

КРІОГЕННІ СЦИНТИЛЯТОРИ ДЛЯ ПОШУКУ ТА ДОСЛІДЖЕННЯ РІДКІСНИХ ПОДІЙ У ФІЗИЦІ ЕЛЕМЕНТАРНИХ ЧАСТИНОК Й АСТРОФІЗИЦІ

В. Б. Михайлик¹, Г. Краус¹, М. С. Михайлик²

¹ Оксфордський університет, фізичний факультет, Оксфорд, Великобританія

² Львівський національний університет імені Івана Франка, фізичний факультет,
вул. Кирила і Мефодія, 8, Львів, 79005, Україна

(Отримано 23 червня 2005 р.; в остаточному вигляді — 19 грудня 2005 р.)

Неорганічні сцинтилятори є важливою складовою нового типу детекторів йонізуючого випромінювання та частинок — криогенних фонон-сцинтиляційних детекторів (КФСД). Ці детектори характеризуються першокласним енергетичним розділенням та здатністю ідентифікації типу взаємодії й на сьогодні розглядаються як основний інструмент для пошуку та вивчення надзвичайно рідкісних подій у фізиці елементарних частинок й астрофізиці. У цій статті подано результати останніх досліджень криогенних сцинтиляторів, які можна використати для експериментального пошуку “темної матерії”. Коротко описано концепцію експерименту з безпосереднього детектування “темної матерії” та операційні принципи КФСД й розглянуто основні вимоги до матеріалу детектора, які визначаються ними. В основній частині обговорено результати всебічних досліджень люмінесцентних і сцинтиляційних властивостей вольфраматів (CaWO_4 і ZnWO_4), молібдатів (CaMoO_4 , MgMoO_4 , і CdMoO_4) та Al_2O_3 -Ti, проведених у широкому температурному інтервалі (9–300 K).

Ключові слова: пошук “темної матерії”, криогенний фонон-сцинтиляційний детектор, вольфрамат, молібдати, світловихід, час загасання, люмінесцентні властивості.

PACS number(s): 29.40.Mc

I. ВСТУП

Пошук дуже рідкісних подій, таких, як наприклад, взаємодія з небаріонною “темною матерією”, подвійний (без участі нейтрино) бета-розпад ядер або ж радіоактивний розпад ізотопів з дуже тривалим часом життя є надзвичайно цікавою й актуальною проблемою сучасної фізики елементарних часток. Очікується, що ці події повинні дати доказ існування нових фундаментальних частинок, а також розширити наше розуміння того, як побудований Всесвіт. Подальший прогрес досліджень у цих напрямках потребує новітніх технологій детектування, здатних розрізнити слабкий та надзвичайно рідкісний сигнал взаємодії на фоні значної радіоактивності, зумовленої сторонніми чинниками, як-то геологічний, космогенний чи антропогенний. Саме тому останніми роками розпочалися активні дослідження, спрямовані на впровадження нового типу детекторів в експерименти, які проводять у галузі “низькофонової” фізики елементарних частинок.

Стрімкий прогрес у сфері низькотемпературних технологій детектування йонізуючого випромінювання в останнє десятиліття привів до появи надзвичайно чутливих криогенних детекторів з високою роздільною здатністю, спроможних реєструвати енергію, що виділяється в детекторі внаслідок взаємодії з елементарною частинкою або ж високоенергетичним фотоном. Завдяки своєму унікальному енергетичному розділенню ці криогенні детектори постійно розширюють сферу застосування у фундаментальних [1–3] та при-

кладних [4, 5] дослідженнях, і зокрема для пошуку рідкісних подій [6]. Останнє становить особливий інтерес з огляду на доконечність детектування сигналу на значному фоні. Подальший прогрес у розвитку криогенних детекторів залежить від можливості втілення технології, яка б забезпечила надійне розділення типу взаємодії. Інакше кажучи, наступна генерація детекторів для пошуку дуже рідкісних подій повинна дати змогу розрізнити взаємодію з електронами та ядрами поглинача.

Однією з найперспективніших для розв’язання цієї задачі є методика, яка полягає в одночасному вимірюванні фононного та фотонного відгуку, що виникають у сцинтиляційному кристалі внаслідок взаємодії з йонізуючим випромінюванням чи частинкою.

В основу цієї методики покладено той факт, що α -, β - і γ -частинки ефективно взаємодіють з електронами атома, тоді як нейтрони та нейтральні частинки — виключно з ядрами. Така різниця приводить до того, що енергія, яка виділяється в результаті взаємодії, порізно розподіляється між електронами та кристалічною ґраткою. Значна доля поглинутої електронами енергії може перевипромінюватися у вигляді сцинтиляційних квантів, тоді як взаємодія з ядрами приводить, в основному, до збудження коливань кристалічної ґратки і перетворення енергії у тепло. Завдяки цій обставині одночасне вимірювання кількості тепла і світла, яке генерується в кристалі внаслідок елементарної взаємодії, дає змогу однозначно ідентифікувати тип цієї взаємодії. Оскільки переважна частина природного радіаційного фону припадає на йонізуюче

випромінювання α -, β - і γ -частинкок, то вказана методика дає змогу ефективно розрізнити сигнал, пов'язаний з ядерними взаємодіями. Додавши до цього такі переваги криогенних детекторів, як велике енергетичне розділення та низький поріг детектування, можна зрозуміти перспективи поєднання цього та сцинтиляційного методів детектування в єдиному криогенному фонон-сцинтиляційному детекторі (КФСД). Саме тому нову генерацію таких "гібридних" криогенних детекторів віднедавна успішно застосовують в експериментальному пошуку "темної матерії" [7, 8] та дослідженнях радіоактивного розпаду ізотопів з дуже тривалим часом життя [9, 10]. Крім цього, активно досліджуються можливості використання КФСД-методики для вивчення подвійного бета-розпаду ядер [11]. Заглядаючи в недалеку перспективу, потрібно також згадати про плани організації великомасштабного загальноєвропейського проекту, спрямованого на пошук "темної матерії". З огляду на суттєві переваги КФСД, відповідна технологія має значні шанси для використання в цих дослідженнях.

Сцинтиляційний кристал є ключовим елементом КФСД, і тому цілком очевидно, що пошук та вивчення перспективних сцинтиляційних матеріалів — важлива передумова для успіху майбутніх експериментів у цій ділянці. Сцинтиляційні властивості матеріалів завжди становили інтерес для фізиків, однак їхнє застосування при низьких температурах є цілковито новим практичним аспектом, який дотепер був поза увагою. У цьому плані можна стверджувати, що вивчення сцинтиляційних властивостей матеріалів при низьких температурах є новою галуззю, яка довго не привертала уваги.

Кілька років тому в лабораторії криогенних детекторів Оксфордського університету була розпочата програма цілеспрямованих досліджень сцинтиляційних властивостей кристалів у ділянці низьких температур з метою створення криогенних сцинтиляторів для потреб фізики елементарних частинок, астрофізики й медицини. У цій статті подано основні результати цих досліджень, спрямованих на пошук, вивчення властивостей та оптимізацію неорганічних сцинтиляторів для застосування при низьких температурах. Оскільки основною метою була розробка сцинтиляторів для КФСД, що повинні використовуватися в експериментальному пошуку "темної матерії", то спершу ми коротко обговоримо принципові засади експерименту з безпосереднього детектування "темної матерії", концепцію й технологічні особливості КФСД та основні вимоги до матеріалу детектора, які випливають з них. Далі розглянемо результати досліджень люмінесцентних та сцинтиляційних властивостей вольфраматів (CaWO_4 , ZnWO_4) молібдатів (CaMoO_4 , MgMoO_4 , CdMoO_4) та $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Ti}$ в температурному діапазоні 9-300 К. Слід зазначити, що, як показує практика використання КФСД, результати таких досліджень, а також параметри, визначені при 9 К, дають змогу отримати цілком достовірне уявлення про властивості сцинтиляційного детектора в ділянці десятка мілікелвінів. Здебільшого в цьому діапазоні

температур залежність таких основних сцинтиляційних параметрів кристалів, як світловихід та час загасання, підпорядковується тенденціям, що склалися при значно вищій температурі (кілька десятків градусів). Цей факт був підтверджений дослідженнями залежності світловиходу та часу загасання від температури, проведеними включно до температур $\sim 10^{-2}$ К [11–13]. Тому індикативні значення відповідних параметрів можна одержати шляхом екстраполяції експериментальних результатів, одержаних при температурах ~ 10 К.

