

НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
ІНСТИТУТ МОНОКРИСТАЛІВ

Тарасенко Олег Анатолійович

УДК 538.956 [537.572+535.376]

**ГЕНЕРАЦІЯ ЗАРЯДОВИХ СТАНІВ ТА РОЗМІН ЇХ ЕНЕРГІЇ В
ОРГАНІЧНИХ ТВЕРДОТІЛЬНИХ СЦИНТИЛЯТОРАХ**

01.04.10 – фізика напівпровідників і діелектриків

АВТОРЕФЕРАТ

дисертації на здобуття наукового ступеня
доктора фізико-математичних наук

Харків-2016

Дисертацією є рукопис

Роботу виконано в Інституті сцинтиляційних матеріалів НАН України, м. Харків

Науковий консультант: доктор фізико-математичних наук, професор **Галунов Микола Захарович**, Інститут сцинтиляційних матеріалів НАН України, завідувач відділу; Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна, в.о. завідувача кафедрою фізичної оптики

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, член-кореспондент НАН України, професор **Довбня Анатолій Миколайович**, Інститут фізики високих енергій і ядерної фізики ННЦ «ХФТІ» НАН України, директор

доктор фізико-математичних наук, професор **Остапенко Ніна Іванівна**, Інститут фізики НАН України, провідний науковий співробітник

доктор фізико-математичних наук, старший науковий співробітник **Зоренко Юрій Володимирович**, Львівський національний університет імені Івана Франка, головний науковий співробітник

Захист відбудеться « 15 » червня 2016 р. о 14 годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 64.169.01 при Інституті монокристалів НАН України (61001, м. Харків, пр. Леніна, 60).

Із дисертацією можна ознайомитись у науковій бібліотеці Інституту монокристалів НАН України за адресою: 61001, м. Харків, пр. Леніна, 60.

Автореферат розісланий « _____ » травня 2016 р.

Вчений секретар
спеціалізованої вченої ради
кандидат фізико-математичних наук

М.В. Добротворська

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми. Унікальні електронні та оптичні властивості органічних молекулярних середовищ уже багато десятиліть є предметом інтенсивних досліджень фізики органічних напівпровідників і діелектриків. Ці властивості, у тому числі, визначають особливості радіюлюмінесцентного відгуку органічних сцинтиляторів – типових представників органічних молекулярних діелектриків. Органічні сцинтилятори знаходять своє практичне застосування в сучасних задачах радіобіології, радіоекології, медицини, геологічних дослідженнях, у фізиці високих енергій. В останні роки створено полікристалічні та композиційні матеріали, що розширило можливості застосування органічних сцинтиляторів і детекторів на їх основі для реєстрації та ідентифікації іонізуючих випромінювань (ІВ). У той же час, теорія сцинтиляційного процесу, як і раніше, має достатню кількість нез'ясованих ключових моментів, що гальмує розробку як нових систем, так і можливих пропозицій щодо більш ефективного застосування сцинтиляторів в умовах конкретного завдання. Тому дослідження фізичних процесів, які відбуваються на етапах генерації і розміну енергії іонізуючої частинки у речовині органічного сцинтилятора, безумовно, є актуальною науковою задачею.

Відомо, що сцинтиляційна ефективність органічних сцинтиляторів падає з ростом питомих енергетичних втрат (dE/dx) іонізуючої частинки. На перший погляд, спостерігається парадокс: чим більше енергії частинка передає речовині на одиницю свого пробігу, тим менше світла випромінюється речовиною. Подібні втрати різко збільшуються з ростом dE/dx іонізуючої частинки і для великих значень dE/dx є основною причиною нелінійності радіюлюмінесцентного відгуку органічного сцинтилятора. Процес, відповідальний за ці характерні для радіюлюмінесценції енергетичні втрати, стали називати «специфічним гасінням», як наслідок нерозуміння механізмів, які його викликають. Характерною рисою радіаційного збудження речовини, на відміну від оптичного збудження, є багатоступінчастий характер трансформації енергії іонізуючої частинки у сумарну енергію фотонів сцинтиляційного імпульсу. Встановлення причин енергетичних втрат у треку частинки є неможливим без детального аналізу проміжних етапів розміну енергії. Такий аналіз до моменту початку роботи над дисертацією, практично, був обмежений пізніми етапами формування сцинтиляційного імпульсу. Аналіз етапів, пов'язаних із формуванням зон високої густини збудження (слідів, треків) і первинним процесом розміну енергії в них, який визначає, в тому числі, перебіг більш пізніх етапів, був відсутній.

При кімнатній температурі в молекулярному органічному середовищі домінує явище локалізації як екситонів, так і носіїв заряду. Якщо розглядати, наприклад, органічний кристал, то при температурах вище температури Дебая (~ 140 К для розглянутих систем) зазвичай спостерігається сильна локалізація носія заряду. Він переміщується в молекулярному кристалі, як правило, за допомогою некогерентних перескоків. При такому порівняно «повільному» переміщенні носія заряду в органічному кристалі виникає якісно новий ефект взаємодії носія з валентними електронами оточення – електронна поляризація

кристала носієм заряду. В органічному кристалі може відбуватися не тільки електронна, а й молекулярна, та в ряді випадків навіть решіткова (міжмолекулярна) поляризація середовища надлишковим носієм заряду, що вже пов'язано з більш повільними процесами взаємодії надлишкового заряду з фононами відповідних енергій. Енергія поляризаційних взаємодій на два порядки перевищує енергію ван-дер-ваальсових взаємодій, які утримують молекули в кристалі. Надлишкова енергія, яку отримує носій заряду в процесі поляризації середовища, перетворюється в кінетичну енергію гарячої квазічастинки – електронного полярона. Локальні внутрішні поля взаємного тяжіння, що створюються парами таких поляронних станів, які знаходяться на відстанях, що не перевищують розмірів їх поляризаційного оточення, мають сприяти їх міграції та рекомбінації. Дана ситуація є найбільш очевидною для випадку радіаційного збудження органічного молекулярного середовища, коли густина зарядових пар, що генеруються в треку іонізуючої частинки, є великою. Таким чином, поляризаційні механізми здатні змінювати процес транспорту та рекомбінації гарячих зарядових станів, тому їх, безумовно, доцільно брати до уваги при описі процесів розміну енергії, особливо при великій густині радіаційного збудження.

Поляризаційні механізми в більш ранніх описах сцинтиляційного процесу в ділянках високої густини збудження органічних молекулярних середовищ не розглядалися. У кращому випадку констатувалося існування цих ефектів без детального вивчення змін, які вони вносять у процес розміну енергії зарядових станів і «остигання» треку. Крім того, не враховувалася відмінність у специфіці формування зарядових станів усередині треку іонізуючої частинки та поза ним.

Таким чином, перед початком роботи над дисертацією виникла необхідність реалізації нового підходу, який враховує ефект поляризації як невід'ємну особливість фізичних процесів, які відбуваються в органічному молекулярному середовищі. Її вплив має істотно залежати від густини збудження. Особливості розміну енергії в треку іонізуючої частинки з малими та великими значеннями dE/dx раніше не розглядалися і тому потребують свого окремого вивчення. Прогрес у цьому напрямку необхідний як для подальшого розвитку уявлень про механізм сцинтиляційного процесу, зокрема, для розуміння процесів розміну енергії в органічних діелектриках, так і для отримання вихідної інформації при розвитку технологій отримання нових сцинтиляційних матеріалів.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.

Дисертаційна робота виконувалася відповідно до тематичних планів науково-дослідницьких робіт Інституту сцинтиляційних матеріалів НАН України в рамках тем відомчого держзамовлення ВФТПМ НАН України: «Вплив будови та складу органічних кристалів на їх надмолекулярні та молекулярні властивості» (Бозон, 1996-1999 рр., номер держреєстрації № 0196U009867), «Надмолекулярні та молекулярні властивості органічних сцинтиляційних конденсованих середовищ: структура, процеси транспорту зарядів та збуджень»

(Бозон-2, 2000-2003 рр., номер держреєстрації № 0801U510051), «Структурна впорядкованість органічних молекулярних систем та її вплив на сцинтиляційні властивості об'єкту» (Ферміон, 2004-2006 рр., номер держреєстрації № 0104U008444), «Впорядкованість надмолекулярної структури органічних сцинтиляційних систем – детекторів нейтронного випромінювання та специфіка сцинтиляційного процесу в них» (Ферміон-1, 2007-2009 рр., номер держреєстрації № 0107U003436), «Первинні втрати енергії збудження та нелінійність сцинтиляційного відгуку органічних молекулярних систем із різною впорядкованістю надмолекулярної структури» (Ферміон-2, 2010-2012 рр., номер держреєстрації № 0110U001617), «Органічні молекулярні сцинтиляційні системи з різною впорядкованістю надмолекулярної структури та особливості розміну енергії іонізуючого випромінювання в них» (Лептон, 2013-2015 рр., номер держреєстрації № 0113U001831); тем державної цільової програми фундаментальних та прикладних досліджень із проблем використання ядерних матеріалів, та ядерних і радіаційних технологій у сфері розвитку галузей економіки на 2004-2010 роки: «Розробка детекторів великої площини для реєстрації та спектрометрії швидких нейтронів» (2007-2008 рр., номер договору Х-1-589, номер держреєстрації № 0107U005431), «Комбіновані детектори для реєстрації швидких та теплових нейтронів» (2009-2010 рр., номер договору Х-1-238, номер держреєстрації № 0109U007226); теми цільової програми наукових досліджень НАН України «Науково-технічний супровід розвитку ядерної енергетики та застосування радіаційних технологій у галузях економіки»: «Композиційні органічні сцинтилятори для реєстрації швидких нейтронів поділу» (2011-2012 рр., номер договору Х-1-8/2012, номер держреєстрації № 0111U008315); теми цільової програми державного фонду фундаментальних досліджень України «Фізика високих енергій»: «Механізми впливу високих доз іонізуючих випромінювань на сцинтиляційні і оптичні властивості нових типів органічних детекторів» (2013-2014 рр., номер договору Ф58/381-2013, номер держреєстрації № 0113U007096), а також згідно з індивідуальним планом здобувача. У виконанні вказаних вище НДР здобувач брав участь як відповідальний виконавець.

Мета і завдання дослідження.

Мета роботи полягає у визначенні особливостей генерації і розміну енергії зарядових станів, які виникають під дією іонізуючих випромінювань різних типів в органічних твердотільних сцинтиляторах. Для досягнення цієї мети необхідно було вирішити такі *завдання*:

- визначити з експерименту оптичні та сцинтиляційні характеристики матеріалів, що вивчаються;
- вивчити вплив структури та хімічного складу органічного сцинтилятора на його сцинтиляційні характеристики з метою відокремлення внеску процесів, які визначаються особливостями збудження сцинтилятора;
- встановити закономірності залежності енергетичного виходу радіолюмінесценції та енергії, яка витрачається на генерацію фотона

- радіолюмінесценції, від величини питомих енергетичних втрат dE/dx іонізуючої частинки для різних типів органічних сцинтиляторів;
- отримати модельний опис сцинтиляційного відгуку органічних твердотільних сцинтиляторів;
 - провести розрахунки значень dE/dx , пробігів R для електронів, протонів і альфа-частинок в органічних сцинтиляторах, що досліджуються;
 - провести розрахунок значень критичного кулонівського радіуса r_c і середньої відстані d між центрами зарядових пар для оцінки можливого впливу поляризаційних механізмів на процес розміну енергії зарядових станів;
 - встановити закономірності впливу поляризаційних взаємодій на процес рекомбінації пар зарядових станів, які генеруються в органічному молекулярному середовищі, для ІВ із різними значеннями dE/dx ;
 - розглянути найбільш імовірні механізми енергетичних втрат у треках іонізуючих частинок з малими та великими значеннями dE/dx .

Об'єкт дослідження – сцинтиляційний процес в органічних діелектриках і напівпровідниках.

Предмет дослідження – первинні процеси генерації та розміну енергії в трекових ділянках органічних гомогенних і гетерогенних сцинтиляційних матеріалів.

Методи дослідження. Дослідження органічних сцинтиляційних матеріалів проводилося автором із використанням методів спектрофлуориметрії та спектрофотометрії, амплітудного методу дослідження сцинтиляційних спектрів, методу роздільної реєстрації іонізуючих випромінювань за формою сцинтиляційного імпульсу, методу чисельного диференціювання амплітудних спектрів протонів віддачі при відновленні нейтронних спектрів, а також однофотонного методу дослідження форми імпульсу радіолюмінесценції. Використовувався підхід, заснований на порівняльному аналізі впливу структури та хімічного складу органічного сцинтилятора на величину його сцинтиляційного імпульсу, для оцінювання їх внеску та виділення внеску процесів, що виникають на перших етапах формування імпульсу радіолюмінесценції. Варіювання хімічного складу проводили шляхом вибору різних органічних монокристалів, тоді як вплив структури оцінювався при дослідженні монокристалів, полікристалів і композиційних сцинтиляторів у межах одного сцинтиляційного матеріалу – стильбену.

Наукова новизна одержаних результатів. При проведенні комплексних досліджень оптичних і сцинтиляційних характеристик органічних монокристалів, полістирольного сцинтилятора, полікристалів і композиційних сцинтиляторів **уперше** отримані такі результати.

1. Запропоновано модельний напівемпіричний опис формування сцинтиляційного відгуку в наближенні швидкої початкової рекомбінації

зарядових станів в органічному твердотільному сцинтиляторі. Цей опис уперше враховує визначальний вплив поляризації на рекомбінацію гарячих зарядових станів у треку іонізуючої частинки. Показано, що класичні формули Біркса є окремим його випадком.

2. Встановлено особливості впливу поляризаційних взаємодій на процес рекомбінації пар зарядових станів, які генеруються в органічному молекулярному середовищі іонізуючими випромінюваннями (ІВ) із різними значеннями питомих енергетичних втрат (dE/dx). Перекриття поляризаційних оточень зарядових станів обумовлює їх швидку ($\tau \leq 10^{-13}$ с) первинну рекомбінацію. Воно можливе лише коли середня відстань d між центрами пар зарядових станів менша ніж подвоєне значення критичного кулонівського радіуса r_c (радіуса поляризаційного оточення). Із ростом dE/dx значення d зменшується і відповідно зростає ймовірність первинної рекомбінації.

3. Визначено загальні закономірності втрат енергії в треку іонізуючої частинки як функції її значень dE/dx для широкого кола органічних сцинтиляторів: від класичних монокристалів і полімерів до нових типів гетерогенних сцинтиляційних матеріалів. Встановлено, що енергетичний вихід радіолюмінесценції (Y_i) падає в 10–20 разів при переході від фотозбудження до збудження фотонами гамма-випромінювання та електронами конверсії. Зі збільшенням dE/dx величина Y_i істотно зменшується (в 2–3 рази при збудженні швидкими нейтронами та в 10–40 разів при збудженні альфа-частинками у порівнянні зі збудженням електронами).

4. З'ясовано, що зміна структури органічного сцинтилятора викликає незначні зміни у величині Y_i (наприклад, для монокристалічних, полікристалічних і композиційних сцинтиляторів на основі стильбену не більше ніж на 20 %), а не на порядки величини, як це відбувається при зміні dE/dx іонізуючої частинки.

5. Доведено, що для ІВ з малими значеннями dE/dx основними механізмами, що викликають зменшення величини Y_i , є: 1) виліт електрона зі сліду, що зменшує кількість рекомбінуючих пар зарядових станів, 2) негемінальна рекомбінація зарядових станів в окремому сліді, яка зменшує ймовірність утворення S -станів.

