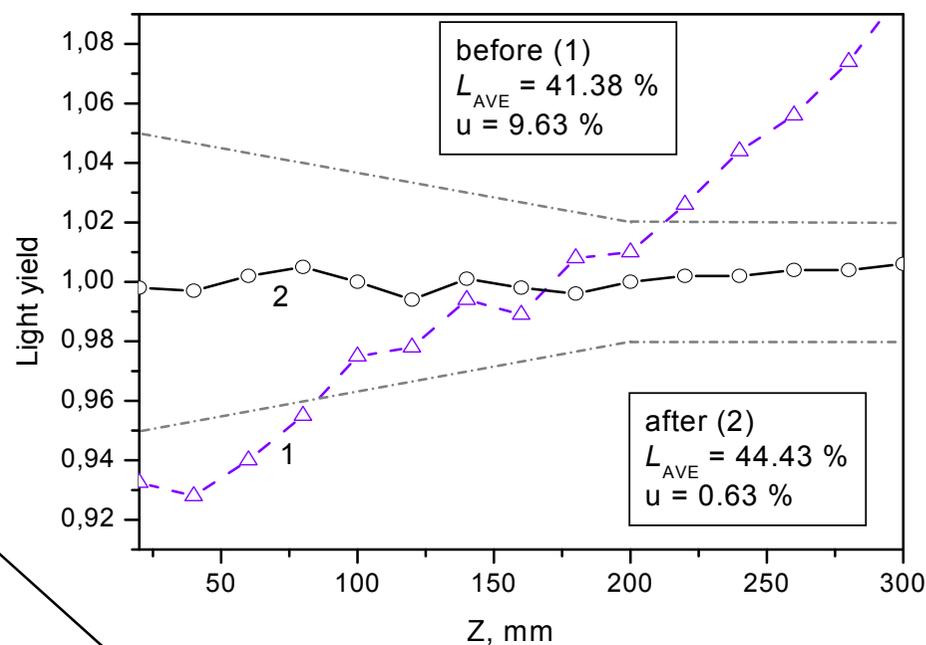
Непропорциональность отклика

Сцинтилляционная техника

$$L = \eta G(Z, t_{RC})$$

$$R_c^2 = R_n^2 + R_G^2$$

$G$  – коэффициент светосбора ( $x, y, z$ )

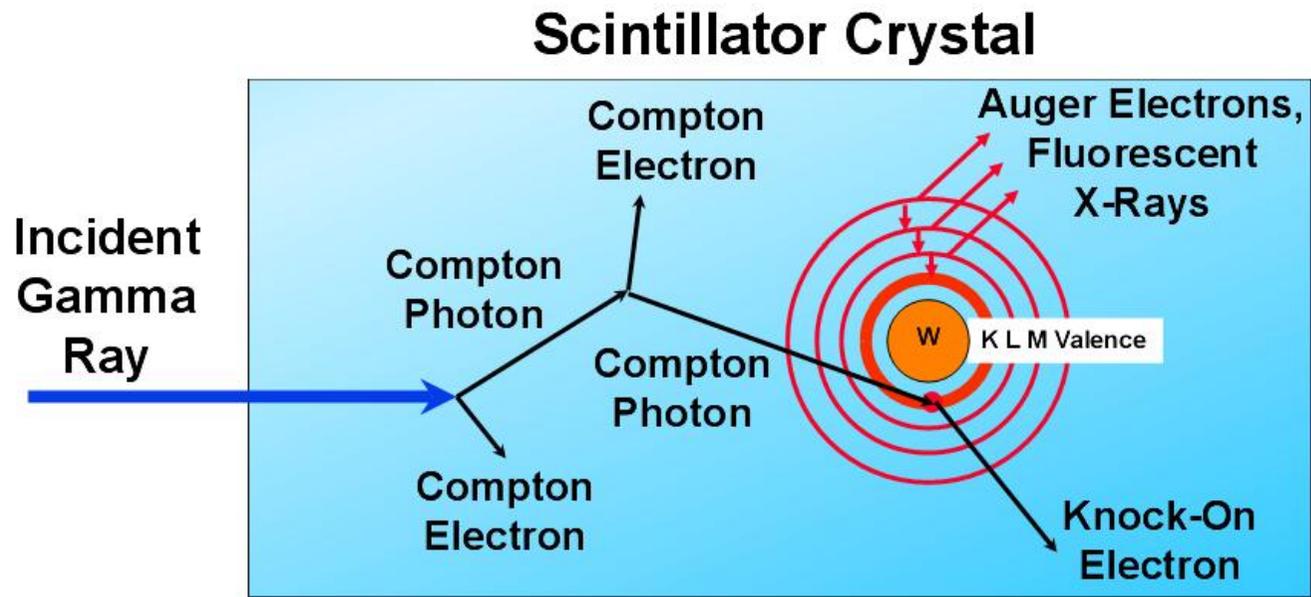


Пример доводки осевой неоднородности светового выхода

Материаловедение

# Фундаментальные ограничения энергетического разрешения

## How Does Non-Proportionality Degrade Energy Resolution?

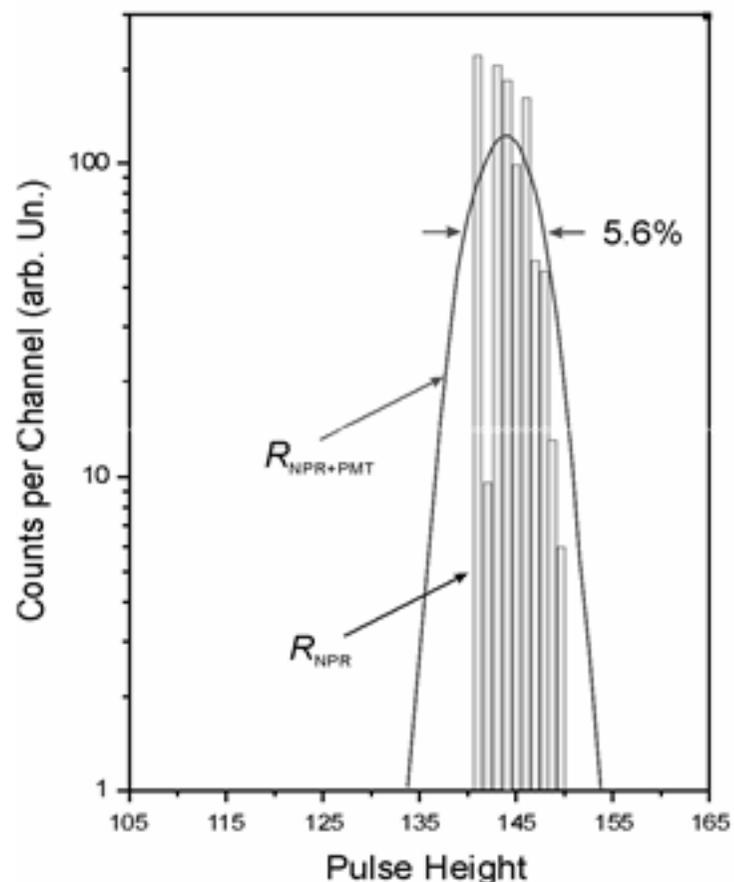


**Multiple Energy Deposits Combined With Different Efficiency for Each Deposit**

W. Moses, SCINT-11

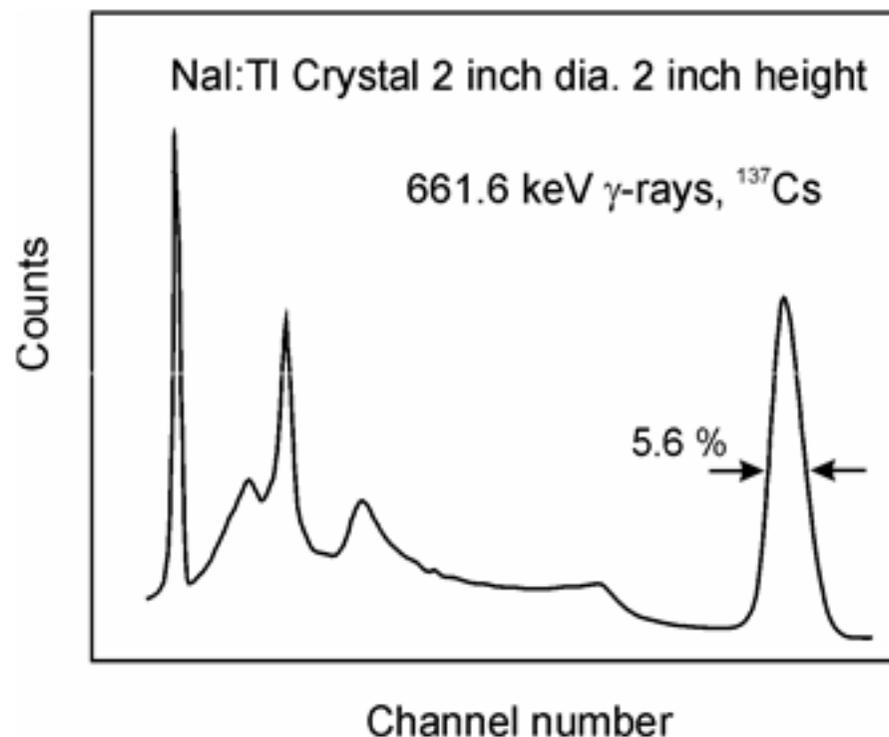
# Как оценить вклад составляющей $R_N$ ?

## Теория



Оценка вклада  $R_N$  в  $R$  методом Монте-Карло  
(Zerby, et al., 1961)

## Практика



$$R_N \sim 4,5\%; \quad R_G \ll R_N$$

(D. Persik and T. Moi, 1978)

# Фундаментальные ограничения $R$

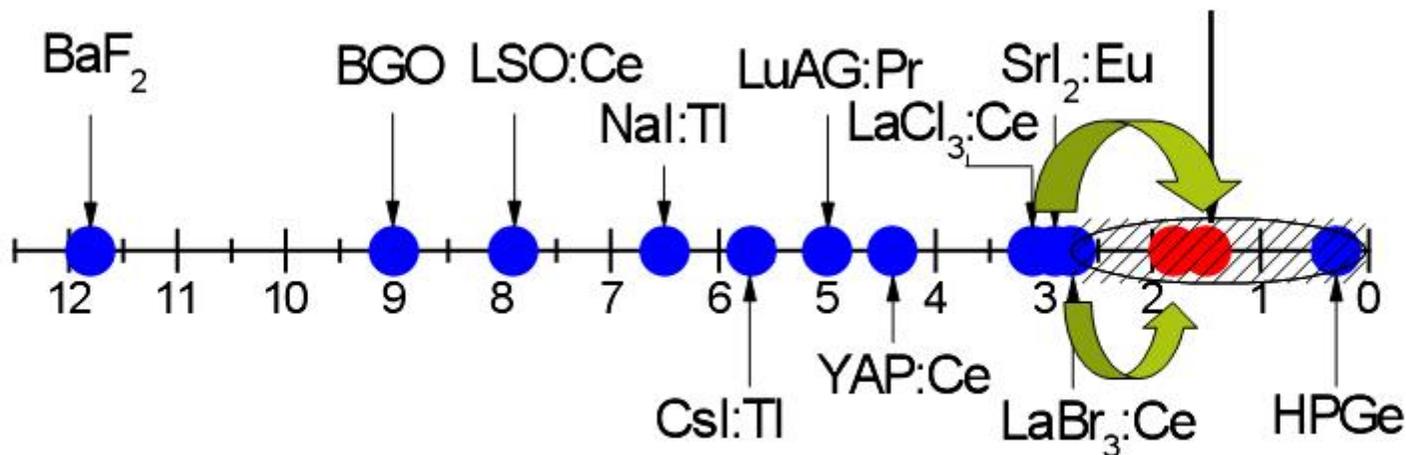
## High energy resolution scintillators

$$\left(\frac{\Delta E}{E}\right)^2 = R_{np}^2 + R_{inh}^2 + R_{tr}^2 + R_M^2 \longrightarrow R_M = 2.35 \sqrt{\frac{1 + v(M)}{N_{phe}}}$$

LaBr<sub>3</sub>:Ce  $N_{phe} = 22000$  phe/MeV<sup>(1)</sup>

SrI<sub>2</sub>:Eu  $N_{phe} = 32000$  phe/MeV<sup>(2)</sup>

Ultimate energy resolution



(1) I.V. Khodyuk et al. J.Phys.: Condens. Matter 22 (2010) 485402.