II. КОНЦЕПЦІЯ ДЕТЕКТУВАННЯ "ТЕМНОЇ МАТЕРІЇ"

На сьогодні є цілий ряд фактів, які свідчать на користь того, що загальна маса матерії у Всесвіті значно перевищує ту, яку ми маємо змогу звичайно спостерігати (див. огляд [14] та поклики в ньому). Найбільш прямою вказівкою на це є результати вимірювань радіального розподілу швидкостей обертання індивідуальних галактик та швидкостей галактик у скупченнях галактик. Ці результати показують, що для того, щоб галактики залишалися гравітаційно зв'язаними у скупченнях галактик, у рівняннях руху потрібно врахувати ще значну кількість невидимої (темної) матерії. Сучасні космологічні та суперсиметричні моделі передбачають, що найімовірнішими кандидатами на роль елементарних частинок "темної матерії" є так звані слабо взаємодіючі масивні частинки (СВМЧ, або ж WIMP у латинській транслітерації). Ці частинки дуже рідко взаємодіють із атомами звичайної матерії. Механізмом такої взаємодії є пружне розсіяння частинок, і отже безпосереднє детектування СВМЧ базується на вимірюванні енергії віддачі, яка передається ядром.

За умови, якщо розсіяння не залежить від спіну ядра, поперечний перетин взаємодії є пропорційним до квадрата маси атомного ядра (A^2). Теоретичні оцінки для випадку спин-незалежної взаємодії СВМЧ з матерією показують, що поперечний перетин взаємодії становить величину не більше 10^{-7} пікобарн [15]. Це означає, що детектор масою один кілограм зможе зареєструвати не більше кількох подій протягом місяця. Іншим можливим типом взаємодії є спин-залежне розсіяння, яке може відбуватися при взаємодії СВМЧ з ядрами, що мають ненульовий спин ($J \neq 0$). Саме тому особливий інтерес для експериментаторів становить концепція детектора, у якому можна застосовувати різні матеріали. Це дало б змогу використати залежність поперечного перерізу взаємодії від A чи J як доказ того, що зареєстрований сигнал спричинений взаємодією із СВМЧ. Слід зазначити, що саме здатність КФСД використовувати різні матеріали як поглинач є надзвичайно великою перевагою цієї методики.

Ще однією особливістю експерименту з реєстрації СВМЧ є необхідність вимірювати досить малу енергію віддачі ядер, яка становить лише кілька десят-

ків кеВ. Власне ця величина визначає поріг детектування. Оскільки на цей енергетичний діапазон припадає значна частка природного радіоактивного фону, то очевидними є ті труднощі, які доводиться долати. Отже, експериментальне детектування СВМЧ є неординарною науково-технологічною задачею, і її розв'язання можливе лише при використанні найперевішніх технологій, передусім у сфері детектування високоенергетичного випромінювання та частинок.

III. ОСНОВНІ ПРИНЦИПИ КФСД-ТЕХНОЛОГІЇ ДЛЯ ПОШУКУ СВМЧ

На сьогодні у світі відомо понад десяток експериментів, метою яких є пошук СВМЧ, з використанням різних методик. Для зменшення впливу радіоактивного фону доконечною умовою такого експерименту є розміщення його глибоко під землею (завдяки чому можна значно зменшити космогенну складову фону) і використання виключно матеріалів із мінімальним рівнем природної радіоактивності. Для того, щоб одержати відчутний прогрес у пошуку “темної матерії”, такі пасивні методи зменшення радіоактивного фону є явно недостатніми, і необхідно мати змогу здійснювати активну селекцію подій, які реєструються детектором. У цьому плані КФСД з їх надзвичайною чутливістю та здатністю розпізнавати тип взаємодії не мають собі рівних.

Як зазначено вище, концептуально метод полягає у вимірюванні співвідношення кількості теплоти (фононів) та світла (фотонів), що утворюються в детекторі в результаті взаємодії з високоенергетичним випромінюванням чи частинками [16]. Розділення подій базується на тому факті, що це співвідношення залежить від типу взаємодії. При пружній взаємодії з ядрами речовини, що є характерною для нейтральних частинок, скажімо нейтронів, виділяється значно менше світла, аніж при взаємодії α -, β - чи γ -випромінювання з електронами.

Конструктивно КФСД можна представити як два криогенні детектори, охолоджені до температури близько десятка мілікелвінів. Першим служить масивний монокристалічний сцинтилятор (мішень), тоді як другим є криогенний фононний детектор, оптимізований для реєстрації сцинтиляційних фотонів, які випромінюються першим (див. рис. 1,а). Для зчитування сигналу з обох детекторів використовується плівковий термометр, що працює на межі фазового переходу надпровідник—нормальний провідник [4, 17]. Термометр являє собою тонку металеву плівку, що застabilізована при температурі фазового переходу. Енергія, що виділяється в детекторі, приводить до підвищення його температури, що спричиняє значну зміну опору термометра, як показано на рис. 1,б. Своєю чергою, таку зміну опору плівки можна виміряти за допомогою надпровідникового квантово-інтерференційного приладу (НКІП), відомого як SQUID у латинській транслітерації.

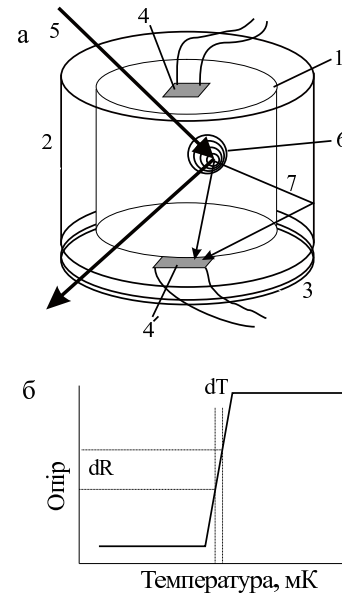


Рис. 1. Схема криогенного детектора, який здатний одночасно реєструвати фотони й фонони, що виникають у сцинтиляторі внаслідок взаємодії з високоенергетичним випромінюванням (частинками): 1 — сцинтиляційний кристал, 2 — рефлектор, 3 — детектор фотонів, 4, 4' — надпровідниковий термометр, 5 — частинка або квант збудження, 6 — фонони, 7 — світло сцинтиляцій (а). Принципи зчитування сигналу з використанням надпровідникового термометра (б).

Енергетичне розділення криогенного фононного детектора, який працює на такому принципі, пропорційне абсолютній температурі фазового переходу, при якій функціонує термометр; пониження температури збільшує чутливість детектора [12]. На сьогодні найнижчу температуру одержано для термометра на основі вольфраму, який має фазовий перехід в околі 15 мК. Це дало змогу досягнути енергетичного розділення 1 кеВ для фононного та та 2 кеВ для фотонного детектора в експерименті з пошуку “темної матерії”, що проводиться за участю нашої групи й використовує CaWO_4 сцинтилятор. Це, своєю чергою, забезпечило поріг детектування до 12 кеВ [7]. Для порівняння: у дуже подібному експерименті, який проводиться франко-іспанською групою, при температурі 60 мК енергетичне розділення становить 38 кеВ, а поріг детектування — 74 кеВ [8].

IV. ВИМОГИ ДО МАТЕРІЯЛУ ДЕТЕКТОРА

Як зазначалося вище, важливою перевагою КФСД-методики є можливість змінити матеріал детектора і, отже, вивчити залежність процесів взаємодії СВМЧ з речовиною від маси або ж спіну ядер. Це зумовлює необхідність проведення спеціалізованих досліджень, метою яких є розробка КФСД, здатних задовольнити дуже суворі вимоги: таких, що мають дуже малий рівень власної радіоактивності та спроможні вимірюва-

ти малу кількість енергії, яка виділяється в результаті взаємодії з високоенергетичним випромінюванням (частинками). Ставлячи таке завдання, доцільно визначити набір критеріїв, згідно з якими можна було б здійснювати селекцію матеріалів. Що стосується КФСД, то очевидно, що високий світловихід сцинтиляцій при низьких температурах є дуже важливим критерієм відбору. Водночас інші критерії, такі, як, передусім, власна радіоактивність, стійкість до впливу зовнішніх факторів чи термодинамічні властивості кристалічної ґратки, можуть за певних умов стати вирішальними. Загалом основні критерії відбору матеріялу сцинтилятора для потреб криогенного експерименту можуть бути такими:

1) *високий світловихід у ділянці криогенних температур*: чим вищим є світловихід сцинтилятора, тим нижчий енергетичний поріг дискримінації подій, пов'язаних зі взаємодією з електронами та ядрами. Низький енергетичний поріг, своєю чергою, означає меншу масу детектора або ж меншу тривалість усього експерименту, що потрібно для досягнення певного рівня поперечного перерізу взаємодії СВМЧ з ядрами речовини детектора;

2) *власна радіоактивність*: зважаючи на ті труднощі, які створює природний радіаційний фон для детектування рідкісних подій, безумовною вимогою до матеріялу детектора є якомога нижчий рівень власної радіоактивності. Це накладає ряд обов'язкових обмежень на хемічний склад сцинтилятора. Він не повинен містити жодних рідкісноземельних чи лужних металів, свинцю, вісмуту та талію, оскільки всі вони завжди містять сліди природних радіоактивних ізотопів;

3) *стійкість і стабільність*: кристал повинен бути негігроскопічним, а його поверхня — хемічно стабільною, щоб зменшити можливість поверхневого забруднення. Оскільки тонкоплівковий термометр наноситься методом високотемпературного вакуумного наплення, то матеріял мусить бути стійким до таких зовнішніх впливів.