6. Показано, що для ІВ з великими значеннями dE/dx основними механізмами, які зменшують значення Y_i , є процеси 1) інтенсивної первинної рекомбінації гарячих зарядових станів, яка не приводить до люмінесценції, та 2) вторинного гасіння збуджених станів. Вплив першого з перерахованих вище біомолекулярних процесів є визначальним.

7. Запропоновано уточнення послідовності процесів розміну енергії в ділянках високої густини радіаційного збудження органічних молекулярних середовищ. Вони враховують як швидку початкову рекомбінацію пар гарячих зарядових станів, так і вторинні фізичні процеси, що спричиняють втрати світлового виходу в умовах визначального впливу поляризаційних взаємодій у треках іонізуючих частинок.

Практичне значення одержаних результатів. Результати, одержані в роботі, можуть бути використані при створенні спектрометричних і дозиметричних приладів, систем на основі органічних сцинтиляторів, при прогнозуванні характеристик таких систем у задачах сцинтиляційної техніки, а також при розробці нових органічних сцинтиляторів із заданими властивостями.

Дослідження температурної залежності світлового виходу органічних сцинтиляторів надають необхідну інформацію щодо можливостей використання цих матеріалів як детектуючих пристроїв у реальних умовах температурної нестабільності (геологічний картаж, екологічний моніторинг). Ключовим моментом у даному випадку є виявлена автором у край слабка залежність світлового виходу від температури для монокристала стильбену в діапазоні температур від -95 до $+75^{\circ}\text{C}$, для монокристала *n*-терфенілу – від -115 до $+110^{\circ}\text{C}$, для монокристала антрацену – від -115 до $+30^{\circ}\text{C}$ і для полістирольного сцинтилятора в діапазоні температур від -130 до $+100^{\circ}\text{C}$. Це дозволяє без додаткових коригувань поширити результати, які були отримані для кімнатної температури, на вищенаведені температурні діапазони.

Розуміння особливостей первинного розміну енергії в ділянках високої густини радіаційного збудження органічних молекулярних речовин є основою для вивчення впливу ІВ на людський організм, навколишнє середовище, їжу тощо. Тому отримані результати можуть виявитися корисними при проведенні досліджень у таких галузях, як радіобіологія, радіоекологія, медицина, радіаційна фізика органічних матеріалів.

Особистий внесок здобувача. У дисертації узагальнюються результати наукових досліджень, отриманих при безпосередній участі її автора. Йому належать вибір і обґрунтування мети роботи, визначення завдань і вибір методів досліджень. У роботах, що ввійшли в дисертацію, автору належить проведення більшості експериментів, обробка експериментальних результатів та їх інтерпретація, підготовка матеріалів до публікації.

У монографії [1] автором проведено аналіз сучасних уявлень про формування трекових ділянок, які створюються під дією ІВ, а також про зміни, що відбуваються в цих ділянках. У наукових роботах [2, 6, 27, 37] автор безпосередньо проводив відбір і адаптацію методів дослідження, брав участь у проведенні вимірювань. У роботах [3–5, 7, 9, 10, 11, 13, 14, 18–20, 23–26, 28, 32, 35, 36] автор проводив більшу частину досліджень сцинтиляційних характеристик органічних монокристалів, полікристалів і композиційних сцинтиляторів. У роботах [18, 19, 21, 23, 32, 34, 35] автором проводилися дослідження абсолютного світлового виходу та енергетичного виходу радіолюмінесценції органічних сцинтиляторів. У роботі [8] автором аналізувалися результати дослідження температурної залежності світлового виходу органічних сцинтиляторів. У роботах [7, 9, 14, 18, 23, 28–30, 35] автором вивчався вплив структури та хімічного складу органічного сцинтилятора на його сцинтиляційні характеристики. Пошук оптимальних розмірів органічних кристалічних гранул

для отримання ефективного гетерогенного сцинтилятора проводився автором у роботах [7, 9–11, 20]. Результати розрахунку величин dE/dx і пробігів електронів, протонів і альфа-частинок, проведені автором, опубліковані в роботах [21–23, 33–35]. У роботах автора [1, 12, 15–17, 21, 31, 33, 34, 38] викладено результати дослідження та аналіз впливу поляризаційних взаємодій на процес рекомбінації пар зарядових станів, що генеруються в органічному молекулярному середовищі. У роботах [21, 22, 33, 34] автором пропонуються й аналізуються механізми енергетичних втрат у треках іонізуючих частинок з малими та великими значеннями dE/dx . Автору належить визначальна роль у формуванні наукових положень та основних висновків роботи. Більшість отриманих результатів автор особисто доповідав на наукових конференціях.

Апробація результатів дисертації. Матеріали дисертації пройшли апробацію на таких всеукраїнських та міжнародних наукових конференціях та семінарах: 5-th International Conference on Electronic Processes in Organic Materials (ICEPOM-5, Kyiv, 2004); 4-th iTRS-ISC International Joint Seminar on Innovative Radiation Detector Technology (Jeju, Korea, 2004); XVI Международная конференция по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению (XVI ICPRP, Алушта, 2004); IV конференция по физике высоких энергий, ядерной физике и ускорителям (Харків, 2006); 2008 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (Dresden, Germany, 2008); Tenth International Conference on Inorganic Scintillators and their Applications (SCINT, Jeju, Korea, 2009); 7th International Conference on Luminescence Detectors and Transformers of Ionizing Radiation (LUMDETR-2009, Krakow, Poland, 2009); X конференция по физике высоких энергий, ядерной физике и ускорителям (Харків, 2012); Третья международная конференция «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии» (ИСМАРТ-2012, Дубна, Росія, 2012); International Conference «Advanced Scintillation Materials» (ASM-2013, 2013); XII конференция по физике высоких энергий, ядерной физике и ускорителям (Харків, 2014); Четвертая международная конференция «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии» (ИСМАРТ-2014, Мінськ, Білорусь, 2014).

Публікації. Основні результати дисертації опубліковано в 38 наукових працях у наукових фахових виданнях, серед них: 1 монографія, 22 статті у міжнародних та вітчизняних спеціалізованих наукових журналах. Ці матеріали знайшли свою апробацію на міжнародних конференціях, матеріали яких опубліковано в 12 тезах доповідей і 3 статтях у зарубіжних періодичних виданнях.

Структура й обсяг дисертації. Дисертація складається зі вступу, 6 розділів, висновків та списку літературних джерел. Повний об'єм роботи складає 304 сторінки, дисертація містить 71 рисунок та 34 таблиці. Список використаних літературних джерел складається з 274 найменувань.

ОСНОВИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У **вступі** обґрунтовано актуальність теми дисертації, указано на її зв'язок з науковими програмами, сформульовано мету і завдання роботи, визначено об'єкт, предмет та методи дослідження, викладено наукову новизну отриманих результатів та їх практичне значення, надано відомості про особистий внесок здобувача, апробацію роботи та публікації автора.

Перший розділ «Органічні молекулярні системи й особливості сцинтиляційного процесу в них (літературний огляд)» присвячений огляду робіт, які визначають досягнутий до початку роботи над дисертацією рівень досліджень і розуміння проблеми. Представлено загальні відомості про структуру органічних сцинтиляторів, особливості генерації в цих системах зарядових та збуджених станів під дією іонізуючої частинки і їх молекулярної люмінесценції. Розглянуто опис дифузійно-контрольованої стадії розміну енергії триплетних станів.

При кімнатній температурі в молекулярному органічному кристалі домінує явище локалізації як екситонів, так і носіїв заряду. Це приводить до утворення «важких» поляронних квазічастинок. Наведені у розділі 1 дані показують, що в органічному кристалі можлива поява електронної, молекулярної, а в ряді випадків навіть решіткової поляризації середовища вільним носієм заряду (характерний час електронної поляризації $\tau_e \sim 10^{-16} - 10^{-15}$ с, молекулярної $\tau_v \sim 1,7 \times 10^{-15} - 1,1 \times 10^{-14}$ с, решіткової $\tau_l \sim 4,4 \times 10^{-14} - 1,1 \times 10^{-13}$ с). Поляризаційні взаємодії є локальними та короткоживучими, тому вони не викликають руйнування діелектрика.

Надлишкова енергія, яку набуває носій заряду в процесі поляризації, перетворюється в кінетичну енергію гарячої квазічастинки – електронного полярона. Аналіз даних, представлених у розділі 1, показує, що процеси, які відбуваються після моменту генерації носіїв заряду за час, порівняний або коротший ніж 10^{-13} с, – це процеси, які відбуваються з гарячими зарядовими станами. Локальні внутрішні поля, що утворюються парами поляронних станів, сприятимуть їх рекомбінації. Так, для кристала антрацену розрахункові значення напруженості локального поля $E_{лок}$, яке утворюється поляронною парою, складають $\sim 10^6 - 10^7$ В/см, що перевищує значення пробою для об'ємного монокристала.

Аналіз літературних даних вказує на необхідність урахування поляризаційних взаємодій для випадку радіаційного збудження органічного молекулярного середовища, коли густина зарядових пар, що генеруються в треку іонізуючої частинки, є великою. Таким чином, за відсутності зовнішнього поля поляризаційні механізми здатні прискорювати процес зустрічного транспорту та рекомбінації гарячих зарядових станів. Їх необхідно брати до уваги при описі процесів розміну енергії, особливо у випадку великої густини радіаційного збудження. Даний аспект у більш ранніх описах сцинтиляційного процесу в органічних молекулярних середовищах не вивчався.

У розділі 1 відзначається, що характерною рисою збудження речовини під дією іонізуючої частинки, на відміну від оптичного збудження, є багатоступінчастий характер трансформації первинної енергії іонізуючої частинки в сумарну енергію фотонів сцинтиляційного імпульсу. Тому вже для ІВ з малими значеннями dE/dx енергетичний вихід радіюлюмінесценції (сцинтиляційна ефективність) органічного сцинтилятора менше, ніж для випадку його збудження фотонами світла у видимому діапазоні. Подальше збільшення dE/dx приводить до зменшення сцинтиляційної ефективності органічного сцинтилятора. З'ясування причин «специфічного гасіння» потребує обов'язкового врахування впливу поляризації органічного середовища на особливості розміну енергії в треку іонізуючої частинки.

У розділі 1 стисло наведені дані про структуру треку іонізуючої частинки та трекові утворення, які були отримані в роботах інших авторів з використанням методів дослідження, відмінних від тих, що використані в дисертації. Це – радіаційно-хімічні дослідження, а також вивчення радикального треку методом електронного парамагнітного резонансу.

У другому розділі «**Методи дослідження характеристик органічних сцинтиляторів**» викладено експериментальні методи, використані в дисертаційній роботі при дослідженні імпульсів фото- та радіюлюмінесценції органічних сцинтиляторів.

Вибрані джерела фотонів гамма-випромінювання, конверсійних електронів, швидких нейтронів і альфа-частинок дозволяють досліджувати сцинтиляційний відгук органічних сцинтиляторів у широкому діапазоні значень dE/dx (від 2 МеВ/см до 10^3 МеВ/см) та енергій ІВ різних типів, що вкрай важливо для вивчення процесів розміну енергії в трекових ділянках.

Методи дослідження спектрів фотофлуоресценції та оптичного пропускання дають вихідні експериментальні дані для розрахунку абсолютного квантового виходу фотофлуоресценції та абсолютного світлового виходу. Дослідження величини оптичного пропускання дозволяє врахувати втрати фотонів світла, які генеруються в матеріалі сцинтилятора під дією іонізуючої частинки, до їх попадання на фотоприймач.

Зміна умов рекомбінації пар зарядових станів, що генеруються в треку іонізуючої частинки, визначатиме сумарне число фотонів в імпульсі радіюлюмінесценції органічного сцинтилятора. Тому дані дослідження абсолютного світлового виходу органічного сцинтилятора як функції dE/dx іонізуючої частинки, безумовно, є інформативними та базовими при аналізі енергетичних втрат у треках іонізуючих частинок із різними значеннями dE/dx .

На відміну від стандартного методу дослідження амплітудного сцинтиляційного спектру, метод роздільної реєстрації ІВ за формою сцинтиляційного імпульсу дозволяє детектувати окремо різні типи іонізуючих частинок, що випромінюються радіонуклідним джерелами змішаного типу.

У ділянках високої густини радіаційного збудження в результаті рекомбінації зарядових станів із імовірністю 1 до 3 виникають синглетні (S) та

триплетні (T) стани. Після падіння концентрації S - та T - станів у треку іонізуючої частинки за рахунок його розширення настає дифузійно-контрольований етап розміну енергії T - станів. Це дозволяє провести оцінку параметра перетину треку в наближенні «приписаної дифузії». Дані про параметри перетину треку, які одержуються автором при дослідженні форми повільного компонента імпульсу радіолюмінесценції з використанням однофотонного методу, дозволяють вивчити вплив густини збудження на величину абсолютного світлового виходу органічного сцинтилятора.

Методи розрахунку значень dE/dx і пробігів R іонів, що використовують пакети програм ESTAR, PSTAR, ASTAR і SRIM-2011, адаптовані автором для розрахунку густини пар зарядових станів, які генеруються в треках іонізуючих частинок різних типів і енергій.

У третьому розділі «Результати досліджень характеристик органічних сцинтиляторів» представлені експериментальні дані досліджень зразків органічних сцинтиляторів. Вибір об'єктів дослідження був направлений на отримання такого масиву даних, який необхідний для проведення детального та достовірного аналізу механізмів енергетичних втрат, що відбуваються в треку іонізуючої частинки. Були обрані органічні монокристали антрацену, стильбену та n -терфенілу (як без люмінесцентної добавки, так і вирощені з розплаву, що містив 0,1% 1,4-дифеніл-1,3-бутадієну в якості люмінесцентної добавки), а також пластмасовий сцинтилятор на основі полістиролу (що містить 1,5% n -терфенілу в якості первинної добавки та 0,02% РОРОР (1,4-біс-(2-(5-фенілоксазоліл))-бензол)). Були досліджені нові типи органічних гетерогенних сцинтиляційних матеріалів – органічні полікристали та композиційні сцинтилятори. Кристалічні гранули стильбену використовувалися в них як люмінесцентна речовина. Ці об'єкти мають істотно іншу структурну організацію в порівнянні зі структурно-досконалыми монокристалами. Автором було показано, що кардинальна зміна структури сцинтилятора здатна змінити величину сцинтиляційного сигналу не більше ніж на 20–25%, а не на порядки величини, як у випадку зміни типу збудження.

При викладі результатів дослідження, які пов'язані зі збудженням зразків, тип збудження i будемо позначати як ph , γ , e , n та α – для випадків збудження фотонами світла, фотонами гамма-випромінювання, електронами конверсії, нейтронами та альфа-частинками, відповідно.

На рис. 1 представлені спектри фотофлуоресценції органічних монокристалів і пластмасового сцинтилятора висотою $h = 5$ мм. За результатами цих вимірювань, з урахуванням нормування на оптичну густину зразків, проведено розрахунок значень абсолютного квантового виходу фотофлуоресценції $\Phi_{фл}$, де $\Phi_{фл} = \text{фотони}_{\text{люм}}/\text{фотони}_{\text{пол}}$.

