Композитные сцинтилляторы на основе кристалла ZnS(Ag) для регистрации тепловых нейтронов

Е. С. Кузьмин, И. Ю. Зимин, В. Л. Малышев
Лаборатория ядерных проблем им. В.П. Джелепова, ОИЯИ

Г. Д. Бокучава, А. А. Круглов
Лаборатория нейтронной физики им. И.М. Франка, ОИЯИ

Представлены сравнительные исследования двух гетерогенных сцинтилляторов нейтронов на основе кристалла ZnS(Ag). Сцинтилляторы отличаются между собой материалом, который используется для конверсии нейтронов. В первом случае в сцинтилляционном экране типа ND используется механическая смесь кристаллов ZnS(Ag) и ^{6}LiF. Во втором случае в порошковом сцинтилляторе ЛРБ-2 сульфид цинка ZnS(Ag) спекается с оксидом природного бора B_2O_3. Образцы сцинтилляторов экспонировались на пучке тепловых нейтронов и гамма-квантами изотопа ^{60}Co. В результате проведенных измерений были **получены формы импульсов** сцинтилляторов для γ - квантов и нейтронов. **Выполнено описание импульсов** на основании трехкомпонентной модели высвечивания сцинтилляторов. **Предложен метод выделения сигнала захвата нейтрона**. **Оценена эффективность регистрации γ – квантов**.

В работе проведены сравнительные исследования сцинтилляторов с целью изучения возможностей создания сцинтилляционных экранов на основе материалов, произведенных в РФ, взамен труднодоступных в настоящее время экранов типа ND.

Мотивация

Проблемы:

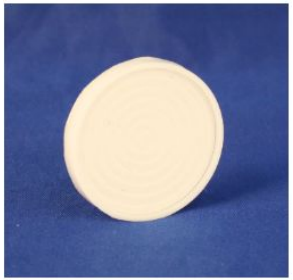
- Выросшая стоимость ^{3}He.
- Сложности с поставкой сцинтилляторов для регистрации тепловых нейтронов известных зарубежных фирм в РФ.

Решение:

- Создание и исследование уже существующих отечественных сцинтилляторов.



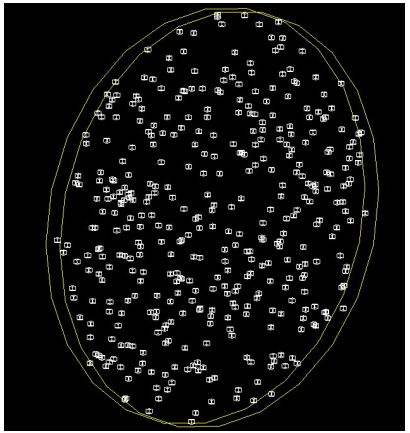
Пропорциональные счетчики на основе ^{3}He



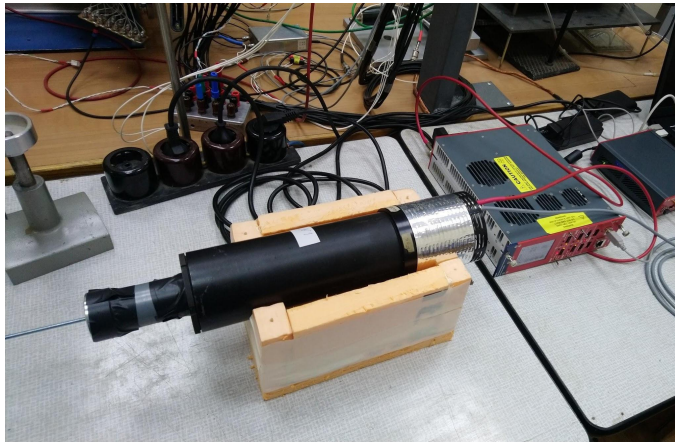
EJ-420 (^{6}LiF/ZnS(Ag))

Предыдущие работы нашей группы

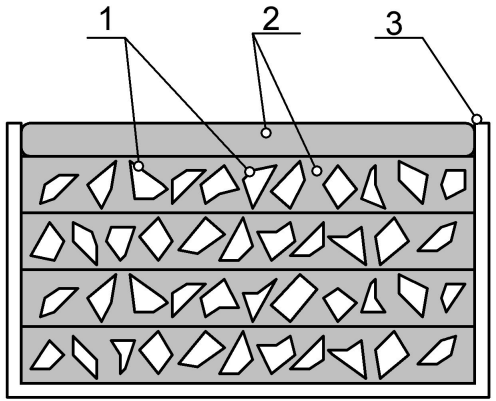
В результате проведенных работ были созданы разных 9 образцов гетерогенных сцинтилляторов на основе литиевого стекла для регистрации тепловых нейтронов. По сравнению с гомогенным стеклянным сцинтиллятором таких же размеров чувствительность к гамма-квантам гетерогенного сцинтиллятора может быть снижена на два порядка, до $4 \cdot 10^{-7}$, при этом эффективность регистрации нейтронов падает лишь от 91 до 56%.



Структура гетерогенного сцинтиллятора. Geant4.



Измерения с источником ^{60}Co



1 — фрагменты стеклянного сцинтиллятора;
2 — полимер; 3 — корпус кюветы

Предыдущие работы нашей группы

Результаты опубликованы в четырех статья (Scopus):

1. Кузьмин Е. С и др. Монте-Карло-модель сцинтилляционного детектора нейтронов на основе литиевого стекла – Приборы и техника эксперимента – 2021 – № 2 – с. 25-31
2. Кузьмин Е. С., Зимин И. Ю. Оптимизация структуры гетерогенного сцинтиллятора для регистрации тепловых нейтронов – Приборы и техника эксперимента – 2021 – № 5 – С. 22-27
3. Kuzmin E. S et al. Manufacturing and Characteristics of Composite Scintillators Based on Lithium Glass – Instruments and Experimental Techniques – 2022 – Vol. 65 – P. 583–588
4. Кузьмин Е. С и др. Сравнительный анализ методов разделения сигналов от нейтронов и гамма-квантов от сцинтилляторов на основе литиевого стекла – Приборы и техника эксперимента – 2024 – №2 – С. 46-52

Выступления на конференциях:

1. Сессия-конференция секции ядерной физики ОФН РАН, посвященная 70-летию В. А. Рубакова., Гетерогенные сцинтилляторы для регистрации тепловых нейтронов на базе литиевых стекол. Структура, возможности, эксперимент., Е.С.Кузьмин и др. 2025г.
2. 29th International Scientific Conference of Young Scientists and Specialists (AYSS-2025), Heterogeneous scintillator for detecting thermal neutrons based on lithium glass, E. S. Kuzmin et al. 2025г.
3. Сессия-конференция секции ядерной физики ОФН РАН «Физика фундаментальных взаимодействий» Монте-Карло исследование конверсии тепловых нейтронов и гамма-излучения в композитном сцинтилляторе., Зимин И. Ю. и др, 2026 г. (постер).

Защищена кандидатская диссертация по теме: “Гетерогенный сцинтиллятор на основе литиевого стекла для регистрации тепловых нейтронов” в 2024 году.

Сцинтилляционный экран типа ND

Экран типа ND (Scintacor, UK) состоит:

- Кристаллы сцинтиллятора ZnS(Ag),
- Кристаллы ^{6}LiF (ядро ^{6}Li – конвертор для нейтронов).