4) *термодинамічні властивості ґратки*: оскільки КФСД має бути охолоджений до температури в кілька десятків міллікелвін, то питома теплоємність матеріялу повинна бути малою. Тому потрібно уникнути парамагнетних йонів у складі матеріялу детектора.

5) *ціна*: беручи до уваги перспективи розгортання великомасштабного експерименту, спрямованого на пошук "темної матерії", із загальною масою детектора 100 і більше кілограмів, ціна сцинтиляторів повинна бути прийнятною і вкладатися в раціональний кошторис відповідного проекту.

Наступний крок — аналіз властивостей відомих сцинтиляторів з огляду на ці вимоги. Відразу зрозуміло, що лужно-галоїдні сцинтилятори (NaI-Tl, CsI-Tl, CsI-Na, CaF₂-Eu, BaF₂, CsI) не задовольняють критерії (2) і (3) або ж обидва одночасно. Крім того, світловихід активованих сцинтиляторів часто зменшується з пониженням температури, що є ще одним недоліком. Тому ці сцинтилятори практично не мають перспектив таких, як КФСД, для пошуку рідкісних

подій. Традиційні рідкісноземельні сцинтилятори, активовані Ce (YAP, LSO, GSO, YAG, LaCl₃, т. п.), також непридатні на цю роль, оскільки вони за своєю природою завжди мають неприйнятний рівень власної радіоактивності.

Основний інтерес у цьому плані становить група нелегованих окисних сцинтиляторів. Ці матеріяли демонструють високий світловихід при низьких температурах, вони є дуже стабільними й відносно дешевими. Однак потрібно мати на увазі проблему власної радіоактивності. Так, зокрема, такі традиційні сцинтилятори, як BGO, CWO та PWO, не можуть задовольнити цього критерію через високий рівень залишкової радіоактивності, оскільки природні Bi, Cd та Pb завжди містять у своєму складі радіоактивні ізотопи — похідні радіоактивного розпаду урану та торію.

Проведений аналіз показує, що серед усієї множини традиційних сцинтиляторів можна знайти лише кілька таких, що мають шанси на застосування як КФСД. На сьогодні найперспективнішим матеріялом, що використовується як КФСД в експериментальному пошуку "темної матерії", є вольфрамат кальцію. Цей сцинтилятор має високий світловихід при криогенних температурах [18], є стабільним, не містить природних радіоактивних ізотопів і тому може бути виготовлений з досить малим рівнем власного радіоактивного фону. Водночас потреба в матеріялах спонукає пошукову активність, і тому увагу привертають інші представники сімейства вольфраматів та молібдатів. Ще однією цікавою в цьому плані сполукою є монокристалічний окис алюмінію, активований титаном — матеріял, який лише нещодавно став використовуватись як сцинтиляційний детектор. На порядку дня є потреба у всебічному вивченні люмінесцентних та сцинтиляційних властивостей цих матеріялів, що мало б дати інформацію стосовно перспектив їхнього використання як КФСД. У наступному розділі ми проаналізуємо результати таких досліджень.

В. ДОСЛІДЖЕННЯ ЛЮМІНЕСЦЕНТНИХ ТА СЦИНТИЛЯЦІЙНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ ПЕРСПЕКТИВНИХ МАТЕРІЯЛІВ ДЛЯ КФСД

А. Методика досліджень

У цих експериментах використовували кристали, вирощені методом Чохральського із сировини, чистотою не гірше, аніж 99.99% (вольфрамат) та 99.95% (молібдат). Також був досліджений комерційний взірець сцинтиляційного кристала Al₂O₃-Ti. Зразки для вимірювань мали однаковий розмір (5 × 5 × 1 мм³) і були відполіровані до оптичної якості. Вивчення люмінесцентних та сцинтиляційних властивостей кристалів під дією різного збудження проведено з використанням кількох експериментальних методів та на різних установках, серед яких є такі:

1) лабораторна установка для люмінесцентних досліджень при збудженні в УФ-ділянці спектра, осна-

щена монохроматором з дейтерієвою лампою та YAG-лазером з генератором вищих гармонік [19];

2) станція SUPERLUMI в HASYLAB (Гамбург, Німеччина), призначена для оптико-люмінесцентних вимірювань із використанням синхротронного збудження в енергетичному діапазоні 4–40 еВ [20];

3) мобільна установка для люмінесцентних досліджень (MoLES) [21] при збудженні монохроматичним рентгенівським випромінюванням від синхротронного джерела в Дарсбері (Великобританія). Вимірювання проводили на двох лініях, що працюють у діапазоні 150–400 еВ та 2–4 кеВ;

4) установка для вивчення спектрів рентгенолюмінесценції при стаціонарному рентгенівському збудженні (W-антикатод, $V = 35$ кеВ) [22];

5) оригінальна лабораторна установка для досліджень сцинтиляційних характеристик кристалів (світловихід та час загасання) у широкому температурному діапазоні з використанням мультифотонної методики узгодженої реєстрації сцинтиляцій [23].

З використанням цих методик виміряно температурні зміни у спектрах люмінесценції, відбивання, збудження люмінесценції, а також світловиходу та часу загасання сцинтиляцій кристалів. У всі спектральні залежності, що наведені в статті, внесені відповідні поправки на дисперсію та спектральну чутливість відповідних установок.

В. Вольфрамат (CaWO₄ і ZnWO₄)

Оскільки вольфрамат кальцію відібраний як перспективний матеріал КФСД експерименту з пошуку “темної матерії”, то цілеспрямоване вивчення цього матеріалу з метою оптимізації його сцинтиляційних властивостей становить актуальну задачу. Ми провели всебічні дослідження люмінесцентних властивостей кристалів CaWO₄ із застосуванням двофотонного, ультрафіолетового, вакуумного ультрафіолетового, рентгенівського та радіонуклідного збуджень [18, 19, 22–24]. На рис. 2 зображені спектри люмінесценції кристалів CaWO₄, зареєстровані при 9 К при різних умовах збудження. При високоенергетичному рентгенівському збудженні ($E_{\text{ex}} > 10^3$ еВ) спектр випромінювання є безструктурною асиметричною смугою з максимумом в околі 2.9 еВ і помітним “хвостом” у ділянці менших енергій. Загальноприйнятною є думка, що ця смуга зумовлена електронними переходами з переносом заряду всередині аніонного комплексу (WO₄)²⁻, а його випромінювання інтерпретується як люмінесценція автолокалізованих екситонів [25, 26].

Згідно з сучасними уявленнями, що базуються на результатах чисельних експериментальних та теоретичних досліджень, у кристалах вольфраматів зі структурою шееліту всі оптичні переходи всередині аніонного комплексу (WO₄)²⁻, що має симетрію T_d, відбуваються між основним станом ¹A₁ та множиною синглетних (¹T₁, ¹T₂) та триплетних (³T₁, ³T₂) рівнів. Уважається, що електричні дипольно дозволені

переходи (¹A₁ → ¹T₂, ¹T₁) визначають край фундаментального поглинання CaWO₄, тоді як триплетні рівні ³T₂ і ³T₁ відповідають за випромінювальні переходи [25–27].

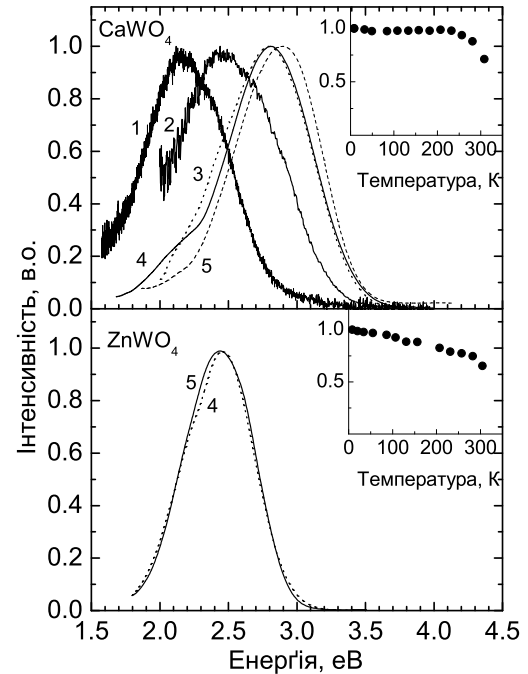


Рис. 2. Спектри люмінесценції кристалів CaWO₄ і ZnWO₄, виміряні при збудженні фотонами різних енергій: 1 – 4.4 еВ, 2 – 4.5 еВ, 3 – 7.1 еВ, 4 – 31 еВ і 5 – 3.2 кеВ ($T = 9$ К). На вставках показані температурні залежності інтегральних інтенсивностей люмінесценції кристалів при збудженні рентгенівськими фотонами 3.2 кеВ.

