

УСПЕХИ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК**ХАРАКТЕРИСТИКИ СЦИНТИЛЛЯТОРОВ *)****Р. К. Свэнк****ВВЕДЕНИЕ**

В печати уже появилось несколько обзоров развития, теории и применения сцинтилляционных счётчиков. Для удобства читателей некоторые из наиболее поздних и содержательных обзоров указаны в библиографии¹⁻⁴. В настоящей работе делается попытка, по возможности не повторяясь, дополнить предшествующие данные. Последующее изложение будет касаться главным образом самих сцинтилляторов, а также сцинтилляций, вызываемых в них частицами с высокой энергией. Для удобства изложения сцинтилляторы сгруппированы по признаку химического подобия.

Сцинтилляционный процесс

При описании процесса сцинтилляции необходимо рассматривать величину (интенсивность), спектральный состав и временную зависимость ультрафиолетового или видимого излучения, возникающего в результате поглощения в материале сцинтиллятора заряженных частиц с высокой энергией. Для большинства частиц и энергий, с которыми приходится иметь дело в экспериментальной ядерной физике, энергия быстрых заряженных частиц почти полностью расходуется на возбуждение электронов и ионизацию в поглощающем материале. Так как энергия частиц очень велика, то реализуются все возможные возбуждённые состояния, включая ионизацию, с различной величиной дополнительной кинетической энергии. Первоначальное заселение различных возбуждённых состояний определяется главным образом относительными энергиями соответствующих переходов из основного состояния. Это следует из того факта, что, за исключением прямого соударения, поле заряженной частицы может

¹) R. K. Swank, Annual Review of Nuclear Science 4, 111—140, 1954.
Перевод Л. Г. Эйдельмана.

быть представлено в виде «белого» электромагнитного спектра, форма которого описывается преобразованием Фурье для переменного поля быстрой частицы. В одноатомных газах при низких давлениях такое возбуждение вызвало бы излучение ряда спектральных линий, соответствующих различным переходам с высоких на более низкие или на основной уровень. В твёрдой или жидкой форме большинство материалов даёт лишь незначительную люминесценцию при облучении заряженными частицами с высокой энергией. Кроме того, спектр излучения относительно небольшого количества материалов, дающих интенсивные сцинтилляции, соответствует только одному или, самое большее, нескольким переходам с нижних возбуждённых состояний в нормальное состояние. В пределах точности имеющихся экспериментальных данных эмиссионные спектры при возбуждении элементарными частицами и при ультрафиолетовом возбуждении имеют одинаковое спектральное распределение. Из этого можно заключить, что процесс сцинтилляции является просто разновидностью флуоресценции, при которой возбуждение производится переменным полем движущегося заряда. Однако многие факторы значительно усложняют сцинтилляционный процесс. Расчёт, проведённый Гаррисоном⁵, показал, что возбуждение флуоресценции, происходящее в бензоле, во много раз больше, чем можно было бы предсказать теоретически, исходя из непосредственного возбуждения заряженной частицей. В этом случае, как, вероятно, и во многих других, большая часть наведенного частицами флуоресцентного возбуждения является результатом распада высоких возбуждённых состояний на состояния, из которых происходит флуоресценция. Помимо возбуждения флуоресцентного состояния прямым и косвенным процессами, частица может также вызывать эмиссионный процесс. Это может явиться результатом локальных эффектов, таких, как химическая диссоциация, нагрев, электрические поля и взаимное тушение соседними возбуждёнными молекулами.

Несмотря на многие факторы, говорящие за разделение сцинтилляционного процесса и процесса флуоресценции, описание этих двух явлений в общих выражениях не безнадежно. Если временно пренебречь возмущением эмиссионного процесса продуктами малой энергии, число фотонов, испускаемых при сцинтилляции, можно выразить, как

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

где E_0 — начальная энергия быстрой частицы, тормозящейся в сцинтилляторе, w — средняя энергия, расходуемая на один переход во флуоресцентное состояние, q — квантовая эффективность флуоресценции.

Практическая ценность уравнения (1) зависит от нашей способности видоизменять его подходящим образом для описания более сложных эффектов, упомянутых выше. В дальнейшем обсуждении некоторые из таких видоизменений потребуют, чтобы w или q изменялись с энергией частицы.

В этом случае уравнение (1) должно быть написано в дифференциальной форме

$$dN = -\frac{q}{w} dE, \quad (2)$$

где dN — число фотонов, излучённых при изменении энергии частицы от E до $E - dE$.

ИЗМЕРЕНИЕ СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫХ СВОЙСТВ

Эффективность сцинтилляции

Большинство данных по сцинтилляционной эффективности, описанных в литературе, приводится в значениях выхода фотоумножителя. Этот способ измерения часто приводит к неравной оценке различных материалов вследствие зависимости эффективности фотокатода от длины волны. Амплитуда сцинтилляции, выраженная числом катодных фотоэлектронов, равна

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

где $\xi(\lambda)$ — та часть излучённых фотонов, длины волн которых лежат между λ и $\lambda + d\lambda$, $\eta(\lambda)$ — квантовая спектральная эффективность фотокатода, λ — длина волны.

К счастью, большинство измерений сцинтилляционной эффективности было проделано с Cs_3Sb -фотокатодом. Пример значения этого эффекта показан на рис. 1. Относительная квантовая спектральная эффективность фотоумножителя типа 5819*) нанесена на одном рисунке с кривыми квантового эмиссионного спектра двух пластических сцинтилляторов. На рис. 1 можно подсчитать, что отношение

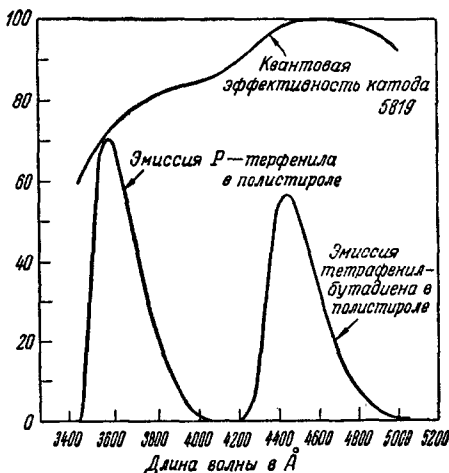


Рис. 1. Спектральная квантовая эффективность фотоумножителя типа 5819 с характеристикой типа S-9 и квантовые эмиссионные спектры двух пластических сцинтилляторов. Для пластмасс, содержащих терфенил и тетрафенилбутадиев, отношение световых выходов равно 1,10, а отношение соответствующих высот импульсов на фотоумножителе — 0,78. Шкала оси ординат произвольна.

*) Приведенный на рис. 1 тип спектральной чувствительности классифицируется как S-9. Теперь изготовитель несколько изменил спектральную чувствительность и обозначает этот тип, как S-4.

высот импульсов на фотоумножителе для пластических сцинтилляторов, содержащих терфенил и тетрафенилбутadiен, равно 0,78, тогда как отношение их световых выходов — 1,10. Если при сравнении свойств сцинтилляторов используется рефлектор, погрешности могут быть вызваны изменением отражательной способности последнего с длиной волны. Расхождения могут происходить также в результате различий в оптической чистоте или в коэффициентах преломления образцов. Эти эффекты сводятся к минимуму, если одна из поверхностей сцинтиллятора находится в оптическом контакте с поверхностью фотокатода.

Для сравнения работ различных лабораторий по измерению относительной эффективности сцинтилляторов необходимо установить определённый стандарт. Материалом, наиболее часто используемым для таких сравнительных измерений, является кристалл антрацена. Этот выбор несколько неудачен, так как антрацен нелегко очищается, и производство совершенных кристаллов его довольно трудно. Сангстер⁶ показал, что при самом тщательном изготовлении различия в методике приводят к колебаниям высоты импульса в пределах 20%. Определение абсолютной сцинтилляционной эффективности из относительных измерений, если абсолютная эффективность эталонного образца известна, возможно лишь в той мере, в какой возможно получение чистых, не отличающихся друг от друга эталонных образцов. Несколько исследователей произвели недавно измерения абсолютной эффективности антрацена. Результаты их измерений приведены в таблице I.

Таблица I

Абсолютная эффективность сцинтилляции антрацена
при возбуждении β -частицами большой энергии

Авторы	Дата	Эффективность $\frac{Nh\nu}{E_0} \times 100\%$	Энергия на один фотон (эв)
Гаррисон ⁵	1951	4,2	65
Биркс и Шендрей ⁷⁷	1953	3,7	70
Фурст, Кальман и Крамер ⁷⁸	1953	10	26

Большинство сцинтилляторов, по крайней мере частично, прозрачно к своему собственному излучению. Это удобное обстоятельство можно понять из рассмотрения фундаментальных процессов поглощения и испускания излучения молекулой сцинтиллятора. Молекула совершает колебания около положения равновесия, соответствующего

минимуму потенциальной энергии. Эти колебания квантуются по колебательным уровням основного и возбуждённого состояний. При обычных температурах молекулы будут находиться в равновесии на нижних колебательных уровнях. Вообще, положение равновесия в возбуждённом состоянии будет отличаться от положения равновесия в основном состоянии. Этот факт, наряду с принципом Франка-Кондона, который требует, чтобы координаты ядра оставались фиксированными во время электронного перехода, означает, что после поглощения фотона молекула переходит на высший колебательный уровень возбуждённого состояния. Таким образом, молекула мгновенно выходит из термического равновесия с окружающими её молекулами, но равновесие быстро устанавливается (за 10^{-13} — 10^{-12} сек.) путём отдачи колебательной энергии. Подобное термическое выравнивание происходит после излучения флуоресцентного фотона. Таким образом, эмиссионный спектр молекулы смещён относительно спектра поглощения в сторону больших длин волн. Однако, разность между длинами волн поглощённого и излучённого квантов является величиной статистической, зависящей от начального и конечного колебательных состояний молекулы, и в некоторых случаях излучённый квант может иметь более короткую длину волны, чем поглощённый.

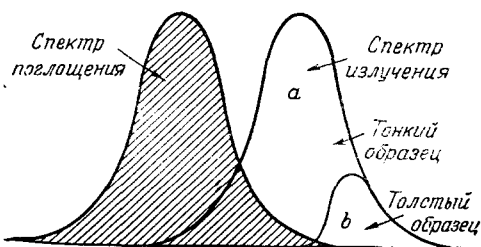


Рис. 2. Схематическое изображение спектра поглощения и спектра излучения сцинтиллятора.