(2) M.S. Alekhin et al. IEEE Trans. Nucl. Csi. 58 (5) (2011) to be published.

# Можно ли достичь значений $R \sim 4-5\%$ для NaI:Tl ?

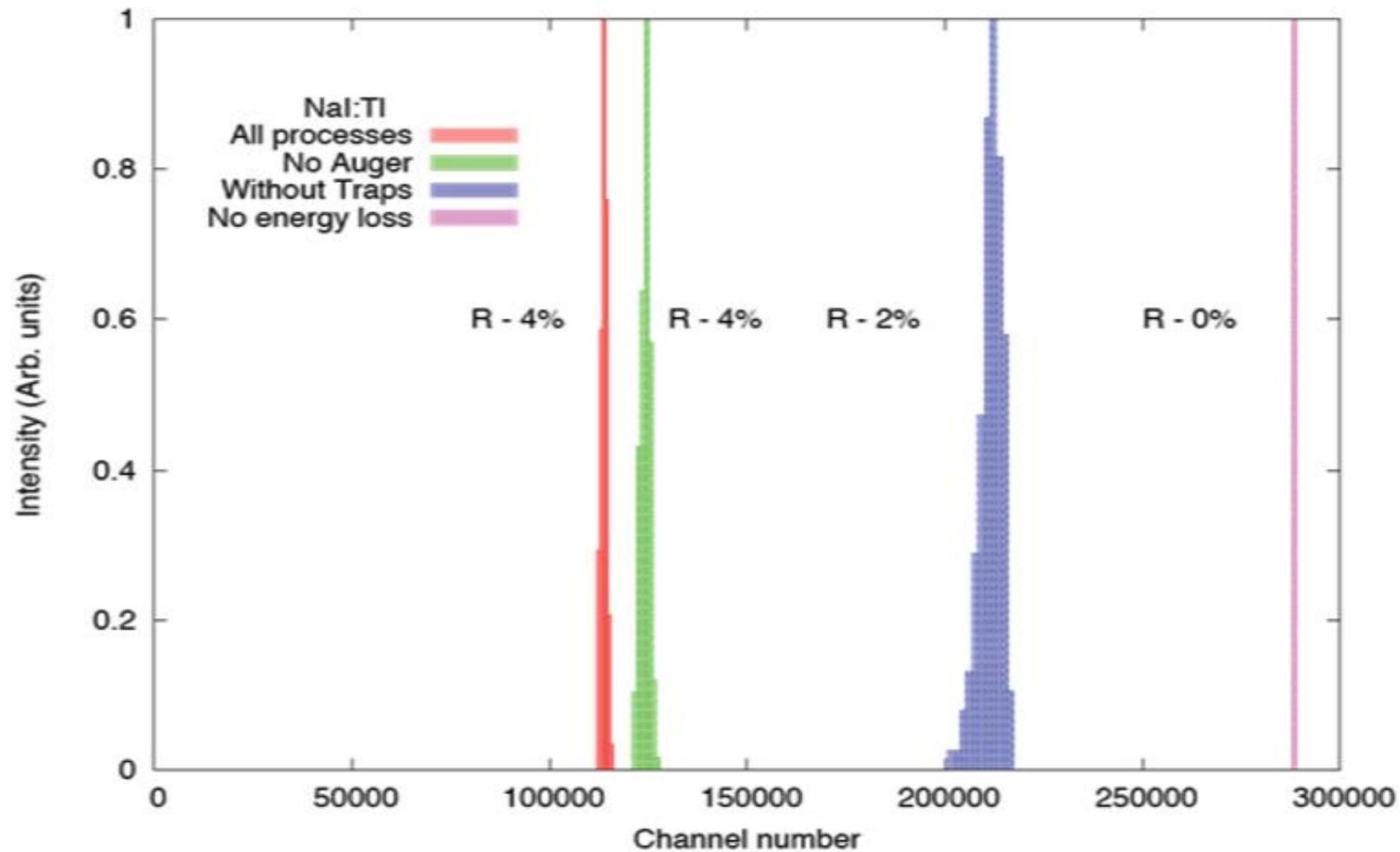
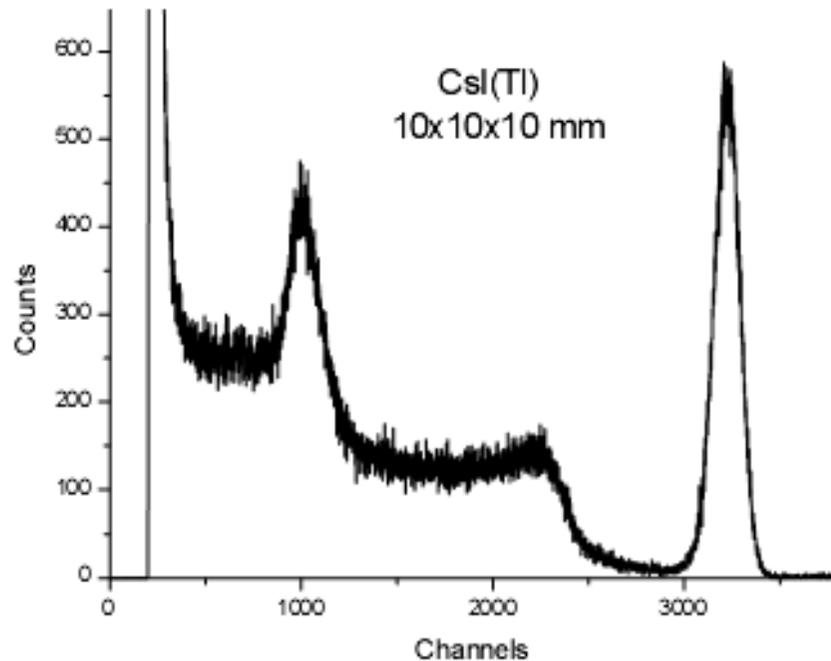


Figure from G. Bizarri, et al., Presentation I8-2 at SCINT09, Jeju Island, Korea

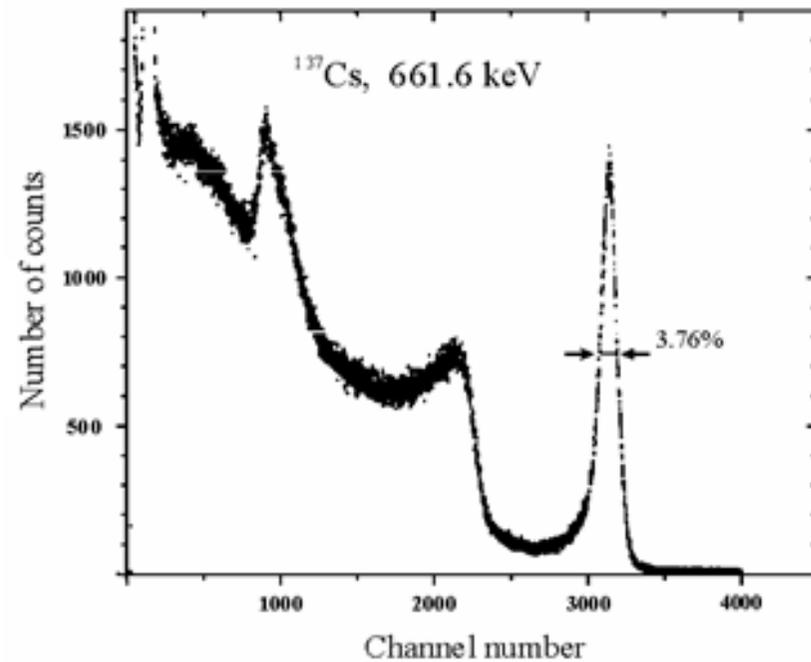
# «Доводка» выходных параметров сцинтиллятора



*Лучшие значения с фотодиодом*

**ФД 10×10 мм  $R = 4,8\%$**

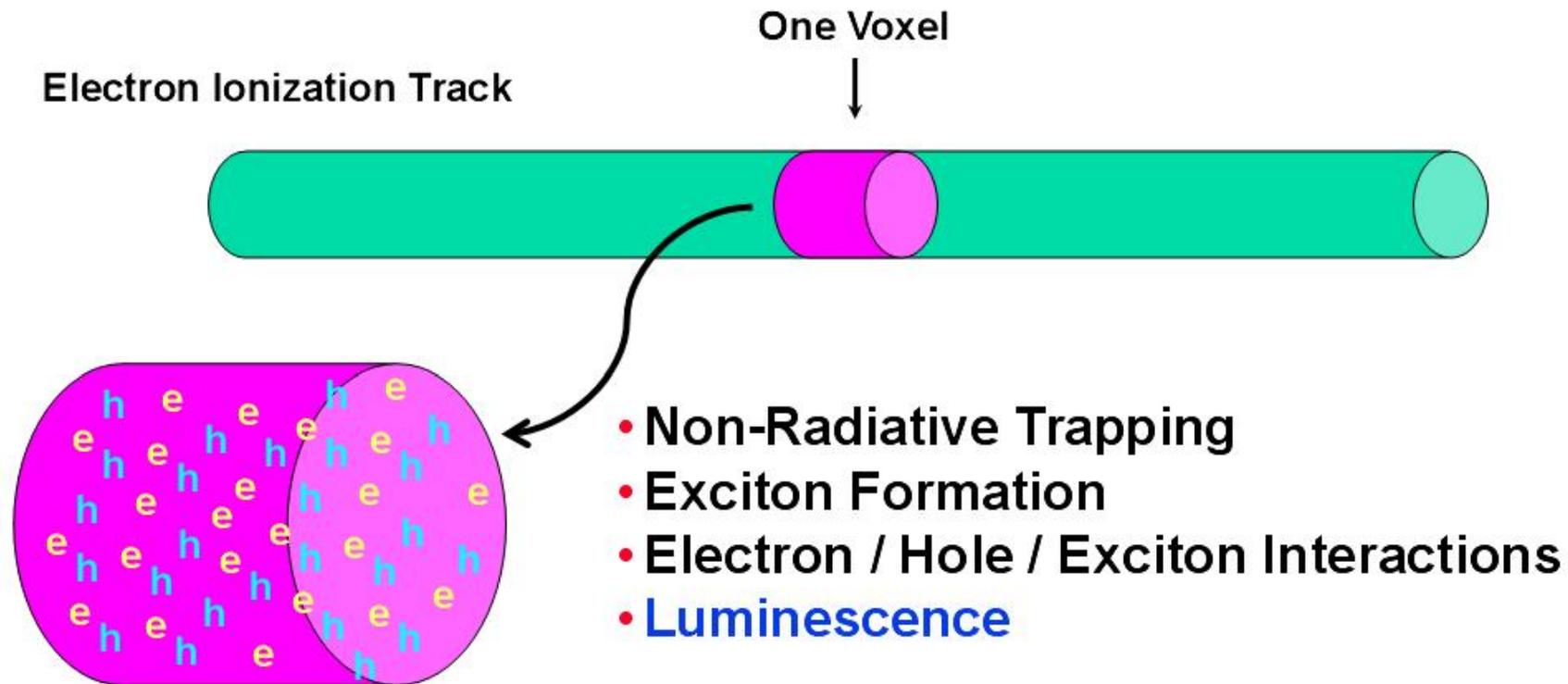
**ФД 4×4 мм  $R = 4,4\%$**



Kudin, A M., Borodenko Yu.A., Grinyov B.V., et al. // Instr. & Exp. Technique. – 2010. vol. 53, p. 39-44.