Конверсия нейтронов происходит в соответствии с реакцией, при этом образующиеся заряженные продукты реакции имеют пробеги R_{α} = 6 мкм, R_{t} =36 мкм.

$$^{6}\text{Li} + n \rightarrow {}^{3}\text{H}\ (2.75\ \text{МэВ}) + {}^{4}\text{He}\ (2.05\ \text{МэВ})$$

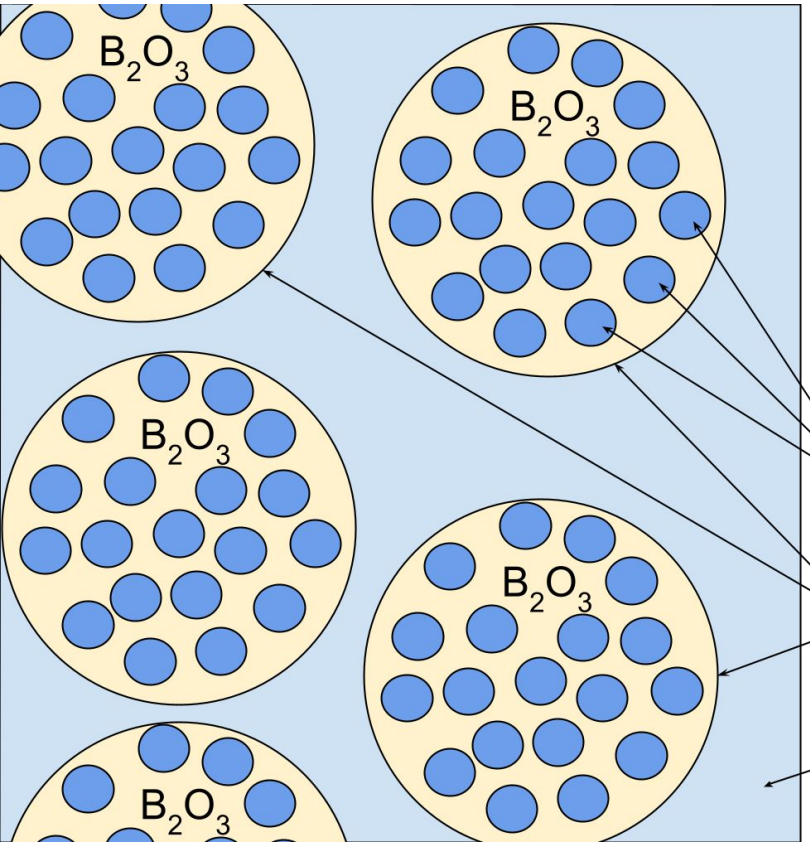
Конверсионная эффективность образца для тепловых нейтронов, определенная моделированием в среде Geant4 равна ε = 30%.



Диаметр 38 мм
Толщина 0.42 мм

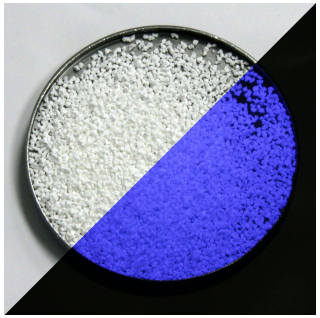
Компоненты	По весу	Средний размер частиц мкм
Сцинтиллятор ZnS(Ag)	68 мг/см^2	4.5
Конвертор ^{6}LiF	17 мг/см^2	2
Связующее полиметилметакрилат	17 мг/см^2	—

Композитный сцинтиллятор на основе ЛРБ-2



Сцинтиллятор ЛРБ-2 (ЗАО "НПФ Люминофор", г. Ставрополь РФ) порошок состоящий:

- Кристаллы сцинтиллятора ZnS(Ag),
- B_2O_3 (ядро ^{10}B – конвертор для нейтронов).





Диаметр 38 мм, толщина 0.8 мм

Конверсия нейтронов (94%) происходит в соответствии с реакцией, при этом образующиеся заряженные продукты реакции имеют пробеги R_{α} = 9 мкм, R_{Li} = 5 мкм.

$$^{10}B + n \rightarrow {}^{7}Li^{*}\ (0{,}84\ МэВ) + {}^{4}He\ (1{,}47\ МэВ)\ (94\%)$$

Конверсионная эффективность образца для тепловых нейтронов, определенная моделированием в среде Geant4 равна ε = 20%.

Компоненты	По весу	Средний размер частиц мкм
Сцинтиллятор ZnS(Ag)	32.5 мг/см^2	20
Конвертор B_2O_3 (19.8% изотоп ^{10}B)	17.5 мг/см^2	300-700
Связующее Силиконовый компаунд WACKER ELASTOSIL® RT 604	90 мг/см^2	—

Прозрачность образцов

Прозрачность композитов, построенных на кристалле ZnS(Ag) невелика, так как коэффициент преломления кристалла чрезвычайно высок (n = 2.4), и при наличии коэффициентов преломления остальных компонентов композита (LiF либо B_2O_3 и полимерного связующего) на уровне n = 1.3 – 1.4 собственное поглощение не дает возможности создавать экраны большой толщины с высокой эффективностью регистрации нейтронов.



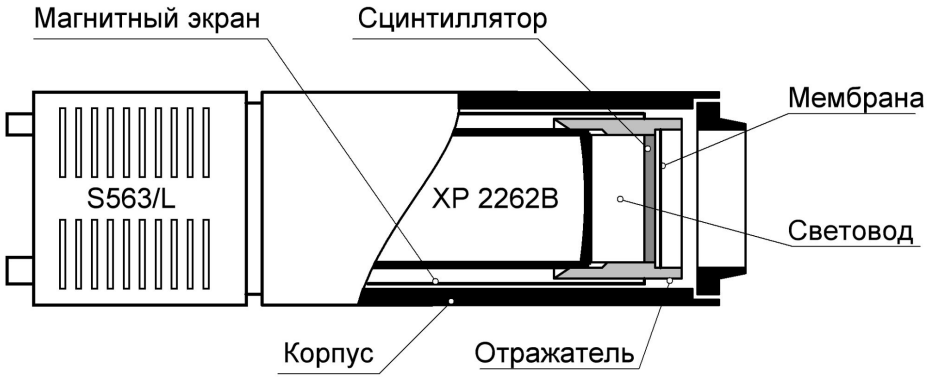
Сцинтилляционный экран типа ND



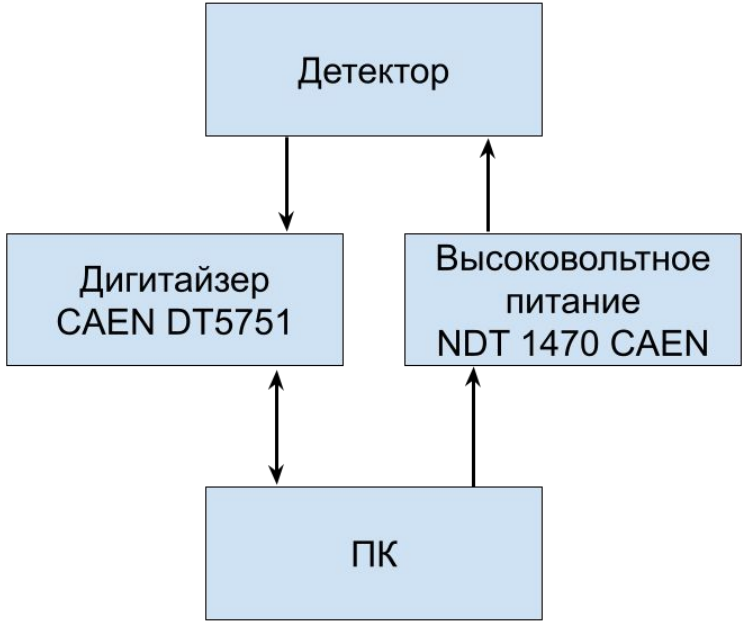
Композитный сцинтиллятор на основе ЛРБ-2*