Кроме того, форма энергетической кривой различна для различных молекул в каждый момент времени и для каждой молекулы в разное время в результате тепловых флуктуаций соседних молекул. Таким образом, хотя средняя длина волны эмиссионного спектра всегда больше, чем средняя длина волны спектра поглощения, обычно наблюдается частичное перекрывание этих спектров. Этот эффект изображён схематически на рис. 2, где область *a* пропорциональна числу фотонов, излучённых при сцинтилляциях. В результате частичного перекрывания спектров происходит селективное сампоглощение коротких длин волн. Поэтому сквозь образец проходит меньшее число фотонов, представленное областью *b*. Поглощённые фотоны будут вызывать возбуждение аналогичного состояния в других молекулах, и доля *q* этих поглощённых фотонов

обусловит вторичное излучение. Так как между абсорбцией и эмиссией устанавливается термическое равновесие, вторичное излучение будет иметь то же самое спектральное распределение, что и первичное. Биркс и Литтл⁷ показали, что число излучённых в конечном счёте фотонов можно легко подсчитать, если для упрощения предположить, что доля излучённых фотонов одинакова для каждого последующего излучения. Это допущение, связанное с пренебрежением диффузией, является хорошим приближением для многих сцинтилляторов, так как число значительных генераций излучения в них не более десяти, а диффузия от источника генераций относительно мала. Если сделать это допущение, то отношение числа наблюдаемых фотонов к числу излучённых определяется формулой

$$\frac{N_{\text{набл}}}{N} = \frac{\frac{b}{a}}{1 - q \left(1 - \frac{b}{a}\right)}, \quad (3)$$

а спектральное распределение наблюдаемых сцинтилляций имеет ту же форму, что и кривая b . Как и можно было ожидать, это отношение стремится к b/a при бесконечно малых q и к единице при q , стремящемся к единице. Таким образом, сцинтиллятор большой толщины с высокой квантовой эффективностью флуоресценции может иметь заметное самопоглощение с небольшой только потерей в высоте импульса. Самопоглощение значительно менее существенно в случае активированных сцинтилляторов, так как дальнейшая деградация энергии возбуждения происходит только при переносе возбуждения от основной среды к центрам активации. То же самое справедливо для сцинтилляторов, применяющихся в «преобразователях длин волн», которые поглощают первичное флуоресцентное излучение и переводят его в более длинноволновое. В трёхкомпонентных сцинтилляторах, таких, как обычно используемые жидкости и пластмассы, происходит три последовательных снижения энергии возбуждения. Как следствие, длина свободного пробега для излучённого света в сцинтилляторах этого типа часто достигает нескольких метров.

При измерении относительной сцинтилляционной эффективности обычно пользуются двумя методами. В первом методе сцинтиллятор облучается источником умеренной интенсивности. При этом не делаются попытки наблюдать индивидуальные световые всплески, но измеряется усреднённое значение излучаемого светового потока. Обычно при этом производится измерение средней величины или постоянной слагаемой тока на выходе фотоумножителя. Если при постоянном облучении установилось равновесное значение тока, то оно будет пропорционально среднему значению общей световой энергии, излучённой при сцинтилляции, независимо от промежутка времени между моментом возбуждения и моментом завершения процесса светового излучения.

В другом методе измерения сцинтилляционной эффективности производится измерение амплитуды световых импульсов, соответствующих поглощению сцинтиллятором одной быстрой частицы. Если в единицу времени наблюдается некоторое число импульсов, время наблюдения каждого импульса неизбежно ограничено. Время наблюдения, или «время интегрирования» импульса, регистрируемое системой, иллюстрировано с помощью рис. 3. На этом рисунке показана типичная анодная цепь фотоумножителя и обычно наблюдаемые формы волн. Форма волны определяется частично постоянной времени анодной цепи RC и частично характеристикой высвечивания

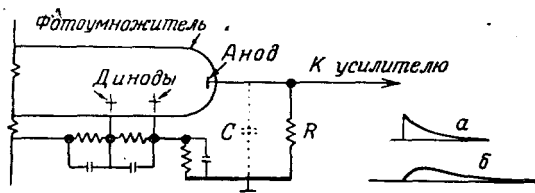


Рис. 3. Типичная анодная цепь фотоумножителя. C обычно состоит из распределенной ёмкости цепи. Кривые a и b изображают формы выходных импульсов [уравнение (6)] для «быстрого» и «медленного» сцинтилляторов соответственно.

сцинтиллятора. Чтобы показать это, предположим, что при $t=0$ сцинтиллятор мгновенно возбужден заряженной частицей с высокой энергией и что доля всех флуоресцентных фотонов, излученных в промежутке времени от t до $t+dt$, может быть выражена функцией $f(t)dt$. Тогда число излучаемых фотонов для $t>0$ равно $Nf(t)$, и анодный ток фотоумножителя (пренебрегая разбросом времени в фотоумножителе) будет:

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

где g — доля излученного света, собираемая фотокатодом, $\bar{\eta}$ — средняя квантовая эффективность фотокатода по отношению к излученному спектру и G — коэффициент умножения фотоумножителя. Так как анодный ток делится между R и C , анодное напряжение определяется решением дифференциального уравнения

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

Для простого случая, когда $f(t)$ задается экспоненциальной функцией $e^{-t/\tau}$, импульс напряжения будет иметь форму

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

а амплитуда импульса будет:

$$\left. \begin{aligned} V_{\text{макс}} &= \left(\frac{Ng\eta G}{C} \right) \gamma^{\frac{1}{1-\gamma}}, \\ \gamma &\equiv \frac{RC}{\tau}. \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Таким образом, наблюдаемая амплитуда импульса зависит от времени высвечивания сцинтиллятора τ и от постоянной времени цепи (в данном случае RC). Если в уравнении (7) $RC \gg \tau$, то амплитуда импульса не зависит от τ . Однако если это условие (эмиссионный процесс заканчивается за короткое время по сравнению с постоянной времени цепи) не удовлетворяется, то эффективность сцинтилляций, определяемая из амплитуды импульса, не будет соответствовать эффективности, измеренной по току фотоумножителя.

На практике положение осложняется из-за несоответствия реальной формы высвечивания сцинтилляций сделанному выше простому предположению. Часто высвечивание имеет короткую экспоненциальную составляющую, сопровождаемую одним или несколькими долгоживущими компонентами. Вклад такого долгоживущего компонента в амплитуду импульса для различных значений R изучался Кальманом⁸ и Биттманом, Фурстом и Кальманом⁹.

Новый метод изучения долгоживущих компонентов в сцинтилляционном выходе был предложен Джексоном и Гаррисоном¹⁰. В этом методе сцинтиллятор в соединении с фотоумножителем продолжительно облучается рентгеновскими лучами, за исключением коротких интервалов, во время которых рентгеновская трубка выключена. Непосредственно перед выключением рентгеновской трубки включается фотоумножитель. При этом долгоживущие компоненты приходят в равновесие, и из высвечивания, наблюдаемого на протяжении времени остановки рентгеновской трубки, можно подсчитать относительный вклад различных компонентов в полную сцинтилляцию. Джексон и Гаррисон¹⁰ и Гаррисон¹¹ наблюдали компоненты, более долгоживущие, чем начальный период высвечивания, у большинства органических кристаллических сцинтилляторов, а также и у $\text{NaI}(\text{Tl})$, но не обнаружили долгоживущих компонентов в жидких органических сцинтилляторах. Это наводит на мысль, что долгоживущие компоненты в некоторых материалах могут быть выявлены сравнением их токового выхода и высоты импульса соответствующими величинами для жидкого сцинтиллятора.

При измерении сцинтилляционной эффективности важен выбор подходящего источника возбуждения. Если желательно измерить выход сцинтиллятора при возбуждении его быстрыми электронами, можно использовать источник β -лучей или электронов с высокой энергией, или получить электроны с высокой энергией внутри сцин-

тиллятора при облучении его γ -лучами. Для сцинтилляторов с малым атомным номером облучение внешним источником электронов «внутренней конверсии» даёт импульсы с острым пиком, так что высота импульса легко измерима. Однако сцинтилляторы, содержащие элементы с большим атомным номером, будут давать сильное обратное рассеивание электронов и искажать распределение высот импульсов. В этом случае более желателен внешний источник γ -лучей, так как в результате фотоэлектрического поглощения γ -лучей в распределении импульсов по высоте получаются острые пики. Очень удобен источник Cs^{137} , так как он испускает как электроны внутренней конверсии (624 кэв), так и γ -лучи (662 кэв). Часто применяется метод, в котором изменяется токовый выход при возбуждении γ -лучами. Этот метод может быть вполне точным, но при определённых обстоятельствах может привести и к значительным ошибкам. Если сцинтиллятор содержит только лёгкие элементы, а энергия γ -лучей достаточно высока, образуются только комптоновские электроны. Поглощательная способность небольшого сцинтиллятора в этом случае пропорциональна числу электронов, содержащихся в нём. Если стенки, окружающие сцинтиллятор, также сделаны из материала с малым атомным номером, сцинтилляторы несколько различных размеров и плотностей могут быть стандартизованы путём деления показаний счётчика на число электронов в сцинтилляторе. Если плотность и атомный номер сцинтиллятора очень высоки, а энергия γ -излучения мала, то излучение будет полностью поглощаться сцинтиллятором, и тогда в показание нужно внести поправку на телесный угол сцинтиллятора по отношению к источнику. Для промежуточных значений энергий или атомных номеров положение значительно более сложно, так как в показание нужно внести поправку на энергию, фактически поглощённую сцинтиллятором.

Сцинтилляционная эффективность есть функция температуры сцинтиллятора. В большинстве случаев эффективность понижается с увеличением температуры. Кальман¹² показал, что эффективность органических кристаллов постепенно уменьшается с увеличением температуры до точки плавления, при которой эффективность приближается к нулю. Для неорганических сцинтилляторов эффективность слабо зависит от температуры до определённой критической температурной области, при которой эффективность быстро падает с увеличением температуры. Во многих случаях это резкое снижение эффективности может быть выражено формулой

$$N = \frac{N_0}{1 + \alpha e^{-\frac{\epsilon}{kT}}}, \quad (8)$$

где N_0 — число фотонов, излучённых при низкой температуре, ϵ — энергия активации, связанная с тушением, k — постоянная Больцмана и α — константа.