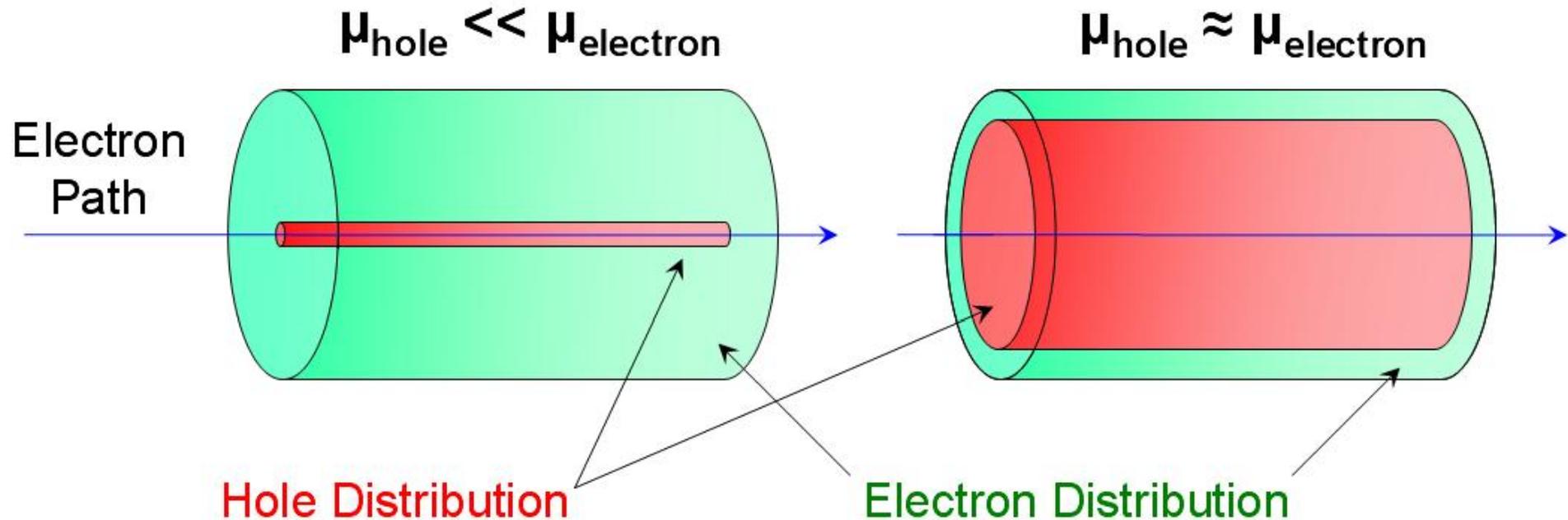
Moszynski M., et al. IEEE TNS. 2003.

# Competing Processes for e/h Recombination



- Many Ways for e/h Pairs in a Voxel to Recombine
  - Not All Recombinations Produce Light

## Both Electrons & Holes Diffuse

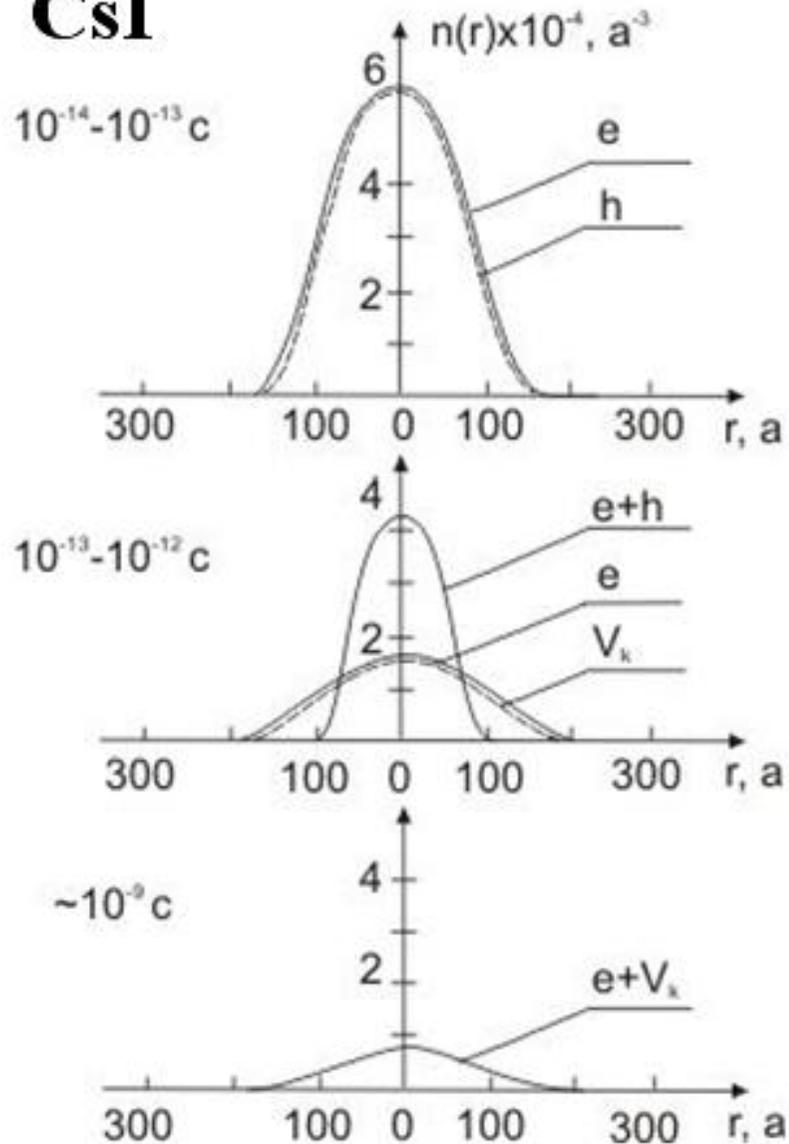


- Ratio of Diameters  $\propto$  Ratio of Mobilities
- Similar Diameters  $\rightarrow$  High Recombination Probability
- $\mu_{\text{hole}} \approx \mu_{\text{electron}} \rightarrow$  Proportional Scintillator

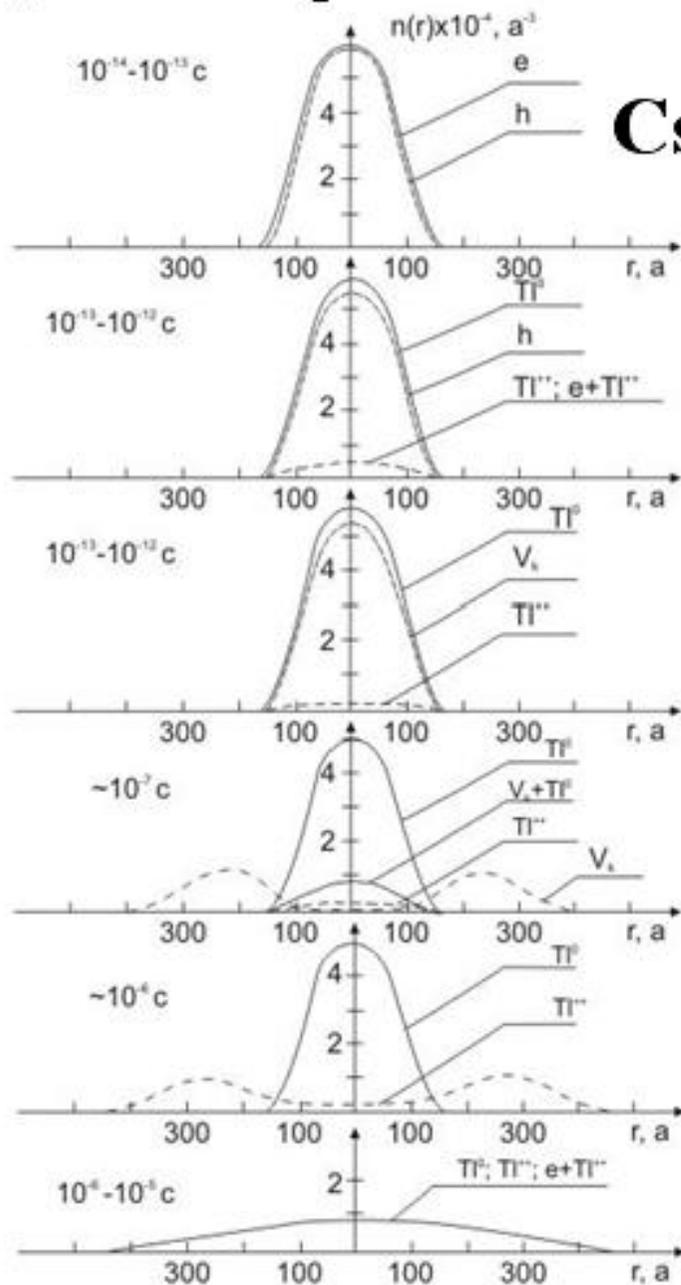
# Осевое распределение возбуждений в треке $\alpha$ -частицы