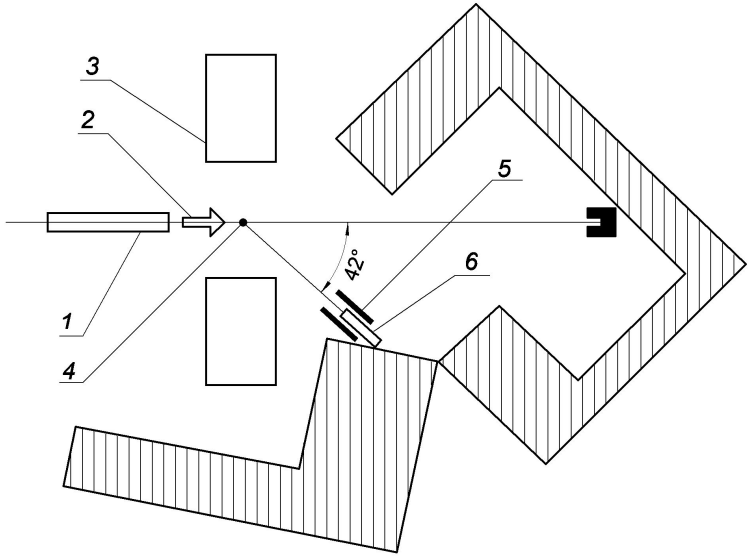
* Далее в докладе для краткости будет использоваться “ЛБР-2” вместо “Композитный сцинтиллятор на основе ЛРБ-2”

Детектор



Материал отражателя — фторопласт, световод изготовлен из оргстекла. Корпус детектора стальной. Материал магнитного экрана — мю-металл. Мембрана — алюминий.





Измерения на пучке тепловых нейтронов на 13 канале реактора ИБР-2М.

1 – нейтроновод; 2 – пучок тепловых нейтронов; 3 – вспомогательное оборудование; 4 – рассеиватель из реакторного графита; 5 – защита детектора; 6 – детектор и монитор.

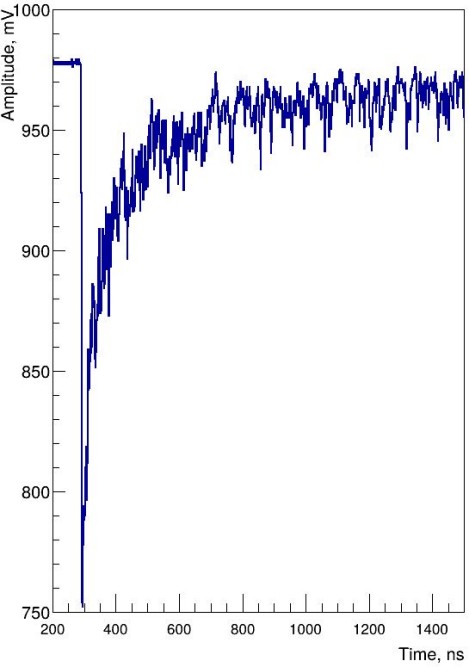


Изменения на гамма-квантах.

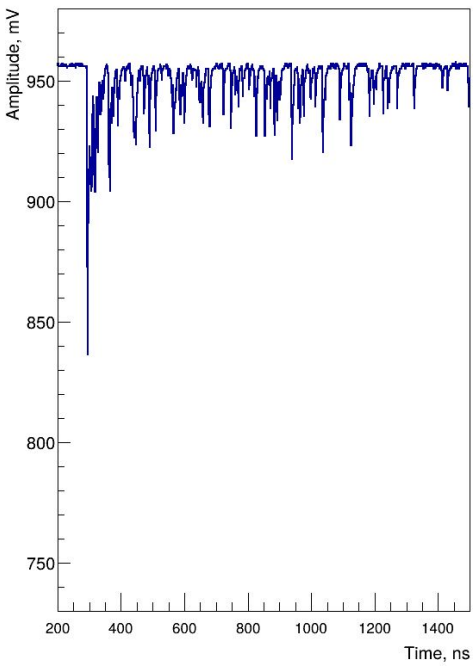
Радиоактивный источник ^{60}Co (64.8 кБк) располагался на расстоянии 16 мм от сцинтиллятора.

