

НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ
ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ им. Г.И.Будкера СО РАН

Д.М. Бейлин, А.И. Корчагин,
А.С. Кузьмин, Л.М. Курдадзе,
С.Б. Орешкин, С.Е. Петров, Б.А. Шварц

ИЗУЧЕНИЕ РАДИАЦИОННОЙ СТОЙКОСТИ
СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫХ КРИСТАЛЛОВ CsI(Tl)

ИЯФ 2003-25

НОВОСИБИРСК
2003

Изучение радиационной стойкости сцинтилляционных кристаллов CsI(Tl)

*Д.М. Бейлин, А.И. Корчагин, А.С. Кузьмин,
Л.М. Курдадзе, С.Б. Орешкин, С.Е. Петров, Б.А. Шварц*

Институт ядерной физики им.Г.И. Будкера
630090 Новосибирск, Россия

Аннотация

В данной работе изучалось изменение сцинтилляционных характеристик кристаллов CsI(Tl) при облучении их γ -квантами при величине поглощенной дозы до 3700 рад. Набор образцов состоял из 25 кристаллов длиной 30 см в форме усеченной пирамиды и 30 образцов той же длины в форме параллелепипеда. Наблюдается большой разброс по величине потери световыхода, причем среднее значение этой величины существенно зависит от формы кристалла. В то же время кристаллы одной формы, вырезанные из одной булы, оказываются очень близки по их радиационной стойкости.

**Study of the radiation hardness
of the CsI(Tl) scintillation crystals**

*D.M. Beylin, A.I. Korchagin, A.S. Kuzmin,
L.M. Kurdadze, S.B. Oreshkin, S.E. Petrov, B.A. Shwartz*

Budker Institute of Nuclear Physics
630090 Novosibirsk, Russia

Abstract

This paper is devoted to study of a degradation of CsI(Tl) crystals scintillation characteristics under irradiation with γ -quanta at the absorbed dose up to 3700 rad. The sample set consisted of 25 crystals of 30 cm length having the truncated pyramide shape and 30 rectangular crystals of the same length. The large spread of the light output deterioration is observed as well as the substantial dependence of the average lightoutput loss from the sample shape is seen. On the other hand the tight correlation between radiation hardness of the crystals cut from the same ingot is manifested.

Содержание

1	Введение	5
2	Исследуемые образцы и измерение их сцинтилляционных характеристик	7
3	Облучение кристаллов	10
4	Изменение сцинтилляционных характеристик кристаллов под действием излучения	15
4.1	Измерения с кристаллами типа "В" (пирамиды)	16
4.2	Изменение световыхода кристаллов типа "Р" (параллелепипеда)	20
4.3	Изменение световыхода кристаллов типа "Р" при различных условиях светосбора	21
5	Корреляция между радиационной стойкостью кристаллов изготовленных из одной були	23
6	Восстановление световыхода со временем	24
7	Изменение неоднородности световыхода кристаллов после облучений	25
8	Обсуждение результатов	25
9	Заключение	30
А	Приложение	32

1 Введение

В настоящее время сцинтилляционные кристаллы йодистого цезия широко используются в физике высоких энергий для регистрации гамма квантов. С калориметрами на основе этих кристаллов получено лучшее энергетическое разрешение для фотонов и электронов [1, 2].

Одной из важных характеристик сцинтилляционных материалов является их радиационная стойкость, т.е. сохранение сцинтилляционной эффективности и ее однородности по объему счетчика при воздействии ионизирующего излучения. Радиационная стойкость кристаллов CsI изучалась ранее в целом ряде работ [3, 4, 5, 6], в которых исследовались по несколько образцов различного размера и формы, изготовленных различными производителями. Несмотря на большой разброс результатов, мог быть сделан вывод, что кристаллы йодистого цезия не слишком сильно теряют свои свойства при полной поглощенной дозе излучения до нескольких сот рад. Также было ясно, что ухудшение сцинтилляционных свойств кристаллов существенно зависит от технологии выращивания, исходного материала и размеров кристалла. Новый интерес к изучению радиационной стойкости этих кристаллов был вызван разработкой и созданием В-, ϕ -, $c - \tau$ -фабрик, накопителей со сверхвысокой светимостью, и, соответственно, с большими циркулирующими токами электронов и позитронов, приводящими к высоким радиационным нагрузкам в детекторах.