Ляпидевский и Аверкиев, 1984

## CsI

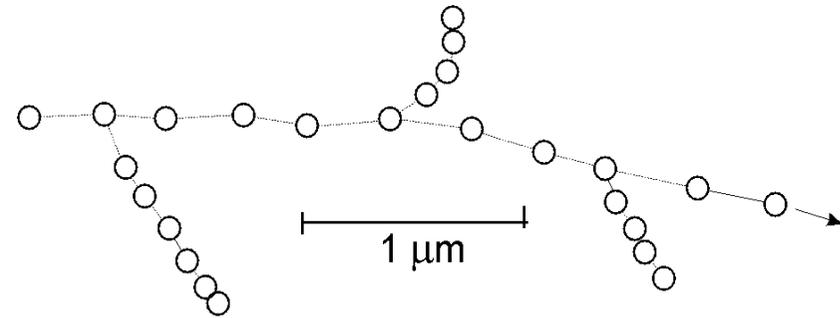


## CsI:TI

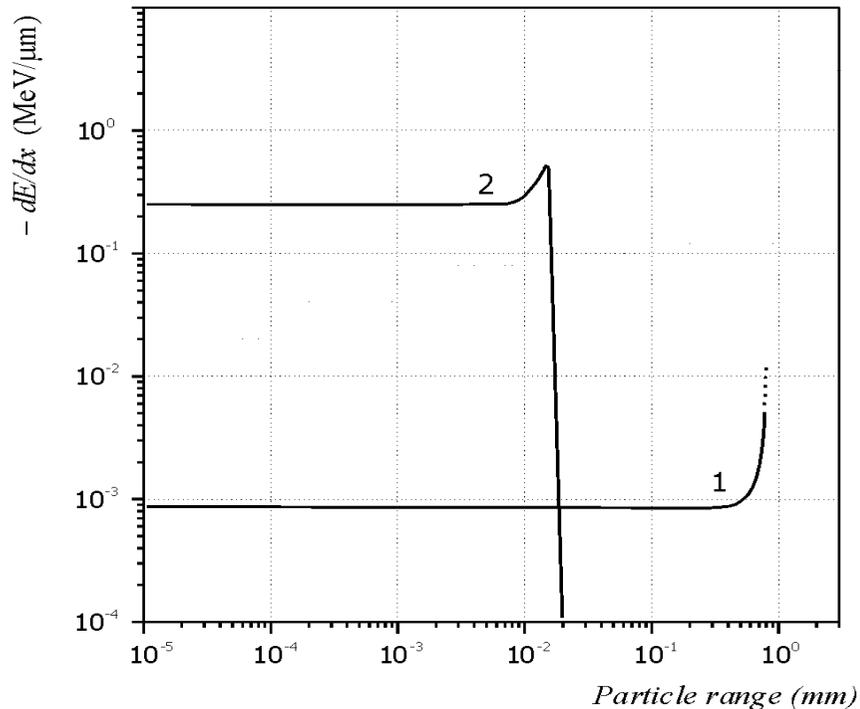
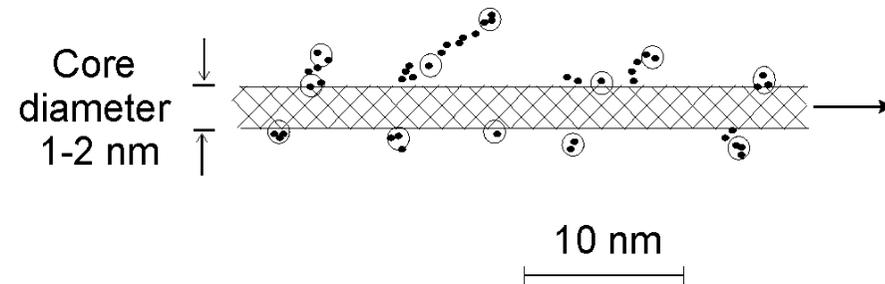


Схематическое представление структуры трека электрона и  $\alpha$ -частицы в конденсированной среде  
(В.К. Ляпидевский)

fragment of the 1 MeV electron track



4 MeV  $\alpha$ -particle

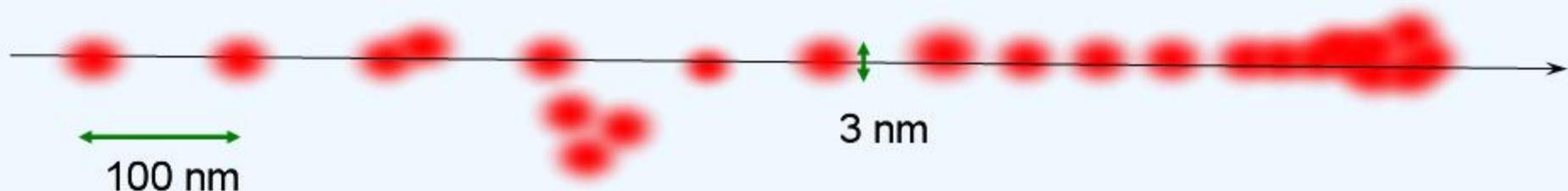


Цилиндрическая симметрия только для трека  $\alpha$ -частицы, но не электрона

# Track spatial and temporal structure

The sizes of the excited clusters of excitations just after initial recombination and thermalization of electrons and holes (ps time domain) depend on the thermalization length, which is determined by electron-phonon interaction. For ionic crystals it can be estimated to be about 2-4 nm, for piezoelectric crystals it can be even shorter, and for covalent crystals longer.

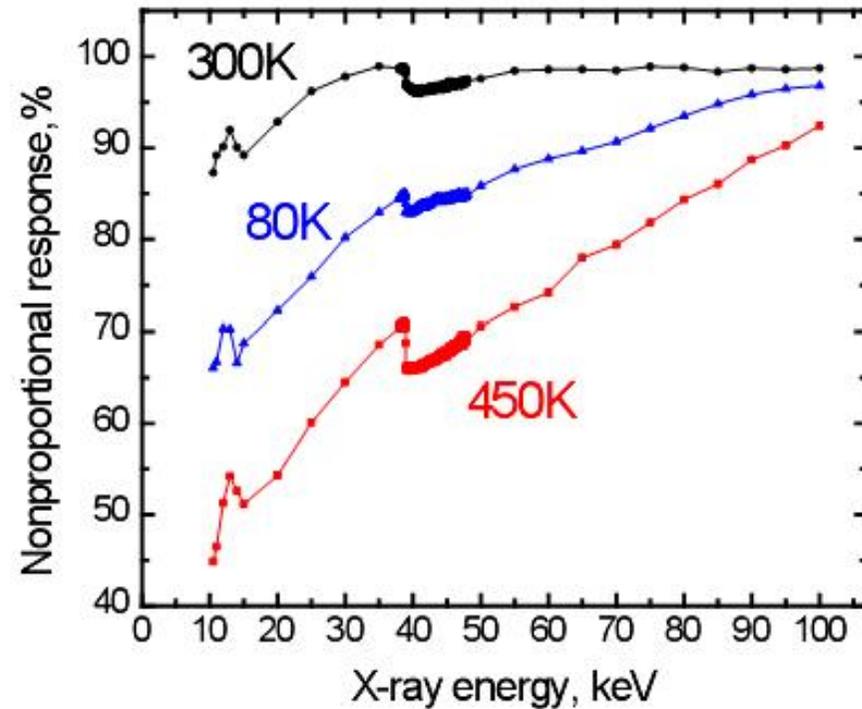
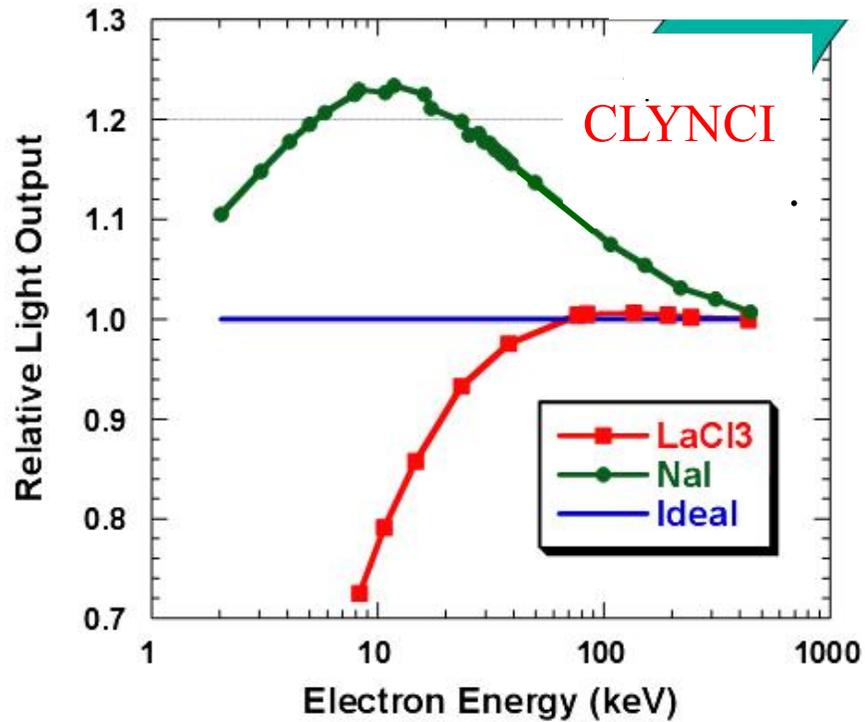
Initial electron track structure in NaI is defined by isolated and overlapped clusters of excitations with initial size of about 3 nm. Distances between clusters are about 1 to 100 nm. The shown track is straitened along the path of the primary electron.



19

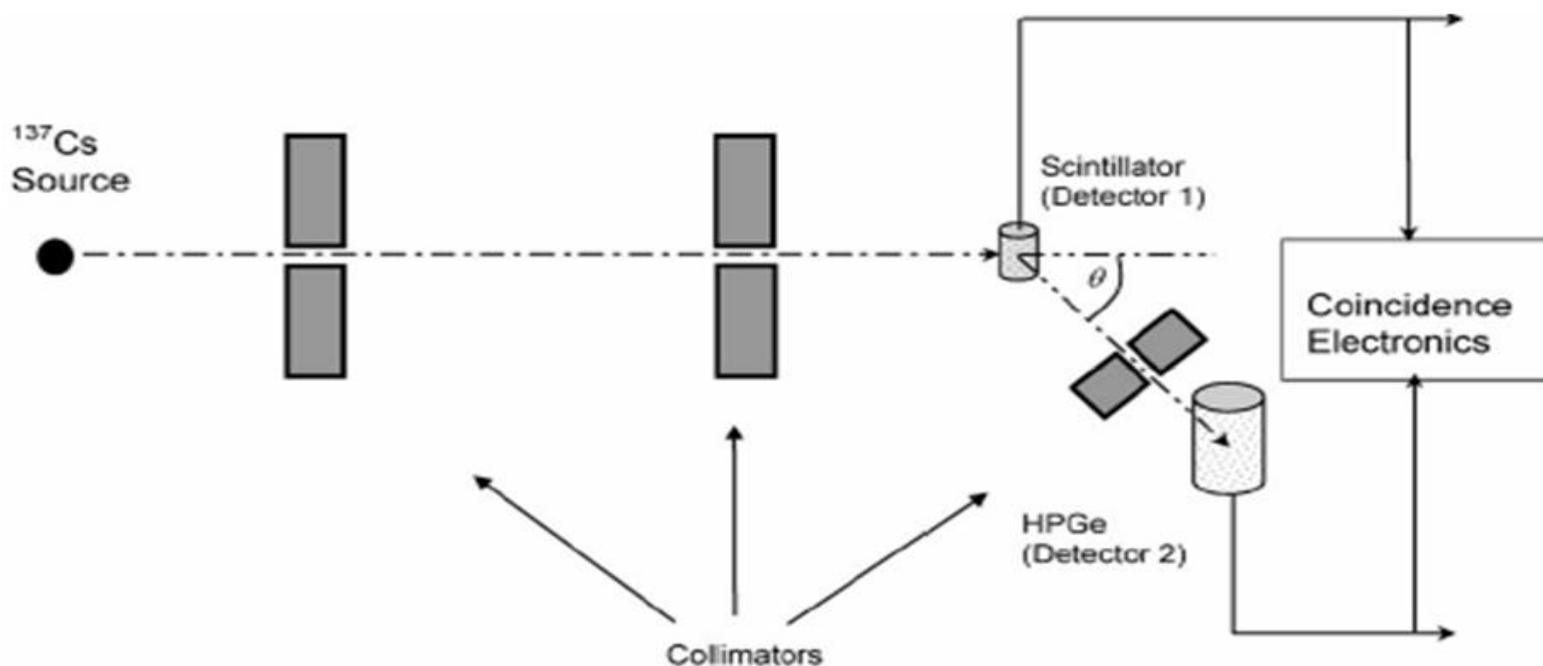
# Экспериментальные методы изучения $nPR$

