

Pokroky matematiky, fyziky a astronomie

K. Swank

Charakteristiky scintilačních látek

Pokroky matematiky, fyziky a astronomie, Vol. 2 (1957), No. 2, 213--218

Persistent URL: <http://dml.cz/dmlcz/137293>

Terms of use:

© Jednota českých matematiků a fyziků, 1957

Institute of Mathematics of the Academy of Sciences of the Czech Republic provides access to digitized documents strictly for personal use. Each copy of any part of this document must contain these *Terms of use*.



This paper has been digitized, optimized for electronic delivery and stamped with digital signature within the project *DML-CZ: The Czech Digital Mathematics Library* <http://project.dml.cz>

polovaná přímka protíná vodorovnou osu v bodě odpovídající energii asi 500 keV. V případě pevných nebo kapalných scintilačních látek se tato okolnost vysvětluje nasycením; to znamená, že množství vycházejícího světla se stává více nelineárním s rostoucí hustotou ionisace. V případě plynné scintilační látky nenastává nasycení. Je to možno pozorovat z toho, že body odpovídající protonům, deuteronům a heliovým iontům leží všechny na jedné přímce. Není prozatím jasné, proč přímky protínají osu v kladné hodnotě energie.

Tento typ počítače má řadu výhodných vlastností, které by bylo možno použít při konstrukci teleskopických aparatur. Dále je možno použít počítač k detekci několika velkých pulsů v přítomnosti intenzivního pozadí malých pulsů — na příklad při počítání štěpných jevů v látkách s velkou aktivitou α . Vzhledem k velké linearitě by bylo možno použít tohoto druhu počítače pro spektroskopii nabitých částic.

Výňatek z práce Ralph A. Noblese z Los Alamos Sc. Lab. — Foto: Fr. Kundrát.

Aleš Fořt

CHARAKTERISTIKY SCINTILAČNÍCH LÁTEK*)

Článek se zabývá převážně jen scintilačními látkami a scintilacemi, které jsou způsobeny vysokoenergetickými částicemi. Scintilační látky jsou seřazeny podle chemické podobnosti.

Rozborem scintilačního procesu si objasníme zákony, jimiž se řídí spektrální rozložení a časovou závislost emise ultrafialových nebo viditelných fotonů, které vznikají při absorpci vysoceenergetické nabitě částice scintilační látkou. Při většině případů, se kterými se setkáváme v nukleární fyzice, se energie částic spotřebuje na excitaci elektronů a na ionisaci v absorpční látce. Přitom vznikají všechny možné excitované stavy včetně ionisace s přebytkem kinetické energie. To je způsobeno přebytečnou energií dopadající částice. Vznik různých primárních excitovaných stavů je hlavně určen silou oscilátorů při přechodech ze základního stavu. V monoatomárním plynu při nízkém tlaku na příklad následuje při excitaci emise spektrálních čar příslušejí různým přechodům z excitovaných k nižším nebo základním stavům. Látky kapalně nebo tuhé ukazují při ozáření rychlými částicemi nepatrnou luminiscenci. Přitom spektra těch látek, které účinně scintilují, ukazují na to, že nastává jeden, nanejvýš několik přechodů z nižších excitovaných stavů do základního stavu. Je možno celkem říci, že scintilační zjevy jsou variací fluorescenčních zjevů, kde excitace jsou způsobovány polem pohybujícího se náboje.

Je ovšem mnoho faktorů, které značně komplikují celý scintilační proces. Harrison (1) ve svých výpočtech ukázal, že fluorescence excitované v benzenu jsou mnohem větší, než by se dalo předpokládat při přímé excitaci nabitou částicí. V tomto případě (a pravděpodobně i v mnoha případech jiných) hlavní část fluorescence, excitovaných částicemi vzniká degenerací vyšších energetických stavů na ty stavy, kde nastává fluorescence. Částice, která způsobí excitaci (přímo nebo nepřímou) do stavu fluorescence může též mít vliv na proces emise. Tento vliv může mít příčinu výlučně v lokálních jevech, jako je chemická disociace, zahřívání, elektrická pole a vzájemné zhasení sousedních excitovaných molekul.

*) Zpracováno podle článku K. Swanka, Annual Reviews of Nuclear Science.

