

09

Сцинтилляционные характеристики новых сверхбыстрых кристаллов $\text{Tm:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и $\text{Tm:Ho:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$

© А.И. Загуменный¹, М.В. Белов², В.И. Власов¹, Ю.Д. Заварцев¹, М.В. Завертяев²,
В.А. Козлов², Н.В. Пестовский², С.Ю. Савинов², В.С. Цхай²

¹ Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, Москва, Россия

² Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, Россия

E-mail: kozlovva@lebedev.ru

Поступило в Редакцию 6 июня 2025 г.

В окончательной редакции 1 июля 2025 г.

Принято к публикации 3 июля 2025 г.

Впервые выращены новые кристаллы-сцинтилляторы $\text{Tm:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и $\text{Tm:Ho:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, обладающие ультракоротким временем высвечивания. Исследованы спектры импульсной катодолюминесценции новых сцинтилляторов, световыход и их время высвечивания. Показано, что постоянная времени затухания сцинтилляционного импульса кристаллов $\text{Tm:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и $\text{Tm:Ho:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ составляет 0.9/6 и 0.7/4.8 ns соответственно.

Ключевые слова: сцинтилляционные кристаллы, гамма-излучение, время затухания сцинтилляций, импульсная катодолюминесценция.

DOI: 10.61011/PJTF.2025.19.61144.20399

Неорганические сцинтилляторы на основе люминесценции с переносом заряда на ион Yb^{3+} со сверхкоротким временем сцинтилляции являются перспективными материалами для будущих применений в физике высоких энергий, а также в экспериментальных установках с использованием высокоинтенсивных рентгеновских лазеров на свободных электронах. Показано, что сцинтилляционная керамика $\text{Lu}_2\text{O}_3:\text{Yb}$ имеет время сцинтилляции $\tau = 1.1$ ns [1].

В настоящее время в физике высоких энергий в экспериментах CMS на коллайдере в ЦЕРН (Швейцария) применяются 78 000 сцинтилляционных модулей на основе кристалла PbWO_4 , имеющего световыход 25–35 photons/MeV [2]. Решающими параметрами в выборе кристалла PbWO_4 были низкая цена производства модулей из PbWO_4 и короткое время сцинтилляции.

Время сцинтилляции PbWO_4 зависит от малых концентраций примесей: например, для 0.5 at. ppm La времена высвечивания составляют $\tau_1 = 4.0$ ns (34%), $\tau_2 = 17$ ns (54%) и $\tau_3 = 129$ ns (12%), а для 85 at. ppm La — $\tau_1 = 3.7$ ns (84%) и $\tau_2 = 53$ ns (16%) [3].

Для будущих коллайдеров будет иметь значение цена производства сцинтилляционных модулей из новых кристаллов (керамики) со сверхкоротким временем сцинтилляции. Высокоэффективные кристаллы $\text{Ce:Lu}_2\text{SiO}_5$ уступают кристаллам на основе иттербия ввиду высокой стоимости лютетия, поскольку стоимость Yb_2O_3 в несколько раз ниже стоимости Lu_2O_3 . Другим важным преимуществом сцинтилляционного материала является возможность выращивания кристаллов большого диаметра (~ 100 mm [4]) и изготовления прозрачной оптической керамики [5]. Этим требованиям удовлетво-

ряют кристаллы со структурой граната, в частности $\text{Tm:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и $\text{Tm:Ho:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$.