В настоящее время интерес к этому вопросу вновь возрос в связи с появлением проектов В-фабрик со сверхвысокой светимостью [7, 8]

Данная работа была в сильной степени инициирована активным участием ИЯФ в создании электромагнитного калориметра детектора BELLE [9], установленного на В-фабрике КЕКВ с проектной светимостью до 10^{34} см⁻²с⁻¹. Электромагнитный калориметр этого детектора содержит 8736 кристаллов CsI(Tl), имеющих форму усеченной пирамиды высотой 300 мм с поперечными размерами около 50-60 мм. Примерно 2/3 элементов калориметра были изготовлены ИЯФ в сотрудничестве с Институтом монокристаллов НАН Украины (Харьков). Для получения высокого энергетического и пространственного разрешения калориметра важно, чтобы световыход и однородность кристаллов не изменялись значительным образом за несколько лет работы на ускорителе. Поэтому к используемым кристаллам предъявлялись достаточно жесткие требования по радиационной стойкости.

На начальном этапе работ было проведено изучение радиационной стойкости кристаллов [10, 5] на нескольких образцах, которое показало, что они удовлетворяют предъявляемым требованиям.

В настоящей работе изучалась радиационная стойкость кристаллов CsI(Tl) на большой статистике полноразмерных образцов. Все 55 исследованных кристалла были выращены по единой технологии предприятием "Амкрис-Н", входящим в научно-технологический коцерн "Институт Монокристаллов", г. Харьков, Украина. При этом для изготовления всех кристаллов использовалось сырье, соль CsI ОСЧ 17-2, производства Новосибирского завода редких металлов. Для облучения образцов использовался широкий пучок тормозных γ -квантов, полученных на промышленном ускорителе электронов ЭЛВ-6 в ИЯФ СО РАН. Еще одной особенностью данной работы является использование сцинтилляционного детектора поглощенной дозы, изготовленного из того же материала, CsI(Tl), что исключает необходимость пересчета при определении дозы и ее зависимости от реального спектра излучения. Предварительные результаты работы докладывались на конференции INSTR-99 [12].

2 Исследуемые образцы и измерение их сцинтилляционных характеристик

Из 55 изученных образцов 25 было отобрано из числа кристаллов, изготовленных для электромагнитного калориметра детектора BELLE, однако забракованных из-за отклонений в геометрических размерах или наличия мелких механических дефектов. Эти образцы, упоминаемые далее как образцы типа "В", имеют форму усеченной пирамиды высотой 300 мм и средним поперечным сечением примерно 60×60 мм². Детальное описание кристаллов, используемых в детекторе BELLE, приведено в [11]. В исследуемый набор образцов входили кристаллы 16 типов, несколько различающихся по форме и размерам. Площадь большого основания усеченной пирамиды варьировалась от 35 до 47 см², а угол отклонения боковых граней от вертикали изменялся от 0.8° до 1.25° в зависимости от типа кристалла.

Кроме того было исследовано 30 кристаллов в форме прямоугольного параллелепипеда с размерами $2 \times 2 \times 30$ см³, специально изготовленных для систематического контроля радиационной стойкости кристаллов для элементов калориметра. Далее будем называть их образцами типа "Р".

Перед проведением измерений все грани кристаллов были отполированы. Затем каждый кристалл был обернут диффузным отражателем - слоем пористого тефлона толщиной 200 мкм, и помещен в контейнер из алюминизированного лавсана толщиной 20 мкм.

При измерении световыхода кристаллов типа "Р" фотоприемник может быть присоединен к любому из торцов образца. При этом световыход зависит от наличия или отсутствия отражателя на противоположном торце. Обозначая один из торцов кристалла **a**, а другой **b**, получаем 4 способа измерения для каждого кристалла, перечисленные в Табл.1

В настоящей работе большая часть измерений была выполнена в варианте 1. Далее, во всех случаях, где специально не оговорено иное, подразумевается, что световыход измерялся именно таким способом. При всех измерениях боковая поверхность

Таблица 1:

Способ	Откуда снимается	Условия на дальнем торце
1	Торец a	Торец b закрыт 2 слоями тефлона
2	Торец a	Торец b не закрыт
3	Торец b	Торец a закрыт 2 слоями тефлона
4	Торец b	Торец a не закрыт

кристалла также, как и для образцов типа В, оборачивалась тефлоновым отражателем.

Для измерения сцинтилляционных свойств кристаллов использовался стенд, схема которого показана на Рис.1. Исследуемый кристалл устанавливается вертикально на входное окно фотоумножителя типа Hamamatsu R1847-07 с диаметром фотокатода 50 мм без оптического контакта.

В качестве источника гамма-квантов использовался ^{137}Cs с энергией фотонов 662 КэВ, помещенный в свинцовый коллиматор, который обеспечивал ширину облучаемой на кристалле области около 1 см.

Сигнал с ФЭУ формировался усилителем-формирователем, оцифровывался АЦП и передавался на персональный компьютер.