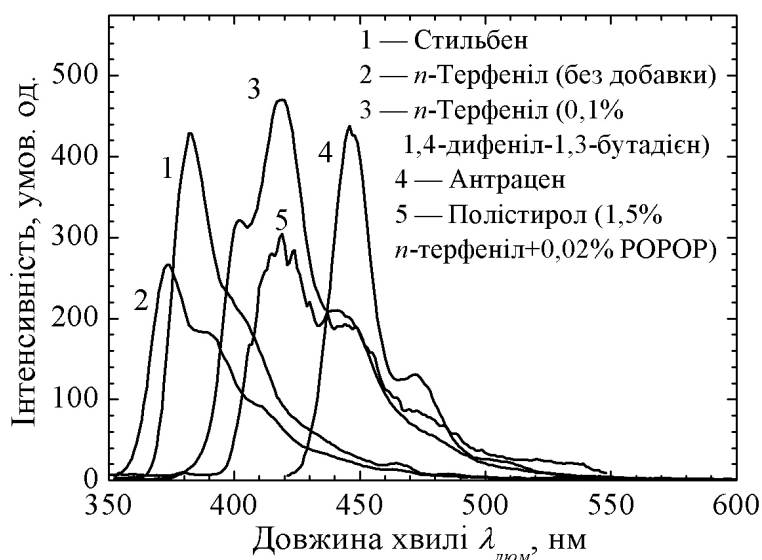


Рис. 1. Спектри фотофлуоресценції органічних монокристалів і полістирольного сцинтилятора.

У табл. 1 представлені значення величин $\lambda_{зб\ddot{u}д}$, $\langle\lambda_{люм}\rangle$, $E(\lambda_{зб\ddot{u}д})$, $E(\langle\lambda_{люм}\rangle)$ та $\Phi_{фл}$. Уведено позначення: $\lambda_{зб\ddot{u}д}$ та $\langle\lambda_{люм}\rangle$ – значення довжини хвилі збудження та усередненого по спектру (див. рис. 1) значення довжини хвилі люмінесценції $\lambda_{люм}$, відповідно, а $E(\lambda_{зб\ddot{u}д})$ та $E(\langle\lambda_{люм}\rangle)$ – значення енергій фотонів (виражені в еВ) для $\lambda_{зб\ddot{u}д}$ та $\langle\lambda_{люм}\rangle$, відповідно.

Таблиця 1

Значення величин $\lambda_{зб\ddot{u}д}$, $\langle\lambda_{люм}\rangle$, $E(\lambda_{зб\ddot{u}д})$, $E(\langle\lambda_{люм}\rangle)$ та $\Phi_{фл}$ для органічних монокристалів і полістирольного сцинтилятора

Сцинтилятор	$\lambda_{зб\ddot{u}д}$, нм	$E(\lambda_{зб\ddot{u}д})$, еВ	$\langle\lambda_{люм}\rangle$, нм	$E(\langle\lambda_{люм}\rangle)$, еВ	$\Phi_{фл}$
Монокристал стильбену	340	3,65	402	3,08	0,65
Монокристал <i>n</i> -терфенілу (без добавки)	340	3,65	396	3,13	0,48
Монокристал <i>n</i> -терфенілу (0,1 % 1,4-дифеніл-1,3-бутадієну)	340	3,65	430	2,88	0,97
Монокристал антрацену	420	2,95	458	2,71	0,55
Полістирол (1,5 % <i>n</i> -терфенілу + 0,02 % РОРОР)	280	4,43	437	2,84	0,76

У дисертаційній роботі проводилися дослідження оптичного пропускання вищеперелічених зразків органічних твердотільних сцинтиляторів і їх амплітудних сцинтиляційних спектрів при збудженні фотонами гамма-випромінювання радіонуклідного джерела ^{137}Cs . У результаті були отримані значення коефіцієнтів світлозбору τ_γ , τ_e , τ_α та абсолютного світлового виходу $(L_{абс})_\gamma$. Як еталон використовувався монокристал стильбену з відомим значенням $(L_{абс})_\gamma$ яке дорівнювало 14700 фотонів на 1 МеВ енергії фотонів гамма-випромінювання. Отримані значення величин τ_γ , τ_e , τ_α та $(L_{абс})_\gamma$ наведено в табл. 2. Висота зразків позначена h , діаметр – D .

Значення τ_γ , τ_e , τ_α та $(L_{abc})_\gamma$ для органічних твердотільних сцинтиляторів

Сцинтилятор	Розміри		τ_γ	τ_e	τ_α	$(L_{abc})_\gamma$ фотон/МеВ
	D , см	h , см				
Монокристал стильбену	30	5	0,659	0,649	0,635	14700
Монокристал <i>n</i> -терфенілу (без добавки)	30	5	0,576	0,563	0,551	17000
Монокристал <i>n</i> -терфенілу (0,1 % 1,4-дифеніл-1,3-бутадієну)	20	5	0,615	0,608	0,597	24900
Монокристал антрацену	20	5	0,596	0,583	0,570	29000
Полістирол (1,5 % <i>n</i> -терфенілу + 0,02 % РОРОР)	25	5	0,725	0,688	0,668	9200

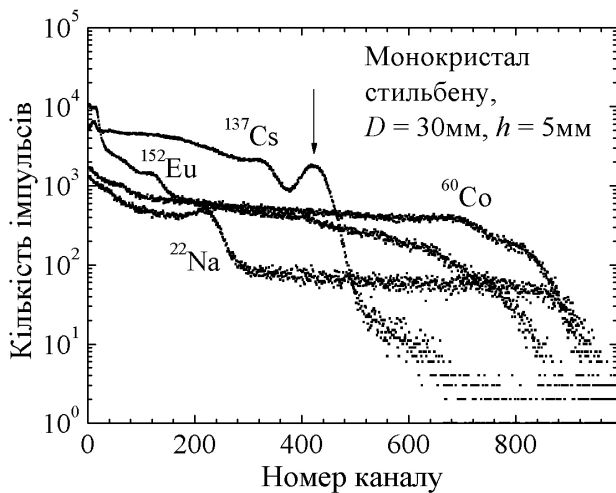


Рис. 2. Амплітудні сцинтиляційні спектри для монокристала стильбену, який опромінюється фотонами гамма-випромінювання джерел ^{22}Na , ^{60}Co , ^{137}Cs та ^{152}Eu . Пік конверсійних електронів джерела ^{137}Cs із $E_e = 0,622$ МеВ узказано на рисунку стрілкою.

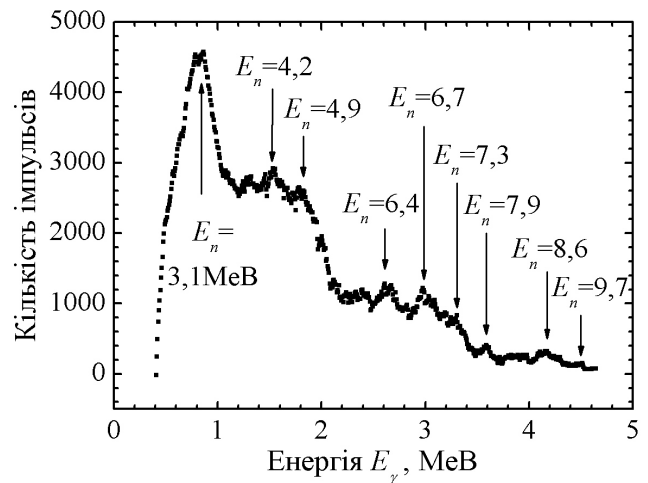


Рис. 3. Відновлений нейтронний спектр джерела $^{239}\text{Pu-Be}$ для монокристала стильбену. Вісь абсцис представлено в енергетичному гамма-еквіваленті.

На рис. 2, як приклад, представлені амплітудні сцинтиляційні спектри, отримані для монокристала стильбену з $D = 30$ мм і $h = 5$ мм. Зразок опромінювався фотонами гамма-випромінювання радіонуклідних джерел ^{22}Na , ^{60}Co , ^{137}Cs та ^{152}Eu . На рис. 3 представлено відновлений нейтронний спектр плутоній-берилієвого джерела, отриманий зі спектру протонів віддачі, який, у свою чергу, був вимірний за допомогою монокристала стильбену з $D = 30$ мм і $h = 5$ мм.

На рис. 4 представлені результати вимірів амплітудних спектрів при збудженні органічного сцинтилятора альфа-частинками в діапазоні енергій E_α

від 0,67 до 7,56 MeV. Як приклад, обрано монокристал *n*-терфенілу (без люмінесцентної добавки) з $D = 30$ мм і $h = 5$ мм.

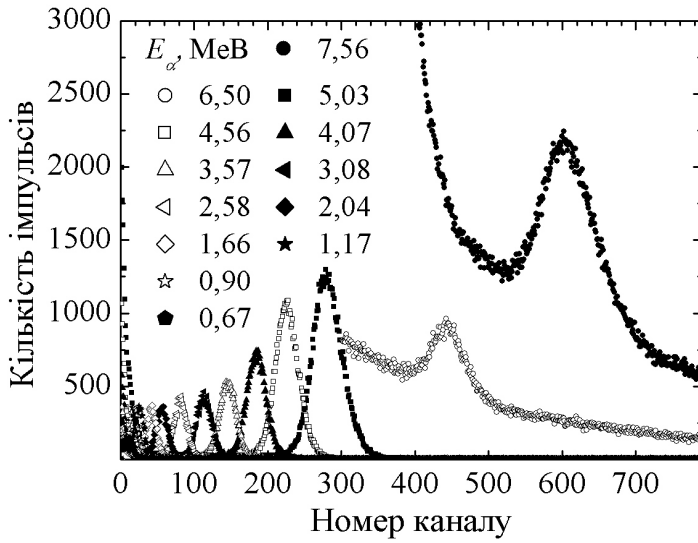


Рис. 4. Амплітудні сцинтиляційні спектри монокристала *n*-терфенілу, який збуджується альфа-частинками різних енергій E_α .

Автор досліджував кінетику затриманої радіолюмінесценції органічних монокристалів антрацену, стильбену та *n*-терфенілу однофотонним методом. Зразки опромінювалися фотонами гамма-випромінювання радіонуклідного джерела ^{60}Co , альфа-частинками джерела ^{241}Am і швидкими нейтронами джерела ^{252}Cf . Виміряна форма повільного компонента сцинтиляційного імпульсу апроксимувалася виразом (1), що містить параметри t_D і k , де характерний час процесу дифузійного зміщення t_D (2) визначається коефіцієнтом дифузії D_T триплетних екситонів і початковим радіусом треку r_0 :

$$N(t) \sim (1 + t/t_D)^{-k}, \quad (1)$$

$$t_D \equiv r_0^2 / 4D_T, \quad (2)$$

де $k = l/2$ – розмірність дифузії триплетних екситонів l . Це дозволило провести розрахунок значень початкового радіуса треку r_0 (2), які використовувалися для розрахунку густини пар зарядових станів, що генеруються в треку іонізуючої частинки i -го типу. Аналіз кривих кінетики радіолюмінесценції дозволив отримати значення відносного внеску повільного компонента сцинтиляційного імпульсу ψ для низки органічних монокристалів, які опромінювалися швидкими нейтронами й альфа-частинками.

Автором вивчалися характеристики органічних полікристалічних і композиційних сцинтиляторів. Досліджувалися величини відносного світлового виходу $L_{\text{відн}}$ гетерогенних сцинтиляторів для визначення оптимального розміру кристалічних гранул, необхідних для отримання ефективних детекторів на їх основі. Встановлено, що для отримання органічних гетерогенних детекторів необхідно використовувати фракції гранул, розмір яких повинен хоча б трохи перевищувати довжину пробігу вторинних частинок непрямого іонізуючого випромінювання. Результати досліджень показали, що для отримання полікристалів і композиційних сцинтиляторів на основі стильбену та *n*-

терфенілу з максимальним світловим виходом при детектуванні короткопробіжних випромінювань (альфа-частинки, конверсійні електрони) слід використовувати кристалічні гранули розміром L від 2,0 до 2,5 мм. Фракція кристалічних гранул з L від 1,7 до 2,2 мм є оптимальною для створення на її основі композиційних детекторів для ефективною реєстрації швидких нейтронів. Ці фракції гранул були обрані автором для отримання та дослідження органічних гетерогенних сцинтиляторів. Запропонований автором підхід також знайшов своє застосування при розробці ефективних неорганічних гетерогенних систем.

У дисертації представлені результати дослідження оптичного пропускання органічних гетерогенних сцинтиляторів на основі кристалічних гранул стильбену, а також результати дослідження відносного світлового виходу $L_{відн}$ зразків, що дозволило автору вперше отримати значення абсолютного світлового виходу $(L_{абс})_{\gamma}$ для цих типів сцинтиляторів. Значення величини $(L_{абс})_{\gamma}$, коефіцієнтів світлозбору τ_{γ} , τ_e , τ_{α} для полікристалічних і композиційних сцинтиляторів на основі стильбену представлені в табл. 3. Дослідження композиційних сцинтиляторів при збудженні електронами конверсії не проводилося через незадовільну роздільну здатність піків конверсійних електронів для цих об'єктів, що знижувало точність визначення амплітуди сцинтиляційного імпульсу.

Таблиця 3

Значення $(L_{абс})_{\gamma}$, τ_{γ} , τ_e та τ_{α} для полікристалічних і композиційних сцинтиляторів стильбену

Зразок	Розміри, мм	$(L_{абс})_{\gamma}$ фотон/Ме В	τ_{γ}	τ_e	τ_{α}
Полікристал	$D = 30, h = 3$	14801	0,735	0,838	0,831
--/	$D = 30, h = 5$	15436	0,669	0,728	0,718
--/	$D = 30, h = 7$	15960	0,610	0,604	0,594
--/	$D = 30, h = 10$	15105	0,540	0,413	0,415
Композиційний детектор	$D = 25,6, h = 5$	13524	0,515	–	0,459
--/	$D = 25,6, h = 10$	14505	0,372	–	0,310
--/	$D = 25,6, h = 20$	13629	0,231	–	0,158

У четвертому розділі «Модельний опис сцинтиляційного відгуку в наближенні швидкої початкової рекомбінації зарядових станів» представлено опис формування сцинтиляційного відгуку в наближенні швидкої початкової рекомбінації зарядових станів, яка ініціюється ефективними поляризаційними взаємодіями в треках іонізуючих частинок, що формуються в органічному молекулярному середовищі. Цей опис уперше враховує відмінність у перебігу процесів усередині та поза треком іонізуючої частинки.

У рамках наближення «приписаної дифузії» автором отримано розподіл енергії первинної іонізуючої частинки з великими dE/dx , яка витрачається на генерацію пар носіїв заряду всередині циліндричного треку та поза ним. У розглянутому наближенні встановлено, що якщо загальне число пар носіїв заряду прийняти за одиницю, то у треку частинки з великими значеннями dE/dx утворюється їх частка $\mathcal{G} = 0,8444$. Порцію тих станів, які генеруються δ - електронами за межами початкового треку, можна оцінити як: $1 - \mathcal{G} = 0,1556$. Для ІВ із малими значеннями dE/dx , коли треки не формуються, розподіл первинних збуджених станів у просторі можна вважати рівномірним для всієї ділянки радіаційного збудження органічного сцинтилятора.

Отриманий опис у загальному вигляді представлено виразом:

$$P_i = \frac{S_i \nu_{i0}}{\left(1 + b_1 \nu_0 + b_2 \nu_0^2 + b_3 \nu_0^3 + \dots\right)_i} = \frac{S_i \nu_{i0}}{\left(1 + \sum_{k=1} b_k \nu_0^k\right)_i}, \quad (3)$$

який пов'язує сумарне число фотонів P_i , що виникає в органічному сцинтиляторі під дією іонізуючої частинки i -го типу з енергією E_i , з початковою концентрацією пар зарядових станів ν_0 , а отже, і з величиною dE/dx частинки. Як застосовність опису (3), так і значення констант, які входять до нього, можуть бути визначені тільки з апроксимації виразом (3) залежності $P_i = f(\nu_{i0})$, де P_i – експериментальна величина, а ν_{i0} – величина, яка розраховується наступним чином:

$$\nu_i(t)|_{t=0} \equiv \nu_{i0} = \times \frac{1}{N} \times \frac{E_i}{\langle E_p \rangle} \times \frac{1}{V_i}, \quad (4)$$

де N – концентрація молекул у матеріалі сцинтилятора, $\langle E_p \rangle \sim 20$ еВ – середня енергія плазмона, V_i – об'єм циліндричного треку іонізуючої частинки i -го типу з енергією E_i . Лише для ситуації, коли вплив поляризаційних взаємодій на процес рекомбінації пар зарядових станів у треку іонізуючої частинки є істотним, константи b_k ($k \geq 1$), які входять у (3), можуть мати від'ємні значення.