Із підвищенням температури максимум випромінювання зсувається в бік вищих енергій, а спектр розширюється. Такі температурні зміни, в основному, зумовлені взаємодією випромінювального комплексу (WO₄)²⁻ з коливаннями кристалічної ґратки [19]. Установлено також, що спектри люмінесценції CaWO₄ виявляють помітні зміни зі зміною енергії збудження. Зі зменшенням останньої спектр люмінесценції зазнає зсуву в бік менших енергій і в околі низькоенергетичного краю основної голубої смуги з’являється зелене світіння (див. рис. 2). При збудженні нижче від краю фундаментального поглинання CaWO₄, який розміщується в околі 5.2 еВ [19], домінує низькоенергетична зелена смуга. Вважається, що зелене світіння вольфрамату кальцію викликане випромінювальними переходами всередині комплексу WO₃, у якому відсутній один з атомів кисню [28–30]. Ураховуючи той загальновідомий факт, що глибина проникнення високоенергетичного випромінювання зростає з енергією фотонів, ми запропонували гіпотезу, що зазначені дефекти, в основному, локалізовані в тонкому поверхневому шарі кристала [24]. Таке припущення добре узгоджується з результатами інших

досліджень CaWO_4 , згідно з якими смуга власної (голубої) люмінесценції визначає основні сцинтиляційні властивості кристала, а також особливості температурної залежності інтенсивності свічення. Як показано на вставці до рис. 2, незалежно від енергії збудження інтенсивність люмінесценції мало змінюється в ділянці температур від 9 до 250 К, тоді як різке зменшення світловиходу при вищій температурі пов'язане з характерним термічним гасінням люмінесценції.

Наступним матеріалом, що привернув нашу увагу, став вольфрамат цинку. З огляду на хемічний склад, цей кристал повинен мати відносно низьку власну радіоактивність, а враховуючи те, що ZnWO_4 (як і CaWO_4) належить до сімейства нелегованих сцинтиляторів, можна сподіватись, що він матиме високий світловихід при криогенних температурах. ZnWO_4 має структуру вольфраміту, і його люмінесцентні властивості є значно відмінними від таких у CaWO_4 . Максимум спектра люмінесценції кристала при $T = 9$ К розміщений в околі 2.45 еВ (рис.2). Ця люмінесценція пов'язана з випромінювальними переходами між вольфрамом та киснем усереднені молекулярного комплексу $(\text{WO}_6)^{6-}$ [31]. Проведені вимірювання показали, що спектр випромінювання ZnWO_4 є практично незмінним при різних енергіях збудження. Те ж саме стосується й температурної залежності інтенсивності випромінювання: ці залежності однакові при будь-якому збудженні (див. вставку до рис. 2). ZnWO_4 має найвищий світловихід при $T = 9$ К, який поступово зменшується з підвищенням температури. Згідно з проведеними оцінками, при $T = 9$ К і збудженні рентгенівськими квантами 3.2 кеВ світловихід ZnWO_4 є на 10% більшим, аніж CaWO_4 . При кімнатній температурі світловихід обох сцинтиляторів є практично однаковим. Аналогічні вимірювання світловиходу люмінесценції були проведені при збудженні фотонами з енергією 320 еВ. Виявлено, що при $T = 9$ К відношення світловиходу цих кристалів дорівнює 1.15, що в межах точності експерименту ($\pm 10\%$) є дуже близьким до попереднього результату. Отже, ці результати свідчать, що при низьких температурах світловихід ZnWO_4 є вищим від такого в CaWO_4 .

На рис. 3 зображені спектри відбивання та збудження люмінесценції у кристалах CaWO_4 та ZnWO_4 при $T = 9$ та 295 К. У низькоенергетичній частині спектрів відбивання можна побачити різкий провал як прояв загальноновизнаного ефекту відбивання від задньої поверхні кристала та тримача. Далі йдуть характерні смуги відбивання, які можна ідентифікувати з великим ступенем вірогідності, базуючись на результатах теоретичних розрахунків зонної структури цих кристалів [32, 33]. Згідно з даними розрахунків, вершина валентної зони вольфраматів формується 2-станами кисню, а дно зони провідності утворюють незаповнені 5*d*-стани вольфраму. Вплив кристалічного поля в обох кристалах приводить до розщеплення 5*d*-рівнів вольфраму на дві групи станів — *e* та *t*₂, однак порядок їх розміщення в енергетичній схемі є різним. У кристалах зі структурою шеєліту (CaWO_4)

нижня частина зони провідності належить до чітко відокремлених *e*-станів, тоді як *t*₂-стани розміщені на ~ 1.5 еВ вище. Це дає змогу пов'язати смугу А в околі 5.9 еВ і плече В в ділянці ~ 7 еВ у спектрах відбивання CaWO_4 з електронними переходами з вершини *O 2p* валентної зони на незаповнені *W 5d*-рівні. 4*d*-рівні кальцію починають давати внесок у загальну густину станів на 2–3 еВ вище, і переходи на ці рівні з валентної зони домінують у цій частині енергетичної схеми кристала. Тому характерний пік С поблизу 8.7 еВ пов'язується з такими переходами.

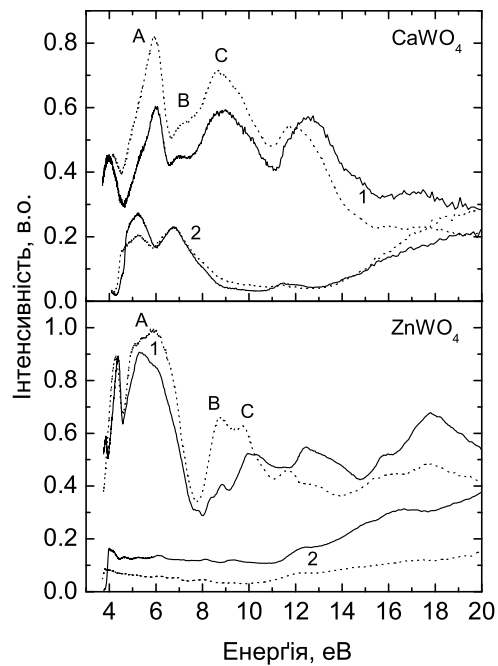


Рис. 3. Спектри відбивання (1) і збудження люмінесценції (2) кристалів CaWO_4 (вгорі) і ZnWO_4 (внизу). Суцільна лінія — $T = 9$ К, пунктир — $T = 295$ К.

Унаслідок певної різниці в будові зони провідності спектр відбивання кристалів зі структурою вольфраміту (ZnWO_4) має помітні відмінності. Широка смуга А в околі 5.8 еВ, яка перекриває ділянку енергій більше від 2 еВ, пов'язується з переходами з валентної зони на *t*₂-рівні, які належать до 5*d*-зони вольфраму. Більш високоенергетичні смуги В і С з максимумами поблизу 8.7 та 9.7 еВ зображують *e*-стани, розщеплені на два рівні.

Основні особливості спектрів збудження люмінесценції CaWO_4 та ZnWO_4 узгоджуються з іншими оптичними властивостями цих кристалів. Як зазначено вище, у спектрах люмінесценції кристалів CaWO_4 зі структурою шеєліту можна розрізнити голубу та зелену смуги свічення, які перекриваються й зумовлені, відповідно, власною та дефектною люмінесценцією. Люмінесценція дефектів, в основному, збуджується у вузькій ділянці енергій (4.3–4.7 еВ) нижче від краю власного поглинання кристалів, тоді як при збу-

дженні в ділянці вищих енергій домінує власна люмінесценція [19]. Оскільки обидві смуги свічення сильно перекриваються, то спектр збудження CaWO_4 , виміряний у максимумі випромінювання (2.9 eV), є результатом перекривання двох різних спектрів збудження, і ця особливість яскраво проявляється в ділянці краю власного поглинання кристала. При низьких температурах у цій ділянці можна розрізнити додаткову смугу у спектрі збудження. У спектрі збудження ZnWO_4 немає такої особливості: він демонструє чітко виражений поріг збудження в околі краю власного поглинання (~ 3.8 eV). Цей факт узгоджується з ідеєю, що люмінесценція ZnWO_4 зумовлена власним випромінюванням центрів лише одного типу $(\text{WO}_6)^{6-}$ [24]. При збудженні CaWO_4 в ділянці енергій 5–8 eV, що спричиняє переходи з переносом заряду всередині аніонного молекулярного комплексу, відбувається ефективно утворення й рекомбінація корельованих електронно-діркових пар. Наростання світловиходу при збудженні в ділянці понад 13 eV у CaWO_4 (11 eV у ZnWO_4) пов'язане з початком процесів множення елементарних електронних збуджень [34].