Коллиматор передвигался вдоль оси кристалла, облучая кристалл γ -квантами в девяти точках через каждые 3 см. Величина световыхода в каждой точке определялась как отношение положения пика полного поглощения для исследуемого (A_i) и образцового (A_0) кристаллов :

$$L_i = \frac{A_i}{A_0} \times 100\% \quad (1)$$

Определялся средний световыход:

$$\bar{L} = \left(\sum_{i=1}^9 L_i \right) / 9 \quad (2)$$

и неоднородность световыхода кристалла:

$$G = \frac{L_{max} - L_{min}}{L} \quad (3)$$

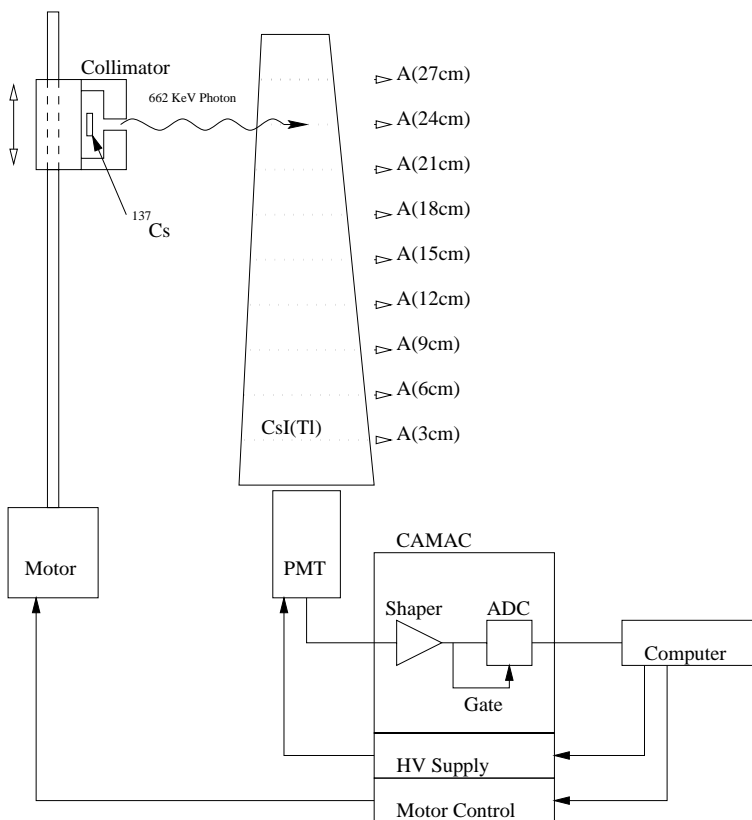


Рис. 1: Стенд для измерения световыхода.

В качестве образцового использовался стандартный детектор на основе кристалла CsI(Tl) диаметром 25 мм и высотой 25 мм. Далее в данной работе световыход кристаллов приводится в процентах к световыходу образцового детектора.

На Рис.2,*a* и *b* приведены распределения образцов типа "B" и "P" по величине среднего световыхода, измеренного перед облучением кристаллов.

Как видно из рисунка, разброс по величине начального световыхода невелик.

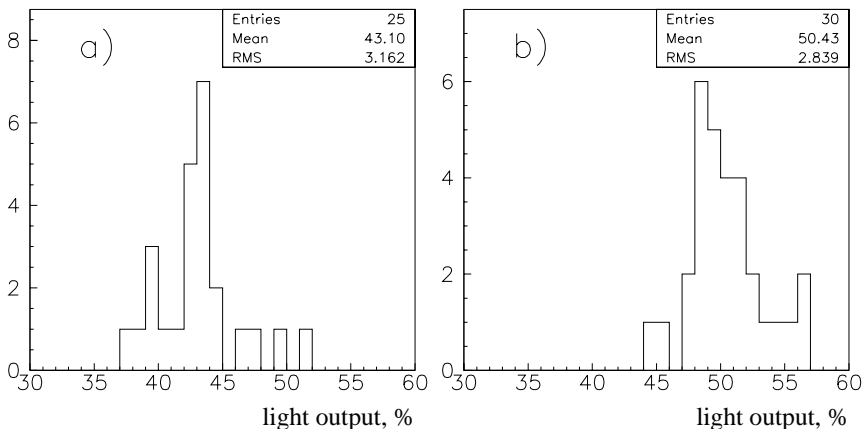


Рис. 2: Световыход кристаллов типа "В"(a) и "Р"(b) до облучения.

3 Облучение кристаллов

Ускоритель ЭЛВ-6 [13] генерирует непрерывный пучок электронов с энергией 1,4 МэВ и током до 100 мА. Мощность в пучке достигает 100кВт. Пучок с такими параметрами может обеспечить мощность дозы до 1 Мрад/час. Так как в данной работе исследовалась радиационная стойкость при умеренных дозах, работа велась при токах пучка не превышающих 10 мА.