Показано, що класичні формули Біркса в наближенні рівномірної втрати енергії частинки вздовж її траєкторії в речовині є окремим випадком запропонованого автором опису процесу радіолюмінесценції. Цей опис, на відміну від формул Біркса, містить параметри, які визначаються експериментально. Для ІВ з малими dE/dx , коли відносна густина пар зарядових станів мала і трек не формується, вплив поляризації стає незначним, а значення знаменника виразу (3) стає близьким до одиниці. При цьому нелінійний відгук для великих dE/dx змінюється на лінійний відгук органічного сцинтилятора. Подібна залежність підтверджена і в наших експериментах при збудженні сцинтиляторів фотонами гамма-випромінювання та електронами конверсії різних енергій (див. рис. 9).

У п'ятому розділі «Розрахунок параметрів, які визначають первинний розмір енергії в треках» представлені результати розрахунків параметрів, що визначають особливості процесу первинного перетворення енергії в треках іонізуючих частинок, які формуються в органічних твердотільних сцинтиляторах. Ці розрахунки та апроксимація експериментальних результатів виразом (3) є джерелом альтернативних оцінок впливу поляризаційних взаємодій на формування сцинтиляційного імпульсу.

Ступінь впливу поляризаційних взаємодій має визначатися густиною зарядових пар (M_+ , M_-), що генеруються в треку іонізуючої частинки, а отже, середньою відстанню d між їх центрами. Значення критичного кулонівського радіуса r_c некомпенсованого носія заряду визначається як:

$$r_c = \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 kT}, \quad (5)$$

де ϵ – діелектрична проникність кристала, k – стала Больцмана, T – температура, ϵ_0 – електрична стала. Коли відстань d між центрами зарядових пар (M_+ , M_-) буде менша за подвоєне значення r_c , тоді вплив поляризації може стати визначальним. Тобто це ситуація, що може реалізуватися в треку іонізуючої частинки з великими значеннями dE/dx . Для її аналізу автором були проведені розрахунки та порівняння величин d та r_c .

У підрозділі 5.1 дисертації представлені результати розрахунку значень величини r_c (5) для органічних твердотільних сцинтиляторів, які досліджуються.

Підрозділ 5.2 присвячено розрахункам значень питомих енергетичних втрат dE/dx та пробігів R електронів, протонів і альфа-частинок в монокристалах стильбену, n -терфенілу, антрацену й полістирольному сцинтиляторі з використанням онлайн програм ESTAR, PSTAR, ASTAR та SRIM-2011. Інтерполяція залежностей dE/dx від енергії частинки дозволила отримати значення величин dE/dx для значень енергій електронів, протонів і альфа-частинок, які відповідають умовам експерименту. Значення пробігів R_e , R_p та R_α також розраховані для експериментальних значень енергій E_e , E_p та E_α , відповідно. Для всіх досліджуваних автором органічних матеріалів отримані близькі значення величин dE/dx та R . Укraj слабке збільшення значень dE/dx і, відповідно, зменшення R спостерігалася для монокристалів при переході від стильбену ($\rho = 1,22$ г/см³) до антрацену ($\rho = 1,25$ г/см³) для всіх типів і енергій збудження. Більш помітна, але не принципова, відмінність у значеннях dE/dx та R спостерігалася для полістирольного сцинтилятора ($\rho = 1,05$ г/см³).

У підрозділі 5.3 представлені результати розрахунків середньої відстані d між центрами пар зарядових станів, що утворюються в досліджуваних органічних молекулярних системах під дією ІВ різних типів та енергій. Величина d розраховувалася як:

$$d = \sqrt[3]{V} = \sqrt[3]{\frac{\pi r_0^2 \times R \times \langle E_p \rangle}{9 \times E}}, \quad (6)$$

де введено позначення радіуса циліндричного треку r_0 .

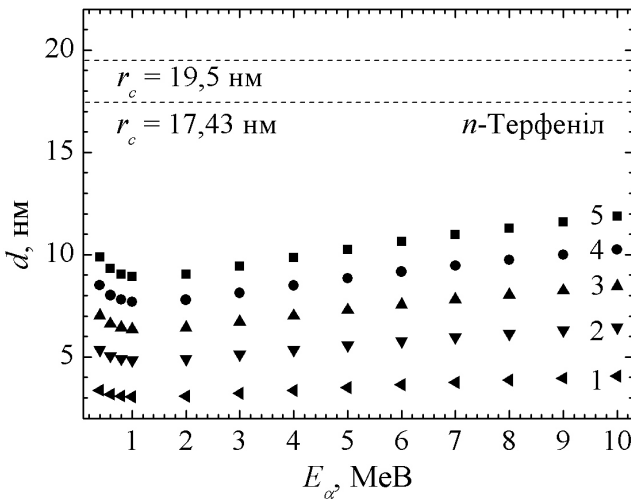


Рис. 5. Значення величини d в треку альфа-частинки з енергією E_α для монокристала n -терфенілу. Розрахунки проведено для наступних значень радіуса r_0 циліндричного треку: 1 – $r_0 = 10$ нм, 2 – $r_0 = 20$ нм, 3 – $r_0 = 30$ нм, 4 – $r_0 = 40$ нм, 5 – $r_0 = 50$ нм.

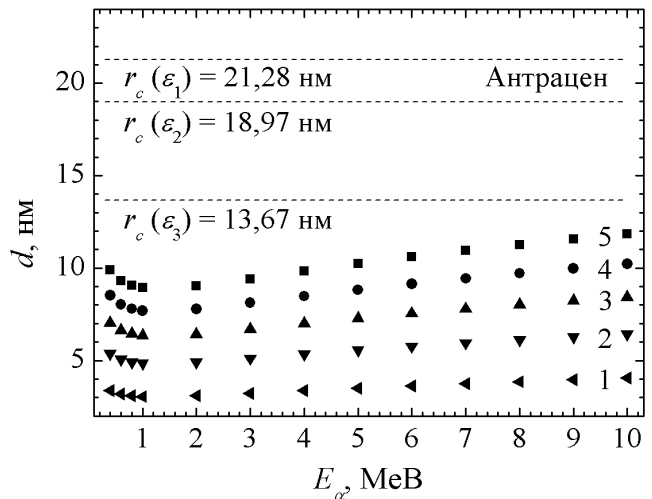


Рис. 6. Значення величини d в треку альфа-частинки з енергією E_α для анізотропного монокристала антрацену. Позначення такі ж самі, як на рис. 5.

На рис. 5 та рис. 6 представлені результати розрахунків середньої відстані d між центрами зарядових пар (M_+ , M_-), які утворюються в треку альфа-частинки з енергією E_α для органічних монокристалів n -терфенілу та антрацену, відповідно. На рис. 7 та рис. 8 представлені аналогічні розрахунки для випадку треку протона з енергією E_p . Пунктирними лініями на рисунках позначені розрахункові значення величин r_c (5) та $2r_c$. Значення $2r_c$ наведені тільки для протонів.

При збудженні альфа-частинками з E_α до 10 MeV (рис. 5 та рис. 6) для всіх варійованих значень радіуса r_0 треку частинки середня відстань d між центрами зарядових пар (M_+ , M_-) завжди менша не тільки значень $2r_c$, але навіть і значень r_c . Це означає, що в треку альфа-частинки з E_α до 10 MeV поляризаційні оточення як зарядових станів в парі, так і сусідніх пар, будуть ефективно перекриватися. Тим самим створюється можливість швидкої початкової рекомбінації пар «гарячих» зарядових станів в органічному молекулярному середовищі за рахунок поляризаційних взаємодій.

У випадку треку протона в досліджуваному діапазоні енергій E_p ситуація є іншою (рис. 7 та рис. 8). Тут розрахункові значення середньої відстані d між центрами зарядових пар (M_+ , M_-) у декілька разів перевищують відповідні значення величини d для випадку альфа-частинок, а для великих значень енергій протона E_p (~ 10 MeV) величину d вже фактично можна порівняти з $2r_c$. Це означає, що перекриття поляризаційних оточень надлишкових зарядових станів, які виникають у треку протона, не є настільки домінуючим, визначальним механізмом, як у випадку треку альфа-частинки. У цій ситуації

рекомбінації зарядових станів можуть як прискорюватися поляризаційними взаємодіями (первинна рекомбінація «гарячих» носіїв заряду за час $\tau \leq 10^{-13}$ с), так і відбуватися після більш повільного процесу їхнього зближення внаслідок міграції в об'ємі зразка з часом $\tau \geq 10^{-12}$ с.

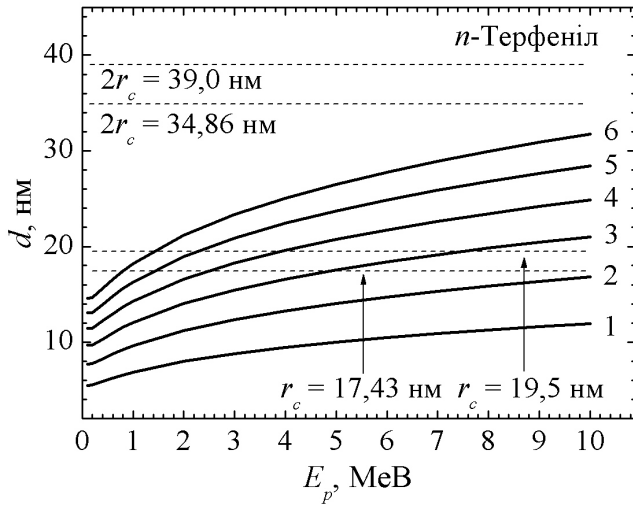


Рис. 7. Значення величини d в треку протона з енергією E_p для монокристала n -терфенілу. Розрахунки проведено для наступних значень радіуса r_0 циліндричного треку: 1 – $r_0 = 15$ нм, 2 – $r_0 = 25$ нм, 3 – $r_0 = 35$ нм, 4 – $r_0 = 45$ нм, 5 – $r_0 = 55$ нм, 6 – $r_0 = 65$ нм.

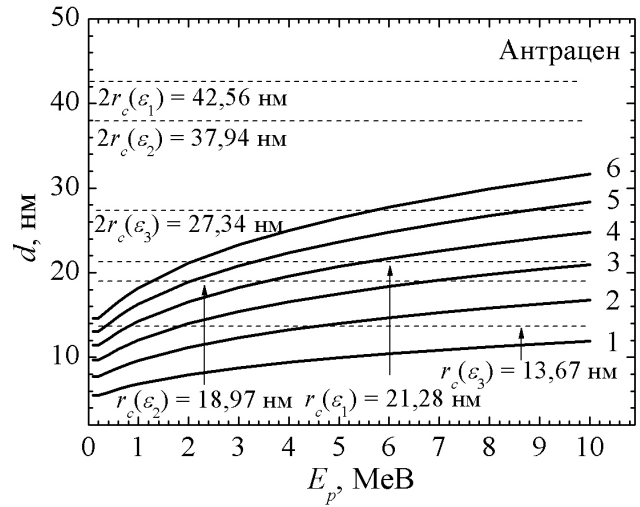


Рис. 8. Значення величини d в треку протона з енергією E_p для анізотропного монокристала антрацену. Позначення такі ж самі, як на рис. 7.

Вищенаведені розрахунки середньої відстані d між центрами зарядових пар (M_+ , M_-) виконані в наближенні, коли їх густина по всьому об'єму треку вважається однаковою. Автором було проведено розрахунок величини $d_{\text{кор}}$, яка, на відміну від d , враховує зміну dE/dx частинки при її проходженні через сцинтилятор. Результати розрахунків показали, що для всіх значень радіуса r_0 циліндричного треку значення відстані $d_{\text{кор}}$ між центрами зарядових пар змінюється залежно від глибини проникнення. Наприклад, ця зміна становить до 17% від його середнього значення (d) для випадку альфа-частинки з енергією $E_\alpha = 5,03$ МеВ і до 32% – для випадку протона з енергією $E_p = 4,9$ МеВ. Величина відхилення від r_0 майже не залежить. Різниця в значеннях $d_{\text{кор}}$ для всіх досліджуваних органічних сцинтиляторів при одному типі збудження була малою.

Автором також було проведено розрахунок величини d для електрона з енергією $E_e = 0,613$ МеВ (малі dE/dx), що відповідає умовам експерименту. Згідно з розрахунками, пробіг R_e такого електрона дорівнює 0,197, 0,197, 0,195 та 0,226 см в монокристалах стильбену, n -терфенілу, антрацену та полістирольному сцинтиляторі, відповідно. Для електрона з енергією $E_e = 0,613$ МеВ були отримані значення d в діапазоні від 63 до 74 нм. Ці значення в 1,5–2 рази перевищують значення $2r_c$ (5) для цих систем, тобто в треку електрона з енергією $E_e = 0,613$ МеВ (малі dE/dx) перекриття поляризаційних

оточень, які утворюються сусідніми парами зарядових станів (M_+ , M_-), є вкрай малоюмовірним. У такій ситуації вплив поляризаційних взаємодій на процес рекомбінації пар зарядових станів (M_+ , M_-) стає незначним.

У підрозділі 5.4 дисертаційної роботи представлені результати розрахунків сумарного числа фотонів P_i в імпульсі радіюлюмінесценції для ІВ різних типів і енергій. Розрахунки проведено для сцинтиляторів, представлених в табл. 2 та табл. 3. Для розрахунків використовувалися значення величин τ_γ , τ_e , τ_α та $(L_{abc})_\gamma$, а також виміряні амплітудні сцинтиляційні спектри (див., наприклад, рис. 2–рис. 4). Процедуру розрахунків описано в дисертації. Нижче наведені результати розрахунків P_i для монокристала стильбену, полікристалів і композиційних сцинтиляторів на основі стильбену.

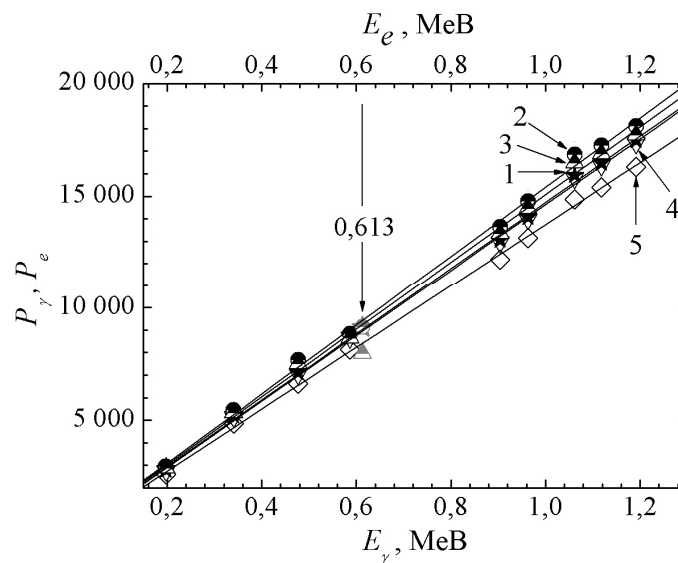


Рис. 9. Число фотонів P_γ та P_e в сцинтиляційному імпульсі при збудженні сцинтиляторів стильбену фотонами гамма-випромінювання та конверсійними електронами, відповідно.