Бонаноми и Россел^{13, 14} показали, что изменение сцинтилляционной эффективности некоторых галогенидов щелочных металлов с температурой точно описывается формулой (8). Один из случаев, приводящих к этой формуле, таков: если молекула в возбужденном состоянии (электронном) колеблется с подходящей амплитудой, она может достигнуть точки, в которой возбужденное и невозбужденное состояния различаются количественно столь незначительно, что возможен электронный переход на основной уровень с излучением упругих волн вместо света. Вероятность каждого такого события

пропорциональна $e^{-\frac{\epsilon}{kT}}$, где ϵ — энергия, необходимая для достижения конфигурационного тушения. Конкуренция между этим процессом и эмиссионным процессом приводит непосредственно к выражению вида уравнения (8). Некоторые сцинтилляторы, как вольфрамат кальция, имеют критическую область при комнатной температуре. Критические области других материалов располагаются ниже комнатной температуры, и поэтому обычно эти материалы не рассматриваются как сцинтилляторы.

Сцинтилляционный спектр

Знание спектра излучения сцинтиллятора полезно при выборе подходящего фотодетектора для использования его со сцинтиллятором и для составления спецификации оптической системы. Необходимо знать, например, должен ли данный жидкий сцинтиллятор быть использован в кварцевом сосуде или для него пригодно стекло. С другой стороны, полезно знать эмиссионный спектр в связи с исследованием фундаментальных принципов сцинтилляционного процесса. Требования к измерениям эмиссионного спектра для этих двух целей полностью различаются. Для фундаментальных исследований необходимо знать спектр, действительно излученный молекулой. Никакие искажения селективным самопоглощением в данном случае недопустимы. Для этой цели нужно проводить измерения на очень тонких образцах или в разбавленных растворах. Это отличается от практических требований, когда обычно желательно знать спектр, который обнаруживается при толщинах сцинтиллятора, используемых в сцинтилляционных счётчиках. Если при определении эмиссионного спектра применяется ультрафиолетовое возбуждение, можно воспроизвести практический спектр путём использования «сквозного» возбуждения, при котором флуоресцентное излучение проходит через сцинтиллятор, чтобы достичь спектрометра. С другой стороны, если использовать «фронтальное» возбуждение ультрафиолетовым светом с длиной волны, соответствующей максимуму полосы поглощения, то собственное поглощение будет мало, и наблюдаемый спектр приближается к молекулярному спектру. В некоторых случаях в описаниях спектров не ясна роль самопоглощения.

Время высвечивания сцинтилляций

Присутствие примесей может влиять на время высвечивания сцинтиллятора так же сильно, как оно влияет на его эффективность. Примесь может действовать как гаситель, — в этом случае время высвечивания будет сокращаться — или же она может флуоресцировать; при этом время высвечивания характеризуется примесью. В некоторых случаях примесь может захватывать электроны и приводить к фосфоресценции.

Вторичное самопоглощение может изменять наблюдаемое время высвечивания. Хорошо известно, что излучение одноатомных газов может быть задержано на длительный период времени вторичным самопоглощением (см., например, Митчелл и Земанский¹⁵). Такое задерживание очень сильно уменьшено в твёрдых телах в соответствии с описанными ранее принципами, согласно которым эмиссионный спектр сдвинут в сторону более длинных волн по отношению к спектру поглощения. Однако в результате частичного перекрытия широких спектральных полос излучение может всё же испытывать значительное самопоглощение при прохождении в толстом образце. Биркс и Литтл⁷ показали, что в результате этого эффекта время высвечивания, наблюдаемое у толстых органических кристаллов, может быть в несколько раз больше, чем истинное время жизни возбуждённого состояния молекулы.

Делая те же самые предположения, что и при выводе уравнения (3), найдём время высвечивания толстого сцинтиллятора:

$$\tau = \frac{\tau_0}{1 - q \left(1 - \frac{b}{a}\right)}, \quad (9)$$

где τ_0 — молекулярное время жизни, b , a — соответственно площади под кривыми эмиссионного спектра толстого образца и молекулярного эмиссионного спектра (оба спектра должны быть нормализованы, чтобы совпадать в области наиболее длинных волн). Отношение b/a есть также вероятность того, что излучённый фотон пройдёт через сцинтиллятор, избежав поглощения. Для практического применения важно измерение τ , но для теоретической интерпретации необходимо определять τ_0 .

Почти все измерения времени высвечивания, описанные до настоящего времени, производились с помощью фотоумножителей. Большой коэффициент умножения и широкополосная частотная характеристика этих приборов делают возможным измерения времени сцинтилляционного высвечивания с большой точностью для периодов вплоть до 10^{-8} сек. При величинах времени высвечивания, меньших 10^{-8} сек., сильно увеличивается влияние фотоумножителя на наблюдаемое высвечивание, и для сцинтилляций с длительностью менее 3×10^{-9} сек.

основная часть наблюдаемого на выходе времени высвечивания определяется характеристиками фотоумножителя.

Временной разброс, вводимый фотоумножителем, в сущности представляет собой разброс времени прохождения электронной лавины. Этот разброс определяется многими факторами, такими, как число умножающих эмиттеров, степень фокусировки, расстояние между эмиттерами и приложенное напряжение. Для фотоумножителей и рабочих напряжений, обычно используемых в сцинтилляционном счётчике, время разброса (ширина выходного импульса на половине максимума для бесконечно узкого светового импульса) колеблется между 10^{-9} и 2×10^{-8} сек.

Так как сцинтилляция, возникающая при каждом процессе ионизации, вызывает только несколько сот фотоэлектронов с фотокатода, то точное измерение времени высвечивания для одного только импульса невозможно. Эта проблема аналогична измерению времени полураспада короткоживущих радиоизотопов, в которых действительная активность выводится из измерения для нескольких сот частиц. Точность измерений может быть увеличена усреднением ординат многих импульсов, увеличением энергии ионизирующих частиц или применением искусственного возбуждения, состоящего из коротких вспышек, содержащих много частиц с высокой энергией.

Существуют три основных процесса, которые используются для описания люминесцентного высвечивания. Первый процесс — флуоресцентное высвечивание, которое следует закону

$$f(t) = \frac{1}{\tau} e^{-\frac{t}{\tau}}. \quad (10)$$

Параметр высвечивания τ не зависит от температуры и плотности возбуждения, за исключением температурной зависимости, которая может встречаться в точке с сильным температурным тушением.

Второй процесс, известный как фосфоресцентное высвечивание, следует закону затухания, отвечающему уравнению (10), но время высвечивания резко зависит от температуры, подчиняясь выражению

$$\left(\frac{1}{\tau}\right) = se^{-\frac{e}{kT}}. \quad (11)$$

Третий процесс высвечивания может быть определён как «бимолекулярное» высвечивание. Оно характеризуется тем, что скорость высвечивания тем больше, чем больше плотность возбуждения, и описывается выражением

$$f(t) = \frac{\alpha}{(1 + \alpha t)^2}. \quad (12)$$

Параметр α пропорционален плотности возбуждения и в некоторых случаях зависит также и от температуры в форме уравнения (11).

Более полное обсуждение и исследование этих выражений имеется в работах Рэндалла и Уилкинса¹⁶ и Гарлика¹⁷.

Для измерения времени сцинтилляционного высвечивания использовались главным образом три метода.

В первом методе анодный импульс (или импульс последнего динода) наблюдался на экране катодного осциллографа. Этим методом пользовались наиболее часто. Постоянная времени анода RC может быть велика по сравнению со временем высвечивания; в этом случае анодное напряжение будет пропорционально интегралу по времени от анодного тока $I(t)$, который определяется уравнением (4); постоянная RC может быть сделана также значительно меньшей времени высвечивания, так что анодное напряжение будет пропорционально анодному току. Пост и Ширен¹⁸ значительно улучшили временную разрешающую способность метода путём применения очень высоких напряжений в фотоумножителе, причём во избежание разрушения прибора высокое напряжение включалось только на несколько микросекунд. Филлипс и Свэнк¹⁹ увеличили статистическую точность применением пульсирующего рентгеновского возбуждения.

Во втором методе, использованном Либсоном, Бишопом и Эллиотом²⁰, сцинтиллятор возбуждался периодически пульсирующим источником ультрафиолетового или рентгеновского излучения. Возбуждающее ультрафиолетовое излучение модулировалось при дифракции в колеблющемся кристалле кварца. Если число ультрафиолетовых фотонов, поглощаемых сцинтиллятором за одну секунду, равно $J_0 \sin \omega t$, то после того, как установится равновесие, число флуоресцентных фотонов, излучаемых за одну секунду, будет:

$$F(t) = qJ_0 \int_{-\infty}^t f(t - t_0) \sin \omega t_0 dt_0, \quad (13)$$

где предполагается применимость принципа суперпозиции. Для простого случая, когда $f(t)$ — экспоненциальная функция (уравнение (10)),

$$F(t) = \frac{qJ_0}{\sqrt{1 + \omega^2 \tau^2}} \sin(\omega t - \theta), \quad (14)$$

где $\operatorname{tg} \theta = \omega \tau$. Флуоресцентное излучение $F(t)$ будет, таким образом, пульсировать с той же частотой, что и возбуждающее излучение, но будет уменьшено по амплитуде и сдвинуто по фазе. Из разности фаз между возбуждающим и флуоресцентным излучениями можно найти время высвечивания, если форма $f(t)$ известна. Этот метод был видоизменён Бирксом и Литтлом⁷, которые использовали в качестве источника возбуждения газоразрядную трубку.

Третий метод измерения времени высвечивания описан Эллиотом и др.²¹. Принцип этого метода иллюстрирован рис. 4. Импульс фотоумножителя *a* накладывается на его запаздывающее отражение *б*. Кристаллический диод пропускает только положительную часть *в*. Импульс *в* поступает в низкочастотный усилитель, выходной импульс

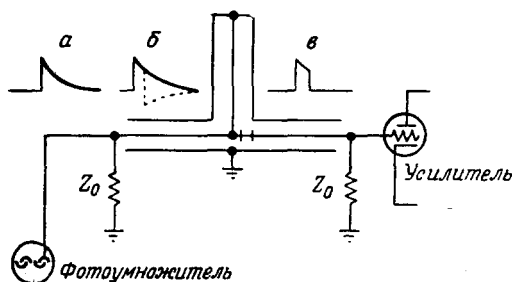


Рис. 4. Схема цепи для измерения времени сцинтилляционного высвечивания методом короткозамкнутой линии. Z_0 — характеристический импеданс для данной цепи. (По данным Эллиота и др.²¹.)