Схема облучения показана на Рис.3. Пучок электронов с энергией 1,4 МэВ падает на конвертор (2), с полной толщиной 0,5 мм Та + 2 мм воды + 2 мм нержавеющей стали. При взаимодействии электронов с веществом конвертора образуются тормозные γ -кванты (3). Облучаемые кристаллы (5) находятся на расстоянии около одного метра от конвертора. Кристаллы расположены таким образом, что их ось перпендикулярна оси электронного пучка. Измеритель дозы (6) находится между кристаллами. Чтобы подавить низкоэнергетическую часть спектра тормозных фотонов перед кристаллами помещен лист свинца толщиной 2 мм (4).

Полученный таким образом пучок γ -квантов характеризуется широким спектром от 0,2 до 1,4 МэВ с максимумом около 0,6 МэВ.

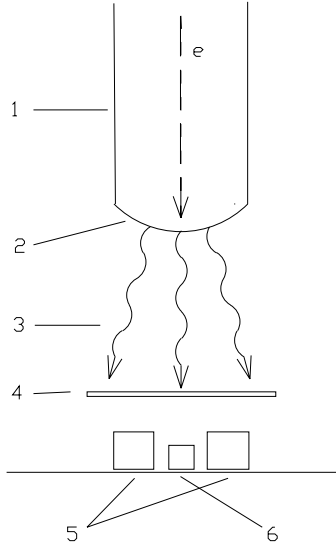


Рис. 3: Схема облучения кристаллов на ускорителе ЭЛВ-6. 1- ускоритель электронов ЭЛВ-6, 2 - танталовый конвертор, 3 - тормозное излучение, 4 - свинцовая пластина толщиной 2 мм, 5 - облучаемые кристаллы CsI(Tl), 6 - детектор радиационной дозы.

Энергия, выделяющаяся в единице массы вещества при облучении его ионизирующим излучением, называется поглощенной дозой (D). В системе СИ единица измерения D – 1 Грэй = 1Дж/1кг. Часто также используется единица 1рад= 0,01Гр (1рад = 10^{-2} Дж/кг = $6,24 \times 10^8$ МэВ/г)

Поглощенная за время облучения доза определяется как интенсивностью и спектром излучения, так и материалом образца. Так как поле излучения складывается из первичного излучения и излучения, рассеянного материалом, окружающим исследуемый образец, вычисление этой величины оказывается сложной задачей даже при использовании монохроматического гамма-источника. Для измерения D используются обычно детекторы на основе материалов с низким Z, что также приводит к заметным систематическим ошибкам при пересчете на CsI. Поэтому в данной работе для измерения

мощности дозы, поглощаемой исследуемыми кристаллами во время облучения, был изготовлен измеритель дозы (ИД) на основе сцинтилляционного кристалла CsI(Tl). Использование CsI в качестве вещества детектора позволяет избежать упомянутого пересчета и, следовательно, улучшить точность определения поглощенной дозы.

Устройство ИД показано на Рис.4. Сцинтилляционный кристалл CsI(Tl) с размерами $2 \times 2 \times 1$ см³ установлен на вакуумный фотодиод (ФД) с массивным фотокатодом. Фототок пропорционален мощности дозы в широком диапазоне интенсивности излучения. Он определяется путем измерения падения напряжения (V) на сопротивлении нагрузки (R = 50 КОм).

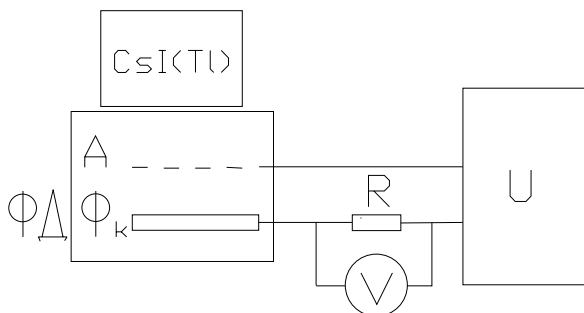


Рис. 4: Измеритель поглощенной дозы. CsI(Tl) - сцинтилляционный кристалл, ФД - фотодиод с массивным фотокатодом, А - анод, Фк - фотокатод, R - сопротивление, V - вольтметр, U - источник постоянного напряжения.