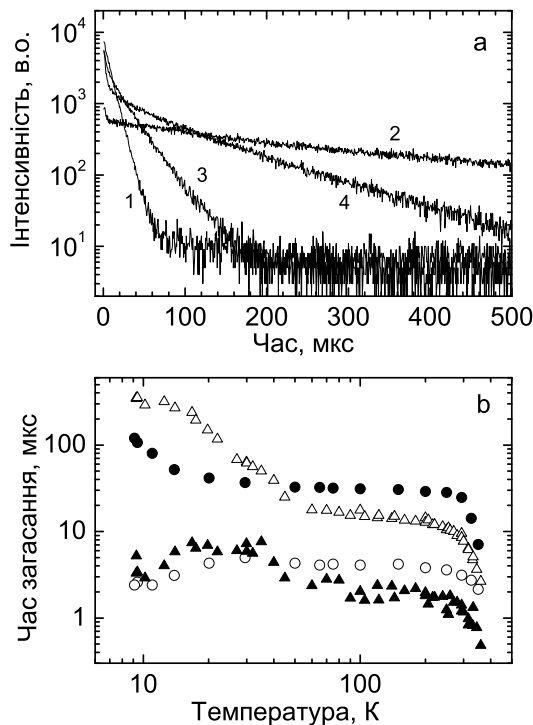


Рис. 4. Кінетика загасання сцинтиляцій у CaWO_4 (1,2) і ZnWO_4 (3,4), виміряна при температурі 295 К (1,3) і 9 К (2,4) (а). Температурна залежність двох часів загасання в CaWO_4 (трикутники) і ZnWO_4 (кілця) (б).

Кінетику загасання люмінесценції CaWO_4 та її температурні зміни досліджено з використанням оптичного збудження та альфа-частинок від радіоактивного джерела (^{241}Am). При оптичному збудженні та кімнатній температурі кінетику загасання можна опи-

сати моноекспоненціальним законом із часом загасання $\tau=8.1\pm 0.5$ мкс [19]. На рис. 4,а показано криві загасання сцинтиляцій у CaWO_4 , виміряні при 295 та 9 К під час збудження альфа-частинками. Найліпше ці криві описуються двома експонентами, і на рис. 4,б зображена температурна залежність часів загасання цих двох складових. При кімнатній температурі часи загасання CaWO_4 становлять $\tau_1=1.3\pm 0.1$ мкс та $\tau_2=8.9\pm 0.2$ мкс. Із пониженням температури (рис. 4,б) від 350 К і аж до 50 К криві загасання люмінесценції вольфрамату кальцію еволюціонують досить плавно. При $T < 50$ К характер кінетики змінюється дуже різко: з'являється довга компонента, яка стає дуже вираженою при $T < 20$ К. Час загасання цієї компоненти при $T = 9$ К становить 405 ± 20 мкс. Така особливість кінетики загасання люмінесценції CaWO_4 зумовлена наявністю метастабільного рівня на відстані в кілька меВ під основним рівнем, з якого відбуваються випромінювальні переходи [35]. Імовірність електронних переходів із метастабільного на верхній рівень при низькій температурі зменшується, внаслідок чого знижується ймовірність випромінювальних переходів, що суттєво сповільнює весь процес випромінювального розпаду. Слід згадати, що, згідно з даними [13], час загасання сцинтиляцій у CaWO_4 при температурі кілька десятків мК становить близько 400 ± 100 мкс, що досить добре узгоджується з нашими результатами.

Часи загасання ZnWO_4 , виміряні при кімнатній температурі, становлять $\tau_1=3.1\pm 0.1$ мкс та $\tau_2=24.7\pm 0.2$ мкс. У температурній поведінці кінетики свічення цього кристала є помітна відмінність від CaWO_4 . Час загасання люмінесценції при охолодженні зростає, однак не виявляє дуже різких змін, прайнакні до $T = 9$ К. Тому константа загасання довгої компоненти ZnWO_4 при цій температурі (110 ± 15 мкс) є суттєво меншою, аніж така в CaWO_4 . Щобільше, навіть при температурі $T < 1$ К час загасання становить ~ 200 мкс [36]. Цей результат демонструє, що часові характеристики люмінесценції вольфрамату цинку при низькій температурі є ліпшими порівняно з відповідними параметрами CaWO_4 .

Підсумовуючи результати експериментальних досліджень двох сцинтиляторів, можна константувати, що ZnWO_4 має ліпший світловихід і часові характеристики при криогенних температурах порівняно з CaWO_4 . Це робить ZnWO_4 чудовим доповненням до CaWO_4 в контексті експерименту з пошуку “темної матерії”, що використовує КФСД. Ці два сцинтилятори можна застосувати для створення детектора, здатного ідентифікувати СВМЧ, використовуючи залежність поперечного перетину взаємодії частинок від атомного складу детектора [37].

С. Молібдати (MgMoO_4 , CaMoO_4 і CdMoO_4)

Молібдати становлять другу групу матеріалів, що є цікавими для КФСД-технології. Завдяки достатньо високому світловиходу люмінесценції, відповідно-

му ізотопному складу, добрим механічним властивостям та стійкості очікується, що деякі з представників цього сімейства можуть бути придатними для використання в експериментальному пошуку рідкісних подій. Особливий інтерес становить CaMoO_4 , що є гомологом CaWO_4 і тому розглядається як важливе доповнення для запланованого експерименту для ідентифікації СВМЧ. Ще однією причиною зацікавленості молібдатами є їхня придатність для експериментального пошуку подвійного бета-розпаду ядер, оскільки ^{100}Mo вважається одним з найбільш перспективних ізотопів для виявлення цього ефекту.

CaMoO_4 та CdMoO_4 мають структуру шееліту, і отже в цьому плані вони є аналогами CaWO_4 . Монокристали MgMoO_4 мають моноклінну симетрію. Однак у цій структурі кожний атом Мо має чотири найближчі сусіди-атоми О, перебуваючи в приблизно тетраедричному оточенні. Унаслідок такої спільної особливості — існування досить ізольованих тетраедрів MoO_4 — електронна структура цих молібдатів є дуже подібною, що можна використати при аналізі їхніх оптичних властивостей. Придатність такого підходу підтверджується теоретичними розрахунками зонної структури MgMoO_4 , [38], CaMoO_4 [32] і CdMoO_4 [33].

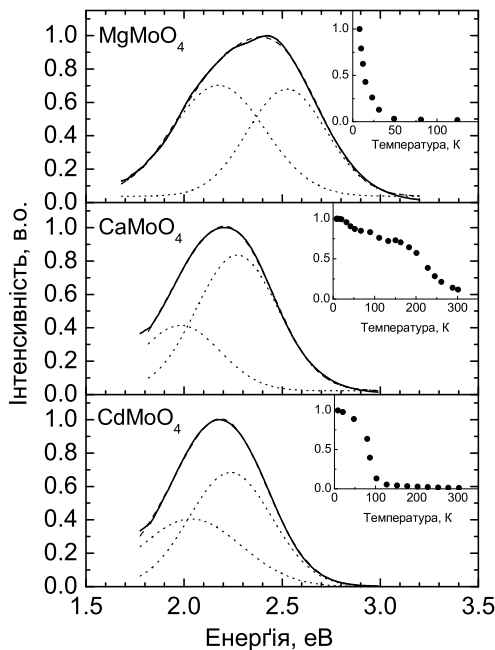


Рис. 5. Спектри люмінесценції MgMoO_4 , CaMoO_4 і CdMoO_4 , виміряні при збудженні фотонами з енергією 31 eV ($T = 9$ К). Пунктиром показаний розклад спектра на дві елементарні смуги. На вставках наведені температурні залежності інтегральних інтенсивностей люмінесценції кристалів.