которого пропорционален площади, ограниченной кривой *в*, так что амплитуда на выходе (для идеального диода) будет:

$$A(t_1) = \int_0^{t_1} f(t) dt, \quad (15)$$

где t_1 — время, за которое пройдут импульс и его отражение по короткозамкнутому участку схемы. $f(t)$ можно найти из уравнения (15) дифференцированием по t_1 . Эллиот и др. предположили экспоненциальную форму для $f(t)$ и измерили изменение времени t_1 , необходимое для уменьшения $A(t_1)$ в определенное число раз. Они нашли, что на нелинейность диода нужно ввести поправку, которая относительно постоянна во всей области исследуемого времени высвечивания.

Использовались и два других метода, которые до некоторой степени аналогичны вышеописанному методу и могут рассматриваться как его варианты. Первый метод, использованный Лэндби²², состоит в определении времени высвечивания сцинтиллятора при его работе в схемах совпадения. Второй метод, который применяли Биттман и др.⁹, состоит в определении амплитуды анодного импульса фотоумножителя как функции шунтирующего сопротивления R . В этом методе было достигнуто качественное определение формы $f(t)$.

ОРГАНИЧЕСКИЕ СЦИНТИЛЛЯТОРЫ

Известные сейчас органические сцинтилляторы являются соединениями, молекулы которых содержат одно или несколько бензольных колец. Они представляют собой одно из наиболее крупных и известных семейств флуоресцентных материалов. Полный обзор их флуоресцентных свойств имеется в работе Прингсгейма²³.

Органические кристаллы

Органические сцинтилляторы образуют молекулярные кристаллы с малой энергией связи. Абсорбционный и эмиссионный спектры в кристаллическом состоянии сдвинуты слабо ($\sim 200 \text{ \AA}$) по сравнению со свободными молекулами. Взаимосвязь между химической структурой и сцинтилляционной эффективностью изучалась Кальманом⁸, Сангстером⁶ и Коски и Томасом²⁴. Авторами не было найдено надёжной закономерности для предсказания сцинтилляционной эффективности, но было отмечено несколько соотношений, таких, как желательность симметричных молекул с большим числом сопряжённых двойных связей и нежелательность стерических образований или присутствия серы или галогенов. Эмиссионный спектр этих соединений простирается от $3000 \text{ \AA}$ для твёрдого бензола до $6000 \text{ \AA}$ для материалов, подобных пентацену и дифенилоктатетраену. Более или менее однородное увеличение эмиссионных длин волн происходит при увеличении числа двойных связей.

Органические сцинтилляторы характерны своим коротким временем высвечивания — порядка 10^{-8} сек. Недавние исследования Джексона и Гаррисона¹⁰ и Гаррисона¹¹ показали, однако, что встречаются метастабильные состояния, которые дают второстепенные компоненты высвечивания длительностью около 100 мксек . Время высвечивания органических сцинтилляторов уменьшается с уменьшением температуры. На рис. 5 показаны результаты, полученные Эллиотом и др.²⁵ для антрацена и стильбена при измерении методом короткозамкнутой линии. Эффект, указанный на рисунке, противоположен соответствующей характеристике фосфоресцентного высвечивания — уравнение (11). Биркс¹ предложил объяснять эти результаты самопоглощением — уравнение (9). Увеличение τ с увеличением температуры может быть результатом того, что вероятность b/a выхода фотона уменьшается с увеличением ширины спектра при высоких температурах.

Между различными исследователями существовали значительные разногласия относительно значений эффективности, эмиссионного спектра и времени высвечивания различных органических кристаллов. Кроме уже описанных эффектов, связанных с толщиной образца, расхождения, вероятно, в значительной мере определялись влиянием примесей. Существуют три типа влияния примеси на свойства

органического кристалла: а) путём возмущения флуоресцентных молекул, смежных с ней, примесь может изменять их флуоресцентные свойства; б) примесь может поглощать излучение, испускаемое флуоресцентными молекулами, и в) флуоресцентное возбуждение может мигрировать без излучения, при этом часть его захватывается примесью. Действие только механизма а) потребовало бы

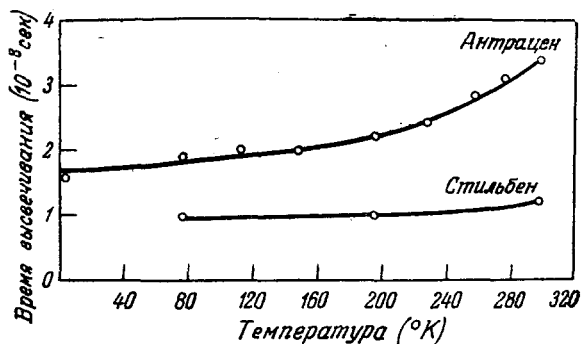


Рис. 5. Зависимость времени сцинтилляционного высвечивания антрацена и стильбена от температуры. (По данным Эллиота и др.²⁵.)

концентраций порядка 5—10%, чтобы значительно изменить флуоресцентные свойства, так как затрагиваются только смежные с примесью молекулы. Поэтому часто наблюдающийся эффект воздействия на сцинтиллятор примесей с концентрацией 0,1% или менее должен быть отнесен к типам б) или в).

Широкое исследование воздействия малых количеств примеси на флуоресценцию органических кристаллов было проведено Боуэном и др.^{26, 27, 28}. Было найдено, что флуоресцентный кристалл более чувствителен к тем примесям, которые сильно поглощают в области флуоресцентного спектра; наблюдения, казалось бы, указывают на то, что излучение, испускаемое кристаллом, реабсорбируется примесью. Однако в результате других исследований Боуэн пришёл к заключению, что энергия возбуждения способна диффундировать через кристалл и захватываться примесью, причём излучения не происходит. Теоретическое обоснование таких процессов дано Кальманом и Лондоном²⁹, Френкелем³⁰ и Ферстером³¹. Эти заключения, вытекающие из экспериментов с ультрафиолетовым возбуждением, играют очень важную роль в нашем понимании сцинтилляционного процесса. Более поздние эксперименты с жидкими и пластическими сцинтиллирующими растворами подтвердили представление о безизлучательной миграции энергии в органических сцинтилляторах. Необходимо отметить, однако, что обоснованность боуэновских заключений была недавно поставлена под сомнение Бирксом¹, который указывает, что многие наблю-

дения, зависящие, на первый взгляд, от безизлучательного механизма переноса, могут быть так же хорошо объяснены излучательным механизмом переноса.

Основываясь на предположении о безизлучательной миграции и переносе энергии, Боуэн вывел уравнения, выражающие зависимость флуоресцентного выхода основного кристалла и в случае флуоресцирующих примесей зависимость примесной флуоресценции от концентрации примеси. Несколько изменив терминологию Боуэна, уравнения можно записать следующим образом:

$$q_A = \frac{k_1}{k_1 + k_2 + k_3 c + k_7 c}, \quad (16)$$

$$q_B = \frac{k_3 k_4 c}{(k_1 + k_2 + k_3 c + k_7 c)(k_4 + k_5 + k_6 c)}, \quad (17)$$

где q_A и q_B — квантовые эффективности основного кристалла A и растворённого вещества B соответственно для излучения, поглощённого основным кристаллом, и

- 1) k_1 — вероятность процесса флуоресценции A ;
- 2) k_2 — вероятность процесса самотушения A ;
- 3) ck_3 — вероятность процесса переноса возбуждения от A к B ;
- 4) k_4 — вероятность процесса флуоресценции B ;
- 5) k_5 — вероятность процесса внутреннего тушения B ;
- 6) ck_6 — вероятность процесса самотушения B ;
- 7) ck_7 — вероятность тушения молекул A молекулами B ;

c — концентрация B в A . Для малых концентраций процессом 7) можно пренебречь, так как тушение при малых концентрациях происходит в результате процесса 3), сопровождаемого процессами 5) и 6). Тогда уравнения (16) и (17) могут быть записаны в виде

$$q_A = \frac{q_0}{(1 + \sigma c)}, \quad (18)$$

$$q_B = \left(\frac{\sigma c}{1 + \sigma c} \right) \left(\frac{q_1}{1 + m c} \right), \quad (19)$$

где

$$q_0 = \frac{k_1}{k_1 + k_2}, \quad q_1 = \frac{k_4}{k_4 + k_5},$$

$$\sigma = \frac{k_3}{k_1 + k_2}, \quad m = \frac{k_6}{k_4 + k_5}.$$

Если примесь флуоресцирует, её эмиссия, определяемая уравнением (19), достигает максимума при $c = 1/\sqrt{\sigma m}$ и затем снижается.

Если примесь не флуоресцирует ($q_1 = 0$), то $q_B = 0$, и тушение A определяется уравнением (18).

Удачное применение этих принципов было найдено в использовании кристаллов нафталина с содержанием малых количеств антрацена в качестве примеси. Кристаллы так же легко выращиваются, как и чистый нафталин, но дают больший сцинтилляционный выход.

Как было упомянуто выше, отклонения от простой линейной зависимости между величиной сцинтилляции и энергией частиц, тормозящихся в сцинтиляторе, представленной формулой (1), могут рассматриваться как результат взаимодействия возбужденных молекул с другими соседними возбужденными молекулами или с другими продуктами, созданными рассеянием энергии частиц. Такой эффект был впервые обнаружен Кальманом¹², который заметил, что световой выход органических кристаллов на единицу расходуемой энергии значительно меньше для α -частиц, чем для β -частиц. Этот эффект был также подтвержден результатами Гопкинса³², который нашёл, что

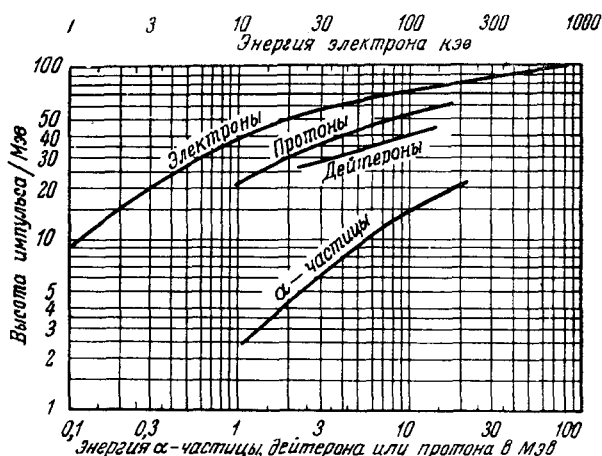


Рис. 6. Зависимость отношения высоты импульса к энергии в антрацене от энергии для различных частиц по данным Тэйлора и др.³³, Фрэя и др.³⁴ и Биркса³⁵.