Более подробно устройство и процедура калибровки ИД описаны в Приложении А. При помощи калибровки было показано, что при мощности дозы 1 рад/сек ток фотодиода I_R составит около 0,3 мкА. Тогда доза D (рад), поглощаемая кристаллом за время t_0 (сек) при токе I (мкА), вычисляется по формуле:

$$D = \frac{1}{I_R} \int_0^{t_0} I(t) dt,$$

где $I_R=0,3$ мкА·с/рад. Во время облучения значения тока ФД записывались каждые 20 сек. Типичная зависимость тока ИД от времени

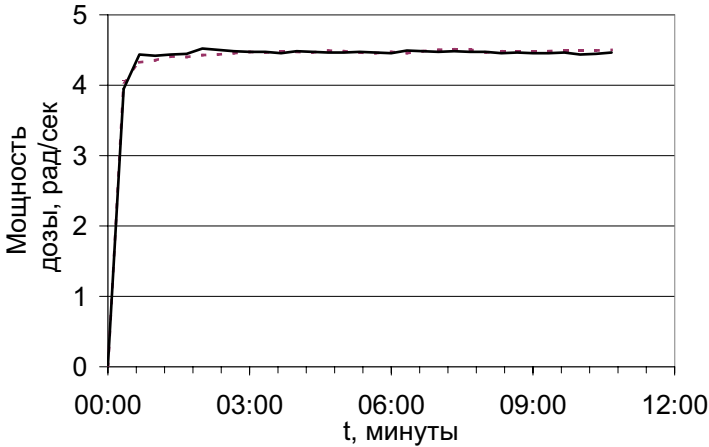


Рис. 5: Пример зависимости мощности дозы от времени при облучении кристаллов. Сплошная линия соответствует облучению кристалла с одной стороны, пунктирная – с другой (см. текст).

Относительная точность измерения интегральной дозы по нашим оценкам составляет около 10% и определяется точностью калибровки ИД с учетом медленных компонент высвечивания CsI(Tl).

Простые оценки показывают, что благодаря многократному рассеянию первичных электронов в конверторе, пучок γ -квантов падающий на образцы оказывается достаточно однородным. Для проверки этого был измерен поперечный профиль мощности дозы при фиксированном токе ускорителя. В области от -15 см до +15 см относительно оси пучка ускорителя неоднородность составила менее 5%.

Используемый в настоящей работе пучок γ -квантов характеризуется широким энергетическим спектром от 0.2 до 1.4 МэВ с максимумом в районе 0.6 МэВ. При этой энергии пробег фотона в CsI составляет около 3 см. Так как поперечный размер кристалла

составляет около 6 см, то при облучении доза, поглощенная вблизи верхней грани кристалла, должна быть в несколько раз больше, чем вблизи нижней.

Для определения величины этого эффекта было произведено следующее измерение. При определенном токе ускорителя измерялась интенсивность дозы, поглощаемой в ИД (J_1). Затем перед ИД устанавливался брусок CsI толщиной 6 см и при том же токе ускорителя измерение повторялось (J_2). Отношение $k = J_1/J_2$ оказалось равным 3.2, что, в предположении экспоненциальной зависимости дозы поглощаемой в кристалле от глубины, соответствует средней длине поглощения γ -квантов равной 5.2 см.

Для компенсации этой неоднородности каждый образец облучался одинаковыми дозами с противоположных сторон. Зависимость суммарной дозы от глубины, рассчитанная исходя из $k=3.2$, приведена на Рис.6. Как видно из рисунка неоднородность поглощенной дозы по толщине составляет около 15%.

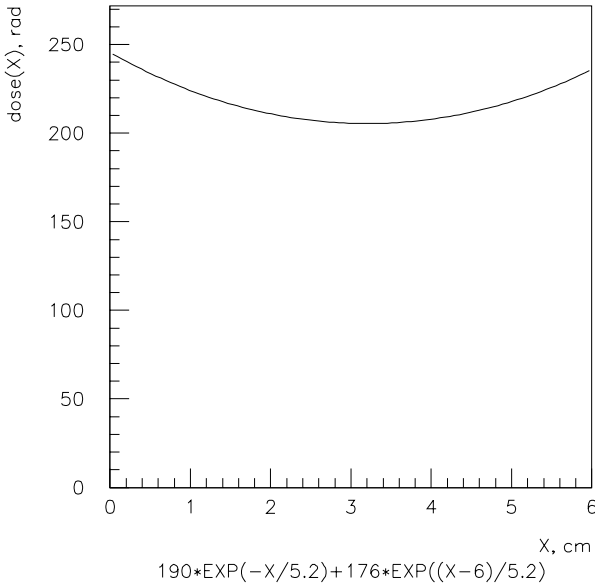


Рис. 6: Распределение дозы по толщине кристалла после облучения с двух сторон.