Точки – експериментальні значення, прямі лінії – розрахункові лінійні залежності P_γ від E_γ . Стрілка вказує місце розташування значень P_e для електрона конверсії з $E_e = 0,613$ MeV. Уведені позначення: 1 – монокристал; 2 та 3 – полікристали з $h = 5$ та 10 мм, відповідно; 4 та 5 – композиційні сцинтилятори з $h = 10$ та 20 мм, відповідно.

На рис. 9 представлені розрахункові значення числа фотонів P_γ та P_e для випадку збудження різних типів органічних сцинтиляційних матеріалів фотонами гамма-випромінювання й конверсійними електронами, відповідно. Очевидна вкрай слабка відмінність у значеннях величин P_γ та P_e для всіх досліджених типів органічних сцинтиляційних матеріалів на основі стильбену. Взавши за 100% значення P_i для монокристала як еталонного матеріалу, будемо характеризувати розкид значень P_i як:

$$\Delta_i = \frac{|P_i^{zp} - P_i^{em}|}{P_i^{em}} \times 100\% \quad , \quad (7)$$

де P_i^{sp} і P_i^{em} – значення величини P_i для зразків гетерогенних сцинтиляторів і еталонного монокристала, відповідно. Розрахункові значення Δ_γ та Δ_e для всіх досліджуваних зразків не перевищували, відповідно, 9% та 20%.

На рис. 10 та рис. 11 представлені результати розрахунків величин P_n та P_α для випадків збудження органічних сцинтиляторів на основі стильбену, відповідно, швидкими нейтронами джерела $^{239}\text{Pu-Be}$ (сцинтиляції збуджувалися протонами віддачі) та альфа-частинками з енергією E_α від 0,67 до 7,56 MeV. Для ІВ з великими dE/dx представлені залежності P_i від E_i мають нелінійний характер. При цьому не лінійність (в обох розглянутих випадках) збільшується зі зростанням dE/dx при переході від швидких нейтронів (рис. 10) до альфа-частинок (рис. 11). У межах усієї серії досліджуваних зразків органічних гетерогенних сцинтиляторів (див. табл. 3) максимальне значення Δ_n (7) складає $\sim 18\%$ для $E_n = 9,7$ MeV та Δ_α (7) $\sim 15\%$ для $E_\alpha = 7,56$ MeV.

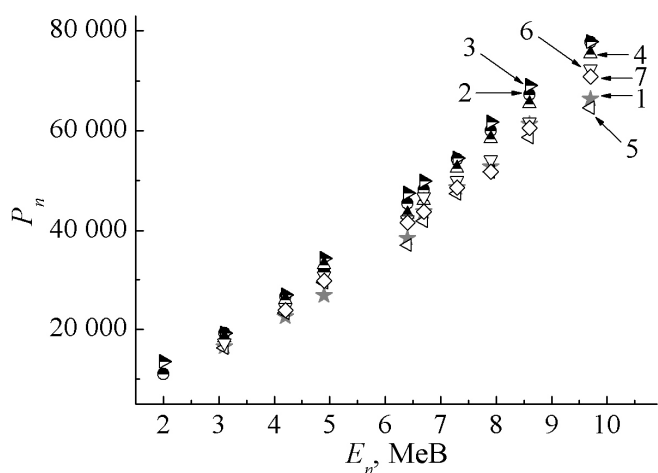


Рис. 10. Число фотонів P_n в сцинтиляційному імпульсі при збудженні органічних сцинтиляторів стильбену швидкими нейтронами з енергією E_n .

Уведені позначення: 1 – монокристал; 2, 3 та 4 – полікристали з $h = 5, 7$ та 10 мм, відповідно; 5, 6 та 7 – композиційні сцинтилятори з $h = 5, 10$ та 20 мм, відповідно.

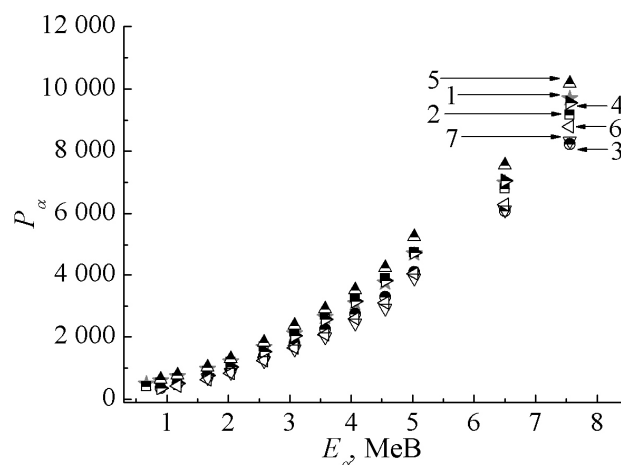


Рис. 11. Число фотонів P_α в сцинтиляційному імпульсі при збудженні органічних сцинтиляторів стильбену альфа-частинками з енергією E_α .

Уведені позначення: 1 – монокристал; 2, 3, 4 та 5 – полікристали з $h = 3, 5, 7$ та 10 мм, відповідно; 6 та 7 – композиційні сцинтилятори з $h = 5$ та 10 мм, відповідно.

Шостий розділ «Особливості розміну енергії іонізуючих частинок у трекових ділянках, що формуються в органічних молекулярних сцинтиляторах» присвячено аналізу отриманих результатів і вивченню механізмів розміну енергії в ділянках високої густини радіаційного збудження органічних твердотільних сцинтиляторів.

Напівемпіричний опис сцинтиляційного відгуку в наближенні швидкої початкової рекомбінації зарядових станів, який отримано (розділ 4 дисертації), дає можливість проаналізувати вплив поляризаційних взаємодій на процес рекомбінації зарядових пар у треку іонізуючої частинки. Основою для

детального аналізу є нижченаведені результати апроксимації виразом (3) залежності $P_i = f(\nu_{i0})$, яка містить константи S_i , b_{1i} , b_{2i} , b_{3i} ... Для ІВ з великими значеннями dE/dx досліджувалася залежність числа фотонів ψP_i , які народжуються в ділянці з високою густиною первинних станів (циліндричний трек), як функції відносної початкової концентрації пар зарядових станів ν_{i0} (4). Величина ψ (розділ 3 дисертації) дає відносний внесок повільного компоненту імпульсу радіолюмінесценції при збудженні випромінюванням i -го типу.

На рис. 12 та рис. 13, як приклад, представлені результати апроксимацій залежності $\psi P_i = f(\nu_{i0})$ виразом (3) для монокристала стильбену при збудженні швидкими нейтронами й альфа-частинками, відповідно.

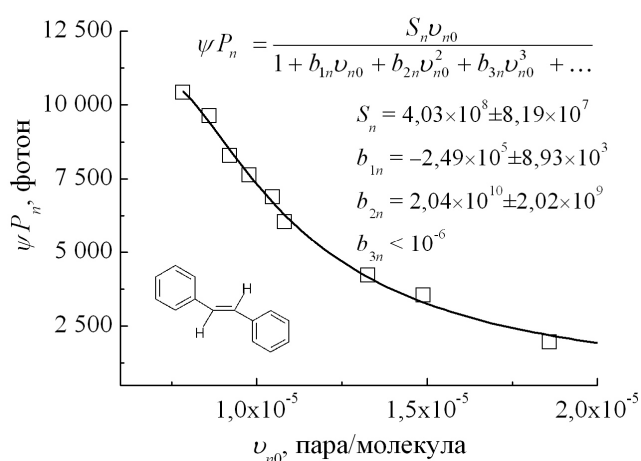


Рис. 12. Апроксимація залежності $\psi P_n = f(\nu_{n0})$ виразом (3) для монокристала стильбену з $D = 30$ мм та $h = 5$ мм для випадку збудження швидкими нейтронами джерела $^{239}\text{Pu-Be}$.

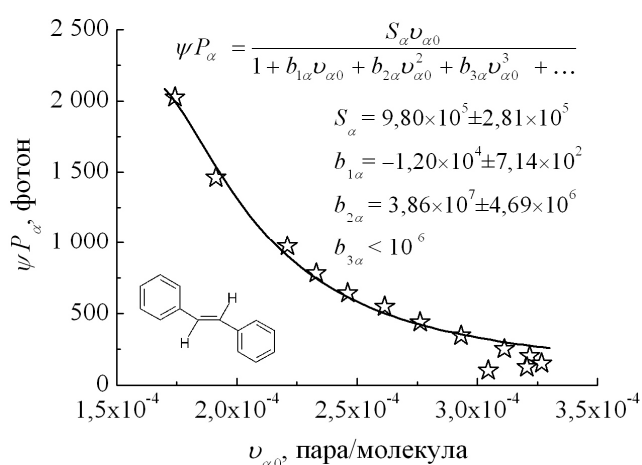


Рис. 13. Апроксимація залежності $\psi P_\alpha = f(\nu_{\alpha 0})$ виразом (3) для монокристала стильбену з $D = 30$ мм та $h = 5$ мм для випадку збудження альфа-частинками джерела ^{239}Pu .

У табл. 4 представлені значення констант апроксимації S_i , b_{1i} та b_{2i} (3) для органічних монокристалів, які досліджувалися. Константи b_{1i} апроксимації (3) мають від'ємні значення для всіх досліджених у роботі органічних сцинтиляторів. Від'ємне значення константи b_{1i} при лінійному по ν_{i0} члені в знаменнику виразу (3) свідчить про те, що процес швидкої початкової рекомбінації зарядових пар (M_+ , M_-), які утворюються в треку іонізуючої частинки з великими значеннями dE/dx , ініціюється потужними поляризаційними взаємодіями всередині таких пар. Дослідження гетерогенних сцинтиляторів на основі стильбену, проведені в дисертаційній роботі, також показали, що для одного й того ж типу збудження значення констант апроксимації (у тому числі й константи b_{1i}) близькі не тільки для органічних монокристалів, але й для різних (за своєю структурою) типів органічних сцинтиляторів. Цей факт указує на те, що закономірності енергетичних втрат у треку іонізуючої частинки можуть бути спільними для широкого класу органічних сцинтиляційних матеріалів.

Таблиця 4

Значення констант апроксимації S_i , b_{1i} та b_{2i} (3) для органічних монокристалів, які збуджуються швидкими нейтронами та альфа-частинками

Монокристал	Швидкі нейтрони ($^{239}\text{Pu-Be}$)			Альфа-частинки (^{239}Pu)		
	S_n^1	b_{1n}^2	b_{2n}^3	S_α^1	$b_{1\alpha}^2$	$b_{2\alpha}^3$
Стильбен	$4,03 \cdot 10^8$	$-2,49 \cdot 10^5$	$2,04 \cdot 10^{10}$	$9,80 \cdot 10^5$	$-1,20 \cdot 10^4$	$3,86 \cdot 10^7$
<i>n</i> -Терфеніл (без добавки)	$8,26 \cdot 10^8$	$-1,97 \cdot 10^5$	$1,51 \cdot 10^{10}$	$8,19 \cdot 10^5$	$-9,31 \cdot 10^3$	$2,31 \cdot 10^7$
<i>n</i> -Терфеніл (0,1 % 1,4-дифеніл-1,3-бутадієну)	$4,44 \cdot 10^8$	$-1,76 \cdot 10^5$	$1,09 \cdot 10^{10}$	$1,66 \cdot 10^6$	$-9,15 \cdot 10^3$	$2,24 \cdot 10^7$
Антрацен	$-^4$	$-^4$	$-^4$	$8,81 \cdot 10^5$	$-1,20 \cdot 10^4$	$3,76 \cdot 10^7$

Примітки: 1) розмірність константи S_i – (молекула/пара)·фотон; 2) розмірність константи b_{1i} – молекула/пара; 3) розмірність константи b_{2i} – (молекула/пара)²; 4) результати не наведено через аномально повільне світіння швидкого компоненту (стала часу висвітлювання ~ 30 нс), що маскує частину повільного компоненту та робить процедуру розділення за формою сцинтиляційного імпульсу не зовсім коректною.

У підрозділі 6.2 дисертаційної роботи наведено аналіз результатів розрахунків енергетичного виходу фото- та радіолюмінесценції Y_i органічних твердотільних сцинтиляторів, а також енергії δ_i , яка витрачається на генерацію одного фотона люмінесценції в цих середовищах. На відміну від ν_{i0} (4) та $\psi \cdot P_i$, величини Y_i та δ_i надають інформацію про інтегральний ефект енергетичних втрат для i -го типу збудження.

Енергетичний вихід фотолюмінесценції Y_{ph} розраховувався як:

$$Y_{ph} = \Phi_{фл} \cdot \frac{\lambda_{збуд}}{\langle \lambda_{люм} \rangle}, \quad (8)$$

де використовувалися величини $\lambda_{збуд}$, $\langle \lambda_{люм} \rangle$ і $\Phi_{фл}$, наведені в табл. 1.

Середня величина енергетичного виходу радіолюмінесценції Y_i у випадку повного гальмування частинки i -го типу з початковою енергією E_0 дорівнює:

$$\langle Y_i \rangle = \frac{1}{E_0} \int_0^{E_0} Y_r(E) dE = \frac{L}{E_0}, \quad (9)$$

де L – сумарна енергія фотонів радіолюмінесценції, яка дорівнює $P_i \cdot E(\langle \lambda_{люм} \rangle)$. У свою чергу, середнє значення енергії δ_i , яка витрачається на генерацію одного фотона радіолюмінесценції при i -му типі збудження, дорівнює:

$$\langle \delta_i \rangle = \frac{E(\langle \lambda_{люм} \rangle)}{\langle Y_i \rangle}. \quad (10)$$

У подальшому позначення середнього значення для величин Y_i та δ_i будемо опускати.

Величина Y_γ , відповідно (9), розраховувалася як:

$$Y_i = \operatorname{tg} \alpha \cdot E(\langle \lambda_{\text{люм}} \rangle), \quad (11)$$

де α – кут нахилу кривої лінійної апроксимації залежності P_γ від E_γ (див. рис. 9).

Величини Y_e , Y_n та Y_α , відповідно (9), розраховувалися як:

$$Y_i = \frac{P_i \cdot E(\langle \lambda_{\text{люм}} \rangle)}{E_i}. \quad (12)$$

На рис. 14 представлені узагальнені дані щодо значень Y_i для органічних монокристалів і полістирольного сцинтилятора як функції dE/dx частинки. Для порівняння наведено діапазон значень Y_{ph} . Для гамма-випромінювання також лише вказано діапазон розрахункових значень енергетичного виходу Y_γ , оскільки використання величини dE/dx в цих випадках є некоректним.

На рис. 15 представлена залежність середньої енергії δ_i , яка витрачається на генерацію фотона радіюлюмінесценції, як функції dE/dx частинки. Також наведено діапазон розрахункових значень δ_{ph} та δ_γ .