высота импульса при возбуждении антрацена электронами пропорциональна энергии свыше 125 кэв, но отклоняется от пропорциональности при более низких значениях энергии. В последнее время зависимость сцинтилляционной эффективности от энергии и природы возбуждающих частиц изучалась рядом исследователей. Результаты Тэйлора и др.³³, Фрэя и др.³⁴ и Биркса³⁵ объединены в кривых, показанных на рис. 6. Легко видеть, что отношение сцинтилляцион-

ной эффективности к энергии частицы, тормозящейся в сцинтилляторе, тем меньше, чем больше удельная потеря энергии частицы. Этот эффект более ясно виден из рис. 7, где удельная эффективность $\frac{dN}{dx}$ и дифференциальная эффективность $\frac{dN}{dE}$ изображены в зависимости от удельной потери энергии частицы (по данным Тэйлора и др.). $\frac{dN}{dx}$ — число фотонов, испускаемых на единицу длины пути частицы (единицы на рис. 7 произвольны). Из рис. 7 видно, что сцинтилляционная эффективность антрацена есть функция удельной потери энергии независимо от массы или заряда частицы. Отклонение данных для электронов

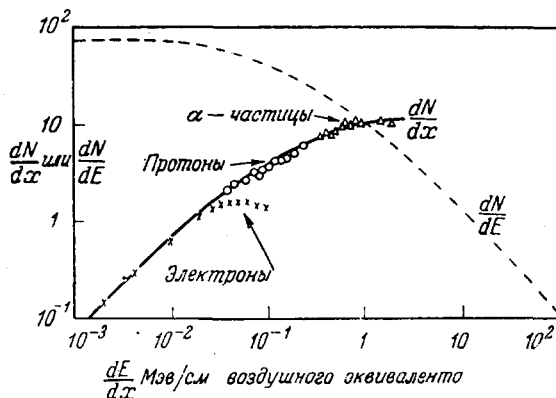


Рис. 7. Удельная эмиссия фотонов $\frac{dN}{dx}$ и дифференциальная эмиссия фотонов $\frac{dN}{dE}$ в зависимости от удельной потери энергии возбуждающих частиц в антрацене. (По данным Тэйлора и др.³³)

с малой энергией от кривой объясняется Бирксом³⁶ как поверхностный эффект, который становится значительным, когда пробег частицы в сцинтилляторе менее $\sim 7 \mu$. Биркс³⁷ вывел теоретическую формулу для описания указанных на рис. 7 результатов, основываясь на предположении о тушении «примесями», получающимися при повреждении молекул облучением. Применяя формулу (18) и принимая во внимание, что тушители образуются при рассеянии энергии частиц, так что $c = B \frac{dE}{dx}$, получим:

$$\frac{dN}{dE} = \frac{q}{w} \left(\frac{1}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \right). \quad (20)$$

Таблица II

Органические сцинтиляционные кристаллы

Материал. Эмпирическая формула	Температура плавления (°C)	Плотность ($\rho/\text{см}^3$)	Длина волны ма- ксимума эмиссии (Å)	Высота импульса для β -частиц *)	Линейность. α/β -отношение	Время высвечи- вания $\times 10^9$ сек. **)	Примечание
Антрацен $\text{C}_{14}\text{H}_{10}$	217	1,25	4400	100	Линейно для $\beta > 125 \text{ кэВ}$, $\alpha/\beta = 0,10$	32	Трудно выра- щивать боль- шие кристаллы
Транстильбен $\text{C}_{14}\text{H}_{12}$	124	1,16	4100	60	$\alpha/\beta = 0,10$	6,4	Легко получа- ются хорошие кристаллы, очень хрупкий
Дифенил- ацетилен $\text{C}_{14}\text{H}_{10}$	62,5	1,18	3900	45		5,4	Легко получа- ются хорошие кристаллы
<i>p</i> -терфенил $\text{C}_{18}\text{H}_{14}$	213	1,23	4000	40		5,0	Легко получа- ются удовлет- ворительные кристаллы, прочный
<i>p</i> , <i>p'</i> -кватер- фенил $\text{C}_{24}\text{H}_{18}$	318	—	4200	85		7	Трудно выра- щивать хоро- шие кристаллы

*) Выход фотоумножителя 5819 или 6292 для антрацена принят за 100.
**) Время, за которое интенсивность уменьшается в e раз от максимальной.

Биркс показал, что значения сцинтилляционной амплитуды, полученные из уравнения (20) интегрированием вдоль пробега частицы, дают отличное совпадение с экспериментальными данными для электронов, протонов, дейтронов и α -частиц в антраcene.

Райтом³⁸ была развита другая теория, которая считает тушение результатом взаимодействия между возбужденными молекулами. Эта теория приводит к бимолекулярному закону высвечивания, который описывается медленно спадающей экспонентой и даёт для сцинтилляционной эффективности:

$$\frac{dN}{dE} = \frac{q}{w} \frac{\ln \left(1 + M \frac{dE}{dx} \right)}{M \frac{dE}{dx}}, \quad (21)$$

где M — константа.

Формы уравнений (20) и (21) недостаточно различны, чтобы можно было сделать выбор на основе имеющихся экспериментальных данных. Однако данные Биттмана и др.⁹ для времени высвечивания свидетельствуют в пользу теории Райта.

Влияние удельной потери энергии возбуждающих частиц на эффективность отдельных сцинтилляторов удобно определять путём сравнения отношения высоты импульса к энергии для α -частиц Po ($E_0 = 5,3 \text{ Мэв}$) с соответствующим отношением для электронов с высокой энергией ($E_0 \geq 1,0 \text{ Мэв}$); это отношение часто называют « α/β -отношением». Оно очень близко к 0,10 для антрацена и имеет примерно то же значение для других органических сцинтилляторов.

В таблице II приведены некоторые свойства обычно употребляемых органических кристаллических сцинтилляторов.

Жидкие сцинтилляторы

После сообщения Рейнольдса и др.³⁹ о том, что сцинтилляционные импульсы, сравнимые с импульсами из кристаллов, могут быть получены из растворов p -терфенила в ксилоле, применение жидких сцинтилляторов быстро распространилось. Широкое исследование этих материалов было проведено Кальманом и Фурстом^{40, 41, 42}.

Большинство наших представлений об основных принципах работы сцинтилляторов этого типа является результатом их исследований. Они показали, что перенос энергии возбуждения из растворителя в растворённое вещество происходит в этих растворах в значительной степени аналогично переносу, обнаруженному Боуэном в кристаллических твёрдых растворах. Однако в случае жидкостей почти не наблюдался выход флуоресценции для чистых веществ, т. е. $q_A = 0$. Тот

факт, что энергия возбуждения передаётся растворённому веществу, прежде чем происходит тушение, делает возможной достаточную эффективность.

Таблица III

Жидкие сцинтилляторы

Растворитель	Растворённое вещество *) (g/l)	Вторичное растворённое вещество *) (g/l)	Длина волны максимума эмиссии (Å)	Высота импульса для β -частиц **)	α/β -отношение	Время высвечивания $\times 10^9$ сек. ***)	Примечание
Толуол ****)	ТР, 5	0	3550	0,35	0,09	2,2	Может быть использован в люцитовом контейнере
Фенилциклогексан ****)	ТР, 3	0	3550	0,27		$< 2,9$	
Фенилциклогексан *****)	ТР, 3	DPH 0,01	4500	0,35		8,0	То же
Толуол ****)	ТР, 5	α NPO 0,02	4150	0,42		$\leq 3,2$	Длина свободного пробега фотонов ~ 2 м
Толуол ****)	PPO, 3	0	3820	0,40		$\leq 3,0$	Применяется при низких температурах
Толуол ****)	PBD, 8	0	3700	0,49		$< 2,8$	

*) Сокращённые обозначения: ТР-*p*-терфенил; DPH-1,6-дифенил-1, 3, 5-гексатриен; α NPO-2-(1-нафтил)-5-фенил-оксазол; PPO-2,5-дифенилоксазол; PBD-2-фенил-5-(4-бифенил)-1, 3, 4-оксадиазол.

**) Выход фотоумножителя 5819 или 6292 для кристалла антрацена принят за 1,00.

***)) Время, за которое интенсивность уменьшается в e раз от максимального значения.

****)) Особо очищенный Хейсом (Лос-Аламосская научная лаборатория).

*****)) Фирма Истмэн Кодак, № 1502.

Используя аналогичный анализ, Кальман и Фурст вывели уравнение того же вида, что и уравнение (19), выражающее выход люминесценции в функции от концентрации. Согласие этого уравнения с опытом было подтверждено на большом числе различных растворителей и растворённых веществ. В добавление к использованию

флуоресцентного растворимого вещества как активатора Кальман и Фурст обнаружили, что сильно флуоресцирующие растворённые вещества в очень малых концентрациях могут абсорбировать флуоресценцию основного растворённого вещества и переводить её в излучение с большей длиной волны. Такие вторичные растворённые вещества, которые теперь принято называть «преобразователями длин волн», становятся очень полезными для получения лучшего соответствия сцинтиллятора спектральной чувствительности фотоумножителя и для уменьшения самопоглощения в сцинтилляторе.

Новый ряд флуоресцирующих добавок для жидких сцинтилляторов был найден Хейсом⁴³. Эти соединения, которые относятся к фенилоксазолам, значительно более растворимы, чем *p*-терфенил. Они являются единственно известными растворяемыми веществами, которые могут быть успешно использованы при низких температурах. Различные члены этого семейства соединений пригодны в качестве основных растворяемых веществ или как преобразователи длин волн.

Рейнольдс⁷⁴ изучал выход жидких сцинтилляторов для α -частиц. Для раствора 5 г терфенила на 1 л толуола выход очень близок к выходу антрацена. Однако α/β -отношение быстро уменьшается с уменьшением концентрации терфенила. Выход этих растворов для различных частиц рассмотрен в работе Гаррисона⁷⁵.

Жидкие сцинтилляторы сильно подвержены порче загрязнениями, в частности, органическими соединениями серы и галогенов. Особый род порчи кислородом был изучен Принглом и др.⁴⁴. Прингл показал, что действие растворённого кислорода обратимо и что сцинтилляционная эффективность может восстанавливаться при пропускании азота сквозь жидкость. Состав и характеристики ряда жидких сцинтилляционных растворов приведены в таблице III.