**SLYNCI** – Scintillator Light Yield Non-proportionality Compton Instrument  
K-deep spectroscopy



# Методы изучения $nPR$ и $R$

## How Is Electron Response Measured?

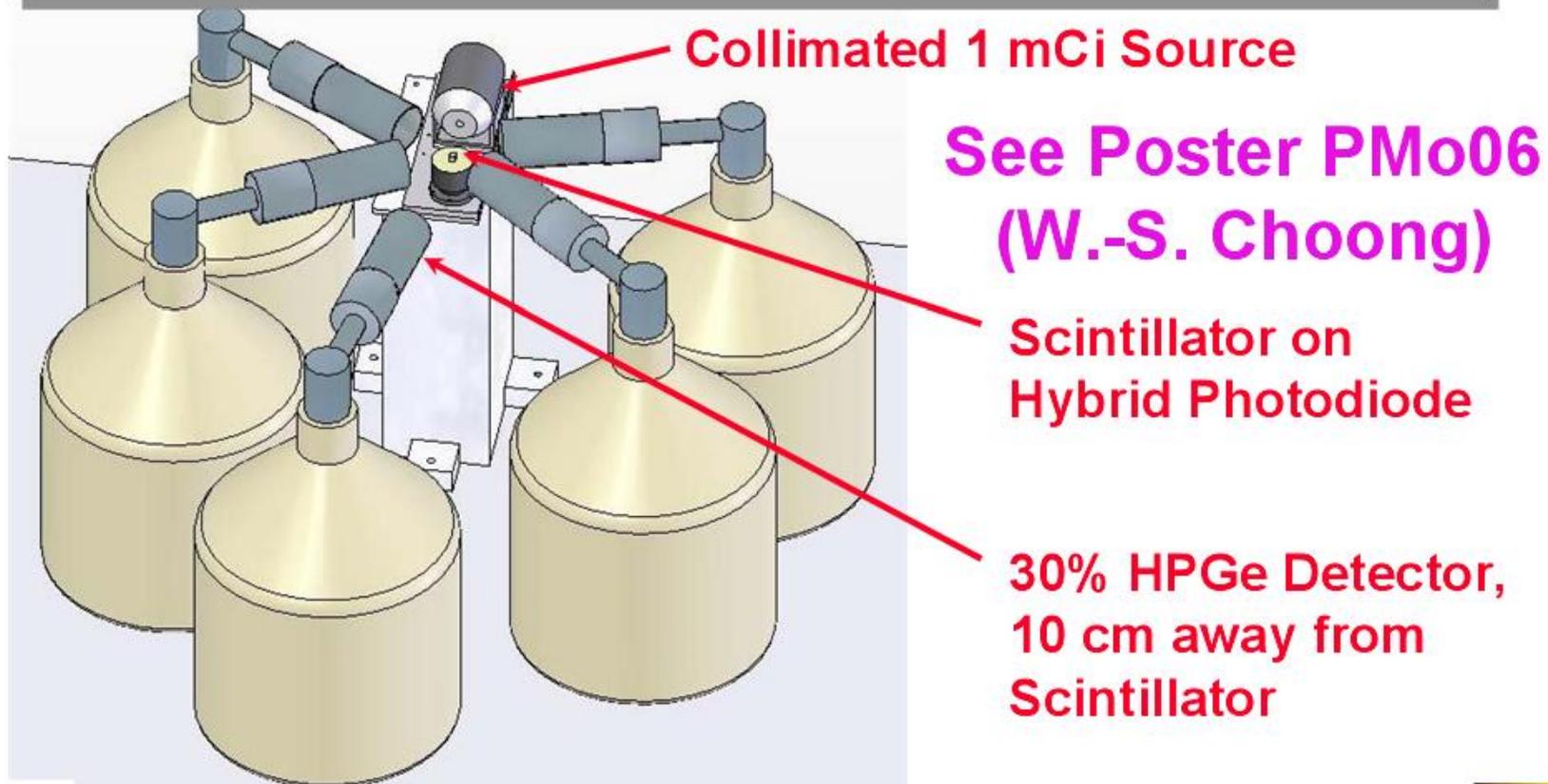


- 662 keV Gamma Compton Scatters in Scintillator
- Energy of Scattered Gamma Measured in HPGe
- Plot Light Output vs. Electron Energy ( $E_{\gamma} - E_{\text{HPGe}}$ )