Ранее нами выращен и исследован новый лазерный кристалл граната $\text{Tm:Ho:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ [6]. Разработана технология роста и выращены были $\text{Tm:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и $\text{Tm:Ho:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ длиной 80 mm с высоким оптическим качеством методом Чохральского в тигле диаметром 40 mm с радиочастотным нагревом, чистота иридия составляла 99.989%, использовалась защитная атмосфера 99.9% $\text{Ar} + 0.01\%$ O_2 . Скорость роста составляла 6–7 mm/h, скорость вращения 10 rpm. Оптимальным считался рост кристалла с использованием монокристаллической затравки с кристаллографической ориентацией (001). Концентрации ионов Tm^{3+} и Ho^{3+} в расплаве составляли 5.7 и 0.7 at.% соответственно. Исследованы спектрально-люминесцентные характеристики. В экспериментах получена лазерная генерация иона Ho^{3+} в кристалле Tm:Ho:YbAG с $\lambda = 2100$ nm, накачиваемого на $\lambda = 1678$ nm в линию поглощения на переходе ${}^3H_6 - {}^3F_4$ иона Tm^{3+} . В настоящей работе приведены сцинтилляционные характеристики сверхбыстрых кристаллов гранатов $\text{Tm:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и $\text{Tm:Ho:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ с плотностью 6.6 g/cm³ и эффективным атомным номером $Z = 57.9$. Спектры коэффициентов поглощения для полированных образцов кристаллов $\text{Tm:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и $\text{Tm:Ho:Yb}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ измерялись при комнатной температуре спектрофотометром UNICO 2800 UV-VIS (рис. 1). Наблюдаемые электронные переходы в спектре поглощения происходят из основного состояния 3H_6 на более высокие уровни 3H_4 , 3F_3 , 1G_4 , 1D_2 и 3P_2 иона Tm^{3+} с конфигурацией электронной оболочки $4f_{12}$. В ионе Ho^{3+} электроны из основного состояния 5I_8 поднимаются на вышележащие уровни 5F_5 , 5S_2 , 5F_4 , 5F_3 , 5G_5 .

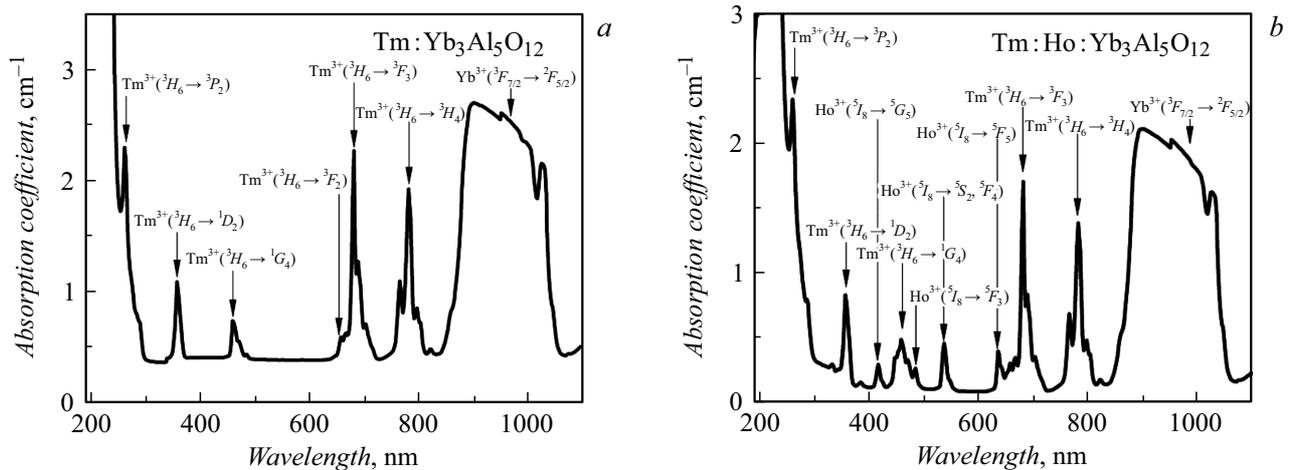


Рис. 1. Спектры коэффициентов поглощения для полированных образцов кристаллов Tm:Yb₃Al₅O₁₂ (a) и Tm:Ho:Yb₃Al₅O₁₂ (b).