Пластические сцинтилляторы

Со времени сообщения Шорра и Торни⁴⁵ о том, что сцинтилляции обнаружены в твёрдых растворах терфенила в полистироле, интерес в этих материалах сконцентрировался вокруг достижения большего светового выхода и исследования природы процессов переноса энергии.

Спектр и высота импульсов некоторых твёрдых растворов были изучены Ксски⁴⁶. Пиче и др.^{47, 48} разработали пластические сцинтилляторы, содержащие 1, 1, 4, 4-тетрафенил-1,3-бутадиен, и описали спектры и высоту импульсов различных растворов наряду с результатами экспериментов, указывающими на то, что сцинтилляционный процесс включает в себя механизм нерадиа-

ционного переноса энергии. Бак и Свэнк^{49, 50} изучили высоту импульса, спектр и время высвечивания некоторых веществ, растворённых в полистироле и поливинилтолуоле. Было найдено, что кривые зависимости высоты импульса от концентрации (рис. 8) очень хорошо совпадают по характеру с уравнениями (18) и (19).

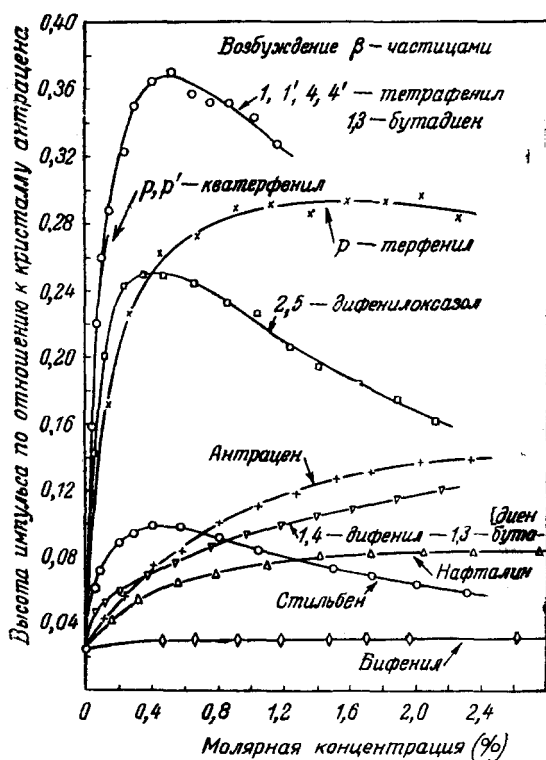


Рис. 8. Высота импульса в зависимости от концентрации для различных пластицидных сцинтилляторов. Сплошные линии представляют собой теоретические кривые [уравнения (18) и (19)], совпадающие с экспериментальными точками. (По данным Свэнка и Бака⁵⁰.)

Изучение прохождения энергии через тонкую плёнку и измерение времени высвечивания в зависимости от концентрации растворённого вещества привели к заключению, что около 20% энергии возбуждения растворителя передаётся растворённому веществу путём излучения и 80% — безизлучательным механизмом.

Сводка имеющихся данных для некоторых пластических сцинтилляторов дана в таблице IV.

Таблица IV

Пластические сцинтилляторы

Растворитель	Растворённое вещество *) (г/л мономера)	Вторичное растворённое вещество *) (г/л мономера)	Длина волны максимума эмиссии (Å)	Высота импульса для β -частиц **)	α/β -отношение	Время высвечивания $\times 10^9$ сек ***)	Примечание
Полистирол . . .	ТР, 36	0	3550	0,28	0,10	$\leq 3,0$	Длина свободного пробега фотона ~ 2 м
Полистирол . . .	ТРВ, 16	0	4500	0,36	0,08	4,6	
Полистирол . . .	ТР, 36	ТРВ 0,2	4450	0,39	0,10	4,0	
Поливинилтолуол	ТРВ, 16	0	4500	0,37	0,08	4,6	
Поливинилтолуол	ТР, 36	ТРВ 0,2	4450	0,45	0,10	4,0	
Поливинилтолуол	ТР, 36	DPS 0,9	~ 3800	0,48	0,10	$\leq 3,0$	

*) Сокращённые обозначения: ТР-*p*-терфенил; ТРВ 1, 1, 4, 4-тетрафенил-1, 3-бутадиен; DPS-*p,p'*-дифенилстильбен.
 **) Выход фотоумножителя 5819 или 6292 для кристалла антрацена принят за 1,00.
 ***) Время, за которое интенсивность уменьшается в e раз от максимального значения.

НЕОРГАНИЧЕСКИЕ СЦИНТИЛЛЯТОРЫ

Большая часть существующих сведений, касающихся поведения неорганических сцинтилляторов, исходит от более ранних исследований ультрафиолетовой флуоресценции и катодолюминесценции этих материалов (обзоры см. в работах Фонда и Зейтца⁵¹, Крёгера⁵², Левренца⁵³, Гарлика¹⁷, Прингсгейма²³).

Основной интерес представляют соединения, образующие ионные кристаллы. Большие силы взаимодействия между ионами вызывают собирание индивидуальных молекулярных энергетических уровней валентных электронов в размытые полосы, принадлежащие всему

кристаллу. Эти энергетические полосы иллюстрируются схемой рис. 9. В невозбужденном кристалле самая верхняя из занятых полос полностью заполнена в соответствии с запретом Паули. При поглощении кристаллом кванта энергии электрон может перейти из заполненной

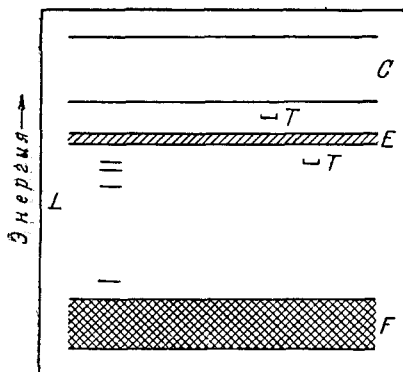


Рис. 9. Схема энергетических уровней активированного кристаллического сцинтиллятора: F — самая высокая из заполненных полос, C — полоса проводимости, E — полоса возбуждения, T обозначает уровни захвата электронов, L — уровни центров люминесценции.

полосы F в полосу проводимости C , после чего электрон и его дырка, которую он покинул в заполненной полосе, могут независимо двигаться через кристалл, пока не будут захвачены примесью или центром неоднородности в кристалле. Имеется также возможность возбуждения кристалла поглощенным квантом без ионизации (полоса E), и в этом случае энергия возбуждения не локализуется, а быстро движется через кристалл в виде волн возбуждения (Френкель³⁰, Франк и Теллер⁵⁴). Эти волны возбуждения проявляют также корпускулярные свойства, и связанная с ними частица описывается как экситон. Экситон быстро диффундирует через кристалл, проходя мимо моле-

кулы за время, более короткое, чем период колебания молекулы. Он может попасть в места несовершенства кристалла и излучить энергию в виде упругих волн или может быть захвачен примесью, вызывая возбужденное состояние. Можно думать, что вследствие последнего процесса экситонные волны могут играть важную роль в сцинтилляционных явлениях.

Галогениды щелочных металлов

Эти кристаллы, содержащие малое количество галогенида таллия, являются старейшими и наиболее изученными неорганическими фосфорами. Сводка и объяснение свойств этих фосфоров даны Зейтцем⁵⁵. Зейтц считает, что активация таллием заключается в основном в замещении ионами Tl^+ ионов щелочных металлов. Это вводит новые абсорбционные полосы с длинами волн, большими, чем в основной полосе поглощения кристалла. Наблюдаемые абсорбционные уровни находятся в определенной связи с уровнями в свободном атоме таллия. Эксперименты с возбуждением $KCl(Tl)$ ультрафиолетовым излучением показали, что а) Tl флуоресцирует с высокой эффективностью, когда возбуждение производится его «характеристической» полосой погло-

щения, но со значительно меньшей эффективностью, когда кристалл облучается «фундаментальной» полосой поглощения; б) фотопроводимость не возникает в обоих случаях. Результат б) указывает на то что фундаментальная абсорбция должна создавать экситон скорее, чем электрон проводимости, и а) указывает на то, что перенос экситонной энергии к излучающим центрам неэффективен.

Высокая сцинтилляционная эффективность NaI(Tl) и KI(Tl) указывает на то, что возбуждения, производимые в решётке, должны передаваться излучающим центрам с высокой эффективностью. Энергия ионизирующих частиц значительно больше, чем энергия квантов в экспериментах с ультрафиолетом, поэтому можно предположить, что большая часть энергии частиц идёт на ионизацию. Эмиссия может быть, таким образом, результатом рекомбинации электрона и дырки в центре активации.

Активированные таллием галогениды щелочных металлов дают фосфоресцентное сцинтилляционное высвечивание, состоящее из одного или более компонентов, форма которых описывается уравнениями (10) и (11). Изучение времени высвечивания было недавно проведено Бонаноми и Росселом^{13, 14}.

Активированные таллием галогениды щелочных металлов имеют исключительно высокую прозрачность к своему собственному излучению. Самая большая длина волны поглощения — менее 3000 Å, тогда как полоса излучения во всех случаях почти полностью выше 3000 Å и обычно выше 4000 Å для иодидов. Положение значительно менее благоприятно в случае активирования Sn или Eu.

Наиболее удобным сцинтиллятором среди щелочных галогенидов является NaI(Tl). Применение этого сцинтиллятора описано Гофштадтером^{56, 57, 58}. Большая часть сцинтилляционной энергии излучается в виде фосфоресцентного компонента, имеющего очень короткое время жизни (0,25 мксек при комнатной температуре). Кроме высокой эффективности и прозрачности, удобное свойство этого сцинтиллятора заключается в том, что самотушение ионами активатора очень мало. В результате этого возможно получить оптимальную эффективность (для электронов) в широкой области концентраций активатора. Харшоу и др.⁵⁹ нашли, что, хотя концентрация таллия и может изменяться более чем вдвое, в крупном кристалле, выращенном из расплава, изменение высоты импульса незначительно. Их данные для высот импульсов в зависимости от концентрации таллия показаны на рис. 10.