Přestože existuje řada vlastností, která rozlišuje proces scintilační od fluorescenčního, není na závadu někdy použít společného základu k výkladu jevů. Zanedbáme-li pro tento okamžik poruchy v procesu emise způsobené energetickými ztrátami, platí, že počet fotonů emitovaných při scintilaci je roven

$$N = \frac{E_0 q}{\omega}, \quad (1)$$

kde E_0 je počáteční energie rychlé částice, která se zastavila v scintilační látce, ω je průměrná energie, která se spotřebovala na jednu excitaci ve fluorescenčním stavu a q je fluorescenční kvantová účinnost. Rovnici (1) není možno vždy použít pro některé složitější jevy. Někdy je totiž třeba respektovat závislost ω nebo q na energii částice. V tomto případě je třeba napsat rovnici (1) ve tvaru diferenciálním

$$dN = -(q/\omega) dE, \quad (2)$$

kde dN je počet fotonů emitovaných při poklesu energie částice z E na $E - dE$.

Většina hodnot scintilační účinnosti, s kterými se setkáváme v literatuře, je uváděna vždy ve spojitosti s citlivostí daného fotonásobiče. Tento druh měření vede k různým výsledkům způsobeným nestejnou závislostí účinnosti fotokathody na vlnové délce, t. j. amplituda scintilace vyjádřená počtem fotoelektronů na katodě je

$$\int_0^{\infty} N \xi(\lambda) \eta(\lambda) d\lambda,$$

kde $\xi(\lambda)$ je část emitovaných fotonů, jejichž vlnové délky leží mezi λ a $\lambda + d\lambda$, $\eta(\lambda)$ je spektrum kvantové účinnosti fotokathody a λ je vlnová délka. Na štěstí byla většina scintilačních účinností měřena na fotokathodě s vrstvou Cs_2Sb . Obr. 1 ukazuje velikost tohoto jevu. Zde spektrum relativní kvantové účinnosti fotonásobiče typu RCA 5819 je znázorněno současně s emisními spektry dvou organických scintilačních látek. Z obr. 1 se dá vypočíst, že výška pulsu z fotonásobiče pro látku s terfenylem je rovna 78% výšce pulsů z látky s tetrafenylbutadienem, a kdežto poměr vystupujícího světla je 1,10. Při měření má určitý vliv na výsledky různá optická dokonalost vzorků nebo jejich indexy lomu.

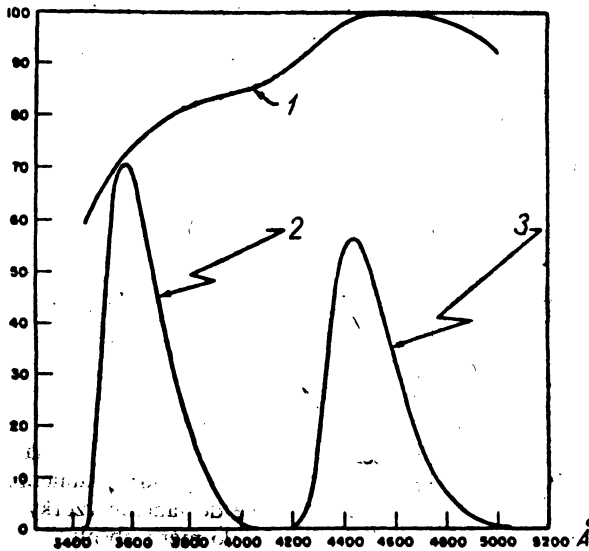
Tabulka 1.

Absolutní scintilační účinnost antracenu při excitaci vysoceenergetickými částicemi

Pracovníci	Datum	Účinnost $Nh\nu/E_0 \times 100\%$	Energie zapotřebí k tvorbě fotonu (ev)
Harrison (1)	1951	4,2	65
Birks a Szendrei (3)	1953	3,7	70
Furst, Kallmann a Kramer (4) . .	1953	10	26

Při určování relativních účinností je zapotřebí si definovat určitý referenční materiál. Nejvíce se prozatím používal antracen, což je volba dosti nešťastná vzhledem k tomu, že antracen se velmi těžko čistí a tedy výroba dokonalých krystalů není lehká. Sangster (2) na příklad ukázal, že i při nejopatrnější přípravě dostaneme vzorky, které dávají pulsy lišící se až o 20%. Několik pracovníků se pokusilo měřit absolutní účinnost antracenu. Výsledky pokusů jsou uvedeny v tab. 1.