Также были произведены **измерения без источника.**

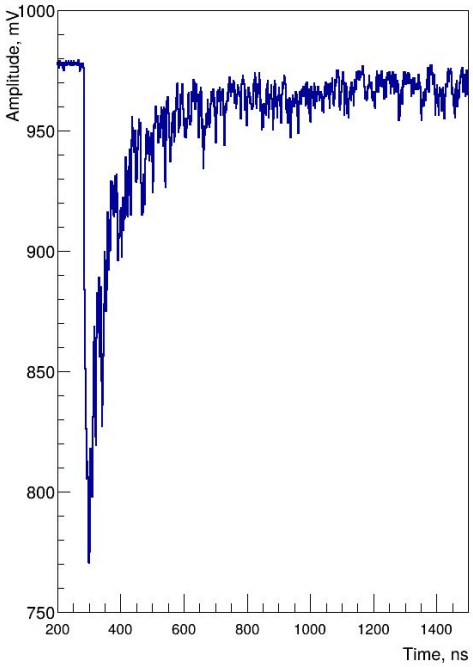
Сигналы



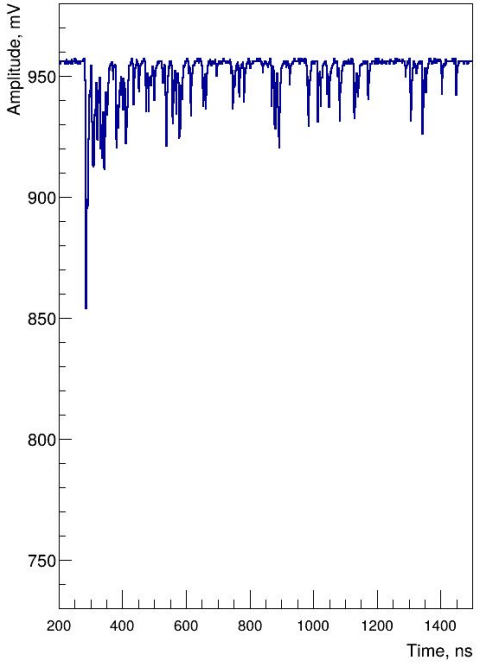
ND
Тепловой нейтрон



ND
Гамма-квант



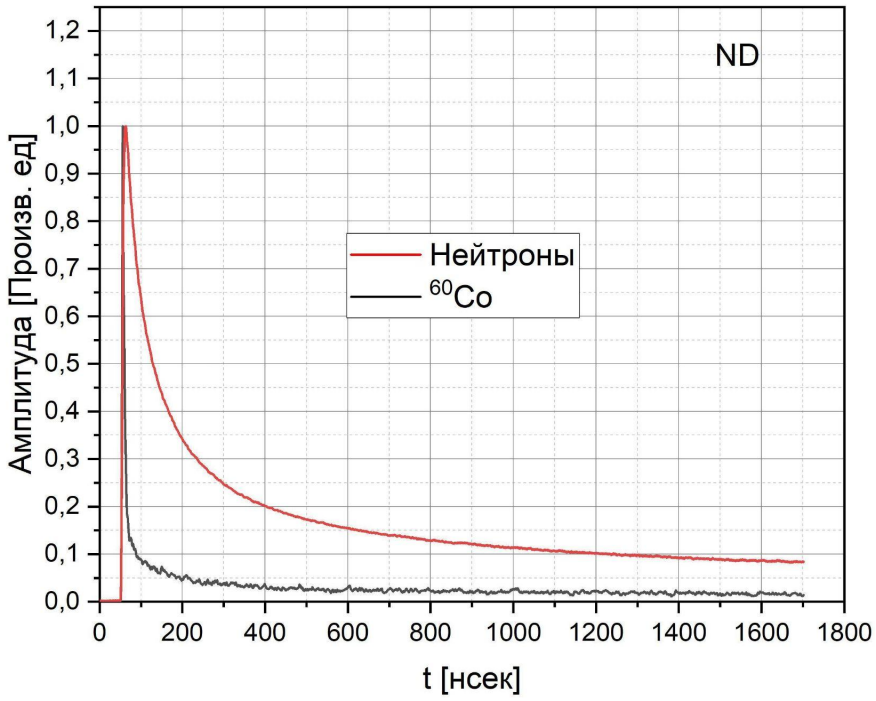
ЛРБ-2
Тепловой нейтрон

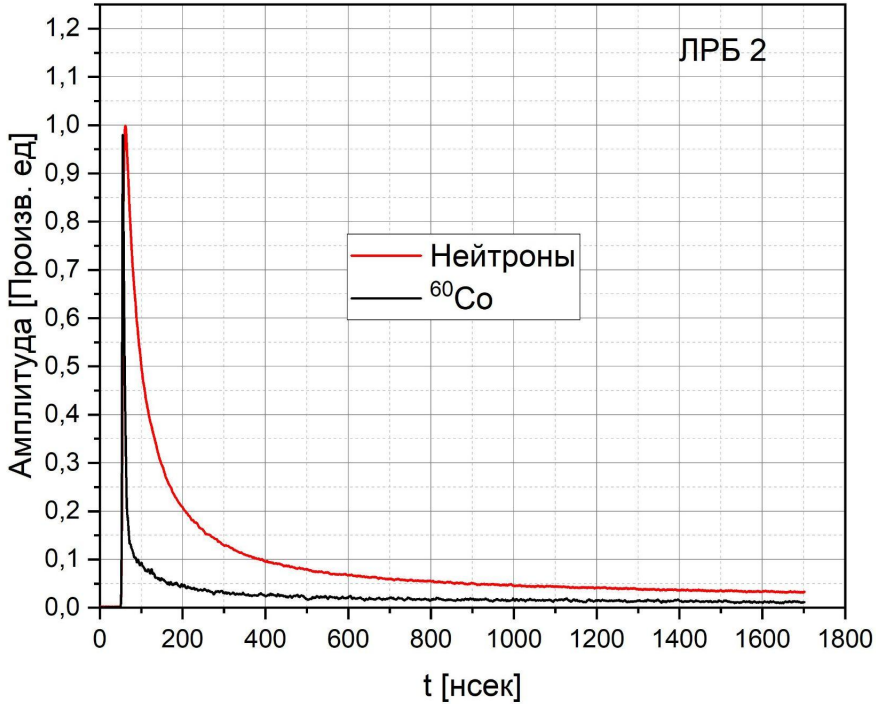


ЛРБ-2
Гамма-квант

Исследование формы импульса

Характер высвечивания кристалла ZnS(Ag) не дает возможности исследовать форму единичного импульса. Поэтому суммировались с временной привязкой около 300 отдельных импульсов.





Исследование формы импульса

Функция f(t) описывает передний фронт импульса, функции g(t), h(t) и j(t) соответствуют трем компонентам высвечивания. Для фитирования сигнала использовалось восемь независимых параметров, где A – амплитуда импульса, t_0 – время начала импульса, t_r – время нарастания, t_1, t_2, t_3 – времена высвечивания первой, второй и третьей компонент, R, S – веса первой и второй компонент. Время начала импульса (t_0) для всех компонент полагалось единым.

$$y(t) = Af(t)[Rg(t) + Sh(t) + (1 - R - S)j(t)],$$

$$f(t) = \frac{1}{\left\{exp\left[\frac{-(t-t_0)}{t_r}\right]+1\right\}}$$

$$g(t) = \frac{1}{\left\{exp\left[\frac{(t-t_0)}{t_1}\right]+1\right\}}$$

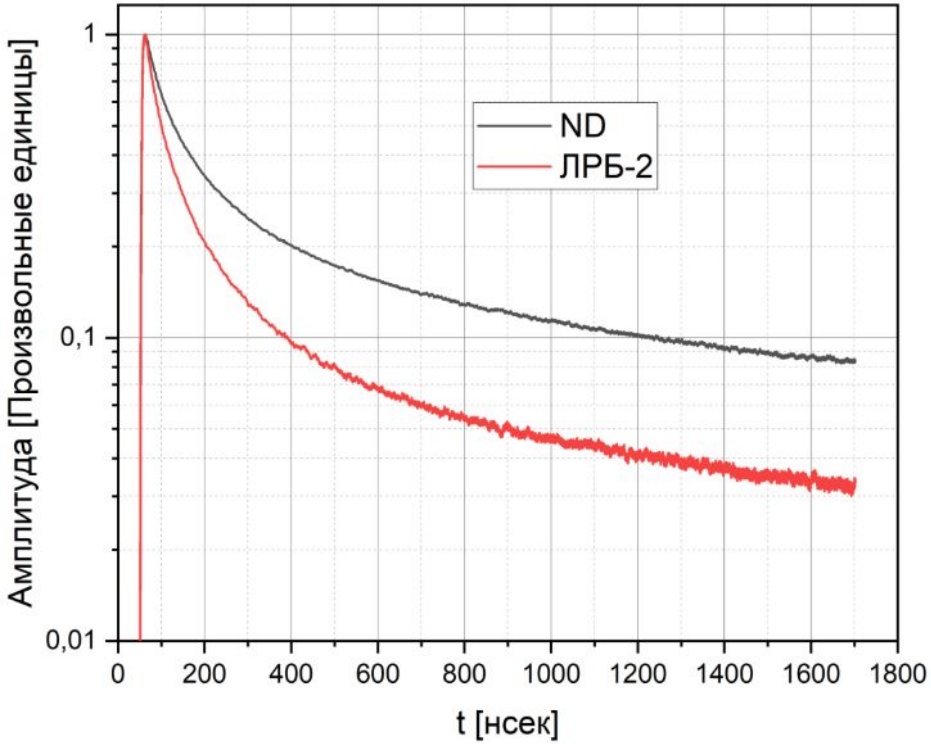
$$h(t) = \frac{1}{\left\{exp\left[\frac{(t-t_0)}{t_2}\right]+1\right\}}$$

$$j(t) = \frac{1}{\left\{exp\left[\frac{(t-t_0)}{t_3}\right]+1\right\}}$$

Результаты фитирования формы среднего импульса от экрана ND и композитного сцинтиллятора на основе ЛРБ-2 при возбуждении тепловыми нейтронами и ɣ-квантами.

	A	t_r (нсек)	t_1 (нсек)	t_2 (нсек)	t_3 (нсек)
Нейтроны ND	2,14	1,41	28,4	132,3	1310,8
Нейтроны ЛРБ-2	2,19	1,20	21,9	101,1	1024,5
ɣ - кванты ND	2,57	0,55	3,46	64,15	1318,8
ɣ - кванты ЛРБ-2	2,61	0,56	3,55	59,8	1085,0

Исследование формы импульса



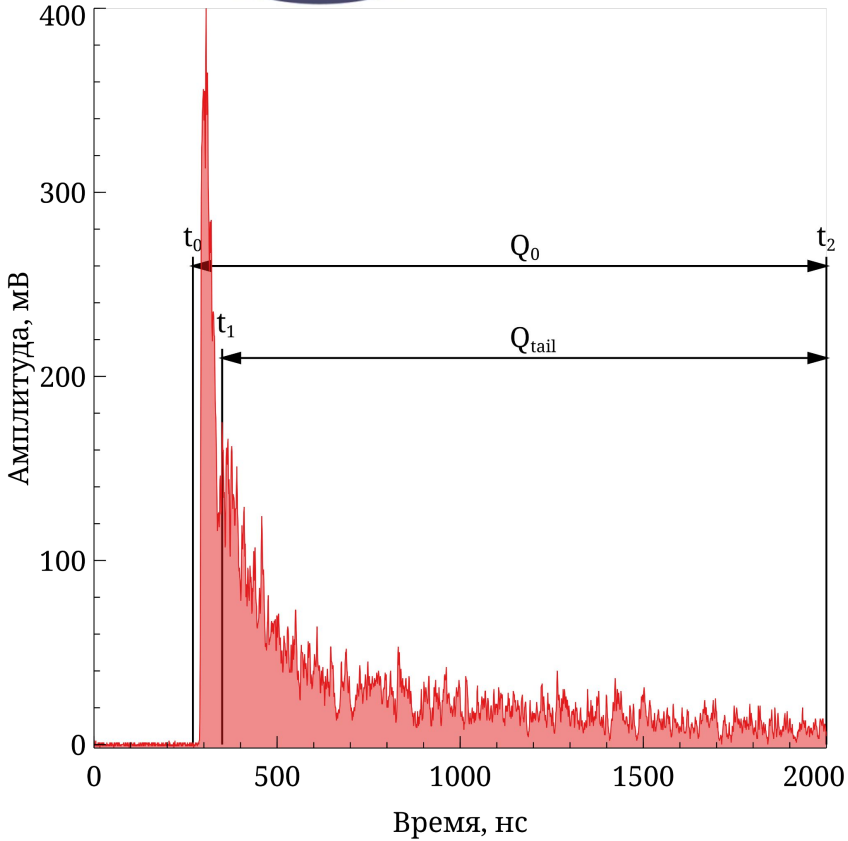
Средний импульс от экрана ND и сцинтиллятора ЛРБ-2 при возбуждении нейтронами.