Figure from J.D. Valentine, et al., Nucl. Instr. Meth. A-486, pp. 452, 2002

# Методы изучения $nPR$ и $R$

## Second Generation Apparatus: SLYNCI (Scintillator Light Yield Nonproportionality Characterization Instrument)



Measures Electron Response in <1 Day



# Методы изучения $nPR$ и $R$

## Wide Angle Compton Coincidence (WACC)

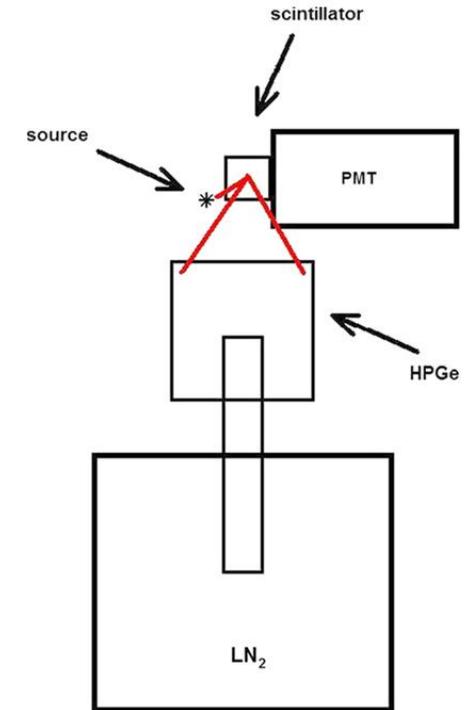
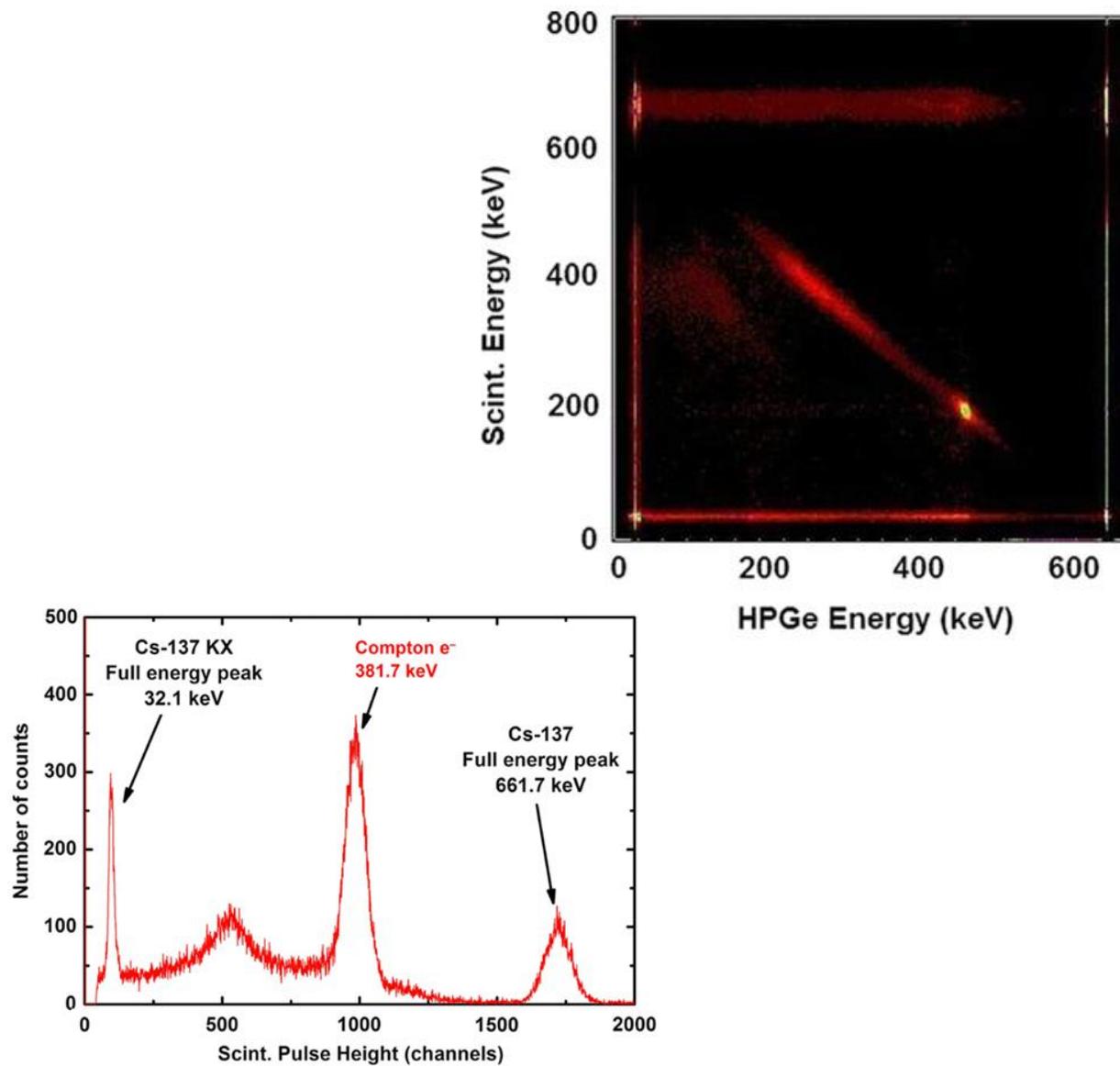
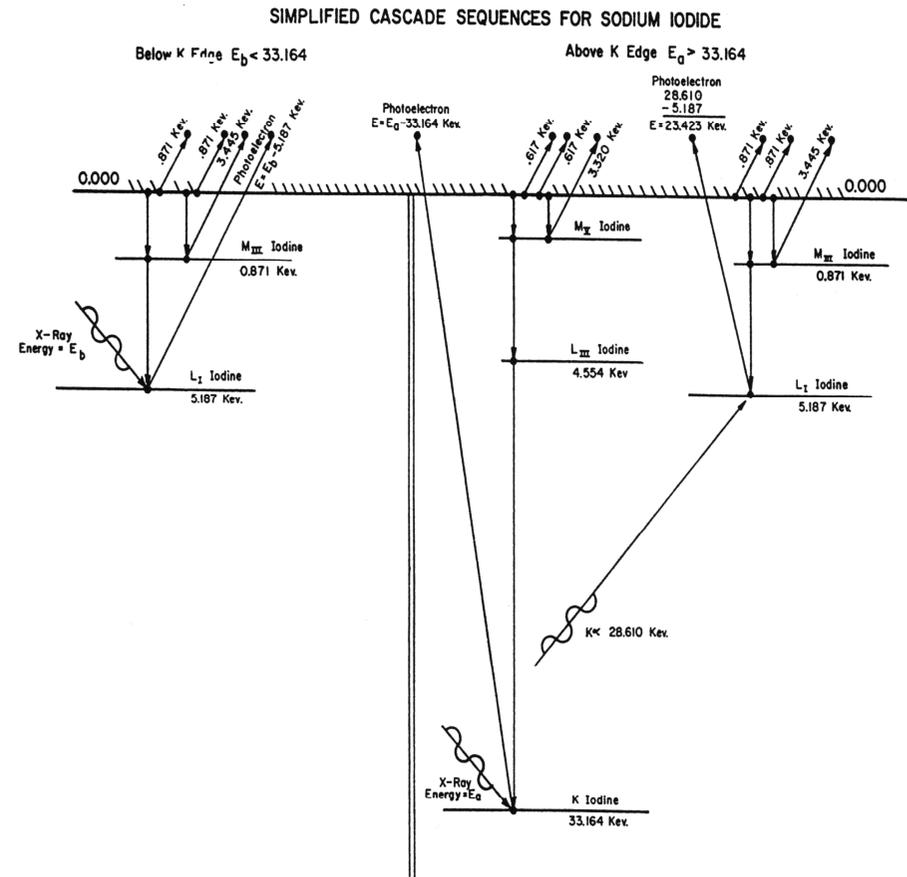
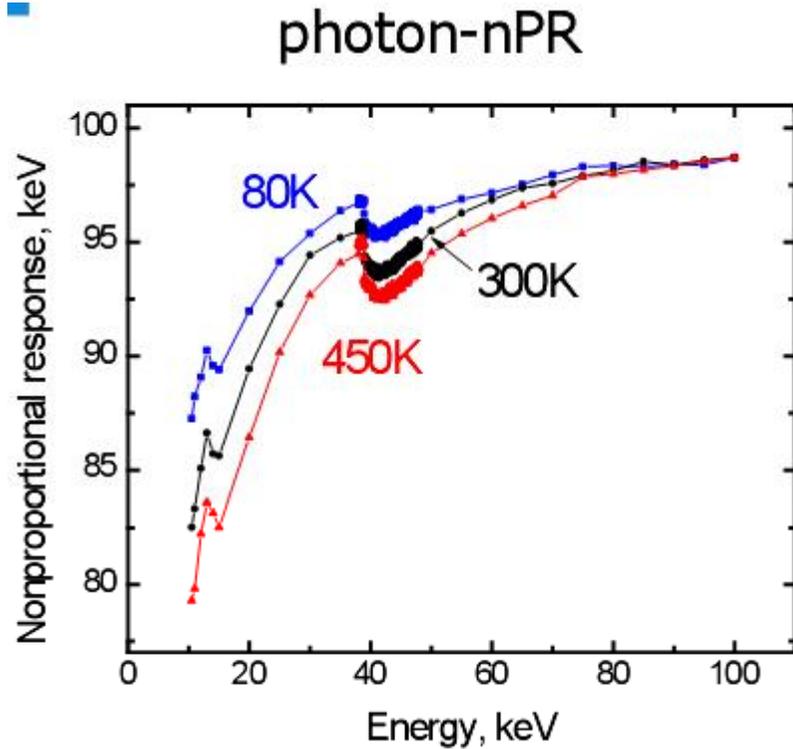
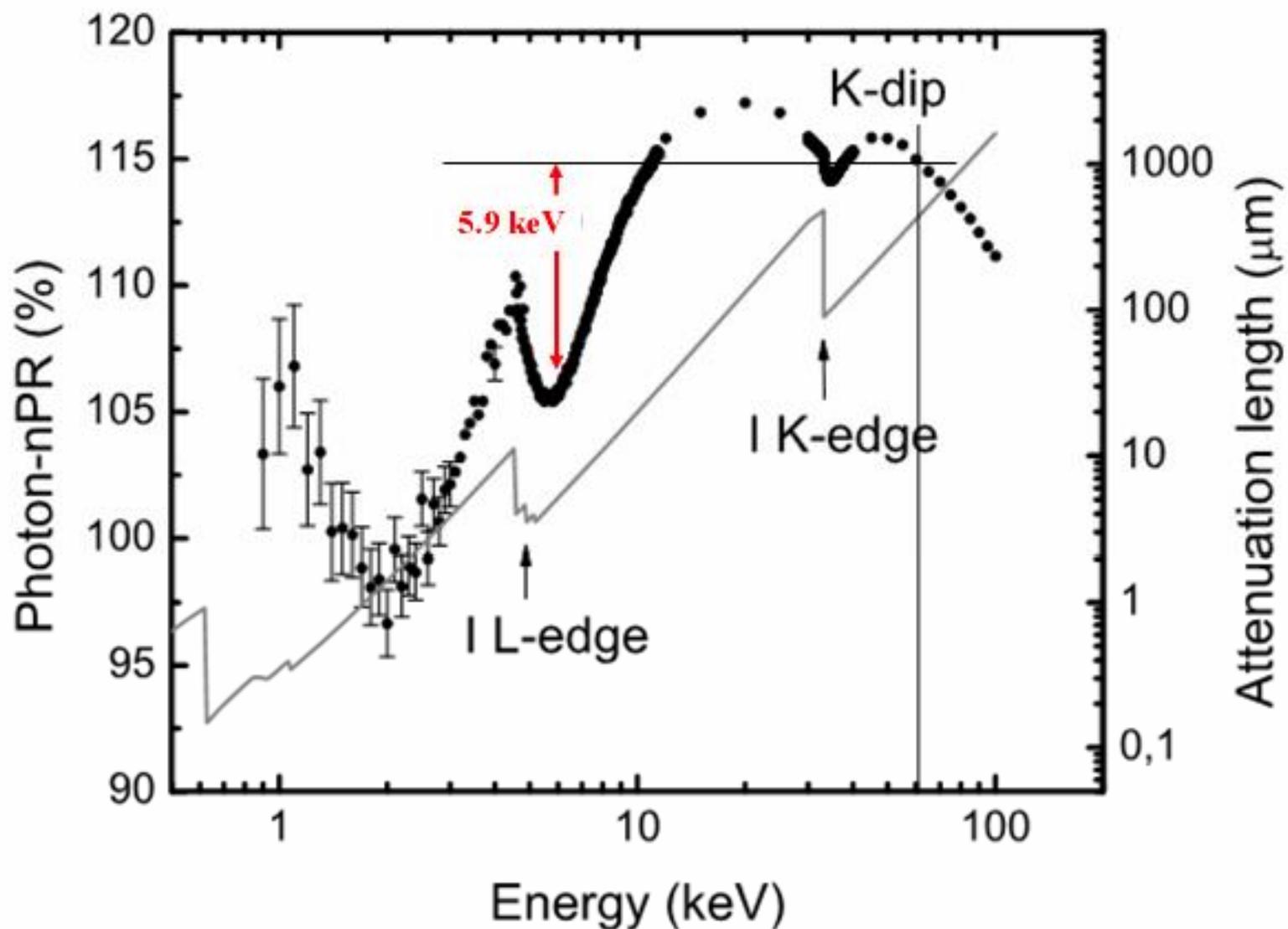


Fig. 1. Schematic view of the experimental setup.

# Фундаментальные ограничения $R$

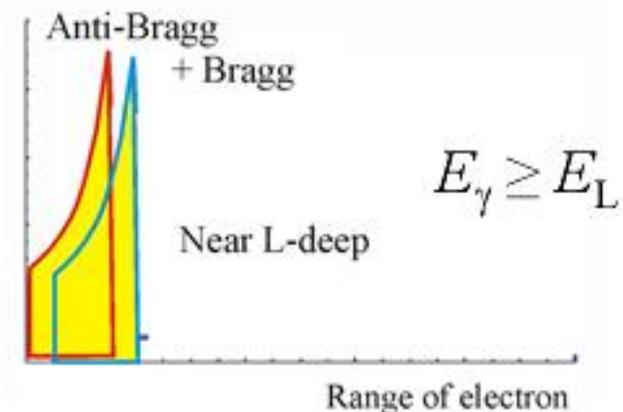
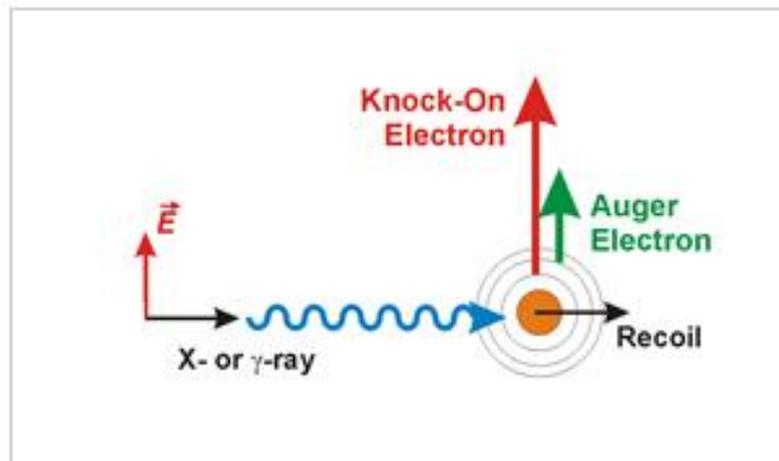
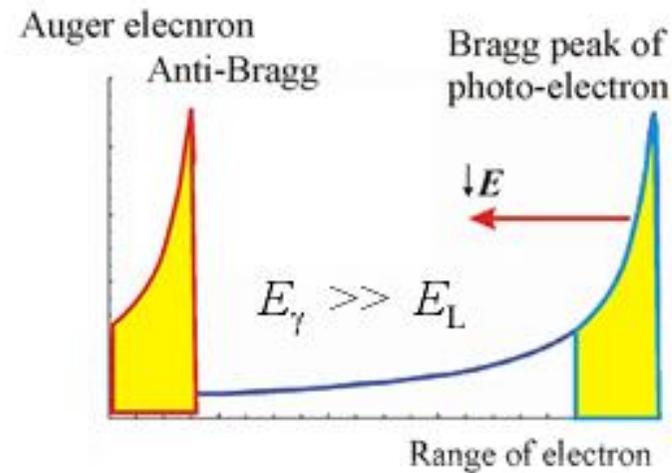
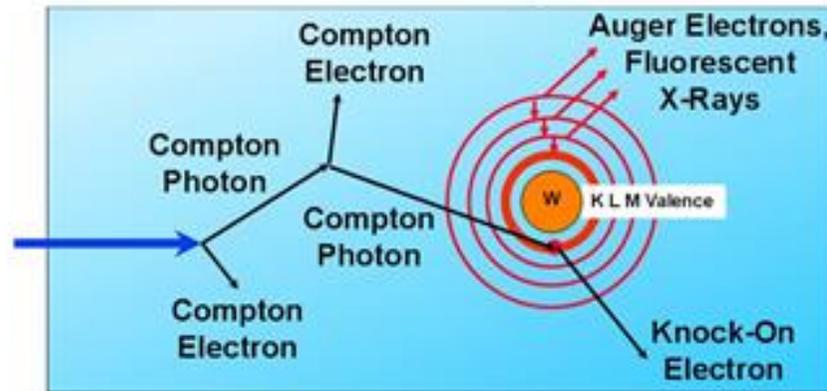


Что будет у К- или L-края? Какова структура трека?