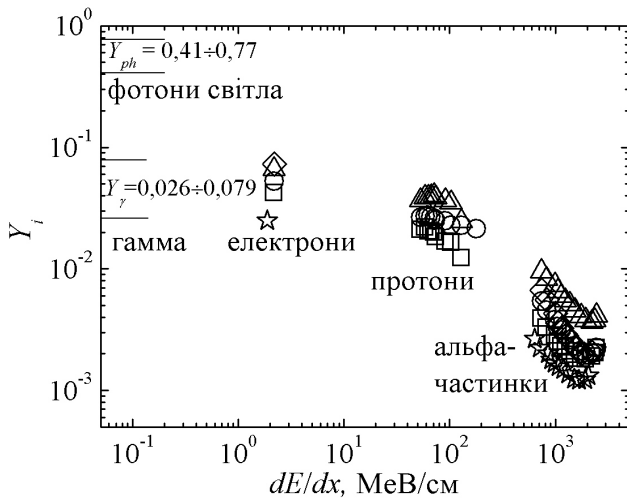


Рис. 14. Енергетичний вихід радіюлюмінесценції Y_i органічних твердотільних сцинтиляторів як функція dE/dx іонізуючої частинки. Квадрати – стилбен, кола – n -терфеніл (без добавки), трикутники – n -терфеніл (який містить 1,4-дифеніл-1,3-бутадієну), ромби – антрацен, зірочки – полістирольний сцинтилятор.

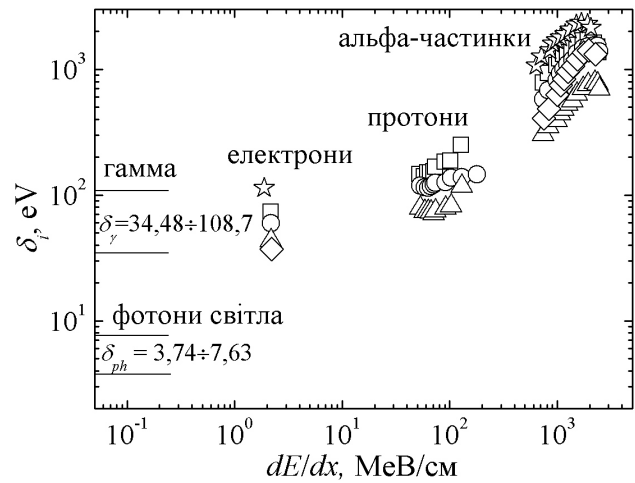


Рис. 15. Середня енергія δ_i , яка витрачається на генерацію фотона люмінесценції, як функція dE/dx іонізуючої частинки. Позначення такі ж, як і на рис. 14.

На рис. 16 представлено залежності Y_i від dE/dx для органічних гетерогенних сцинтиляторів і еталонного монокристала. Для демонстрації

результатів довільно вибрано по одному зразку з кожного типу органічних сцинтиляторів, які досліджуються.

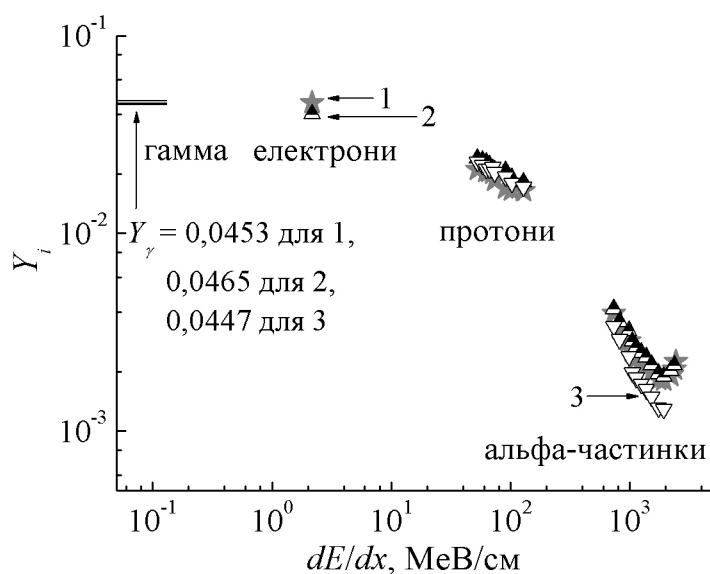


Рис. 16. Енергетичний вихід радіолюмінесценції Y_i сцинтиляторів на основі стильбену як функція dE/dx іонізуючої частинки.

Уведені позначення: 1 – монокристал, 2 – полікристал з $h = 5$ мм, 3 – композиційний сцинтилятор з $h = 5$ мм. Прямими лініями вказано розташування величини Y_γ та надано її чисельні значення для зразків 1, 2 та 3.

Із представлених на рис. 14, рис. 15 та рис. 16 даних випливає загальна закономірність втрат енергії в треках іонізуючих частинок із різними значеннями dE/dx для органічних молекулярних сцинтиляційних систем. Енергетичний вихід люмінесценції падає в 10–20 разів при переході від збудження фотонами світла (значення Y_{ph}) до збудження іонізуючими випромінюваннями з малими значеннями dE/dx (значення Y_γ , Y_e). Далі зі зростанням dE/dx при переході до швидких нейтронів, які генерують протони віддачі, енергетичний вихід радіолюмінесценції (значення Y_n) падає ще в 2–3 рази. Подальше збільшення dE/dx при переході до альфа-частинок приводить до ще більш різкого зменшення енергетичного виходу (значення Y_α в 10–40 разів менші за Y_γ та Y_e).

Отримані результати свідчать про відсутність будь-яких істотних відмінностей у значеннях Y_i та δ_i для органічних монокристалів і органічних гетерогенних матеріалів при збудженні іонізуючим випромінюванням одного й того ж типу та однакової енергії. Ці результати поряд із тими, що представлені в підрозділах 5.4 та 6.1 дисертаційної роботи, дозволяють поширити механізми енергетичних втрат на більш широкий клас органічних сцинтиляційних матеріалів. Далі це питання розглянуто на прикладі структурно-досконалих органічних монокристалів.

У підрозділі 6.3 дисертаційної роботи розглянуті фізичні процеси, що відбуваються на ранніх стадіях розміну енергії іонізуючої частинки, які можуть приводити до вищеописаних енергетичних втрат у треку частинки. Окремо розглянуті випадки збудження ІВ з малими та великими значеннями dE/dx .

Аналіз можливих причин втрат енергії для ІВ з малими значеннями dE/dx базується на тому, що в цій ситуації частинка створює окремі, розділені в просторі сліди, які містять одну або кілька зарядових пар (M_+ , M_-). Їх

рекомбінація може спричинити появу збудженого стану та подальшу люмінесценцію.

Джерелом енергетичних втрат для іонізуючих випромінювань із малими dE/dx , в першу чергу, може бути виліт електрона зі сліду. Такий електрон з великою ймовірністю не візьме участі в процесі рекомбінації пар (M_+ , M_-), яка може привести до можливої подальшої молекулярної люмінесценції речовини. Автором була проведена оцінка ймовірності Ξ цього ефекту на прикладі сцинтилятора на основі полістиролу. Розрахунок базувався на припущенні, що у відсутності зовнішнього поля слід можуть покинути тільки ті δ -електрони, пробіг яких перевищує розрахункову величину критичного кулонівського радіуса r_c (5). Такий пробіг у полістиролі має електрон з енергією $E_r \cong 450$ еВ. Розрахунок для випадку збудження електронами конверсії з енергією $E_e = 613$ кеВ (умови експерименту) дав значення ймовірності вильоту δ -електрона зі сліду $\Xi \cong 22$ %.

Другою можливою причиною енергетичних втрат для ІВ з малими значеннями dE/dx є рекомбінація негемінальних пар зарядових станів (M_+ , M_-) в окремому сліді. У загальному випадку рекомбінація зарядової пари спричиняє появу S - або T -стану з якоюсь ймовірністю a , де $0 \leq a \leq 1$. У сліді з однією парою має місце гемінальна рекомбінація, коли електрон рекомбінує зі своїм материнським іоном. У сліді з більшим числом пар великий внесок робить негемінальна рекомбінація, у результаті якої утворюються T - і S -стани в співвідношенні 3 до 1. Вихід S -станів, з урахуванням процесу T - T анігіляції, дорівнює $\sim 0,4$. Автором були проведені оцінки виходу S -станів ξ_S , що враховують сумарний внесок як гемінальної, так і негемінальної рекомбінації за умови, що $a = 1$. Для розрахунку використовувалися дані про розподіл енергії електрона в сліді для води. Розрахунок проводився в припущенні, що для сліду з однією та двома парами переважно відбувається гемінальна рекомбінація, а для слідів із більшою кількістю пар – негемінальна рекомбінація. Для органічних монокристалів отримано значення $\xi_S \sim 0,736$, а для пластмасового сцинтилятора, де ймовірність T - T анігіляції практично дорівнює нулю, – $\xi_S \sim 0,56$.

У пункті 6.3.2 дисертаційної роботи розглянуто можливі причини енергетичних втрат для випадку великих dE/dx . Як показали результати розрахунків величини d (6) (див. рис. 5–рис. 8), у треку частинки з великими значеннями dE/dx утворюється висока густина пар зарядових станів (M_+ , M_-). За таких умов превалює швидка рекомбінація негемінальних пар, яка прискорюється поляризаційними взаємодіями.

У табл. 5 представлені результати розрахунку середнього числа пар N_r зарядових станів, що потрапляють у сферу з радіусом r_c (5). Розрахунок проведено для альфа-частинки з початковою енергією $E_\alpha = 5$ МеВ і значенням $r_c = 18,5$ нм для монокристала n -терфенілу (див. рис. 5). Для розрахунку взяті різні значення початкового радіуса r_0 циліндричного треку альфа-частинки.

Число N_r пар зарядових станів у треку альфа-частинки з $E_\alpha = 5$ МеВ і початковим радіусом перерізу r_0 , які знаходяться у сфері з радіусом $r_c = 18,5$ нм

r_0 , нм	d , нм	N_r
10	3,51	879
20	5,57	220
30	7,30	98
40	8,84	55
50	10,26	35

Енергія E_{pol} електростатичного поля квазііона, яка витрачається на створення поляризаційного оточення, становить $\sim 1-1,5$ еВ. Це означає, що сумарна енергія однієї рекомбінуючої пари (M_+ , M_-) є величиною, порівняною з енергією S_1 - стану (див. табл. 1, значення $E(\langle \lambda_{люм} \rangle)$). Із наведених у табл. 5 даних видно, що в межах дуже малої локальної ділянки речовини, розмір якої визначається величиною r_c (5), може одночасно рекомбінувати $N_r \gg 1$ пар зарядових станів (M_+ , M_-). У такій ситуації вірогідний миттєвий і дуже сильний локальний прогрів речовини, який, відповідно до представлених у роботі літературних даних, має приводити до збільшення ймовірності безвипромінювальної дезактивації збудження за рахунок зменшення ймовірності люмінесценції. Вищезгаданий механізм «температурного гасіння», швидше за все, має бути головною причиною ефективного первинного гасіння радіолюмінесценції для ІВ із великими значеннями dE/dx . Очевидно, що основні енергетичні втрати в треку частинки з великими dE/dx мають відбуватися на етапі швидкої початкової рекомбінації гарячих зарядових станів, яка ініціюється поляризаційними взаємодіями. У результаті такої рекомбінації число, а значить, і концентрація пар зарядових станів (M_+ , M_-) різко падає за час $\tau < 10^{-13}$ с.

Рекомбінація «остиглих» пар зарядових станів на більш пізніх етапах розміну енергії частинки, яка запасена в сцинтиляторі, сприяє появі T - та S - станів. Час життя зарядових станів у відсутності рекомбінації (як результат заборони по спину для цих дублетних, квартетних станів) є нескінченно великим у порівнянні з часовою шкалою формування сцинтиляційного імпульсу. З урахуванням цього, їх концентрація в «остиглому» треку залишається досить великою, що зумовлює перебіг більш пізнього, але досить ефективного вторинного («концентраційного») гасіння люмінесценції.

Аналіз літературних даних, представлених у пункті 1.4.3 дисертаційної роботи, дозволив припустити наступні канали «концентраційного» гасіння люмінесценції. Так S_1 - стани, як потенційне джерело фотонів люмінесценції, мають високу ймовірність зникнути в процесі взаємної S - S анігіляції, у процесі S - T анігіляції, у процесі поділу синглетних екситонів. В умовах великої густини збудження анігіляція синглетних екситонів може призвести й до автоіонізації. Зменшенню концентрації S_1 - станів будуть також сприяти процеси гасіння S_1 -

станів зарядовими станами. Внесок кожного з цих процесів у загальний процес енергетичних втрат на етапі розміну енергії збуджених станів буде визначатися характерними константами швидкостей цих процесів.

Слід зазначити, що й процес швидкої початкової рекомбінації пар гарячих зарядових станів («температурне» гасіння), і процес вторинного («концентраційного») гасіння, який відбувається на більш пізньому етапі розміну енергії S - та T - станів, істотно залежать від початкової концентрації відповідних станів, тому що обидва ці процеси носять бімолекулярний характер. Процес «температурного» гасіння відбувається на етапі розміну енергії зарядових станів і тому передує процесу «концентраційного» гасіння, який відбувається після нього, коли в результаті рекомбінації зарядових станів уже з'явилися збуджені молекули. Початкова концентрація числа пар молекулярних збуджених станів завжди менша за початкову концентрацію пар зарядових станів. Бімолекулярний характер процесів підсилює відмінність в ефективності їх перебігу. Тому вторинне («концентраційне») гасіння не може мати вплив, порівняний із впливом первинного («температурного») гасіння. Лише на більш пізньому етапі розміну енергії в «остиглому» треку іонізуючої частинки «концентраційне» гасіння радіолюмінесценції може стати досить ефективним процесом.

Загальна схема розміну енергії ІВ, яку представлено на рис. 17, враховує розглянуті причини енергетичних втрат для випадку збудження органічного молекулярного середовища ІВ з малими та великими значеннями dE/dx . Пунктирні лінії на рисунку позначають канали проходження фізичних процесів, які визначають втрати енергії первинної іонізуючої частинки. У дужках указаний характерний час перебігу процесів. Світло-сірим кольором виділені ті квадрати, які у наведеній схемі позначають фізичні процеси, які не враховувалися в більш ранніх описах.

У пункті 6.4.3 дисертації проводиться аналіз температурних меж застосовності отриманих експериментальних даних і запропонованого опису процесів розміну енергії в треку іонізуючої частинки для органічних молекулярних середовищ. Підґрунтям цього аналізу є результати дослідження температурної залежності світлового виходу органічних твердотільних сцинтиляторів, які було представлено в розділі 3 дисертації. Для монокристала стильбену спостерігалася вкрай слабка залежність світлового виходу від температури в діапазоні від -95 до $+75^{\circ}\text{C}$, для n -терфенілу – в діапазоні від -115 до $+110^{\circ}\text{C}$, для антрацену – в діапазоні від -115 до $+30^{\circ}\text{C}$, для полістирольного сцинтилятора – в діапазоні від -130 до $+100^{\circ}\text{C}$. Тому отримані для кімнатної температури значення параметрів Y_i та δ_i можуть також бути поширені на вищеперелічені температурні інтервали. З точки зору завдань дисертаційної роботи отримані результати показують, що у визначених температурних інтервалах вплив вторинних процесів розміну енергії «остиглих» зарядових станів є малим у порівнянні із загальним ефектом цих процесів і процесів гасіння в треку.