Разделение методом интегрирования заряда

Суть метода во введении коэффициента *PSP (pulse shape parameter)*, который равен отношению заряду в хвосте импульса к общему заряду и выборе порогов регистрации:

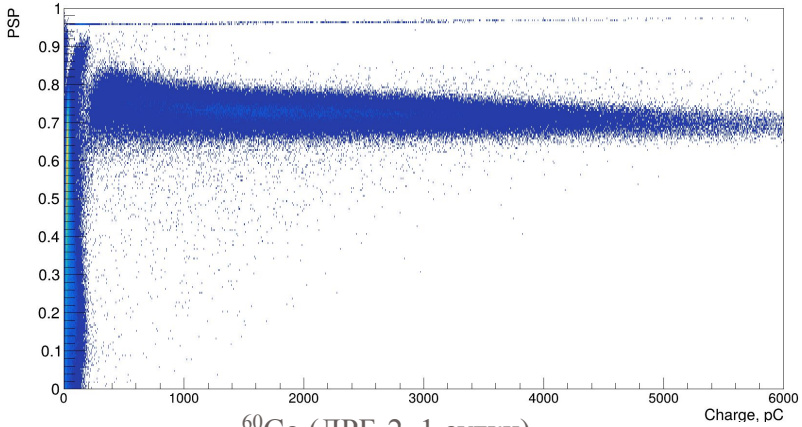
$$PSP = \frac{Q_{tail}}{Q_0}$$

где Q_0 представляет собой интегрированный полный заряд сигнала в области (t_0, t_2), Q_{tail} – интегрированный заряд с определенной начальной точки до конца сигнала в области (t_1, t_2)

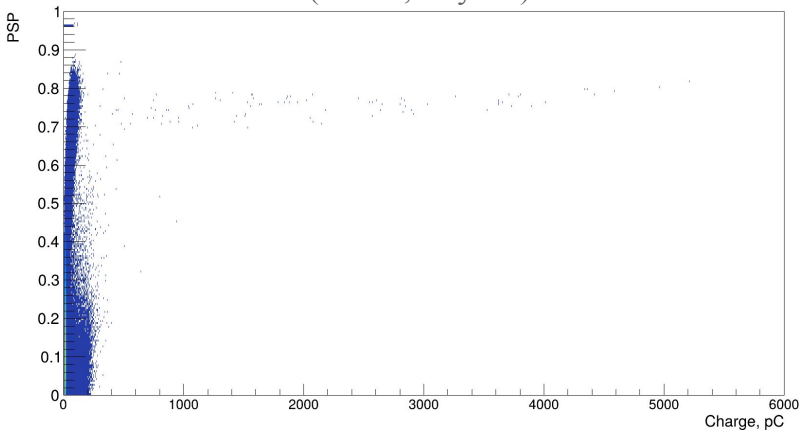


Разделение методом интегрирования заряда

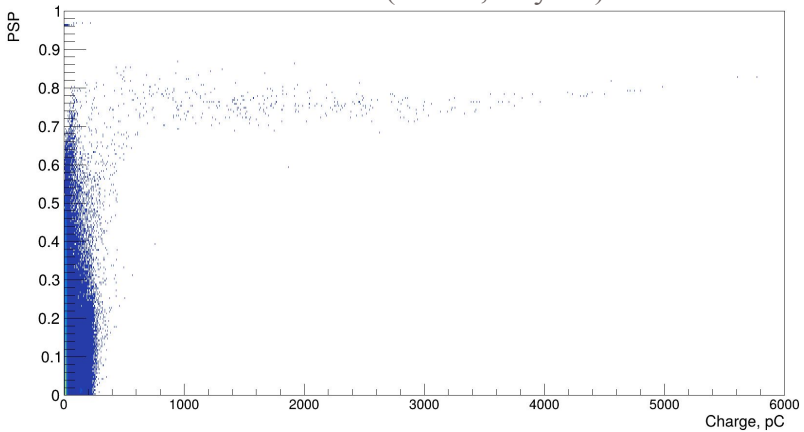
Тепловые нейтроны (ЛРБ-2, 30 минут)



^{60}Co (ЛРБ-2, 1 сутки)

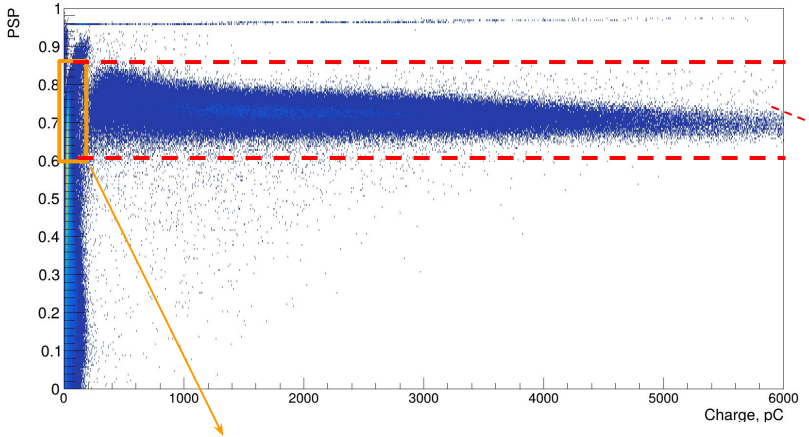


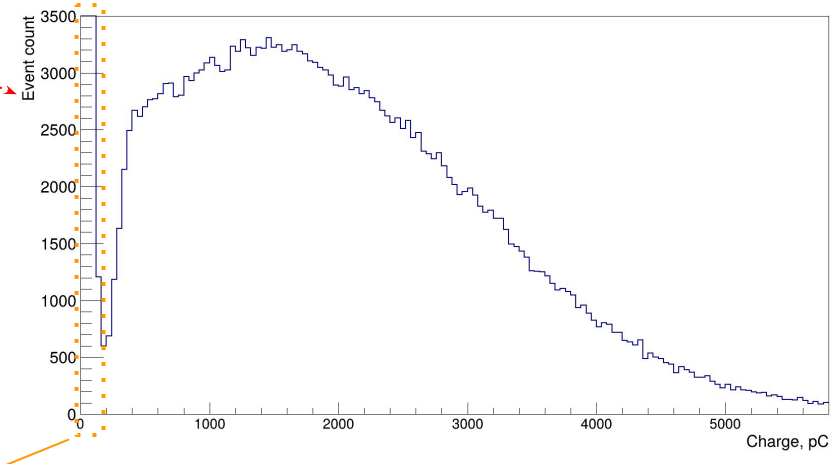
Без источника (ЛРБ-2, 5 суток)