Точку 5,9 кэВ можно поднять от 106 до 115% за счет  $C_{\text{TI}}$   
 Известно, что  $(L/E)_{5,9}$  не меньше  $(L/E)_{60}$ , если  $C_{\text{TI}} > 0.1\%$

# Антибрэгговский пик в месте рождения

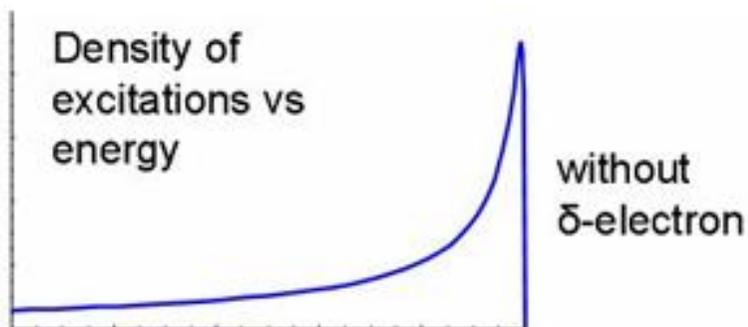


Ядро получает импульс отдачи

Направление электрона совпадает с  $\vec{E}$

Плотность ионизации резко увеличена у L-края

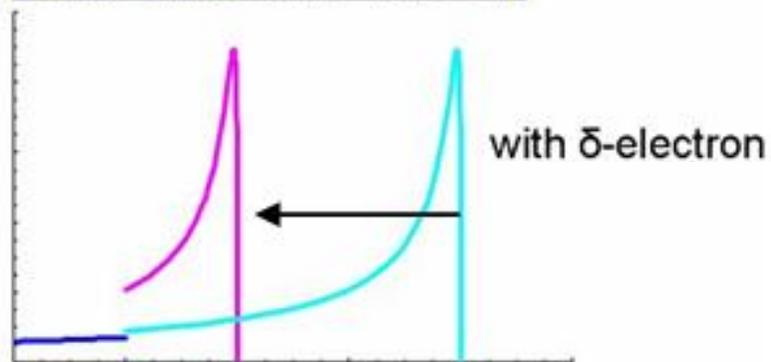
# Антибрегговский пик в точке рождения каскада и фотоэлектрона



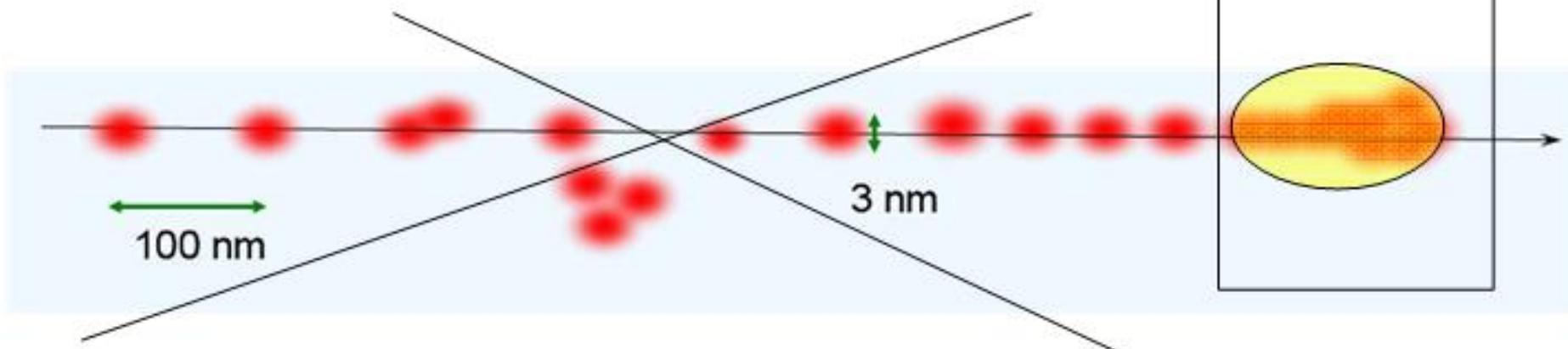
Возле  $L$ -края NaI  
 0,871 кэВ  
 0,871 кэВ  
 3,445 кэВ  
 $E_\gamma = 5.187$  кэВ

Если в точке рождения Брэгг + Антибрэгг, то

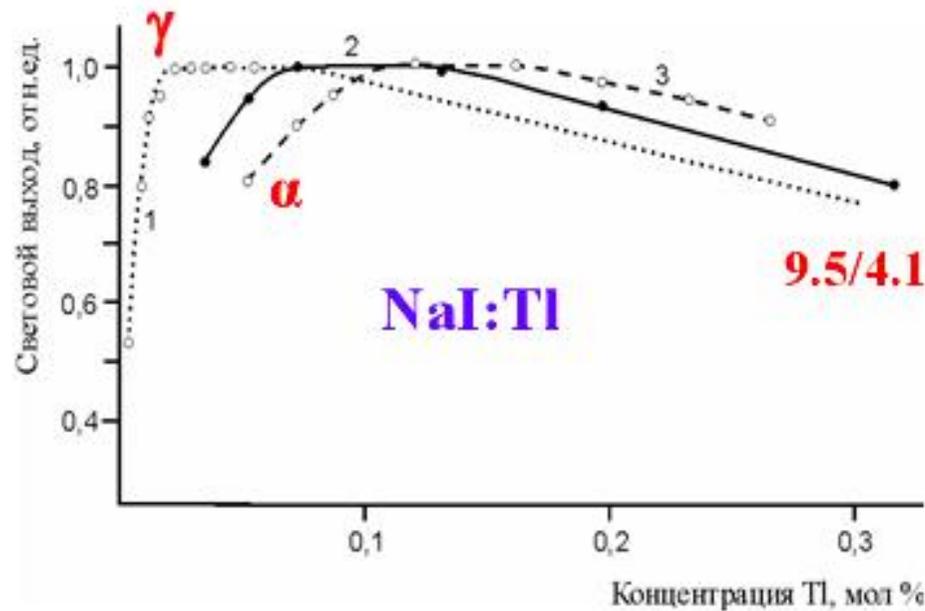
$$dE/dx^3 \times 2 !!!$$



Всё событие



## Концентрационные зависимости выхода



Концентрация пар  $e-h$ -пар в треке электрона:

$$9.5/4.1 \approx 2 \left\{ \begin{array}{l} 4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3} \text{ для } 662 \text{ кэВ (1, } \gamma) \\ 9,5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3} \text{ для } 5,9 \text{ кэВ (2)} \\ 1,3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3} \text{ для } \alpha \\ (5,15 \text{ МэВ}) \end{array} \right.$$

**Объемная  $dE/dx^3$  увеличена вдвое в провале у L-края**

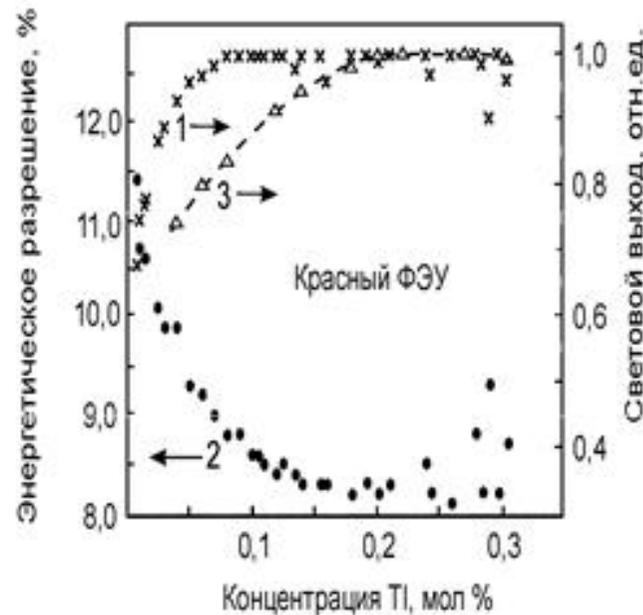
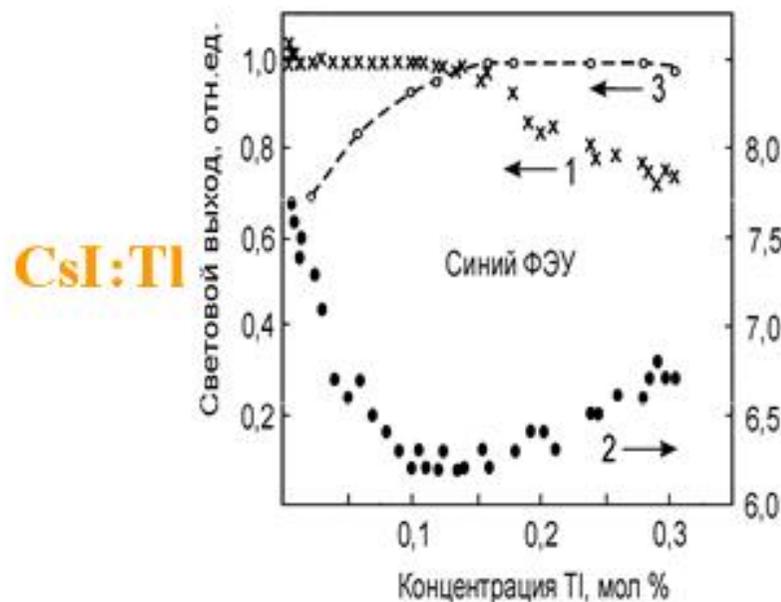
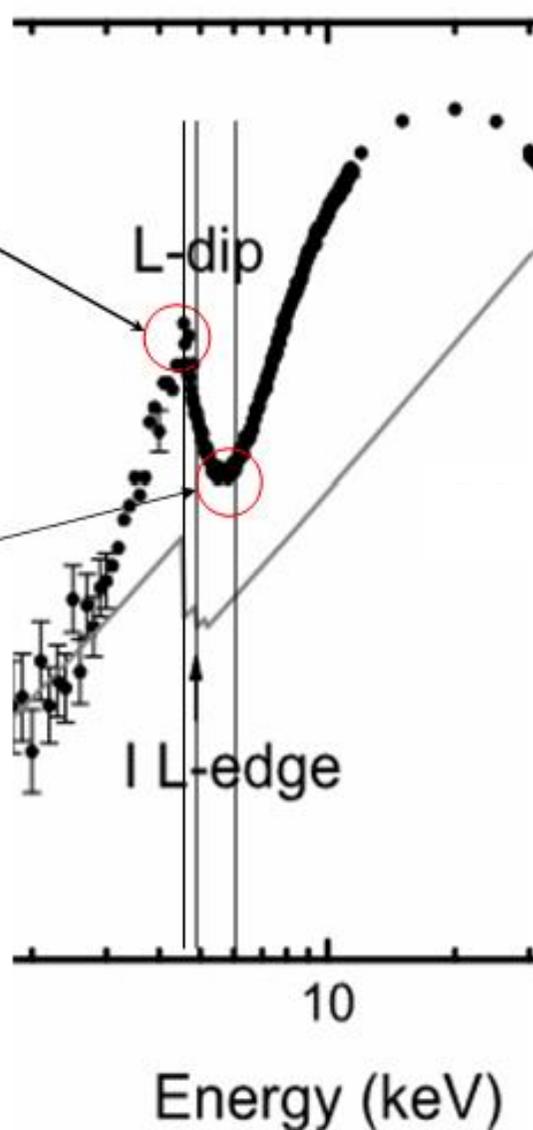


figure: I. Khodyuk, P. Dorenbos IEEE TNS, 2012

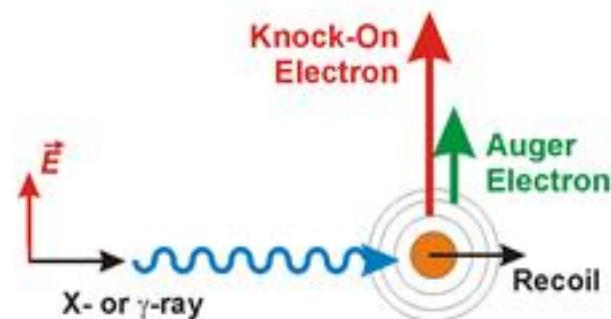
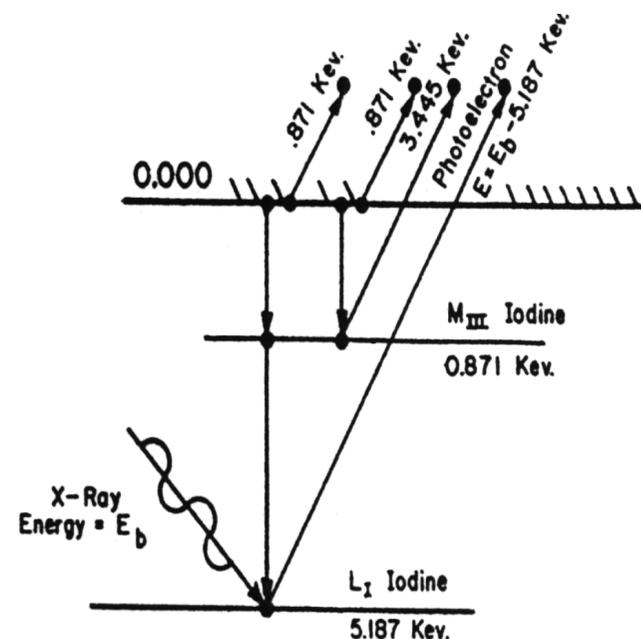
Только каскад  
(Оже-электрон  
+ X-кванты)  
не увеличивает  
 $dE/dx$