Většina scintilačních látek je alespoň částečně průhledná pro vlastní záření. Tento jev můžeme pochopit, když vezmeme v úvahu základní proces absorpce a emise záření molekulou scintilační látky. Thermická energie molekuly ji nutí k oscilacím kolem bodu nejnižší potenciální energie. Tyto oscilace jsou kvantovány na vibrační hladiny v základním stavu a v excitovaném stavu. Při normálních teplotách se molekuly dostanou do rovnováhy v nižších vibračních stavech. Obecně rovnovážná energie v základním stavu je jiná než ve stavu excitovaném. Tento fakt spolu s Franc-Codonovým principem znamená, že molekula zůstane ve vysoké vibrační hladině excitovaného stavu při absorpci fotonu. Molekula je uvedena na okamžik ze stavu tepelné rovnováhy s okolím, ale v krátké době (10^{-13} až 10^{-12} sec) se její stav upraví vydáním vibrační energie. Podobná úprava nastane po emisi fluorescenčního fotonu. Z toho plyne, že emisní spektrum molekuly je posunuto vzhledem k absorpčnímu spektru směrem k delším vlnovým délkám. Rozdíl mezi vlnovými délkami absorpčních a emisních kvant je statistická veličina, která závisí na počátečních a konečných tepelných stavech molekul. V několika případech může mít emitované záření kratší vlnovou délku než absorbovaná kvanta. Tvar energetického rozložení je různý vlivem tepelných fluktuací sousedních molekul. Tedy přestože má emisní spektrum průměrně delší vlnovou délku než spektrum absorpční, velmi často se překrývají. Tento jev je zobrazen na obr. 2, kde plocha označená a je úměrná počtu fotonů emitovaných při jedné scintilaci. Vzhledem k překrývání spektrálních oblastí nastává vlastní selektivní absorpce krátkých vlnových délek, takže menší počet fotonů znázorněných plochou b je propuštěn. Tyto fotony, které jsou reabsorbovány, budou excitovat podobné molekuly do stejného stavu, takže část q reabsorbovaných fotonů způsobí druhou generaci fotonů. Jelikož nastane thermická rovnováha mezi absorpcí a emisí, bude mít druhá generace fotonů stejné spektrální rozložení jako prvá. Birks a Little (5) ukázali, že počet fotonů, které nakonec uniknou, může být spočten za předpokladu, že při každé generaci vzniká stejný počet fotonů. Vliv difuze je tedy zanedbáván, ale vzhledem k tomu,