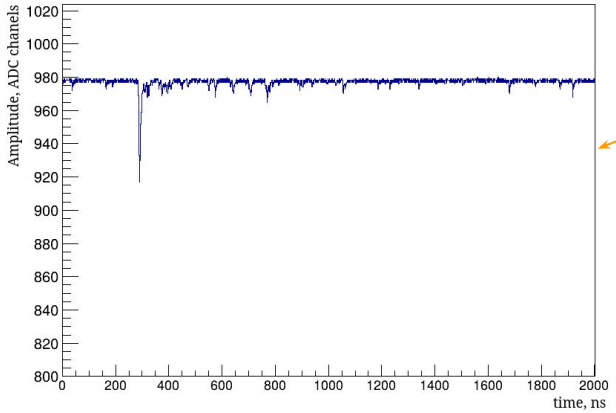


Разделение методом интегрирования заряда

Тепловые нейтроны (ЛРБ-2)







Селекция импульсов по длительности

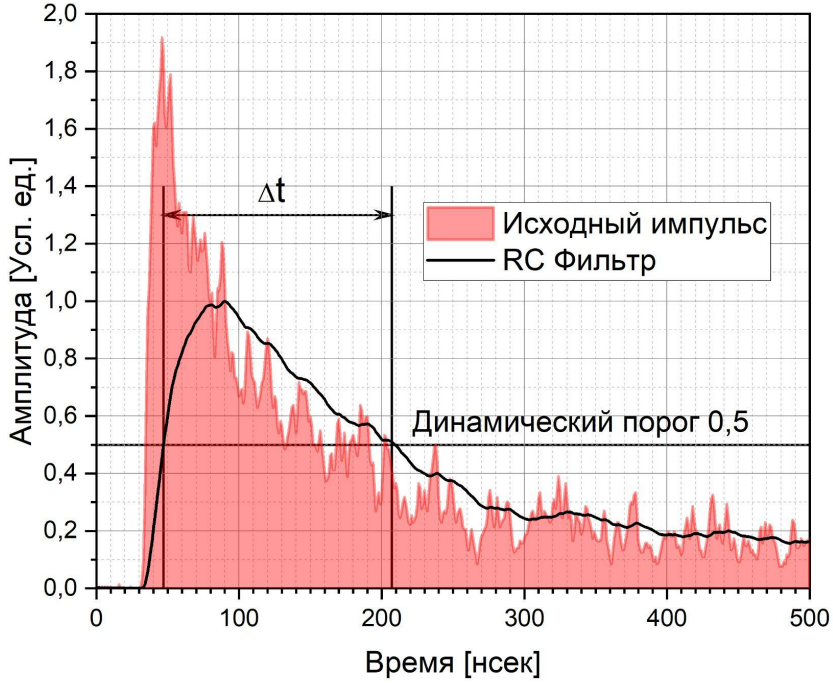
Импульсы сглаживались с помощью цифрового RC-фильтра:

$$y_i = (1-\theta)x_i + \theta y_{i-1}$$

где x_i – измеренное значение в момент времени i, y_i – фильтрованное значение в момент времени i, θ - коэффициент фильтрации (от 0 до 1).

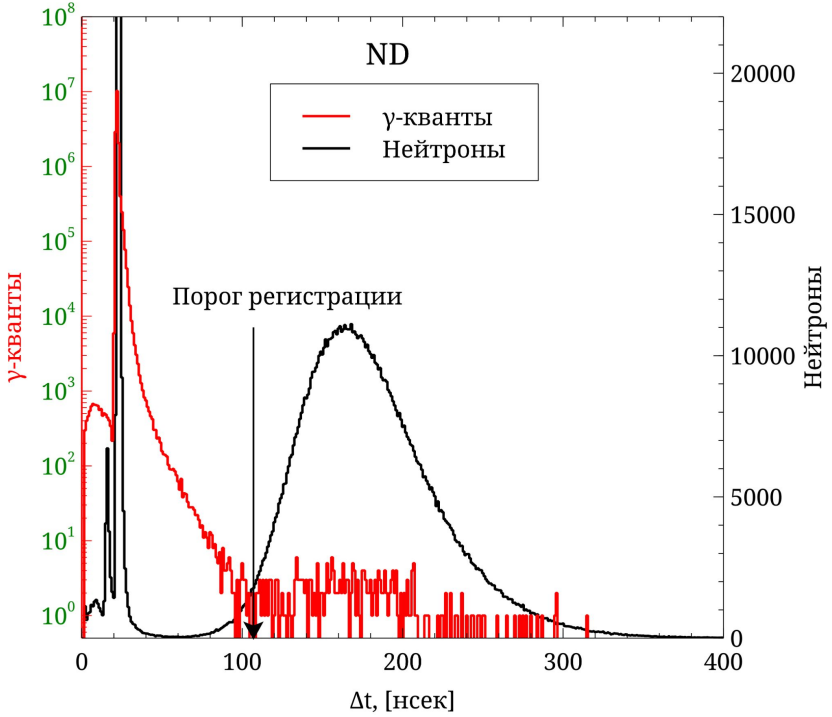
На следующем этапе алгоритм находил максимум сглаженного импульса в диапазоне работы триггера (от 0 до 400 нс). Далее выбиралось значение динамического порога по напряжению как части от амплитуды сигнала. Вычислялось время превышения входного напряжения над выбранным порогом.

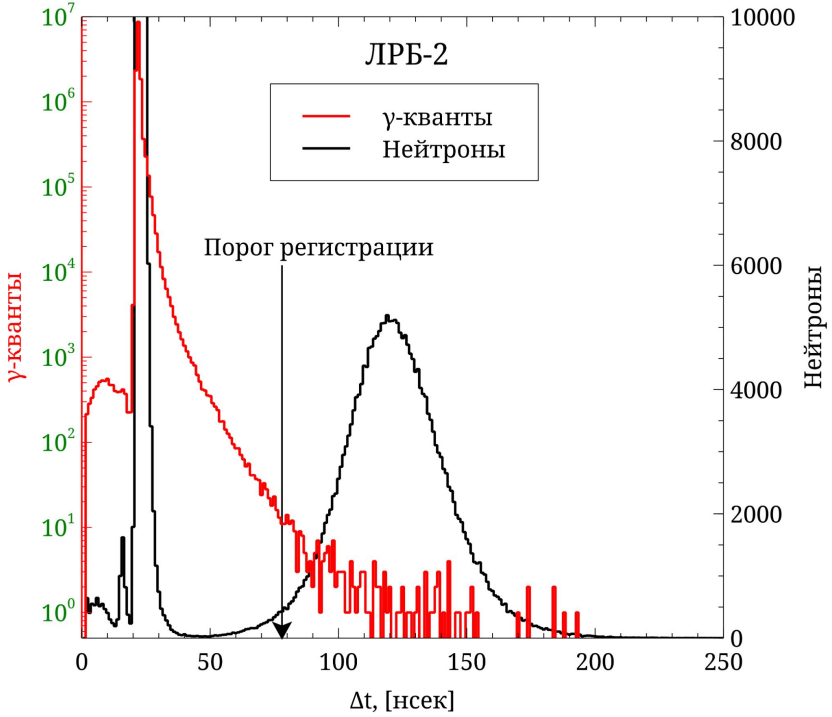
Для ограничения вторичной регистрации нейтрона вводилось мертвое время регистрации 1.8 мкс.