Каскад +  
фотоэлектрон  
увеличивает  
 $dE/dx$

Для роста  
 $dE/dx$  нужен  
второй электрон



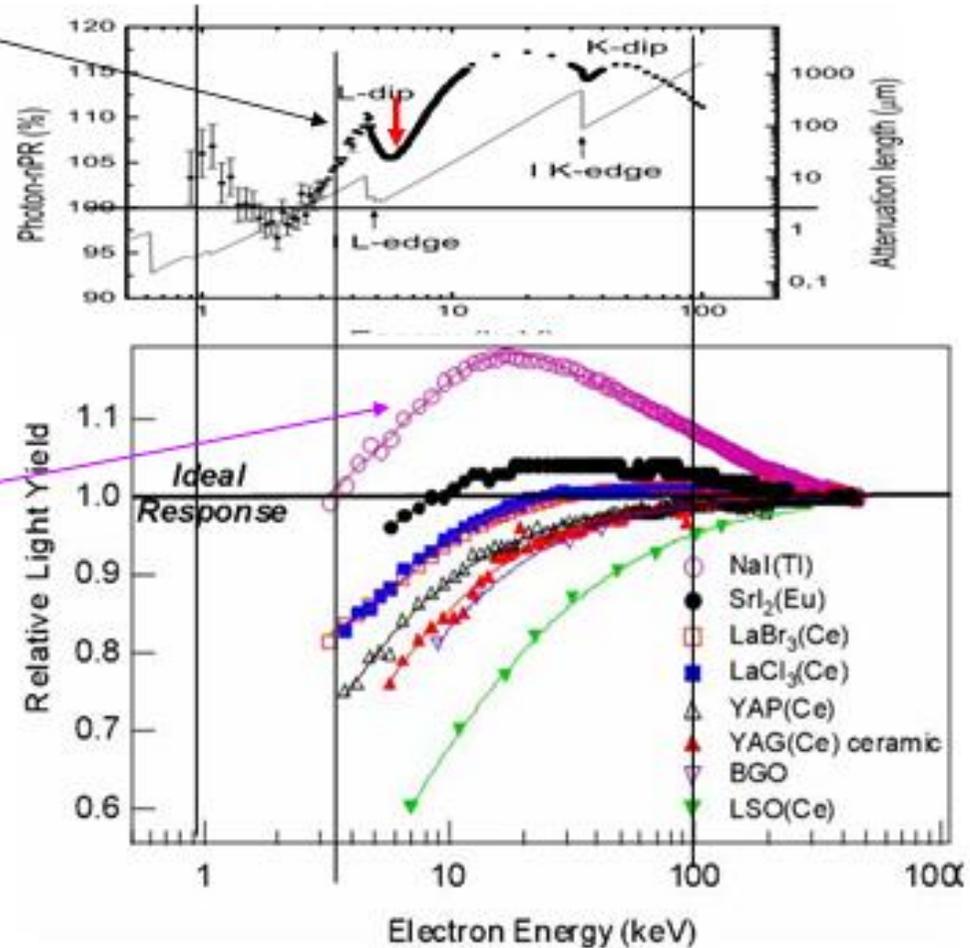
### Каскад при $E_\gamma$ ниже K-края



# Фотонный и электронный отклик кристаллов NaI:Tl

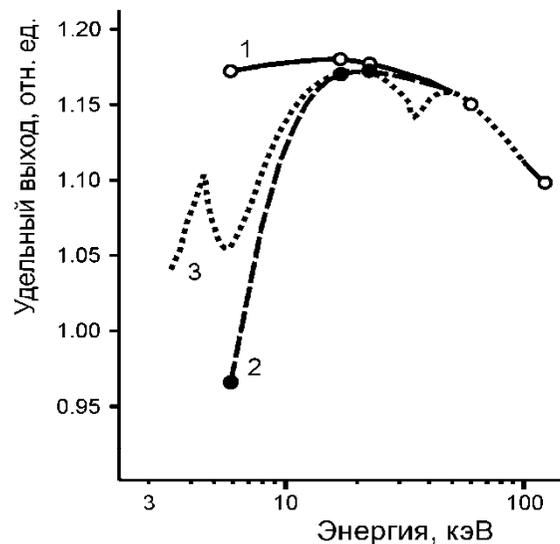
Концентрация Tl  
повлияет на  
глубину провала

Мертвый слой  
повлияет на ход  
электр. отклика  
(абсурд?!!!!)



# Фотохимическая модификация поверхности кристаллов NaI:Tl

## Мертвый слой

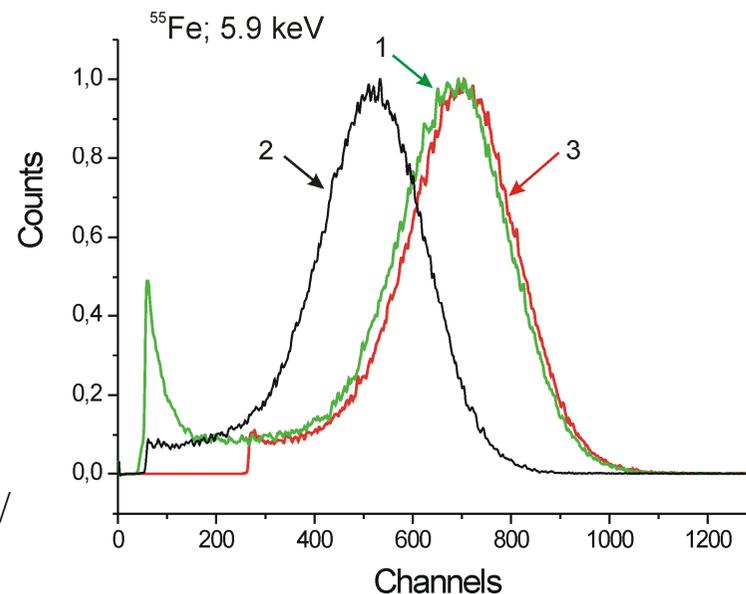


**nPR в области низких энергий для кристалла NaI:Tl**

Амплитудные спектры кристалла NaI:Tl  
зеркальный скол (1),  
гидратированный скол (2),  
на следующий день после РХО (3).

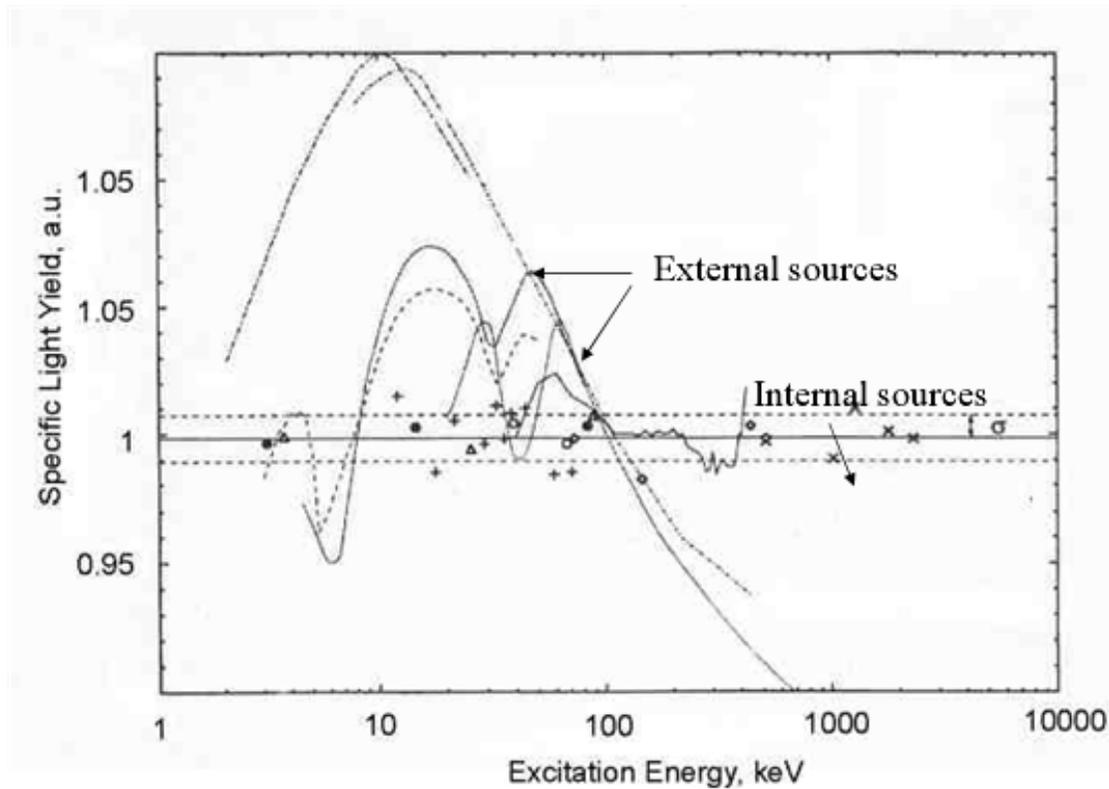
## Влияние ФХО на световой выход и энергетическое разрешение кристаллов NaI:Tl

Условия измерений	$L$ , каналы	$R$ , %
Свежий скол	662	<b>40.5</b>
Гидратирован. скол	502	<b>50.2</b>
РХО, через час	645	38.6
РХО, через день	702	<b>37.9</b>



Кудин К.А., Шкоропатенко А.В., Волошко А.Ю., и др. // *Физическая инженерия поверхности*. 9 (2011) 256-261

## Dependence of $L/E$ on $E$ for internal and external sources



(Leutz H. and D'Ambrosio C., 1997)

В качестве вывода: исследование влияния состояния поверхности на непропорциональность выхода (особенно в области низких энергий, особенно возле К- и L-края) приобретает важнейшее значение.