4 Изменение сцинтилляционных характеристик кристаллов под действием излучения

Световыход каждого кристалла измерялся несколько раз до и после каждого облучения. Сеансы облучения проводились последовательно с интервалом 2-6 недель. Одновременно в сеансе облучалось не более трех образцов типа "В" или 5 кристаллов типа "Р".

Существенное послесвечение кристаллов CsI(Tl) затрудняет измерение световыхода сразу после облучения. Из-за этого первое измерение после облучения проводилось только через сутки, когда послесвечение уменьшается настолько, что вызванное им уширение фотопика и его среднее смещение не ухудшает точность измерений.

На Рис. 7 показана зависимость среднего световыхода от времени для двух кристаллов типа "Р". Стабильность измерений между облучениями лучше одного процента, поэтому ясно видно резкое падение световыхода на несколько процентов после облучения до величины интегральной дозы 700 и 3200 рад. Поведение точек после второго сеанса облучения можно интерпретировать, как указание на частичное восстановление световыхода, этот вопрос будет рассмотрен ниже, в разделе 6.

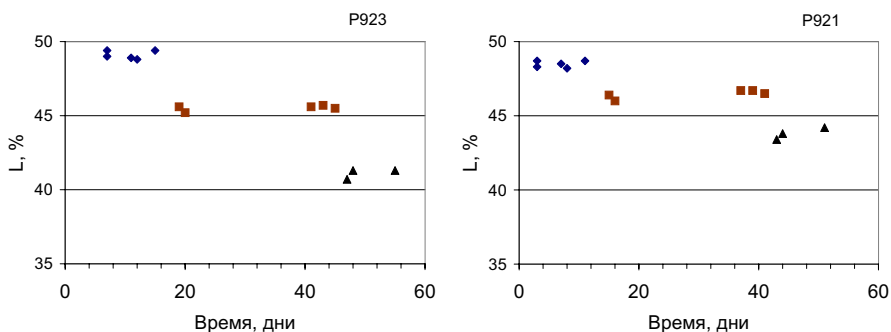


Рис. 7: Световыход двух кристаллов типа "Р" в зависимости от времени. \diamond - световыход образцов до облучения, \square - после облучения дозой 700 рад, \triangle - после 3200 рад.

4.1 Измерения с кристаллами типа "В" (пирамиды)

Из 25 образцов в форме усеченной пирамиды девять было облучено в несколько этапов до суммарной дозы 3600-3700 рад, шесть кристаллов до 1300-1400 рад и с десятью образцами были проведено два сеанса облучения — до 740-780 и до 3000-3200 рад.

На Рис.8 показано падение световыхода $\Delta L/L$ в зависимости от поглощенной кристаллом дозы для семи кристаллов в форме усеченных пирамид ("В"). Как видно из рисунка, поведение всех образцов характеризуется подобными кривыми. При небольших поглощенных дозах световыход кристалла падает быстро, но при увеличении поглощенной дозы падение световыхода замедляется (например, для кристалла В91 падение составило около 7% после облучения дозой 220 рад и только 27% при увеличении дозы до 3,6 крад).

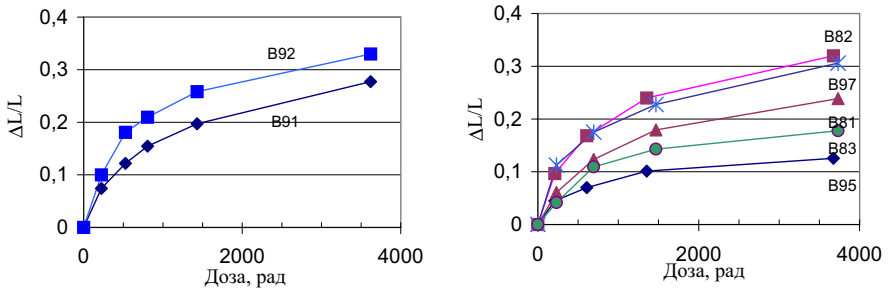


Рис. 8: Падение световыхода $\Delta L/L$ в зависимости от поглощенной кристаллом дозы для семи кристаллов типа "В".

На Рис.9 показано распределение образцов типа "В" по величине падения световыхода, $\Delta L/L$, после всех сеансов облучения. Видно, что распределение по этой величине весьма широкое. Так, например, после облучения дозой 700-800 рад $\Delta L/L$ для разных кристаллов составляет от 5% до 21%.