Исходный и сглаженный импульс от захвата нейтрона

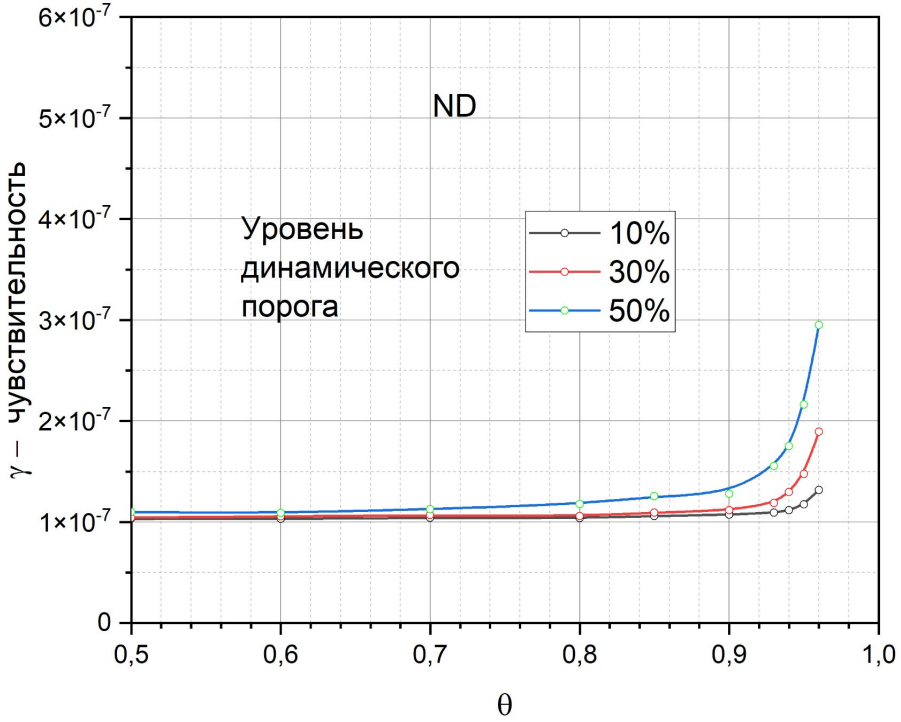
Селекция импульсов по длительности

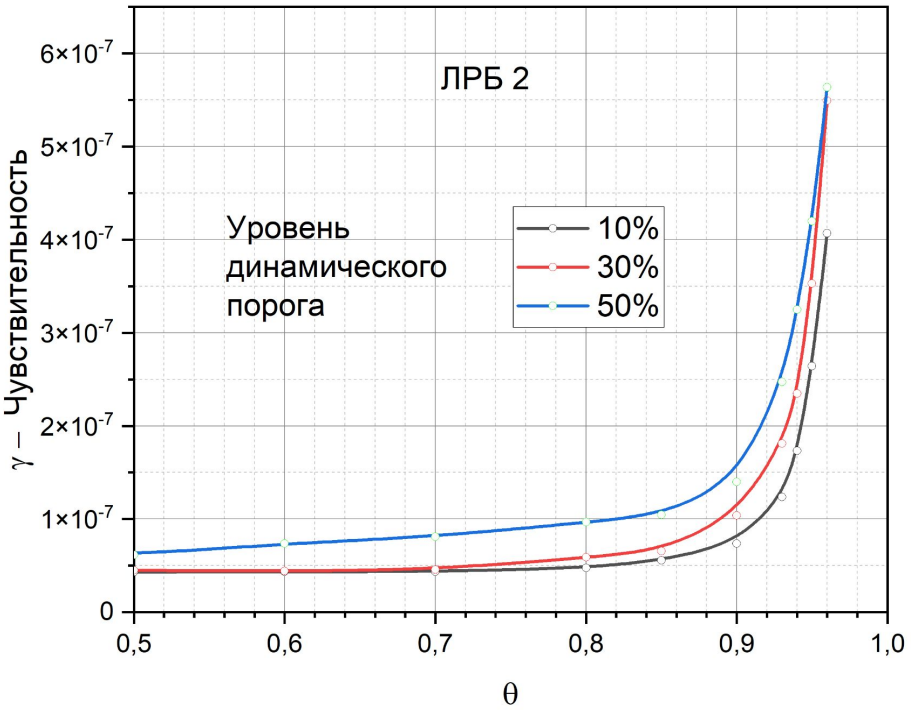




Распределение времени превышения сигнала (Δt) над динамическим порогом для тепловых нейтронов и γ - квантов ^{60}Co. Динамический порог $T = 0.30$, при коэффициенте фильтрации $\theta = 0.90$. Порог регистрации 107 и 78 нс для ND и ЛРБ-2 соответственно. Время экспозиции для нейтронов порядка 30-60 минут, для гамма-квантов около 1 суток.

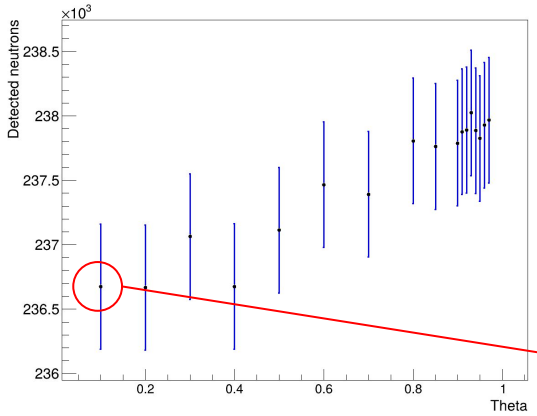
Гамма-чувствительности

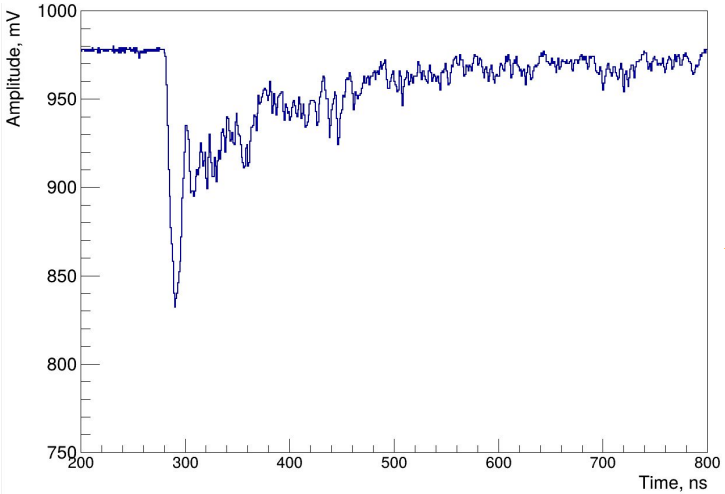


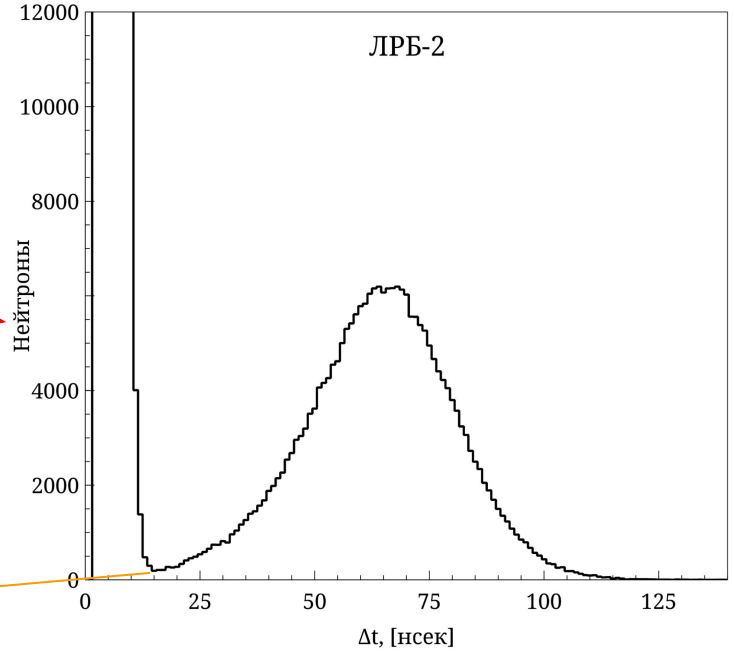


Зависимость γ-чувствительности сцинтилляторов ND и ЛРБ-2 от коэффициента фильтрации θ, использованного при распознавании импульсов.