На рис. 5 показано спектри люмінесценції кристалів, виміряні при ВУФ-збудженні (31 eV) [39]. При $T = 9$ К у спектрах люмінесценції спостерігаються широкі смуги з максимумами 2.4 (MgMoO_4), 2.2 (CaMoO_4) та 2.15 eV (CdMoO_4). Серед цих кри-

сталів лише CaMoO_4 має помітну люмінесценцію при кімнатній температурі. Температура гасіння люмінесценції CaMoO_4 (температура, при якій інтенсивність люмінесценції становить половину її максимальної величини) дорівнює 210 К. Термічне гасіння проявляє себе в CdMoO_4 при $T = 80$ К, тоді як у MgMoO_4 воно настає вже при 20 К.

Спектри випромінювання кристалів складаються з кількох компонент і найліпше можуть бути описані з використанням двох елементарних смуг (див. рис. 5). З огляду на схожість кристалічної структури молібдатів та вольфрамату кальцію вважається, що їхні люмінесцентні властивості значною мірою можуть бути пояснені в межах тієї ж самої моделі, розробленої для CaWO_4 . Тому на сьогодні переважає думка, що високоенергетична смуга у спектрі люмінесценції пов'язана з випромінювальним розпадом електронно-діркових пар, місцем локалізації яких є MoO_4^{2-} -комплекс [40]. Відповідно низькоенергетична частина спектра віднесена до випромінювання дефектів. Водночас є певні аргументи, які вказують на можливість впливу ефекту Яна-Теллера [41, 42] на структуру найнижчого рівня, з якого відбувається випромінювання, у шеелітах. Цей ефект приводить до того, що спектр випромінювання складається з кількох смуг. Через малу енергетичну відстань між елементарними рівнями (< 50 меВ) і сильне перекриття наразі не вдалося експериментально розділити окремі смуги. Однак оцінки, наведені у [41], показують, що ця відстань між рівнями є більшою в молібдатах. Тому ми не виключаємо можливості такої інтерпретації.

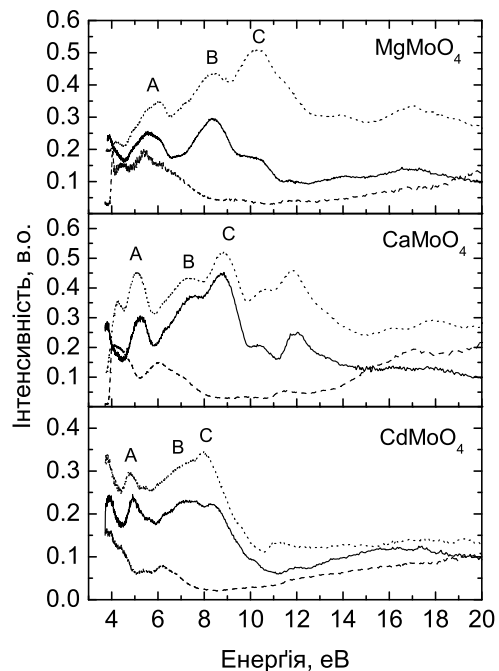


Рис. 6. Спектри відбивання (суцільна лінія й пунктир) і збудження люмінесценції (штрихова лінія) кристалів MgMoO_4 , CaMoO_4 і CdMoO_4 . Суцільна і штрихова лінії — $T = 9$ К, пунктир — $T = 295$ К.

На рис. 6 показані спектри відбивання кристалів. У низькоенергетичній ділянці спектри починаються чітким піком в околі 5.5, 5.1 і 4.9 eV ($T = 9$ K), який зміщується в ділянку вищих енергій зі зменшенням радіуса першого катіона (MgMoO_4 , CaMoO_4 і CdMoO_4). Смуга В розташована приблизно на 2 eV вище по енергії, а саме при 8.4, 7.4 і 7.1 eV, і найбільш інтенсивна смуга С має максимум біля 10.2, 8.8 та 8.3 eV. Зазначимо, що ефект, зумовлений катіонним зсувом, є найяскравіше вираженим для останньої смуги.

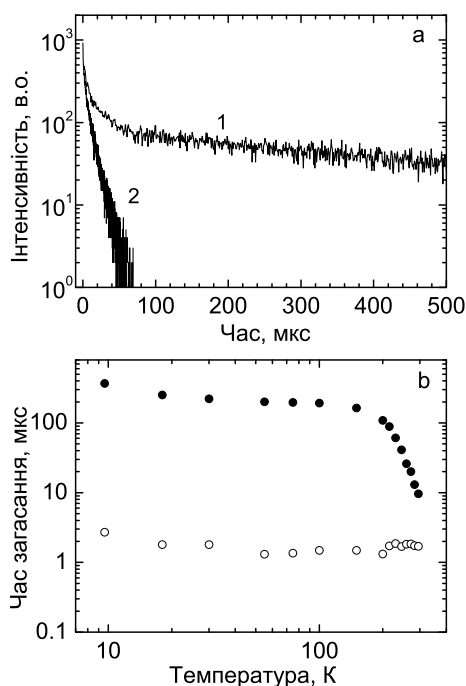


Рис. 7. Кінетика загасання сцинтиляцій у CaMoO_4 , виміряна при температурі 9 K (1) і 295 K (2) (а). Температурна залежність двох часів загасання в CaMoO_4 (б).

Особливості спектрів відбивання молібдатів можна пояснити на основі сучасних відомостей про будову електронної структури [32, 33, 38]. Вершина валентної зони молібдатів визначається $2p$ -станами кисню, тоді як найнижчі незаповнені стани формуються $4d$ -рівнями молібдену, розщепленими на дві смуги з e та t симетрією. Ці смуги мають локалізований характер з енергетичною відстанню між максимумами близько 2 eV. Тому дві низькоенергетичні смуги і В у спектрах відбивання молібдатів можна інтерпретувати як електронні переходи з валентної зони на $4d$ -стани Мо, які мають різну симетрію. Згідно з теоретичними розрахунками, в ділянці вищих енергій основний внесок у густину станів зони провідності має другий катіон. З огляду на цей факт інтенсивна високоенергетична смуга С пов'язується з переходами з валентної зони на nd -стани катіона. Зміна положення цієї смуги залежно від першого катіона узгоджується із загальною тенденцією, яку виявляє положення nd -рівнів цих йонів у твердих тілах. Структуру в ділянці енергій понад 12 eV можна віднести на рахунок переходів з ва-

лентної зони на високоенергетичні незаповнені $5s$ - і $5p$ -орбітали молібдену [43]. Як випливає з рис. 6, збудження молібдатів найефективніше в енергетичному інтервалі від 4 до 8 eV, де відбувається створення екситонів та корельованих електронно-діркових пар. При збудженні в цій ділянці валентні $2p$ -електрони кисню переходять на незаповнені $4d$ -стани молібдену, а потім рекомбінують з дірками, даючи характерне випромінювання аніонного комплексу MoO_4^{2-} .

Температурну залежність кінетики сцинтиляцій молібдатів досліджували при збудженні альфа-частинками від ^{241}Am . Як приклад, на рис. 7,а наведено криві загасання сцинтиляцій CaMoO_4 , виміряні при 295 і 9 K. Виявлено, що кінетика люмінесценції має чітко визначену швидку та повільну складові й найліпше описується сумою двох експонент. Температурні залежності часів загасання CaMoO_4 зображено на рис. 7,б.

Особливості кінетики загасання молібдатів можна пояснити, беручи до уваги подібність їхньої кристалічної структури до CaWO_4 , що фактично визначає й подібність енергетичної структури центрів власного випромінювання. Справді, у молібдатах та вольфраматах зі структурою шееліту власне випромінювання пов'язане з орбітально-дозволенними 3T_1 і $^3T_2 \rightarrow ^1A_1$ переходами всередині молекулярного комплексу MO_4^{2-} ($M = \text{W}, \text{Mo}$). Цілком можливим є такий ефект, коли поверхні адіабатичних енергетичних потенціалів, що походять від різних триплетних рівнів, спричиняють випромінювальні переходи з різними ймовірностями (а отже, і часами загасання), що, власне, і може пояснити наявність двох компонент у кінетиці загасання люмінесценції. Зовсім недавно це припущення одержало підтвердження в результаті вимірювань люмінесценції CaMoO_4 з часовим розділенням, унаслідок яких нам удалося також зареєструвати випромінювання синглетних екситонів з характерним часом загасання 10 нс [44]. Збільшення часу загасання при низьких температурах узгоджується з тим фактом, що випромінювальний рівень у шеелітах складається з двох підрівнів, з яких один є метастабільним [36, 40].