Как уже отмечалось ранее, при производстве кристаллов использовалась единая технология и один источник исходного сырья. Таким образом, широкое распределение по величине $\Delta L/L$

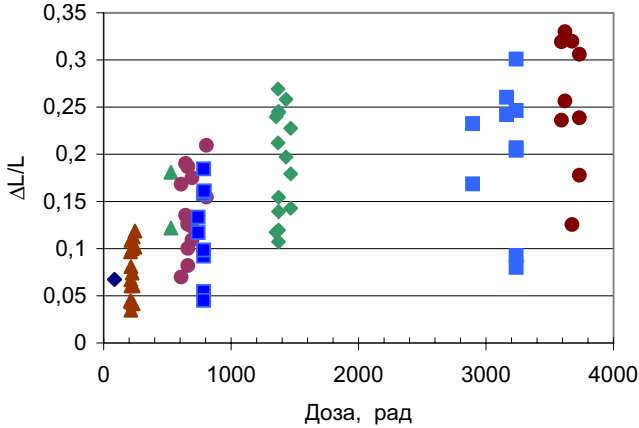


Рис. 9: Падение световыхода, $\Delta L/L$, для всех кристаллов типа "В" после облучения всеми дозами. Образцы "торцевых" типоразмеров обозначены - □.

свидетельствует о том, что радиационная стойкость, по-видимому, существенно зависит от неконтролируемых примесей в сырье или небольших изменений режима роста кристаллов, приводящих к появлению дефектов кристаллической решетки.

Изготовление элементов calorimeter детектора Belle, из числа которых были отобраны исследуемые образцы, продолжалось около четырех лет. При этом основное время заняло производство кристаллов для цилиндрической части calorimeter, в то время как кристаллы для торцевой части были изготовлены в последние 8 месяцев производства. В принципе, можно предположить, что в течение длительного периода производства как технология выращивания кристаллов, так и характеристики сырья могли несколько меняться. На Рис.9 выделены результаты для кристаллов "торцевых" типоразмеров, изготовленных в конце периода производства. Как видно из рисунка, распределения по $\Delta L/L$ для этих кристаллов слабо отличаются от подобных распределений для "цилиндрических" образцов.

На Рис.10 приведены средние величины $\Delta L/L$ в зависимости от поглощенной дозы. Точки, соответствующие "торцевым"

вым" кристаллам лежат несколько ниже, чем для остальных, хотя и согласуются с ними в пределах статистических ошибок.

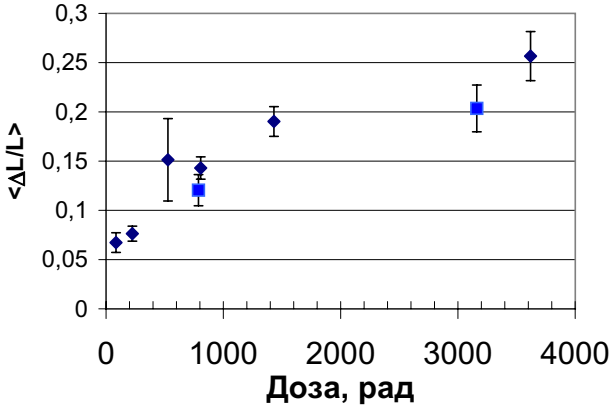


Рис. 10: Среднее падение световыхода, $\Delta L/L$, для кристаллов типа "В" в зависимости от поглощенной дозы. Образцы "торцевых" типов обозначены - \square .

Значения $\Delta L/L$, полученные в настоящей работе не противоречат результатам предыдущих измерений радиационной стойкости нескольких кристаллов для электромагнитного калориметра детектора BELLE, произведенных фирмой Crysmatec, Шанхайским Институтом Керамики (SIC) и Харьковским Институтом Монокристаллов [5].

Точность измерения падения световыхода составляет 1%. Таким образом ширина распределения по величине $\Delta L/L$ при определенной поглощенной дозе (см. Рис.9) не определяется ошибками измерений. Подтверждением этого является наличие хорошей корреляции между падением световыхода кристалла после облучения различными дозами. На Рис.11 показана зависимость между величинами падения световыхода кристаллов типа "В" при нескольких дозах облучения.

Сильная положительная корреляция, видимая на Рис.11 подтверждает сделанный выше вывод о том, что зависимость $\Delta L/L$ от поглощенной дозы имеет подобную форму для всех кристаллов.

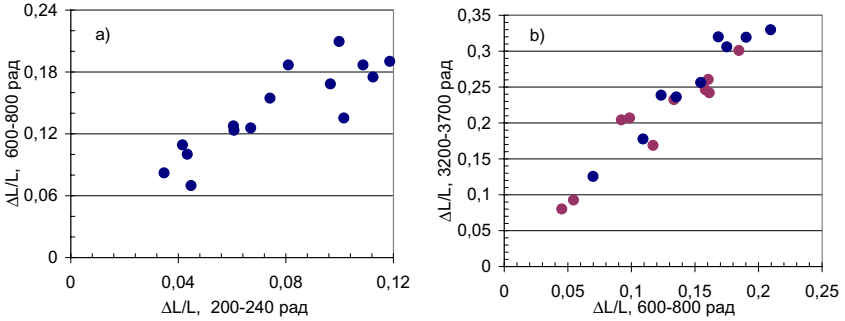


Рис. 11: Корреляция между падением световыхода кристаллов "В" после облучения дозами 200÷240 и 600÷800 рад (а) и дозами 600÷800 и 3200÷3700 рад (b).