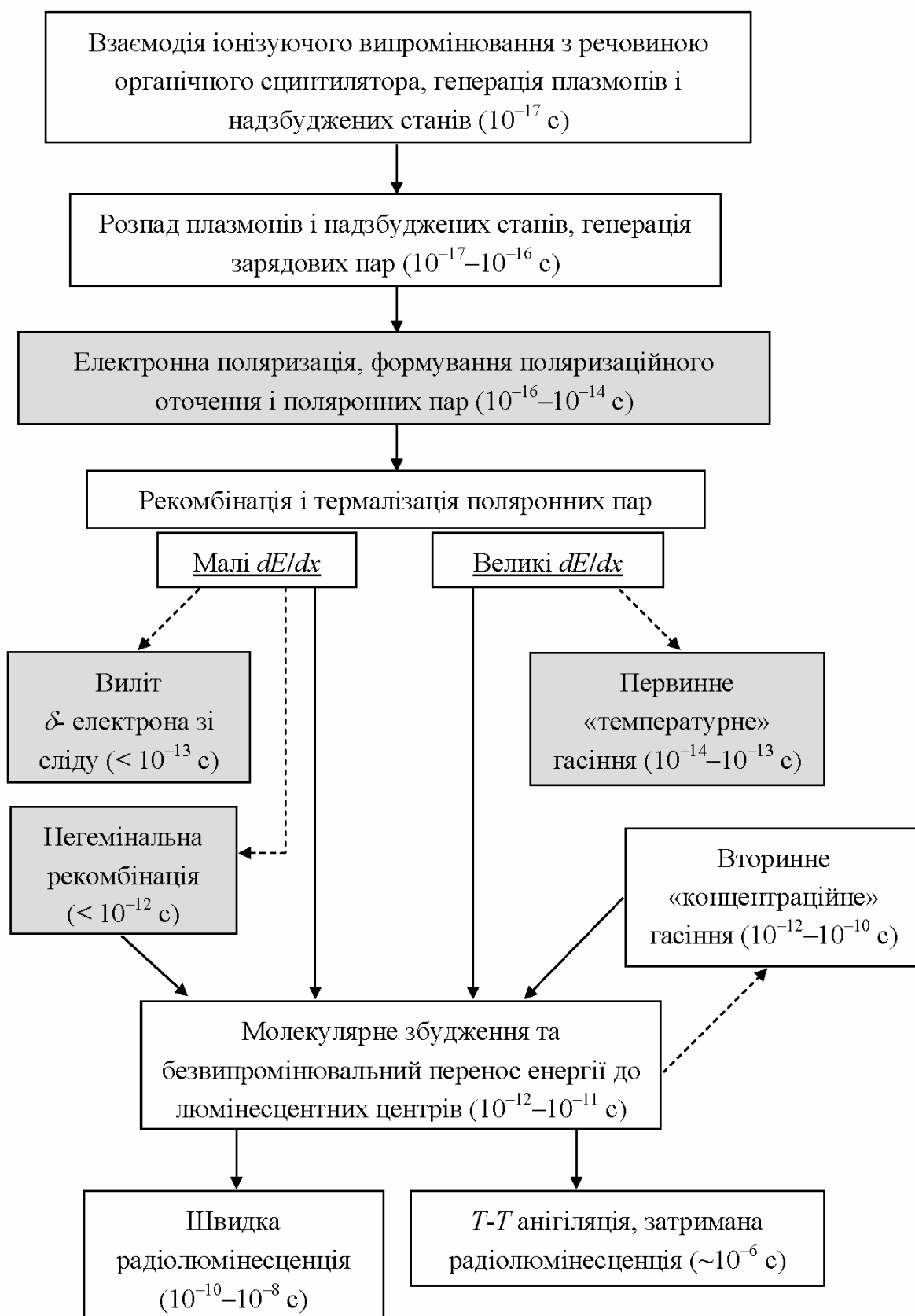


Рис. 17. Схематичне представлення послідовності процесів розміну енергії іонізуючого випромінювання в ділянках високої густини радіаційного збудження органічних твердотільних сцинтиляторів.

ВИСНОВКИ

У роботі запропоновано підхід, який уперше розглядає явище поляризації органічного молекулярного середовища як фактор, що визначає процеси міграції та рекомбінації зарядових станів у трекових ділянках іонізуючої частинки. Проведено комплексне дослідження абсолютного світлового виходу $(L_{abc})_{\gamma}$, сумарного числа фотонів P_i в імпульсі радіолюмінесценції, середнього значення енергетичного виходу фото- та радіолюмінесценції Y_i та середньої енергії δ_i , яка витрачається на генерацію фотона люмінесценції, при фотозбудженні та збудженні іонізуючими випромінюваннями різних типів і енергій.

Основні результати роботи полягають у наступному.

1. Модельний опис формування сцинтиляційного відгуку в органічних твердотільних сцинтиляторах, що запропоновано, враховує визначальний вплив поляризаційних взаємодій на процес рекомбінації гарячих зарядових станів у треку іонізуючої частинки. Отримані експериментальні дані та їх аналіз, із використанням відповідних математичних виразів, підтвердили застосовність обраного автором підходу. Показано, що класичні формули Біркса в наближенні рівномірної втрати енергії частинки вздовж її траєкторії в об'єкті є окремим випадком запропонованого опису. На відміну від формул Біркса, цей опис містить лише параметри, які визначаються безпосередньо з експерименту. В рамках наближення «приписаної дифузії» встановлено, що частка пар зарядових станів, які утворюються в треку частинки з великими значеннями питомих енергетичних втрат (dE/dx) , дорівнює 0,8444.

2. За результатами розрахунків критичного кулонівського радіуса r_c і середньої відстані d між центрами зарядових пар, що генеруються в треку іонізуючої частинки, вивчено вплив поляризаційних взаємодій на процес їх рекомбінації. З'ясовано, що ефективність цього процесу залежить від густини пар зарядових станів, а отже, від величини dE/dx іонізуючої частинки. У треку альфа-частинки з енергією E_α від 0,4 до 10 МеВ поляризаційні оточення як зарядових станів у парі, так і сусідніх пар ефективно перекриваються. Тому в разі збудження альфа-частинками поляризаційні взаємодії будуть майже завжди підвищувати ефективність швидкої ($\tau \leq 10^{-13}$ с) первинної рекомбінації пар гарячих зарядових станів в органічному молекулярному середовищі, що зумовлює зростання ймовірності безвипромінювальних втрат енергії. Спостерігається сильна нелінійність залежності числа фотонів у сцинтиляційному імпульсі від енергії частинки.

3. Показано, що в треку протона з енергією E_p від 0,85 до 10 МеВ перекриття поляризаційних оболонок зарядових станів не завжди є домінуючим механізмом, як у випадку альфа-частинки. Тому ймовірність швидкої первинної рекомбінації пар гарячих зарядових станів зменшується. При цьому істотно збільшується ймовірність рекомбінації зарядових станів, яка приводить до люмінесценції. Цей процес пов'язаний зі зближенням завдяки міграції

сцинтилятором (з часом $\tau \geq 10^{-12}$ с) станів, що вже релаксували. У цьому випадку нелінійність відгуку стає не настільки вираженою, як для альфа-частинок. Для іонізуючих випромінювань (ІВ) з малими значеннями dE/dx вплив поляризаційних взаємодій на процес рекомбінації стає вкрай слабким. Це супроводжується зникненням будь-якого відчутного нелінійного ефекту втрат, що є характерним для вищезгаданих випадків збудження альфа-частинками та швидкими нейтронами.

4. За результатами дослідження сумарного числа фотонів (P_i) в імпульсі радіолюмінесценції встановлено, що значення енергетичного виходу люмінесценції (Y_i) зменшується в 10–20 разів при переході від фотозбудження до збудження ІВ із малими dE/dx (гамма-випромінювання та електрони конверсії). Зі зростанням dE/dx при збудженні швидкими нейтронами, що генерують протони віддачі, величина Y_i спадає ще в 2–3 рази. Подальше збільшення dE/dx при переході до альфа-частинок спричиняє ще більш різке зменшення Y_i (в 10–40 разів у порівнянні з малими dE/dx). Експериментально доведено, що така закономірність є універсальною для широкого кола органічних сцинтиляторів, як для класичних об'єктів (монокристалів різного хімічного складу та полімерів), так і для нових типів гетерогенних сцинтиляційних матеріалів. Значення середньої енергії δ_i , яка витрачається на генерацію фотона люмінесценції, відповідно, зростає зі збільшенням dE/dx .

5. За результатами дослідження сумарного числа фотонів P_i в імпульсі радіолюмінесценції вивчено вплив структури сцинтилятора на його сцинтиляційні властивості. На прикладі сцинтиляторів на основі стильбену виявлено вкрай слабку відмінність у значеннях величин P_i (отже й Y_i) для монокристалів, полікристалів і композиційних сцинтиляторів при опроміненні іонізуючою частинкою i -го типу з енергією E_i . Для всієї низки сцинтиляторів із різною структурою на основі стильбену, що досліджувались, розкид значень P_γ та P_e не перевищував, відповідно, 9 % та 20 %, а значень P_n та P_α – 18 % та 15 %, відповідно.

6. Встановлено механізми енергетичних втрат, які виникають безпосередньо після збудження іонізуючою частинкою органічних молекулярних середовищ. Для ІВ з малими значеннями dE/dx до них відносяться: виліт електрона зі сліду, що зменшує кількість рекомбінуючих пар зарядових станів, і негемінальна рекомбінація зарядових станів в окремому сліді, яка зменшує ймовірність утворення синглетно-збуджених молекул (ξ_S), що здатні до подальшої люмінесценції. Для органічних монокристалів отримано $\xi_S \sim 0,736$, а для пластмасового сцинтилятора – $\xi_S \sim 0,56$.

7. Встановлено, що для ІВ з великими значеннями dE/dx основними механізмами втрат енергії в треку частинки є наступні бімолекулярні процеси: 1) інтенсивна первинна рекомбінація гарячих зарядових станів («температурне» гасіння люмінесценції), яка прискорюється поляризаційними взаємодіями в органічному молекулярному середовищі; 2) вторинне («концентраційне») гасіння, яке відбувається на більш пізньому етапі розміну енергії збуджених станів.

8. Уточнено послідовність процесів розміну енергії в ділянках високої густини радіаційного збудження органічних молекулярних середовищ, яка, на відміну від попередніх уявлень, враховує як швидку початкову рекомбінацію пар гарячих зарядових станів, так і вторинні фізичні процеси, які спричиняють енергетичні втрати в ділянках високої густини радіаційного збудження в умовах визначального впливу ефекту поляризації.

9. Встановлено температурні межі слабкої зміни величини світлового виходу: для монокристала стильбену в діапазоні температур від -95 до $+75^{\circ}\text{C}$, для монокристала *n*-терфенілу – від -115 до $+110^{\circ}\text{C}$, для монокристала антрацену – від -115 до $+30^{\circ}\text{C}$ і для полістирольного сцинтилятора в діапазоні температур від -130 до $+100^{\circ}\text{C}$. Отримані для кімнатної температури параметри опису формування сцинтиляційного відгуку не вимагають додаткових корекцій для цих температурних діапазонів. Ці результати можуть бути корисними при розробці спектрометричних і дозиметричних приладів з метою їх використання в умовах температурної нестабільності (геологічний каротаж, екологічний моніторинг).

10. Питання, розглянуті в дисертаційній роботі, пов'язані з особливостями первинного розміну енергії ІВ та їх впливом на органічну молекулярну речовину. Крім того, органічні сцинтилятори є ефективними детекторами найбільш шкідливих типів ІВ: швидких нейтронів та альфа-частинок. Тому їх можна розглядати як модельні системи при вивченні впливу ІВ на людський організм, навколишнє середовище, їжу тощо. Отримані в роботі результати можуть виявитися корисними в радіобіології та медицині при вивченні впливу радіації на органічну речовину.

Перелік опублікованих праць за темою дисертації

1. Галунов Н. З. Формирование треков ионизирующих излучений в органических конденсированных средах / Н. З. Галунов, **О. А. Тарасенко**. — Харьков : ИСМА, 2011. — 480 с.

2. Peculiarities of scintillation pulse time parameters measurement using the single-photon technique / N. Z. Galunov, **О. А. Tarasenko**, V. V. Jarychkin, D. V. Vasilyev // *Functional materials*. — 1998. — Vol. 5, N 1. — P. 117-121.

3. The influence of supramolecular properties of organic molecular crystals on their radioluminescence mechanism / S. V. Budakovsky, N. Z. Galunov, A. M. Stepanenko, **О. А. Tarasenko** // *Functional materials*. — 1999. — Vol. 6, N 4. — P. 772-776.

4. Scintillation materials for determination of radionuclides in water / A. Yu. Andryushchenko, A. B. Blank, S. V. Budakovsky, N. Z. Galunov, N. I. Shevtsov, **О. А. Tarasenko** // *Nucl. Instrum. Meth. A*. — 2003. — Vol. 511. — P. 425-430.

5. Галунов Н. З. Особенности сцинтиляционного процесса в органических сцинтиляторах / Н. З. Галунов, Б. В. Гринев, **О. А. Тарасенко** // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение (88)*. — 2005. — № 5. — С. 176-181.

6. A technique for the selective detection of neutrons in geological applications / J. H. Baker, N. Z. Galunov, V. G. Kostin, E. V. Martynenko, **O. A. Tarasenko** // Problems of atomic science and technology. Series: Nuclear Physics Investigations (48). — 2007. — N 5. — P. 126-130.
7. New effective organic scintillators for fast neutron and short-range radiation detection / N. Z. Galunov, S. V. Budakovsky, N. L. Karavaeva, J. K. Kim, Y. K. Kim, **O. A. Tarasenko**, E. V. Martynenko // IEEE Trans. Nucl. Sci. — 2007. — Vol. 54, N 6. — P. 2734-2740.
8. Baker J. H. Variation of scintillation light yield of organic crystalline solids for different temperatures / J. H. Baker, N. Z. Galunov, **O. A. Tarasenko** // IEEE Trans. Nucl. Sci. — 2008. — Vol. 55, N 5. — P. 2736-2738.
9. Karavaeva N. L. Development of new composite scintillators based of organic single crystal grains / N. L. Karavaeva, **O. A. Tarasenko** // Functional Materials. — 2009. — Vol. 16, N 1. — P. 92-96.
10. Karavaeva N. L. Large size composite scintillators / N. L. Karavaeva, **O. A. Tarasenko** // Functional Materials. — 2010. — Vol. 17, N 3. — P. 379-385.
11. Gd-bearing composite scintillators as the new thermal neutron detectors / N. Z. Galunov, B. V. Grinyov, N. V. Karavaeva, Ya. V. Gerasymov, O. Ts. Sidletskiy, **O. A. Tarasenko** // IEEE Trans. Nucl. Sci. — 2011. — Vol. 58, N 1. — P. 339-346.
12. **Tarasenko O. A.** Generation and energy exchange of charge states in organic molecular scintillators / **O. A. Tarasenko** // Functional materials. — 2012. — Vol. 19, N 1. — P. 5-17.
13. Light transmission through the material of composite scintillator / N. L. Karavaeva, E. V. Martynenko, V. D. Panikarskaya, **O. A. Tarasenko** // Functional materials. — 2012. — Vol. 19, N 2. — P. 209-213.
14. Luminescence energy yields of organic solid materials excited by photons of light or gamma-radiation / **O. A. Tarasenko**, N. Z. Galunov, V. D. Panikarskaya, E. V. Sanin, V. A. Tarasov, V. L. Volkov // Functional materials. — 2012. — Vol. 19, N 3. — P. 404-409.
15. **Tarasenko O. A.** Features of charge pairs recombination in the track regions of organic solid scintillators / **O. A. Tarasenko** // Functional materials. — 2012. — Vol. 19, N 4. — P. 421-428.
16. **Tarasenko O. A.** Features of charge pairs recombination in the track regions of organic solid scintillators. Part II / **O. A. Tarasenko** // Functional materials. — 2013. — Vol. 20, N 2. — P. 139-144.
17. Quenching process in an ionizing particle track for organic crystalline scintillation detectors / N. Z. Galunov, V. P. Seminozhenko, E. V. Martynenko, **O. A. Tarasenko** // Problems of atomic science and technology. Series: Nuclear Physics Investigations (60). — 2013. — N 3 (85). — P. 210-219.
18. Галунов Н. З. Энергетический выход радиолуминесценции органических твердотельных сцинтилляторов, возбуждаемых различными ионизирующими излучениями / Н. З. Галунов, **O. A. Тарасенко**, В. А. Тарасов // Журн. прикл. спектр. — 2013. — Т. 80, № 4. — С. 565-570.