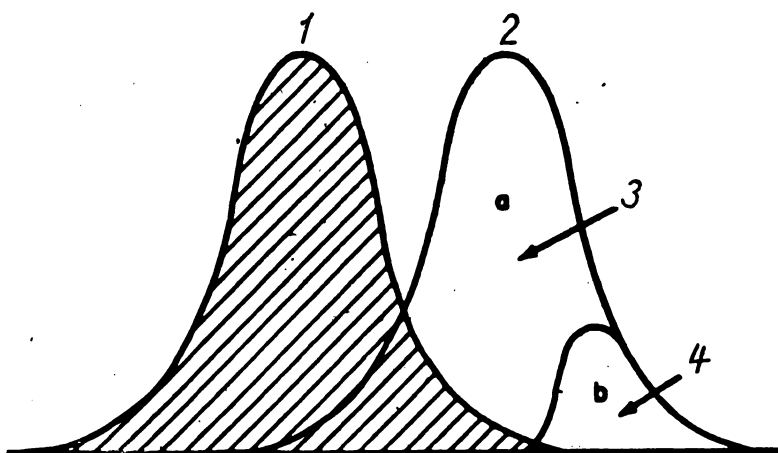


Obr. 1

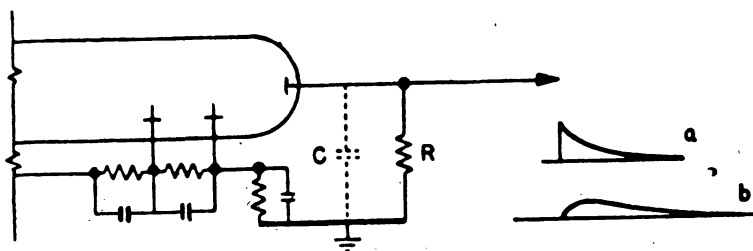
že většinou nenastane více než 10 hlavních generací a difuze směrem od zdroje je malá, je předpoklad velmi dobrý. Potom poměr počtu pozorovaných fotonů k počtu fotonů emitovaných je

$$\frac{N_{\text{poz}}}{N} = \frac{b/a}{1 - q(1 - b/a)} \quad (3)$$

a spektrální rozložení pozorovaných scintilací má stejný tvar jako křivka b . Tento poměr se blíží b/a , když q je velmi malé a blíží se 1, když q se blíží 1. To znamená, že silná scintilační látka s vysokou fluorescenční účinností může mít značnou vlastní absorpci při malé ztrátě výšky pulsů. Vlastní absorpce není tak závažná v případě aktivovaných scintilačních látek, neboť nastane zmenšení excitační energie při přechodu excitace hlavní látky na emisní centra. Totéž platí pro scintilační látky používající „posouvače vlnových délek“, které absorbují primární fluorescenční záření a reemitují delší vlnové délky.



Obr. 2



Obr. 3

K měření relativní scintilační účinnosti se používá jedné ze dvou metod. V první metodě ozáříme scintilační látku ze zdroje poměrně velké intenzity. Stálou hodnotu emitovaného světelného toku určíme tak, že měříme průměrný nebo stejnosměrný proud fotonásobičem. Při konstantním ozařování změříme ustálený proud, který je úměrný

průměrnému celkovému množství světla emitovaného na jednu scintilaci nezávisle na zpoždění mezi excitací a emisí světla. Druhá metoda spočívá v tom, že se měří amplitudy světelných pulsů odpovídající absorpci jednotlivých rychlých částic v scintilační látce. Jestliže máme pozorovat vhodné množství pulsů za jednotku času, musíme omezit dobu, po kterou je možno jeden puls pozorovat. Pozorovací nebo „integrační dobu“ zařízení k registraci pulsů můžeme vysvětlit pomocí obr. 3. Tento obrázek ukazuje typický anodový obvod fotonásobiče a současně obvyklé tvary pozorovaných pulsů. Tvar pulsu je částečně určen časovou konstantou RC a částečně dosvitem scintilační látky. Předpokládejme, že scintilační látka je excitována při čase $t = 0$ částicí o vysoké energii a že část (všech fluorescenčních) fotonů emitovaných v intervalu $t, t + dt$ může být vyjádřena funkcí $f(t)dt$. Množství emitovaných fotonů pro $t > 0$ je $Nf(t)$ a anodový proud fotonásobiče (nebereme v úvahu časové ztráty ve fotonásobiči) bude

$$I(t) = Ng \eta Gef(t), \quad (4)$$

kde g je část emitovaného světla, které je zachyceno fotokathodou, η je průměrná kvantová účinnost fotokathody pro emitované spektrum, G je násobící činitel fotonásobiče. Jelikož se anodový proud rozdělí mezi R a C , bude anodové napětí dáno řešením diferenciální rovnice

$$I(t) = \frac{V}{R} + C \frac{dV}{dt}. \quad (5)$$

Pro případ, kdy $f(t)$ je dáno exponenciální funkcí $(1/\tau)e^{-t/\tau}$, bude mít napětí tvar

$$V(t) = \frac{Ng \eta Ge}{C} \left(\frac{RC}{RC - \tau} \right) (e^{-t/RC} - e^{-t/\tau}) \quad (6)$$

a amplituda pulsu bude

$$V_{\max} = (Ng \eta G/C) 1/1 - \gamma,$$

kde

$$\gamma = RC/\tau. \quad (7)$$

Amplituda závisí na parametru τ a na časové konstantě RC . Když v rovnici (7) je $RC \gg \tau$, je amplituda pulsu nezávislá na τ . Tato podmínka je nutná k tomu, aby měření kvantových účinností metodou amplitud souhlasilo s měřením stejnosměrného proudu. To znamená, že proces emise musí být ukončen v mnohem kratší době než je časová konstanta obvodu. Celá situace je navíc komplikovaná složitostí scintilačního procesu. Křivka má obvykle exponenciální tvar následovaný jednou nebo dvěma dlouhými vlnami. Tyto dlouhé vlny byly předmětem výzkumu řady autorů, kteří zjistili, že organické kapalné scintilační látky, které se mohou používat k referenčním účelům, tyto vlny nevysílají.