Наостанок, виходячи із задачі оцінки придатності молібдатів для КФСД технології, був вимірний відносний світловихід люмінесценції цих кристалів при 9 K з використанням ВУФ-збудження (31 eV) і знайдено, що ця величина становить відповідно ~30% (MgMoO_4), 30% (CaMoO_4) та 80% (CdMoO_4) порівняно з CaWO_4 . Слід зазначити, що знайдені величини дають лише доволі консервативну оцінку, оскільки ми досліджували тільки експериментальні взірці молібдатів, на відміну від традиційних сцинтиляторів ZnWO_4 і CaWO_4 , які мають тривалу історію поліпшення сцинтиляційних параметрів. А тому можна впевнено спрогнозувати, що світловихід молібдатів можна значно поліпшити за умови оптимізації технології виготовлення кристалів. У загальному ці результати свідчать, що молібдати мають хороші перспективи для застосування в КФСД й експериментальному пошуку рідкісних подій.

D. Al₂O₃ активований Ті

У процесі пошуку криогенних скінтіляторів, які могли б задовольнити високі вимоги, висунуті перед детекторами, що використовуватимуться в майбутньому експерименті з пошуку “темної матерії”, нашу увагу привернув монокристалічний окис алюмінію, активований титаном. Раніше було встановлено, що чистий Al₂O₃ є відмінним фононним детектором [45]. Отож, враховуючи, що Al₂O₃, активований йонами титану, є відомий лазерний матеріал, було висунуто припущення, що він може становити інтерес для КФСД-технології.

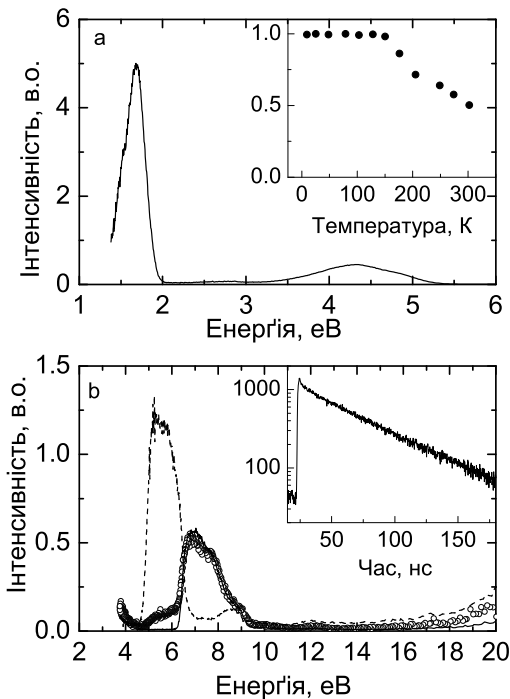


Рис. 8. Спектри люмінесценції Al₂O₃-Ті при збудженні рентгенівськими фотонами з енергією 3.2 кеВ ($T = 9$ К). На вставці показана температурна залежність інтегральної інтенсивності люмінесценції (а). Спектри збудження Al₂O₃-Ті виміряні для різних смуг люмінесценції при $T = 9$ К. Пунктир — 2.9 еВ, кільця — 1.7 еВ, суцільна лінія — 4.3 еВ. На вставці показана крива загасання для смуги з максимумом 4.1 еВ при $T = 300$ К (б).

Для оцінки можливостей цього матеріалу досліджено його люмінесцентні властивості під дією високоенергетичного збудження (монохроматичне ВУФ-та рентгенівське випромінювання) в широкому температурному інтервалі [46, 47]. При збудженні рентгенівськими фотонами кристалів Al₂O₃-Ті (0.07%), окрім добре вивченої смуги випромінювання йонів Ti³⁺ у ближній ІЧ -ділянці (1.7 еВ) та доволі слабого голубого світіння в околі 2.9 еВ, ми спостерігали смугу в ультрафіолетовій ділянці з максимумом 4.3 еВ (див. рис. 8,а), інтегральна інтенсивність якої становить одну третину загального світловиходу кристала. Кінетика загасання цієї смуги має моноекспоненційний ха-

рактер із часом загасання $\tau=138$ нс при $T = 300$ К (вставка у рис. 8,б) і дуже сильно змінюється (стає довготривалою) з пониженням температури.

Ми вперше виміряли спектри збудження всіх смуг випромінювання Al₂O₃-Ті у спектральній ділянці 4–20 еВ і чітко показали, що смуга голубого випромінювання (2.9 еВ) ефективно збуджується в діпазоні енергій від 4.6 до ~ 7 еВ (рис. 8б). Для пояснення природи цієї смуги запропоновано дві можливі моделі – переходи з переносом заряду $2pO^{2-} \rightarrow 3dTi^{4+}$, або ж фотойонізація йонів Ti³⁺. Близькість порогових енергій, необхідних для активації цих процесів, наразі не дає змоги віддати перевагу одній з моделей. Показано також, що люмінесценція йонів Ti³⁺, в основному, збуджується в діпазоні енергій від 6.2 до ~ 9 еВ і, що особливо цікаво, спектри збудження цієї та ультрафіолетової смуг є практично ідентичними в цій ділянці. Зважаючи на спектральні та кінетичні особливості цього випромінювання, висунуто припущення, що смуга 4.3 еВ зумовлена випромінювальним розпадом екситонів, локалізованих в околі йонів Ti³⁺.

Дослідження температурної залежності інтегральної інтенсивності люмінесценції при рентгенівському збудженні показали, що цей параметер залишається практично незмінним при $T < 150$ К. Також показано, що Al₂O₃-Ті може бути ефективним скінтіляційним детектором йонізуючого випромінювання з енергією 15–60 кеВ при низьких температурах. Світловихід скінтіляцій для взірця з концентрацією Ті, рівною 0.20 вагових процентів, становив 2400 ± 200 фотонів/МеВ, і оцінки, зроблені для зразка з меншою концентрацією (0.07%), дають удвічі більший світловихід [47]. Отже, одержані результати вказують на те, що активований титаном монокристалічний окис алюмінію є доволі перспективним матеріалом для КФСД.

VI. ВИСНОВКИ

Прогрес у ділянці криогенних технологій створив передумови для появи нового покоління детекторів елементарних частинок із надзвичайно високою роздільною здатністю та можливістю ідентифікації типу взаємодії. Це викликало потребу в матеріалах, які б забезпечили практичну реалізацію ідеї одночасної реєстрації фотонів та фононів, що виникають у результаті взаємодії йонізуючого випромінювання й частинок з речовиною. Тому пошук й оптимізація матеріалів для КФСД є актуальною задачею сьогодення в галузі дослідження скінтіляторів.

У цій статті ми проаналізували перспективи кількох класів скінтіляційних матеріалів з огляду на їх придатність для експериментів з пошуку дуже рідкісних подій у галузі фізики елементарних частинок і, керуючись рядом визначених критеріїв, виділили найбільш перспективну групу матеріалів. Для цих сполук проведено всебічні дослідження люмінесцентних та скінтіляційних властивостей у широкому температурному інтервалі. Узагальнені результати цих вимірювань показано в таблиці.

Кристал	Максимум люмінесценції, нм		Час загасання, мкс		Світловихід*, %	
	$T=300\text{ K}$	$T=9\text{ K}$	$T=300\text{ K}$	$T=9\text{ K}$	$T=300\text{ K}$	$T=9\text{ K}$
CaWO_4	420	420	9	405	100	100
ZnWO_4	490	510	24	110	100	110
MgMoO_4	–	500	–	1350	–	30
CaMoO_4	540	540	10	640	5	30
CdMoO_4	–	550	–	470	–	80
$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Ti}$	290; 730	290; 730	0.14; 3	4	30	30

* – відносно CaWO_4 .

Таблиця 1. Люмінесцентні та сцинтиляційні параметри кристалів при 300 К і 9 К.

Аналіз одержаних результатів дає змогу зробити висновок, що є кілька сцинтиляційних матеріалів, які становлять інтерес для КФСД-технології з погляду їх можливого застосування у кріогенному експерименті з пошуку дуже рідкісних подій. Найпривабливішими в цьому плані виглядають вольфрамат кальцію та цинку, що є добре відомими сцинтиляторами. Завдяки високому світловиходу при низькій температурі, сприятливому складі, стійкості та механічним властивостям CaWO_4 екстенсивно застосовують у пошуку “темної матерії”, тоді як ZnWO_4 з подібними властивостями може бути швидко впроваджений в експериментальну практику. Це ж стосується й Al_2O_3 , активованого Ti, до особливих переваг якого слід віднести хороші фононні властивості, що дозволило вже тривалий час успішно використовувати його як фононний детектор йонізуючого випромінювання. Молібдати мають також значні перспективи для використання в КФСД, хоча на цей момент світловихід експериментальних взірців є порівняно малим. Однак не виникає сумніву, що цей параметр можна суттєво поліпшити за рахунок технології виготовлення та обробки монокристалів.