19. Galunov N. Z. Determination of the light yield of organic scintillators / N. Z. Galunov, **O. A. Tarasenko**, V. A. Tarasov // Functional materials. — 2013. — Vol. 20, N 3. — P. 304-309.

20. Stilbene composite scintillators as detectors of fast neutrons emitted by ^{252}Cf / **O. A. Tarasenko**, N. Galunov, N. Karavaeva, I. Lazarev, V. Panikarskaya // Radiat. Meas. — 2013. — Vol. 58. — P. 61-65.

21. Galunov N. Z. Some aspects of the energy exchange in an ionizing particle track for organic solid detectors / N. Z. Galunov, **O. A. Tarasenko** // Problems of atomic science and technology. Series: Nuclear Physics Investigations (63). — 2014. — N 5. — P. 83-90.

22. Galunov N. Z. Effect of polarization on recombination of charge states in an ionizing particle track in organic molecular crystals / N. Z. Galunov, **O. A. Tarasenko** // Mol. Cryst. Liq. Cryst. — 2015. — Vol. 606. — P. 176-188.

23. Galunov N. Z. Optical and scintillation properties of stilbene polycrystalline and composite materials / N. Z. Galunov, **O. A. Tarasenko**, V. A. Tarasov // Functional materials. — 2015. — Vol. 22, N 1. — P. 61-68.

24. Galunov N. Z. Some aspects of electron excitation energy exchange in organic scintillators / N. Z. Galunov, **O. A. Tarasenko**, V. P. Seminozhenko // Abstracts of 5-th International Conference on Electronic Processes in Organic Materials (ICEPOM-5), 24-29 May, Kyiv, Ukraine. — Kyiv, 2004. — P. 28-29.

25. Galunov N. Z. Some aspects of scintillation mechanism in organic molecular dielectrics / N. Z. Galunov, B. V. Grinev, **O. A. Tarasenko** // Abstract book of 4-th iTRS-ISC International Joint Seminar on Innovative Radiation Detector Technology, 11 Nov., Jeju, Korea. Vol. 2. — Jeju, 2004. — P. 281-282.

26. Галунов Н. З. Особенности сцинтилляционного процесса в органических сцинтилляторах / Н. З. Галунов, Б. В. Гринев, **O. А. Тарасенко** // Труды XVI Международной конференции по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению (XVI ICPRP), 6-11 сентября 2004 г., Алушта, Крым, Украина. — Харьков, 2004. — С. 347-348.

27. Аппаратура для отдельной регистрации быстрых нейтронов для геологических применений / Д. Х. Бэйкер, Н. З. Галунов, В. Г. Костин, Е. В. Мартыненко, **O. А. Тарасенко** // Тезисы докладов IV конференции по физике высоких энергий, ядерной физике и ускорителям, 27 февраля-3 марта 2006 г., Харьков, Украина. — Харьков, 2006. — С. 95.

28. Ionizing radiation energy exchange in organic single-crystalline and composite scintillators / N. Z. Galunov, N. L. Karavaeva, J. K. Kim, Y. K. Kim, **O. A. Tarasenko**, E. V. Martynenko, S. V. Budakovsky // Abstract Book of 2008 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, 19-25 Oct., Dresden, Germany. — Dresden, 2008. — P. 328-329.

29. Primary energy losses of the radioluminescence of organic crystalline materials / N. Z. Galunov, B. V. Grinyov, J. K. Kim, Y. K. Kim, **O. A. Tarasenko** // Abstracts of the Tenth International Conference on Inorganic Scintillators and their Applications (SCINT-2009), 8-12 June, Jeju, Korea. — Jeju, 2009. — P. 132.

30. Galunov N. Z. Primary quenching in a track of ionizing particle for organic scintillation crystalline materials / N. Z. Galunov, N. L. Karavaeva, **O. A. Tarasenko** // Book of abstracts of 7th International Conference on Luminescence Detectors and Transformers of Ionizing Radiation (LUMDETR 2009), 12-17 July, Krakow, Poland. — Krakow, 2009. — P. 63.

31. Органические кристаллические сцинтилляционные детекторы: процессы тушения в треке частицы / Н. З. Галунов, Е. В. Мартыненко, В. П. Семиноженко, **O. A. Tarasenko** // Тезисы докладов X конференции по физике высоких энергий, ядерной физике и ускорителям, 27 февраля – 2 марта 2012 г., Харьков, Украина. — Харьков, 2012. — С. 100.

32. Галунов Н. З. Энергетический выход радиолюминесценции органических твердотельных сцинтилляторов, возбуждаемых ионизирующими излучениями с различными удельными энергетическими потерями / Н. З. Галунов, **O. A. Tarasenko**, В. А. Тарасов // Тезисы докладов третьей международной конференции «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии» (ИСМАРТ-2012), 19-23 ноября 2012 г., Дубна, Россия. — Дубна, 2012. — С. 30-31.

33. Galunov N. Z. Features of an ionizing particle track formation and its influence on a scintillation process in organic molecular media / N. Z. Galunov, **O. A. Tarasenko** // Book of abstracts of International Conference «Advanced Scintillation Materials» (ASM-2013), 23-27 September, Kharkov, Ukraine. — Kharkov, 2013. — P. 28.

34. Галунов Н. З. Особенности размена энергии в треке ионизирующей частицы для органических твердотельных детекторов / Н. З. Галунов, **O. A. Tarasenko** // Тезисы докладов XII конференции по физике высоких энергий, ядерной физике и ускорителям, 17-21 марта 2014 г., Харьков, Украина. — Харьков, 2014. — С. 99.

35. Влияние условий получения поликристаллов стильбена на их оптические и сцинтилляционные свойства / И. В. Лазарев, Н. Л. Караваева, **O. A. Tarasenko**, В. А. Тарасов // Тезисы докладов четвертой международной конференции «Инженерия сцинтилляционных материалов и радиационные технологии» (ИСМАРТ-2014), 12-16 октября 2014 г., Минск, Беларусь. — Минск, 2014. — С. 96-97.

36. Organic polycrystals as the new luminescent systems for scintillation and ecology techniques / N. Z. Galunov, J. H. Baker, S. V. Budakovsky, **O. A. Tarasenko**, A. Yu. Rybalko, V. V. Yarychkin // J. Lumin. — 2003. — Vol. 102-103. — P. 464-468.

37. Some aspects of discrimination techniques for the measurement of neutrons and photons of gamma radiation in geological applications / J. H. Baker, N. Z. Galunov, A. M. Stepanenko, **O. A. Tarasenko** // Radiat. Meas. — 2004. — Vol. 38. — P. 817-820.

38. Galunov N. Primary quenching in a track of ionizing particle for organic scintillation crystalline materials / N. Galunov, **O. Tarasenko** // Radiat. Meas. — 2010. — Vol. 45., N 3-6. — P. 380-382.

АНОТАЦІЯ

Тарасенко О.А. Генерація зарядових станів та розмін їх енергії в органічних твердотільних сцинтиляторах. – Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора фізико-математичних наук за спеціальністю 01.04.10 – фізика напівпровідників і діелектриків. – Інститут монокристалів НАН України. – Харків, 2016.

Роботу присвячено питанням розміну енергії зарядових станів, які виникають в ділянках високої густини радіаційного збудження, та впливу цього процесу на формування імпульсу радіолюмінесценції в органічних твердотільних сцинтиляторах. Досліджуються органічні монокристали, полістирольний сцинтилятор, органічні гетерогенні матеріали (полікристали, композиційні сцинтилятори).

Запропонований підхід уперше розглядає явище поляризації як фактор, що визначає особливості розміну енергії зарядових станів у трекових ділянках іонізуючої частинки. Показано, що ступінь впливу поляризаційних взаємодій залежить від густини пар зарядових станів. Отримано модельний опис формування сцинтиляційного відгуку в наближенні швидкої початкової рекомбінації гарячих зарядових станів. На відміну від формул Біркса, цей опис містить параметри, які визначаються з експерименту.

Встановлено механізми енергетичних втрат, які виникають безпосередньо після збудження іонізуючою частинкою органічних молекулярних середовищ. Уточнено послідовність процесів розміну енергії в ділянках високої густини радіаційного збудження органічних молекулярних середовищ враховує особливості впливу поляризаційних взаємодій на процес формування імпульсу радіолюмінесценції.

Ключові слова: поляризація, зарядовий стан, рекомбінація, іонізуюче випромінювання, трек частинки, органічний сцинтилятор, радіолюмінесценція.

SUMMARY

Tarasenko O.A. Generation of charge states and their energy exchange in organic solid scintillators. – Manuscript.

Thesis for Doctor of Science Degree in Physics and Mathematics, specialty 01.04.10 – Physics of Semiconductors and Dielectrics. – Institute for Single Crystals NAS of Ukraine. – Kharkiv, 2016.

The work is devoted to the problems of energy exchange of the charge states occurring in the regions of high density of radiation excitation, and an influence of this process on the radioluminescence pulse formation in organic solid scintillators. Organic single crystals, polystyrene scintillator, organic heterogeneous materials (polycrystalline and composite scintillators) are studied.

For the first time the proposed approach considers the phenomenon of polarization as the factor which determines the features of the charge state energy exchange in ionizing particle tracks. It is shown that the degree of influence of the

polarization interactions depends on the density of charge state pairs. The model description of a scintillation response formation in the approximation of the fast initial recombination of hot charge states is obtained. In contrast to Birks' formulas, this description contains parameters determined from the experiment.

The mechanisms of the energy losses that take place directly after an excitation of organic molecular media by an ionizing particle are determined. The refined sequence of the energy exchange processes in the regions of high density of radiation excitation of organic molecular media takes into account an influence of the polarization interactions on the radioluminescence pulse formation.

Keywords: polarization, charge state, recombination, ionizing radiation, particle track, organic scintillator, radioluminescence.

АННОТАЦИЯ

Тарасенко О.А. Генерация зарядовых состояний и размен их энергии в органических твердотельных сцинтилляторах. – Рукопись.

Диссертация на соискание ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 01.04.10 – физика полупроводников и диэлектриков. – Институт монокристаллов НАН Украины. – Харьков, 2016.

Работа посвящена вопросам размена энергии зарядовых состояний, генерируемых в областях высокой плотности радиационного возбуждения, и влиянию этого процесса на формирование импульса радиолюминесценции в органических твердотельных сцинтилляторах. В отличие от существовавших ранее описаний, подход, предложенный автором, впервые рассматривает явление поляризации как фактор, определяющий размен энергии зарядовых состояний в трековых областях ионизирующей частицы, формируемых в органической молекулярной среде.

Исследуются оптические и сцинтилляционные характеристики органических монокристаллов, полистирольного сцинтиллятора, а также новых типов органических гетерогенных материалов (поликристаллических и композиционных сцинтилляторов). Широкий выбор радионуклидных источников фотонов гамма-излучения, конверсионных электронов, быстрых нейтронов и альфа-частиц позволил автору исследовать радиолюминесцентный отклик органических сцинтилляторов в диапазоне значений удельных энергетических потерь dE/dx ионизирующей частицы от 2 до $2,5 \cdot 10^3$ МэВ/см. Получены данные абсолютного светового выхода органических твердотельных сцинтилляторов, их энергетического выхода фото- и радиолюминесценции. Большая часть экспериментальных данных, в особенности для гетерогенных сцинтилляторов, впервые опубликована в работах автора.

Получено модельное описание формирования сцинтилляционного отклика в приближении быстрой начальной рекомбинации горячих зарядовых состояний в треке ионизирующей частицы. Показано, что классические формулы Биркса в приближении равномерной потери энергии частицы вдоль ее траектории в объекте являются частным случаем предложенного в диссертации

описания. В отличие от формул Биркса, данное описание содержит лишь параметры, непосредственно определяемые из эксперимента.

Установлены закономерности влияния поляризационных взаимодействий на процесс рекомбинации пар зарядовых состояний, генерируемых в органической молекулярной среде, для ионизирующих излучений (ИИ) с разными значениями dE/dx . Показано, что в условиях, когда плотность таких состояний достаточно высока (например, в треке ионизирующей частицы), процесс рекомбинации пар зарядовых состояний будет определяться возникающими между ними мощными поляризационными взаимодействиями. Получено, что в случае возбуждения альфа-частицами (с энергией E_α от 0,4 до 10 МэВ) поляризационные взаимодействия будут почти всегда повышать эффективность быстрой ($\tau \leq 10^{-13}$ с) первичной рекомбинации пар горячих зарядовых состояний, что обуславливает рост вероятности безызлучательных потерь энергии. В этом случае наблюдается сильная нелинейность зависимости числа фотонов в сцинтилляционном импульсе от энергии частицы. В треке протона с энергией E_p от 0,85 до 10 МэВ перекрытие поляризационных оболочек зарядовых состояний не всегда является доминирующим механизмом как в случае альфа-частицы. Поэтому вероятность быстрой первичной рекомбинации пар горячих зарядовых состояний понижается, а вероятность рекомбинаций зарядовых состояний, приводящих к люминесценции, увеличивается. Это происходит в результате более медленного процесса их сближения за счет миграции в объеме образца со временем $\tau \geq 10^{-12}$ с. Для ИИ с малыми dE/dx влияние поляризационных взаимодействий на процесс рекомбинации становится пренебрежимо малым, что сопровождается исчезновением сколько-нибудь ощутимого нелинейного эффекта потерь.

Установлены общие закономерности потерь энергии в треке ионизирующей частицы как функции ее значений dE/dx . Получено, что энергетический выход люминесценции Y_i падает в 10–20 раз при переходе от фотовозбуждения к возбуждению ИИ с малыми значениями dE/dx (гамма-излучение и электроны конверсии). С ростом dE/dx при возбуждении быстрыми нейтронами, генерирующими протоны отдачи, величина Y_i падает еще в 2–3 раза. Дальнейшее увеличение dE/dx при переходе к альфа-частицам приводит к более резкому уменьшению Y_i (в 10–40 раз по сравнению с малыми dE/dx). При этом изменение структуры органического сцинтиллятора приводит к изменению Y_i не более чем на 20%, а не на порядки величины, как при смене dE/dx частицы. Экспериментально доказано, что такие закономерности являются универсальными для широкого класса органических сцинтилляторов.

Установлено, что для ИИ с малыми значениями dE/dx основными механизмами энергетических потерь являются: 1) вылет электрона из следа, уменьшающий количество рекомбинирующих пар зарядовых состояний, 2) негеминальная рекомбинация зарядовых состояний в отдельном следе, которая уменьшает вероятность образования S-состояний. Для ИИ с большими значениями dE/dx основными механизмами энергетических потерь являются процессы: 1) интенсивной первичной рекомбинации горячих зарядовых

состояний, не приводящей к люминесценции, и 2) вторичного тушения возбужденных состояний. Влияние первого из вышеперечисленных бимолекулярных процессов является определяющим.

Уточненная последовательность процессов размена энергии в областях высокой плотности радиационного возбуждения органических молекулярных сред учитывает особенности влияния поляризационных взаимодействий на процесс формирования импульса радиолюминесценции.

Ключевые слова: поляризация, зарядовое состояние, рекомбинация, ионизирующее излучение, трек частицы, органический сцинтиллятор, радиолюминесценция.