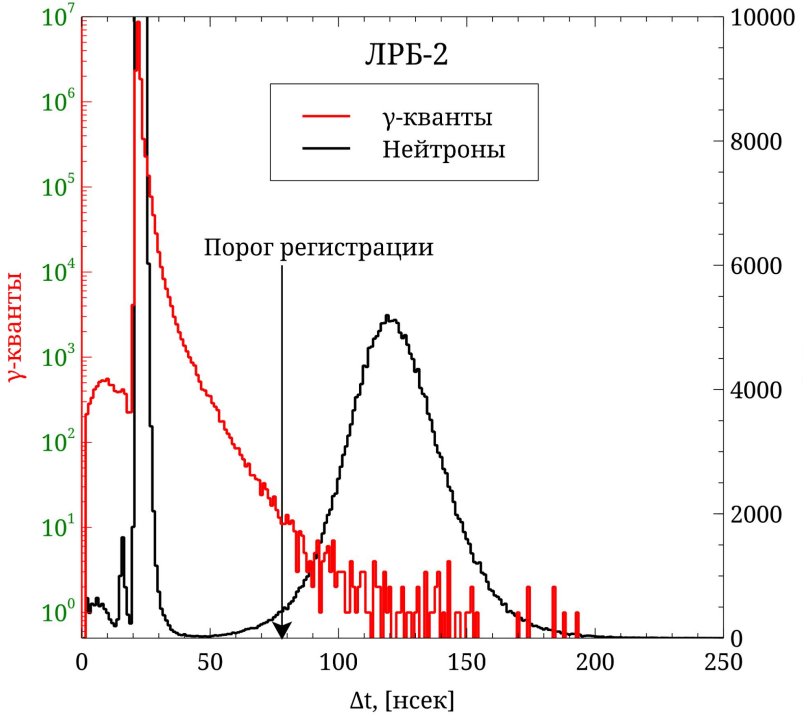
Регистрация нейтронов



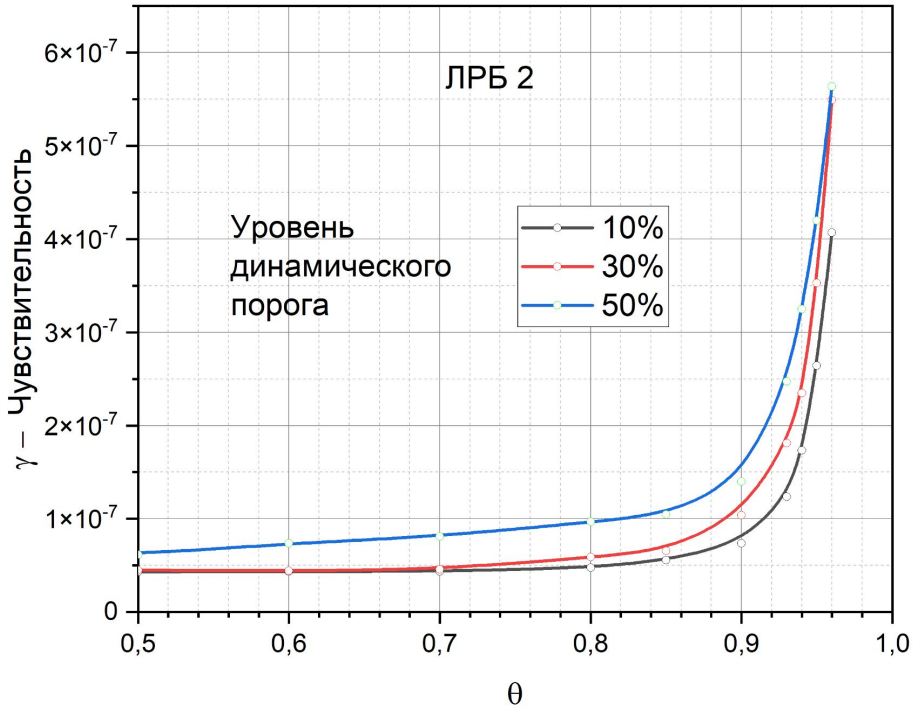




Распределение времени превышения сигнала (Δt) над динамическим порогом для тепловых нейтронов. Динамический порог $T = 0.3$, при коэффициенте фильтрации $\theta = 0.10$.



Распределение времени превышения сигнала (Δt) над динамическим порогом для тепловых нейтронов и γ - квантов ^{60}Co. Динамический порог T = 0.3, при коэффициенте фильтрации $\theta = 0.90$.



Зависимость γ-чувствительности сцинтиллятора ЛРБ-2 от коэффициента фильтрации θ, использованного при распознавании импульсов.

Заключение

Выполнены сравнительные исследования сцинтилляционного экрана ND и порошкового сцинтиллятора ЛРБ-2, созданных на основе кристалла ZnS(Ag):

- Исследованы характеристики образцов при возбуждении тепловыми нейтронами и γ – квантами от источника ^{60}Co.
- Были получены формы импульсов сцинтилляторов для γ - квантов и нейтронов и выполнено описание импульсов по трехкомпонентной модели высвечивания сцинтилляторов.
- Исследования показали, что временные характеристики ЛРБ-2 выше, чем у экрана ND, что позволяет улучшить нагрузочную способность детектора.
- Предложен метод выделения сигнала захвата нейтрона по ширине сглаженного импульса.
- Показано, что данный метод более эффективный в разделении импульсов по сравнению с методом интегрирования заряда.
- Оценена чувствительность к гамма-квантам данных сцинтилляторов ($\sim 1\times10^{-7}$). Предложены оптимальные значения параметров метода ($\theta = 0.9$, $T = 0.1$-0.3).
- Конвертор B_2O_3 – это естественная смесь изотопов, поэтому ЛРБ-2 значительно доступнее ND.

Спасибо за внимание!

ZnS(Ag) с оксидом природного бора – ЛРБ-2

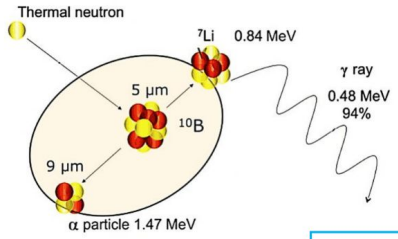
Сцинтиллятор произведён путём спекания порошков!

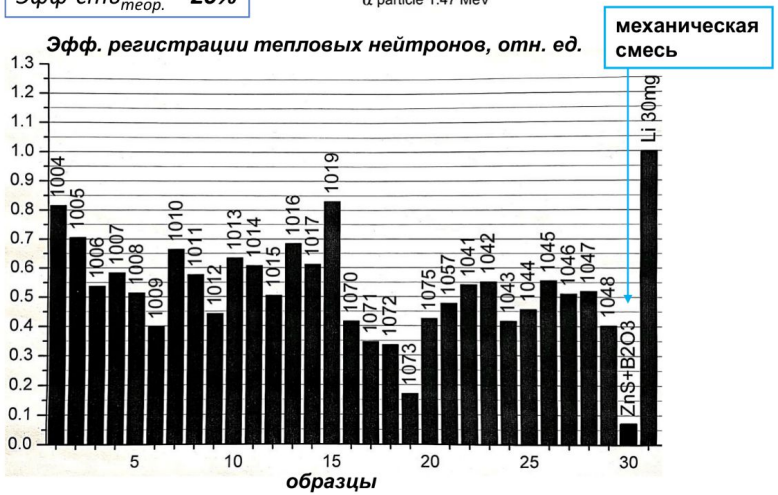
ZnS и **B_2O_3**

$T_{пл.}$ = **1185** °C $T_{пл.}$ = **480** °C



50 мг/см²
ZnS:B_2O_3 = 65:35
Эфф-сть$_{теор.}$ ~ ***20%***





6

Из доклада Кулешова Д.А. “Новый класс сцинтилляторов для регистрации частиц ШАЛ” на 38 ВККЛ, 1-5 июля 2024 г.