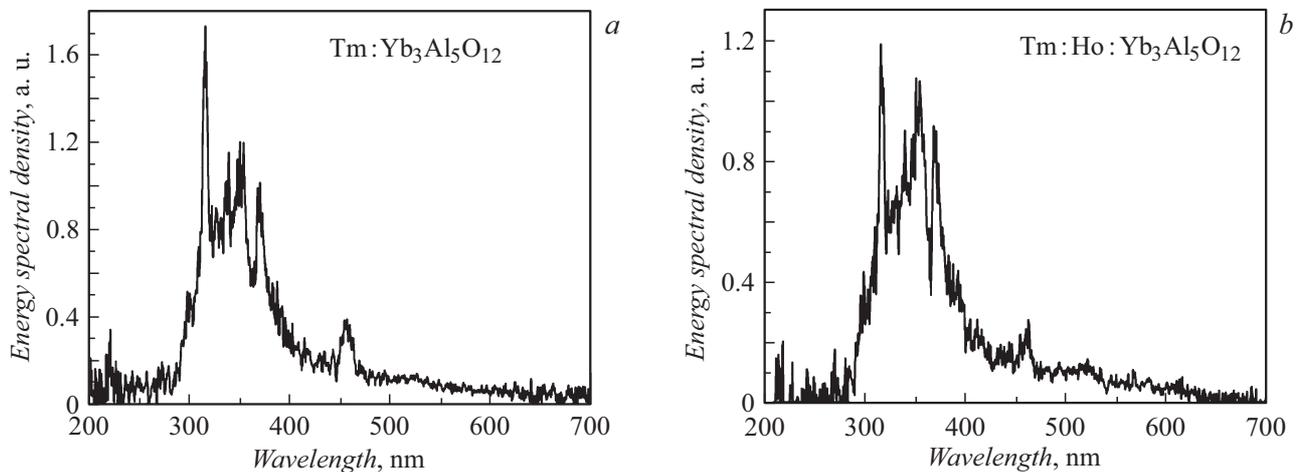


Рис. 2. Спектры ИКЛ для кристаллов Tm:Yb₃Al₅O₁₂ (a) и Tm:Ho:Yb₃Al₅O₁₂ (b) при комнатной температуре.

При комнатной температуре в кристаллах Tm:Yb₃Al₅O₁₂ и Tm:Ho:Yb₃Al₅O₁₂ исследована импульсная катодолуминесценция (ИКЛ), возникающая при мощном ($\sim 10 \text{ MW/cm}^2$) кратковременном ($\sim 2 \text{ ns}$) воздействии на образец электронного пучка со средней энергией электронов 150 keV ускорителя РАДАН-ЭКСПЕРТ [7]. Электронный пучок диаметром 20 mm был направлен сверху вниз на исследуемый образец. Излучение от образца попадало на световод, расположенный на расстоянии 20 mm от облучаемой электронами поверхности кристалла, и транспортировалось на вход спектрометра OCEAN USB2000 со спектральным диапазоном 200–800 nm.

Калибровка спектральной чувствительности спектрометра OCEAN вместе с присоединенным к нему кварцевым оптоволоконным кабелем выполнена при помощи эталонных галогеновой и дейтериевой ламп OCEAN DH3-plus, для которых спектр излучения известен с точностью $\sim 1\%$.

Полученные спектры ИКЛ являются суммой интенсивностей всех световых сигналов, испущенных в течение 30 s, и представляют собой результат усреднения 30 импульсов люминесценции (рис. 2).

Для оценки световых выходов кристаллов Tm:Yb₃Al₅O₁₂ и Tm:Ho:Yb₃Al₅O₁₂ использовался хорошо известный сцинтилляционный кристалл CeF₃, световой выход которого равен 2400 photons/MeV.

Исследуемый сцинтилляционный кристалл с помощью оптической смазки Dow Corning Q2-3067 был соединен с фотоумножителем Hamamatsu R4125Q с кварцевым окном. Все остальные поверхности кристалла были завернуты в восемь-десять слоев тефлоновой ленты. Сцинтилляции в кристалле возбуждались радиоактивным γ -источником ¹³⁷Cs. Световой выход новых кристаллов (в photons/MeV) определялся путем сравнения их фототока с фототоком от кристалла CeF₃. Предполагая, что чувствительность фотоумножителя к высвечиванию CeF₃ и новых кристаллов одинакова из-за их близко-