Исследования Тэйлора и др. показали, что для NaI(Tl) характерна линейная зависимость высоты импульса от энергии для электронов и протонов в широкой области энергий, но он даёт отклонение от линейности для α -частиц ниже 20 Мэв. Соответственно высота импульса на единицу энергии одинакова для протонов и электронов,

но меньше для α -частиц. В работе Лоуберга⁶⁰ приведены зависимости относительной высоты импульса от энергии для α -частиц ниже 10 Мэв. Эти результаты показаны на рис. 11. Однако кривые, по-

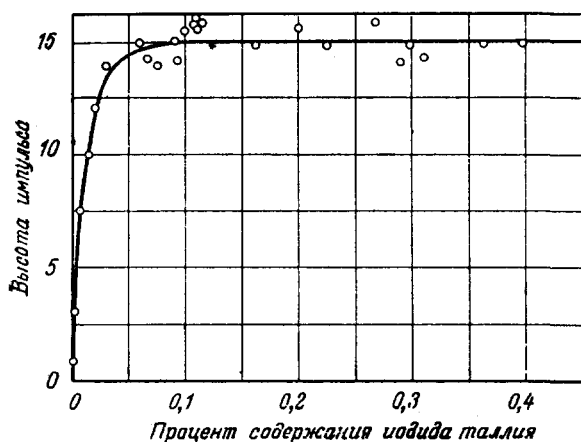


Рис. 10. Высота импульса для быстрых электронов в зависимости от концентрации Тl в NaI (Тl). (По данным Харшоу и др.⁵⁹.)

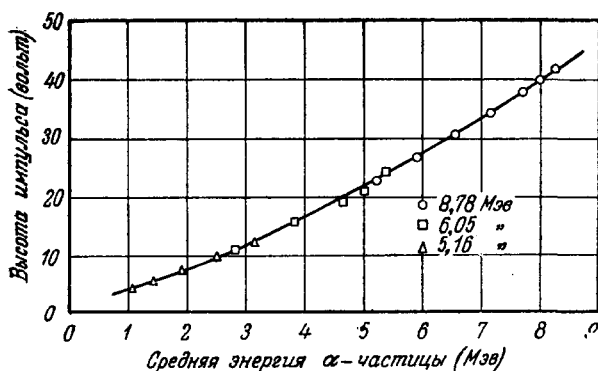


Рис. 11. Относительная высота импульса в зависимости от энергии α -частиц для NaI (Тl). (По данным Лоуберга⁶⁰.)

добные кривым на рис. 6, не могут быть построены для NaI (Тl), так как Эби и др.⁶¹ обнаружили, что относительный выход в зависимости от энергии различен для различных концентраций таллия.

Поэтому работы разных исследователей нельзя сравнивать, если не указаны концентрации активатора.

Обнаружение медленных нейтронов при помощи реакции $\text{Li}^6(p, \alpha)\text{H}^3$ в $\text{LiI}(\text{Tl})$ описано Гофштадтером и др.⁶². Более поздние исследования Шардта и Бернштейна⁶³ показали, что эти кристаллы, выращенные из расплава, обнаруживают изменения высоты импульса по объёму кристалла как результат сильных колебаний в концентрации таллия.

Авторы нашли, что Sn смешивается более легко и с хорошей однородностью. Шенк⁶⁴ получил большую высоту импульса при активации Eu. Он обнаружил, что высота импульса для медленных нейтронов, делённая на энергию реакции, равна 95 % высоты импульса на единицу энергии, полученной для быстрых электронов. Естественно было сделать заключение, что эффективность этого сцинтиллятора почти не зависит от природы и энергии возбуждающих частиц.

Позднее было доказано, что это заключение ошибочно (Шенк и Нейлер⁶⁵). Было найдено, что высота импульса на единицу энергии для протонов больше, чем для электронов. Это и другие исследования привели к заключению, что эффективность для α -частиц заметно меньше, чем соответствующая эффективность для электронов. Исходя из этого, можно построить гипотетическую кривую эффективности в зависимости от удельной потери энергии, подобно показанной на рис. 12. Объяснение такого поведения пока не найдено.

Сцинтилляционные свойства $\text{CaI}_2(\text{Tl})$ и $\text{CsI}(\text{Tl})$ ⁶⁶, а также CsF ⁶⁷ описаны Ван-Сквером и Гофштадтером. Небольшие прозрачные кристаллы $\text{NH}_4\text{I}(\text{Tl})$ выращивались Гугелотом⁷⁶. Высоты импульсов для электронов составляли только $1/15$ по отношению к высоте импульса для $\text{NaI}(\text{Tl})$, а выход для α -частиц был нелинейным.

Опыты с неактивированными кристаллами CsI при низких температурах описаны Ханом⁶⁸. При 77°K эти кристаллы дают большой сцинтилляционный выход для α -частиц и показывают пропорциональность, лучшую, чем $\text{NaI}(\text{Tl})$ и $\text{KI}(\text{Tl})$. Сводка данных для сцинтилляторов из галогенидов щелочных металлов приведена в таблице V.

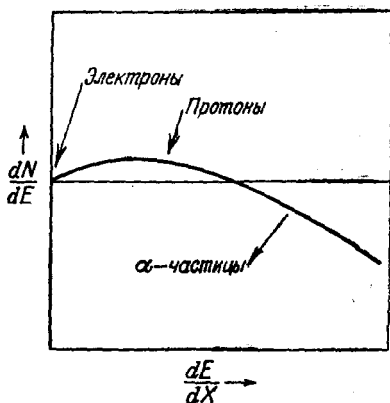


Рис. 12. Предполагаемая форма кривой дифференциальной эффективности в зависимости от удельной потери энергии для $\text{LiI}(\text{Eu})$.

Таблица V

Сцинтилляторы из галогенидов щелочных металлов

Материал	Температура плавления (°C)	Плотность (г/см³)	Длина волны максимума эмиссии (Å)	Высота импульса для β -частиц* (10 мксек)	Световой выход для β -частиц** (метод постоянного тока)	Линейность. Выход для тяжёлых частиц	Время высвечивания*** (мксек)	Примечание
NaI (Tl)	651	3,67	4100	210	210	Линейно для β, p $\alpha/\beta = 0,5$	0,25	Гигроскопичен, отличная прозрачность
KI (Tl)	582	3,13	4100	~50	~200	Линейно для β, p $\alpha/\beta = 1,0$	1,0	Отличная прозрачность
CsI (Tl)	621	4,51	(голубой)	55	~130	$\alpha/\beta = 0,5$	1,1	
LiI (Tl)	446	4,06	~4500	20		$n/\beta = 0,65$ ****)	1,2	Неоднороден, очень гигроскопичен
LiI (Sn)	446	4,06	5300	12		Линейно для β, p $n/\beta = 0,93$ ****)	0,7	Бледно-желтый, очень гигроскопичен
LiI (Eu)	446	4,06	~4400	75		Линейно для β, p $n/\beta = 0,95$ ****)	2,0	Почти бесцветен, очень гигроскопичен
CsF	684	3,59	~4000	5—10		$\alpha/\beta = 0,25$	0,005	
CsI (77° K)	621	4,51				Линейно для $\alpha \geq 3$ Мэв	0,5	Эффективность для α -частиц 35%

*) Выход фотоумножителя 5819 и 6292 с постоянной времени анода ~ 10 мксек для кристалла антрацена принят за 100.

**) Анодный ток фотоумножителя для кристалла антрацена принят за 100.

***) Время, за которое интенсивность уменьшается в e раз от максимального значения.

****) Высота импульса от тепловых нейтронов, делённая на энергию реакции 4,785 Мэв, отнесена к высоте импульса от электронов на единицу энергии.

Сернистый цинк

Неактивированный сернистый цинк даёт голубое излучение непосредственно за границей полосы поглощения. Является ли эмиссия характеристикой «чистого» ZnS или ZnS, активированного избыточным Zn, неизвестно. При введении в качестве примеси Ag в количествах порядка 0,01% голубое излучение сильно увеличивается и сцинтилляционная эффективность очень высока.

В ZnS нет чистых полос возбуждения. При облучении внутри первой полосы появляется фотопроводимость. Аналогично абсорбция частиц с высокой энергией весьма эффективно создаёт электроны проводимости. Люминесценция происходит тогда, когда электрон и дырка рекомбинируют в центре люминесценции. Однако рекомбинация тормозится при захвате электронов в решётке. Наблюдения Бьюба⁶⁹ показали, что в решётке ZnS могут присутствовать 16 различных уровней захвата. Так как люминесценция происходит при рекомбинации, высвечивание имеет бимолекулярный характер (уравнение (12)), а так как скорость рекомбинации определяется освобождением из уровней захвата, то она имеет сильную температурную зависимость.

Несмотря на то, что ZnS (Ag) — один из наиболее эффективных ныне известных сцинтилляторов и то, что он имеет эмиссионный спектр, идеально подходящий к лучшим фотоумножителям, применение его в сцинтилляционных счётчиках очень ограничено по трём причинам: а) очень трудно изготовлять большие монокристаллы, б) кристалл только частично прозрачен к собственному излучению и в) большая часть энергии люминесценции излучается слишком медленно для использования в счётчиках импульсов. Тем не менее, ZnS (Ag) был признан удобным для счёта тяжёлых заряженных частиц, а также для счёта быстрых и медленных нейтронов.

Кальман⁷⁰ обнаружил, что в то время как выход ZnS (Ag) для α -частиц (на единицу поглощённой энергии) больше, чем для электронов, выход для осколков деления значительно меньше. Это наводит на мысль, что указанная на рис. 12 характеристика общего вида применима, возможно, и к этому сцинтиллятору.

Вольфраматы щёлочно-земельных металлов

Вольфраматы Mg, Ca, Sr и Cd все образуют эффективные фосфоры. Введение активатора не обязательно для флуоресценции этих соединений. Однако химически чистые порошки не люминесцируют, и их необходимо «активировать» нагреванием. Это явление ранее объяснялось созданием активаторных центров при нарушении стехиометрических пропорций. Однако в кристаллах более крупных и более совершенных нагревание может просто уменьшать число тушащих центров. Эксперименты Крёгера⁵² прямо указывают, что флуоресценция

этих соединений есть молекулярное явление, не включающее в себя переноса энергии к активаторным центрам.