У подальшій перспективі, враховуючи постійне зростання інтересу до КФСД, можна передбачити, що застосування відповідної технології має всі шанси вийти за межі чисто наукового експерименту. Як показує практичний досвід, те, що здавалося дуже вузькоспеціалізованою науковою технологією з екстремальними вимогами, може стати в недалекому майбутньому широкоживаною методикою. Це до певної міри особливо справедливо щодо технологій детектування йонізуючого випромінювання та частинок. Медична діагностика є тією галуззю, яка може бути дуже за-

цікавленою в застосуванні новітніх технологій детектування з огляду на нагальну потребу поліпшення енергетичного розділення детекторів та значний інтерес до застосування нейтронографії для медичних цілей. Ураховуючи те, що КФСД можуть запропонувати позаконкурентну роздільну здатність і можливість абсолютного розділення гамма-випромінювання та нейтронів, стає зрозумілим, що використання відповідної технології в медичній діагностиці є дуже бажаним і доцільним. Щобільше, можна очікувати, що цей метод детектування може становити інтерес для майбутніх технологій митного та прикордонного контролю, у яких планується використовувати нейтрони для інспекції великих металічних об’єктів (контейнери, автомобілі, пароплави). Якщо вдасться показати суттєві переваги КФСД над традиційними детекторами, то завдяки існуванню автономних кріогенних систем, що роблять кріогенні температури доступними для широкого кола користувачів, можна очікувати їх упровадження в широку практику. Саме тому пошук кріогенних сцинтиляторів, який проводиться сьогодні, є тією науковою ініціативою, що створює фундамент для технологічного прогресу в недалекому майбутньому.

ПОДЯКИ

Дослідження проведені в межах проекту I/S/2001/646, профінансованого Британською Радою досліджень у фізиці елементарних частинок й астрофізиці (PPARC) та грантом Британського Королівського товариства (Royal Society).

[1] H. Kraus, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, 6273 (1998).
 [2] E. Fiorini, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **520**, 1 (2004).
 [3] F. S. Porter, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **520**, 354 (2004).
 [4] H. Kraus, Int. J. Mass Spectrom. **215**, 45 (2002).

[5] P. Christ *et al.*, Eur. J. Mass Spectrom. **10**, 469 (2004).
 [6] H. Kraus, Phil. Trans. R. Soc. London A **361**, 2581 (2003).
 [7] G. Angloher *et al.*, Astropart. Phys. (2005) (in press).
 [8] S. Cebrian *et al.*, Astropart. Phys. **21**, 23 (2004).

- [9] P. de Marcillac, N. Coron, G. Dambier, J. Leblanc, J. P. Moalic, *Nature* **422**, 876 (2003).
- [10] C. Cozzini *et al.*, *Phys. Rev. C* **70**, 064606 (2004).
- [11] A. Alessandrello *et al.*, *Phys. Lett. B* **420**, 109 (1998).
- [12] N. Coron, P. de Marcillac, J. Leblanc, G. Dambier, J. P. Moalic, *Opt. Eng.* **43**, 1568 (2004).
- [13] P. C. F. Di Stefano *et al.*, *J. Appl. Phys.* **94**, 6887 (2003).
- [14] L. Bergström, *Rep. Progr. Phys.* **63**, 793 (2000).
- [15] K. Pretzl, *Space Sci. Rev.* **100**, 209 (2002).
- [16] P. Meunier *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1335 (1999).
- [17] P. Colling *et al.*, *Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. A* **354**, 408 (1995).
- [18] M. Moszyński *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **553**, 578 (2005).
- [19] V. B. Mikhailik, H. Kraus, D. Wahl, M. Itoh, M. Koike, I. Bailiff, *Phys. Rev. B* **69**, 205110 (2004).
- [20] G. Zimmerer, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **308**, 178 (1991).
- [21] F. Quinn *et al.*, *J. Synchrotron Radiat.* **10**, 461 (2003).
- [22] V. B. Mikhailik, I. K. Bailiff, H. Kraus, P. A. Rodnyi, J. Nincovic, *Radiat. Meas.* **38**, 585 (2004).
- [23] H. Kraus, V. B. Mikhailik, D. Wahl, *Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. A* **553**, 522 (2005).
- [24] V. B. Mikhailik, H. Kraus, G. Miller, M. S. Mykhaylyk, D. Wahl, *J. Appl. Phys.* **97**, 083523 (2005).
- [25] G. Blasse, *Structure and Bonding* **42**, 1 (1980).
- [26] M. J. Treadaway, R. C. Powel, *J. Chem. Phys.* **61**, 4003 (1974).
- [27] R. Grasser, E. Pitt, A. Sharmann, G. Zimmerer, *Phys. Status Solidi B* **69**, 359 (1975).
- [28] R. Grasser, A. Sharmann, K.-R. Strack, *J. Lumin.* **27**, 263 (1982).
- [29] V. Mürk, M. Nikl, E. Mihokova, K. Nitsch, *J. Phys.: Cond. Matt.* **9**, 249 (1997).
- [30] E. V. Sokolenko, V. M. Zhukovskii, E. S. Buyanova, Ya. A. Krasnobaev, *Inorg. Mater.* **34**, 611 (1998).
- [31] A. E. Ovechkin, V. D. Ryzhikov, G. Tamulatis, A. Zukauskas, *Phys. Status Solidi A* **103**, 285 (1987).
- [32] Y. Zhang, N. A. W. Halthwarth, R. T. Williams, *Phys. Rev. B* **57**, 12738 (1998).
- [33] Y. B. Abraham, N. A. W. Holzwarth, R. T. Williams, *Phys. Rev. B* **62**, 1733 (2000).
- [34] A. Lushchik *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **538**, 657 (2005).
- [35] G. Blasse, G. Bokkers, *J. Sol. St. Chem.* **49**, 126 (1983).
- [36] V. Babin *et al.*, *Radiat. Meas.* **38**, 533 (2004).
- [37] H. Kraus, V. B. Mikhailik, Y. Ramachers, D. Day, K. B. Hutton, J. Telfer, *Phys. Lett. B* **610**, 37 (2005).
- [38] J. A. Rodriguez, J. C. Hanson, S. Chaturvedi, A. Maiti, J. L. Brito, *J. Chem. Phys.* **112**, 535 (2000).
- [39] V. B. Mikhailik, H. Kraus, D. Wahl, M. S. Mykhaylyk, *Phys. Status Solidi B* **242**, R17 (2005).
- [40] J. A. Goernik, C. Hakfoort, G. Blasse, *Phys. Status Solidi A* **54**, 477 (1979).
- [41] Е. Г. Рeut, *Изв. Акад. Наук СССР, сер. физ.* **49**, 2032 (1985).
- [42] M. Bacci, S. Porcinai, E. Mihokova, M. Nikl, K. Polak, *Phys. Rev. B* **64**, 104302 (2001).
- [43] M. Itoh, K. Hayakawa, S. Oishi, *J. Phys.: Cond. Matt.* **13**, 6853 (2001).
- [44] V. B. Mikhailik, H. Kraus, M. Itoh, D. Iri, M. Uchida, *J. Phys.: Cond. Matt.* **17**, 7209 (2005).
- [45] M. Bravin *et al.*, *Astropart. Phys.* **126** 107 (1999).
- [46] V. B. Mikhailik, H. Kraus, M. S. Mykhaylyk, D. Wahl, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 101909 (2005).
- [47] V. B. Mikhailik, H. Kraus, M. Balcerzyk, W. Czarnacki, M. Moszyński, M. S. Mykhaylyk, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **546**, 523 (2005).

CRYOGENIC SCINTILLATORS FOR SEARCH AND INVESTIGATION OF EXTREMELY RARE EVENTS IN PARTICLE PHYSICS AND ASTROPHYSICS

V. B. Mikhailik¹, H. Kraus¹, M. S. Mykhaylyk²

¹*University of Oxford, Department of Physics, Keble Road, Oxford OX1 3RH, UK*

²*Ivan Franko National University of Lviv, Faculty of Physics,
8 Kyryla i Mefodija Str., Lviv, UA-79005, Ukraine*

The inorganic scintillator is an important element of a new type of cryogenic phonon scintillation detectors (CPSD) developed for single particle detection. These detectors exhibiting superior energy resolution and ability to identify the type of interaction event are considered as a next generation instrumentation in the search for extremely rare events. The paper presents the latest results of our study on cryogenic scintillators thought for CPSD application in the search for dark matter. It gives a description of the concept of direct dark matter detection and the operation principles of CPSD. The paper envisages major materials requirements and summarises the results of the studies of luminescence and scintillation properties of tungstates (CaWO₄ and ZnWO₄), molybdates (CaMoO₄, MgMoO₄, and CdMoO₄) and Ti-doped Al₂O₃ over a wide temperature range (9–300 K).