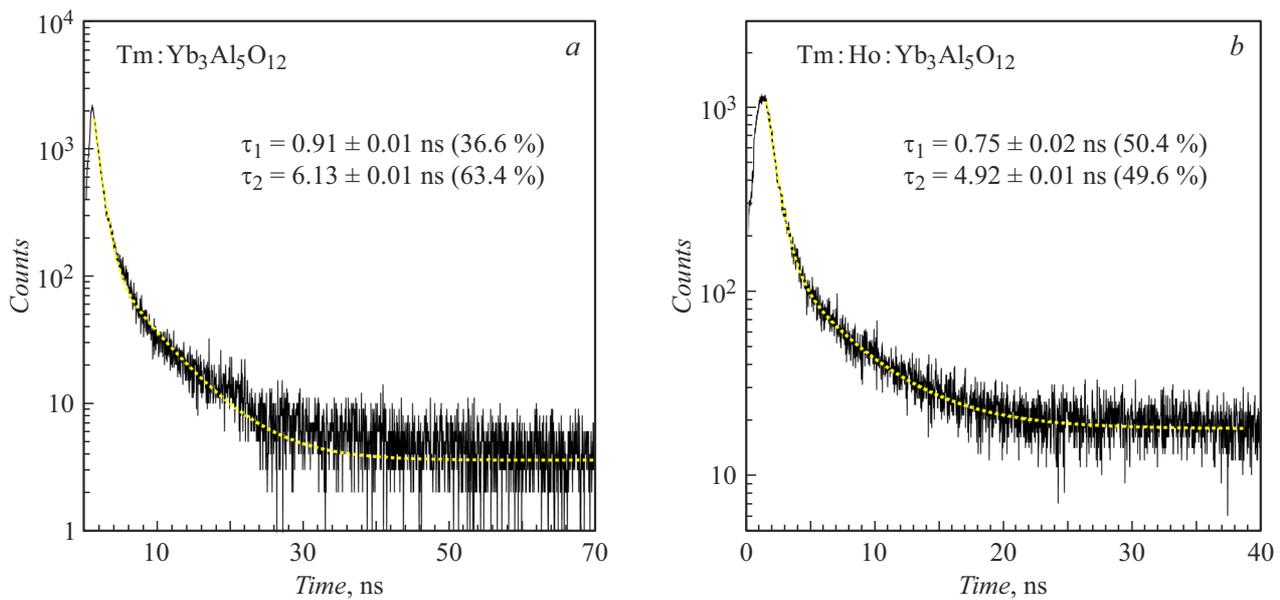


Рис. 3. Зависимость от времени интенсивности высвечивания сцинтилляционных кристаллов Tm:Yb₃Al₅O₁₂ (a) и Tm:Ho:Yb₃Al₅O₁₂ (b).

лежащих эмиссионных спектров, получаем световыход кристаллов Tm:Yb₃Al₅O₁₂ и Tm:Ho:Yb₃Al₅O₁₂ равным 380 ± 65 и 340 ± 70 photons/MeV соответственно.

Для определения времени высвечивания кристаллов Tm:Yb₃Al₅O₁₂ и Tm:Ho:Yb₃Al₅O₁₂ использовался метод „задержанных совпадений“, который заключается в измерении распределения временных интервалов Δt между возбуждением триггерного сцинтиллятора BaF₂ от гамма-квантов радиоактивного источника ²²Na (канал „Старт“) и образованием фотоэлектрона на фотокатод ФЭУ канала „Стоп“, к которому был присоединен исследуемый кристалл. Сигналы с ФЭУ R4125Q каналов „Старт“ и „Стоп“ поступали на дискриминаторы со следящим порогом CAEN C808 и далее на 2048-канальный времяцифровой преобразователь (TDC) КА-317, информация с которого считывалась в память персонального компьютера. Экспериментальные данные аппроксимировались функцией суммы двух экспонент вида $I(t) = A_1 \exp(-t/\tau_1) + A_2 \exp(-t/\tau_2) + I_0$, где A_1 и A_2 — амплитуды, τ_1 и τ_2 — постоянные затухания компонент соответственно, I_0 — постоянная составляющая. Вклады компонент вычислялись как отношение интеграла компоненты к интегралу функции. На рис. 3 представлена зависимость интенсивности высвечивания от времени для новых кристаллов.