Důležitým faktorem při měření účinnosti je volba vhodného zdroje. K měření účinnosti scintilační látky pro rychlé elektrony se používá buď zdroje paprsků β nebo rychlých elektronů nebo záření γ , při čemž rychlé elektrony vznikají uvnitř krystalu. Podle atomové váhy látky se používá zdrojů z vnitřní konverzí nebo záření γ , kde se využívá fotoelektrické absorpce. Jako příklad je možno uvést Cs^{137} , které má elektrony (vnitřní konverze) s energií 624 keV a γ s energií 662 keV. Je možné též použít metody, při níž se měří stejnosměrné napětí na výstupu při excitaci zářením γ . Tato metoda někdy vede k určitým nesrovnalostem. Skládá-li se totiž scintilační látka pouze z lehkých prvků a je-li energie γ dostatečně vysoká, dostaneme pouze Comptonovy elektrony. Absorpční

schopnost scintilační látky je potom úměrná počtu elektronů, které obsahuje. Jestliže stěny, které obklopují scintilační látku, jsou zhotoveny z materiálu o malé atomové váze, je možno scintilační látky různých velikostí a hustoty vzájemně porovnávat po dělení naměřené hodnoty počtem elektronů obsažených v látkách. Jestliže je však atomová váha stěn scintilační látky příliš velká a přitom energie γ malá, je záření úplně absorbováno scintilační látkou a výsledky měření jsou závislé na vzájemné geometrii zdroje a scintilační látky. Účinnost také závisí na teplotě. Ve většině případů se s rostoucí teplotou snižuje účinnost. Kallmann (6) ukázal, že účinnost organických krystalů klesá s rostoucí teplotou a při bodě tání je prakticky rovna nule. Anorganické krystaly jsou prakticky nezávislé na teplotě do určité hodnoty, kde potom nastává rychlý pokles účinnosti. Pokles účinnosti můžeme často vyjádřit ve tvaru

$$N = \frac{N_0}{1 + \alpha^{(-\varepsilon/kT)}} \quad (8)$$

kde N_0 je počet fotonů emitovaných při nízké teplotě, ε je aktivační energie spojená se zhášením, k je Boltzmannova konstanta a α je konstanta. Tuto rovnici si můžeme vysvětlit takto: jestliže molekula v excitovaném stavu může oscilovat s dostatečnou amplitudou, může se dostat do bodu, kde rozdíl mezi excitovaným a základním stavem je tak malý, že při přeskočení nastane emise elastických vln a nikoliv světla. Pravděpodobnost tohoto jevu je $\exp(-\varepsilon/kT)$, kde ε je energie potřebná k dosažení zhášecích podmínek. Konkurence tohoto procesu a procesu emise vede přímo k rovnici tvaru (8). Řada alkalických halogenidů se řídí rovnicí (8).

Literatura

- [1] Harrison F. B., *Liquid Scintillation Counters and Their Application to the Measurement of the Negative μ -Meson Capture* (Princeton, 1951).
- [2] Sangster R. C., Massachusetts Institute of Technology, Technical Report No. 55 (1952).
- [3] Birks J. B., Szendrei M., Phys. Rev. 91, 197 (1953).
- [4] Furst M., Kallmann H., Kramer B., Phys. Rev. 89, 416 (1953).
- [5] Birks J. B., Little W. A., Proc. Phys. Soc. A66, 921 (1953).
- [6] Kallmann H., *Scintillation Counter Symposium* (Oak Ridge Tenn. 1949) — Atomic Energy Commission Report AECU-583 (1949).

Aleš Fořt