Наблюдение сцинтилляций в естественном шеелите (CaWO_4) Муном⁷¹ возбудило значительный интерес вследствие очень высокой чувствительности этих кристаллов к γ -лучам. Джиллет⁷² получал небольшие синтетические кристаллы CaWO_4 и CdWO_4 . Несмотря на то, что высокая точка плавления CaWO_4 затрудняет выращивание кристаллов из расплава, это, вероятно, не было бы непреодолимым

Таблица VI

Различные неорганические сцинтилляторы

Материал	Температура плавления ($^{\circ}\text{C}$)	Плотность (г/см^3)	Длина волны максимума эмиссии ($\text{\AA}$)	Высота импульса для β -частиц *) (10 мксек)	Световой выход для β -частиц **) (метод постоянного тока)	Линейность. Выход для тяжёлых частиц	Время высвечивания ***) мксек	Примечание
ZnS (Ag)	1850	4,09	4500	~ 100	~ 400	$\alpha/\beta = 2,0$	~ 10	Кристаллический порошок
CaWO_4	1535	6,10	4300	36		Линейно для β $\alpha/\beta \cong 0,2$	6	Маленькие кристаллы. Химически инертный
CdWO_4	1325	7,90	5300	21			8	Маленькие кристаллы. Бледножёлтый
CaF_2	1360	3,18	~ 2500	$\sim 25^{****}$)		Линейно для β $\alpha/\beta < 1,0$	0,2	Большие кристаллы. Химически инертный
CaI_2 (Tl)	575	3,96	~ 4000	230			1,1	Гигроскопичен

*) Выход фотоумножителя 5819 или 6292 с постоянной времени анода $\sim 10 \text{ мксек}$ для кристалла антрацена принят за 100.
 **) Анодный ток фотоумножителя для антрацена принят за 100.
 ***) Время, за которое интенсивность уменьшается в e раз от максимального значения.
 ****) С наружным пластическим преобразователем длин волн.

препятствием для изготовления больших кристаллов. Уменьшение технической заинтересованности в этом материале вызвано не этой трудностью, а заменой его сцинтиллятором NaI (Tl), который даёт большие импульсы с более коротким временем высвечивания.

Прочие сцинтилляторы

Сцинтилляции в CaF_2 и в других минералах описаны Муном⁷¹. Время высвечивания CaF_2 исследовано в работе Мак-Интера⁷³. Сводка данных для некоторых сцинтилляторов приведена в таблице VI.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. J. B. Birks, Scintillation Counters (Pergamon Press Ltd., London, England and McGraw-Hill Book Co., Inc., New York, 148 стр., 1953). Есть русский перевод.
2. S. C. Curran, Luminescence and the Scintillation Counter. (Butterworths Scientific Publications, London, England and Academic Press Inc., New York, 219 стр., 1953.)
3. G. F. J. Garlick, Progress in Nuclear Physics 2, 51—58 (Pergamon Press Ltd., London, England, and Academic Press Inc., New York, 295 стр., 1952).
4. W. H. Jordan, Ann. Rev. Nuclear Sci. 1, 207—244 (1952).
5. F. B. Harrison, Liquid Scintillation Counters and Their Application to the Measurement of the Negative μ -Meson Capture Probability in the Heavy Elements (Doctoral thesis, Princeton University, Princeton, N. Y., 1951).
6. R. C. Sangster, Massachusetts Institute of Technology, Technical Report № 55 (1952).
7. J. B. Birks and W. A. Little, Proc. Phys. Soc. (London), A66, 921 (1953).
8. H. Kallman, New York University, Progress Report № 6, Contract № DA36-039 SC-5487 (1952).
9. L. Bittman, M. Furst and H. Kallman, Phys. Rev. 87, 83 (1952).
10. J. A. Jackson and F. B. Harrison, Phys. Rev. 89, 322 (1953).
11. F. B. Harrison, Scintillation Counter Symposium (Washington, D. C., 1954); Nucleonics 12 (3), 24 (1954).
12. H. Kallman, Scintillation Counter Symposium (Oak Ridge, Tenn., 1949); Atomic Energy Commission Report AECU-583 (1949).
13. J. Bonanomi and J. Rossel, Physica 18, 486 (1952).
14. J. Bonanomi and J. Rossel, Helvetica Phys. Acta 25, 725 (1952).
15. A. C. G. Mitchell and M. W. Zemansky, Resonance Radiation and Excited Atoms (The University Press, Cambridge, Mass., 338 стр., 1934). Есть русский перевод.
16. J. T. Randall and M. H. F. Wilkins, Proc. Roy. Soc. (London), A184, 347 (1945).
17. G. F. J. Garlick, Luminescent Materials (Oxford University Press, London, England, 254 стр., 1949).
18. R. F. Post and N. S. Shiren, Phys. Rev. 78, 81 (1950).
19. H. B. Phillips and R. K. Swank, Rev. Sci. Instr. 24, 611 (1953).
20. S. H. Liebson, M. E. Bishop and J. O. Elliot, Phys. Rev. 80, 907 (1950).
21. J. O. Elliot, S. H. Liebson, R. D. Meyers and C. F. Ravilious, Rev. Sci. Instr. 21, 631 (1950).
22. A. Lundby, Phys. Rev. 81, 324 (1951).

23. P. Pringsheim, Fluorescence and Phosphorescence (Interscience Publishers, New York, 794 стр., 1949). Есть русский перевод.
24. W. S. Koski and C. O. Thomas, J. Chem. Phys. **19**, 1286 (1951).
25. J. O. Elliot, S. H. Liebson and C. F. Ravillious, Phys. Rev. **79**, 393 (1950).
26. E. J. Bowen and E. Mikiewicz, Nature **159**, 706 (1947).
27. E. J. Bowen and P. D. Lawley, Nature **164**, 572 (1949).
28. E. J. Bowen, E. Mikiewicz and F. W. Smith, Proc. Phys. Soc. **A62**, 26 (1949).
29. H. Kallman and F. London, Zeits. f. Phys. **B2**, 207 (1929).
30. J. Frenkel, Phys. Rev. **37**, 17, 1276 (1931).
31. T. Förster, Ann. d. Phys. **2**, 55 (1948).
32. J. I. Hopkins, Rev. Sci. Instr. **22**, 29 (1951).
33. C. J. Taylor, W. K. Jentschke, M. E. Remley, F. S. Eby and P. G. Kruger, Phys. Rev. **84**, 1034 (1951).
34. H. B. Frey, W. M. Grim, W. M. Preston and T. S. Gray, Phys. Rev. **82**, 372 (1951).
35. J. B. Birks, Proc. Phys. Soc. **A63**, 1294 (1950).
36. J. B. Birks, Phys. Rev. **86**, 569 (1952).
37. J. B. Birks, Phys. Rev. **84**, 364 (1951).
38. G. T. Wright, Phys. Rev. **91**, 1282 (1953).
39. G. T. Reynolds, F. B. Harrison and G. Salvani, Phys. Rev. **78**, 488 (1950).
40. H. Kallman and M. Furst, Phys. Rev. **79**, 857 (1950).
41. H. Kallman and M. Furst, Phys. Rev. **81**, 853 (1951).
42. M. Furst and H. Kallman, Phys. Rev. **85**, 816 (1952).
43. F. N. Hayes, Scintillation Counter Symposium (Washington, D. C., 1954); Nucleonics **12** (3), 27 (1954).
44. R. W. Pringle, L. D. Black, B. L. Funt and S. Sobering, Phys. Rev. **92**, 1582 (1953).
45. M. Schorr and F. Torney, Phys. Rev. **80**, 474 (1950).
46. W. S. Koski, Phys. Rev. **82**, 230 (1951).
47. L. Pichat et Y. Koechlin, J. chim. phys. **48**, 225 (1951).
48. L. Pichat, P. Pesteil et J. Clement, J. chim. phys. **50**, 26 (1953).
49. W. L. Buck and R. K. Swank, Nucleonics **11** (11), 48 (1953).
50. R. K. Swank and W. L. Buck, Phys. Rev. **91**, 927 (1953).
51. G. R. Fonda and F. Seitz, Preparation and Characteristics of Solid Luminescent Materials (John Wiley & Sons, Inc., New York, 459 стр., 1948).
52. P. Kröger, Some Aspects of Luminescence in Solids (Elsevier Publishing Co., New York, 310 стр., 1948).
53. H. W. Leverenz, An Introduction to Luminescence of Solids (John Wiley & Sons, Inc., New York, 569 стр., 1950).
54. J. Frank and E. Teller, J. Chem. Phys. **6**, 861 (1938).
55. F. Seitz, J. Chem. Phys. **6**, 150 (1938).
56. R. Hofstadter, Phys. Rev. **74**, 100 (1948).
57. R. Hofstadter, Phys. Rev. **75**, 796 (1949).
58. R. Hofstadter, Phys. Rev. **79**, 389 (1950).
59. J. A. Harshaw, H. C. Kremers, E. C. Stewart, E. K. Warburton and J. O. Hay, Atomic Energy Commission Report, NYO-1577 (1952).
60. R. H. Lovberg, Phys. Rev. **84**, 852 (1951).
61. F. S. Eby, W. K. Jentschke and G. De Pasquali, Phys. Rev. **91**, 495 (1953).
62. R. Hofstadter, J. A. McIntyre and H. I. West, Phys. Rev. **82**, 749 (1951).
63. A. W. Schardt and W. Bernstein, Atomic Energy Commission Report, BNL-1156 (1953).

64. J. Schenck, *Nature* **171**, 518 (1953).
 65. J. Schenck and J. H. Neiler, *Scintillation Counter Symposium* (Washington, D. C., 1954); *Nucleonics* **12** (3), 28 (1954).
 66. W. Van Sciver and R. Hofstadter, *Phys. Rev.* **84**, 1062 (1951).
 67. W. Van Sciver and R. Hofstadter, *Phys. Rev.* **87**, 522 (1952).
 68. B. Hahn, *Phys. Rev.* **91**, 772 (1953).
 69. R. H. Bube, *Phys. Rev.* **78**, 349 (1950).
 70. H. Kallman, *Signal Corps Engineering Report E-1044* (Fort Monmouth, New York, 1950).
 71. R. J. Moon, *Phys. Rev.* **73**, 1210 (1948).
 72. R. H. Gillette, *Rev. Sci. Instr.* **21**, 294 (1950).
 73. W. J. McIntyre, *Phys. Rev.* **75**, 1439 (1949).
 74. G. T. Reynolds, *Nucleonics* **10** (7), 46 (1952).
 75. F. B. Harrison, *Nucleonics* **10** (6), 40 (1952).
 76. P. C. Gugelot, *Atomic Energy Commission Report NYO-973* (1951).
 77. J. B. Birks and M. E. Szendrei, *Phys. Rev.* **91**, 197 (1953).
 78. M. Furst, H. Kallman and B. Kramer, *Phys. Rev.* **89**, 416 (1953).
-