Сравнение спектров ИКЛ и спектров поглощения кристаллов Tm:Yb₃Al₅O₁₂ и Tm:Ho:Yb₃Al₅O₁₂ показывает, что сцинтилляция-люминесценция с максимумом 340 nm выходит из кристалла без сильного поглощения уровнями ³F₃, ¹G₄, ¹D₂ ионов Tm и ⁵S₂, ⁵F₄, ⁵G₅ ионов Ho в области сцинтилляции 320–650 nm иттербия. Это приводит к снижению времени сцинтилляции, что яв-

ляется важным результатом, определяющим научную новизну.

На основе результатов, представленных в настоящей работе, можно рекомендовать дополнительное легирование ионами Tm и Ho для снижения времени сцинтилляции керамики Lu₂O₃:Yb.

Простые оксиды Lu₂O₃ и Yb₂O₃ имеют температуру плавления выше 2400 °C, в то время как температура плавления кристаллов Tm:Yb₃Al₅O₁₂ и Tm:Ho:Yb₃Al₅O₁₂ составляет около 1970 °C, что является существенным преимуществом при промышленном изготовлении объемных сцинтилляционных модулей из керамики. Также эти кристаллы хорошо поддаются механической обработке и полировке.

Новые быстрые сцинтилляторы Tm:Yb₃Al₅O₁₂ и Tm:Ho:Yb₃Al₅O₁₂ перспективны для применения в экспериментальных установках на новом российском коллайдере NICA (Nuclotron-based Ion Collider fAcility, Объединенный институт ядерных исследований, Дубна).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] C. Hu, L. Zhang, R. Zhu, L.S. Pandian, Y. Wang, J. Glodo, *Instruments*, **6** (4), 67 (2022). DOI: 10.3390/instruments6040067
- [2] M. Kobayashi, Y. Usuki, M. Ishii, M. Nikl, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A*, **486**, 170 (2002). DOI: 10.1016/S0168-9002(02)00697-6

- [3] M. Kobayashi, Y. Usuki, M. Ishii, T. Yazawa, K. Hara, M. Tahaka, M. Nikl, K. Nitsch, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, **399**, 261 (1997). DOI: 10.1016/S0168-9002(97)00929-7
- [4] S.E. Stokowski, M.H. Randles, R.C. Morris, IEEE J. Quantum Electron., **24** (6), 934 (1988). DOI: 10.1109/3.214
- [5] Y. Fujimoto, T. Yanagida, S. Wakahara, H. Yagi, T. Yanagidani, S. Kurosawa, A. Yoshikawa, Opt. Mater., **35**, 778 (2013). DOI: 10.1016/j.optmat.2012.06.008
- [6] Ю.Д. Заварцев, А.И. Загуменный, Ю.Л. Калачев, С.А. Кутовой, В.А. Михайлов, И.А. Щербаков, Квантовая электроника, **46** (3), 189 (2016). [Yu.D. Zavaritsev, A.I. Zagumennyi, Yu.L. Kalachev, S.A. Kutovoi, V.A. Mikhailov, I.A. Shcherbakov, Quantum Electron., **46** (3), 189 (2016). DOI: 10.1070/QEL15917].
- [7] В.Н. Афанасьев, В.Б. Бычков, В.Д. Ларцев, В.П. Пудов, В.И. Соломонов, С.А. Шунайлов, В.В. Генералова, А.А. Громов, ПТЭ, № 5, 88 (2005). [V.N. Afanas'ev, V.B. Bychkov, V.D. Lartsev, V.P. Pudov, V.I. Solomonov, S.A. Shunailov, V.V. Generalova, A.A. Gromov, Instrum. Exp. Tech., **48**, 641 (2005). DOI: 10.1007/s10786-005-0114-y].