Наличие такой корреляции делает принципиально возможной процедуру контроля радиационной стойкости каждого отдельного кристалла. При этом по изменению световыхода кристалла после облучения небольшой дозой можно делать заключение о его пригодности для работы в условиях определенных радиационных нагрузок.

С точки зрения практического применения кристаллов, из полученных результатов можно сделать вывод о том, что в случае необходимости работы кристаллов в условиях высокого радиационного фона, необходимо провести изучение радиационной стойкости на достаточно широкой выборке образцов.

Вспоминая о том, что данная работа была инициирована созданием калориметра детектора Belle, следует отметить, что все изученные образцы удовлетворяют соответствующим техническим требованиям на радиационную стойкость, предъявлявшимся к элементам калориметра.

Следует также отметить, что наличие образцов с весьма высокой для щелочно-галогидных сцинтилляционных кристаллов радиационной стойкостью ($\Delta L/L=8\%$ при дозе 3,2 крад) свидетельствуют о принципиальной возможности массового производства таких кристаллов после определенной доработки технологии их выращивания.

4.2 Изменение световыхода кристаллов типа "Р" (параллелепипеды)

Всего было исследовано 30 кристаллов в форме параллелепипеда с размерами $2 \times 2 \times 30$ см (кристаллы типа "Р"). 25 из них было облучено дозой 650 рад и после этого дополнительно дозой 2550 рад, так что суммарная доза составила 3200 рад. 5 кристаллов было сразу облучено дозой 3200 рад.

Распределение по величине $\Delta L/L$ для кристаллов типа "Р" после облучения дозами 650 и 3200 рад показано на Рис.12

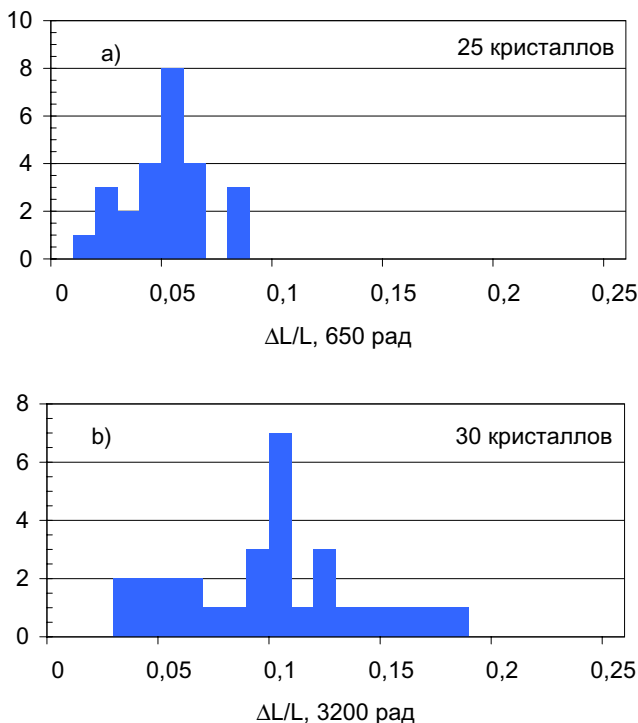


Рис. 12: Распределение кристаллов "Р" по падению световыхода после облучения дозами 650 рад (а) и 3200 рад (б).

Распределение, как и в случае кристаллов "В", широкое, однако падение световыхода для этих кристаллов значительно меньше

— $\langle \Delta L/L \rangle = (4,2 \pm 1.8)\%$ при 650 рад и $\langle \Delta L/L \rangle = (9,0 \pm 3.9)\%$ при 3200 рад. Сравнивая эти результаты с приведенными на Рис.10, находим, что падение световыхода для кристаллов в форме параллелепипеда оказалось в 2-3 раза меньшим, чем для образцов в форме усеченной пирамиды. Более детально этот эффект обсуждается в разделе 8.

На Рис.13 показана корреляция между падением световыхода для 25 кристаллов "Р" после облучения дозами 650 рад и 3200 рад. Как и в случае кристаллов "В" наблюдается хорошая корреляция между падением световыхода после облучения различными дозами.

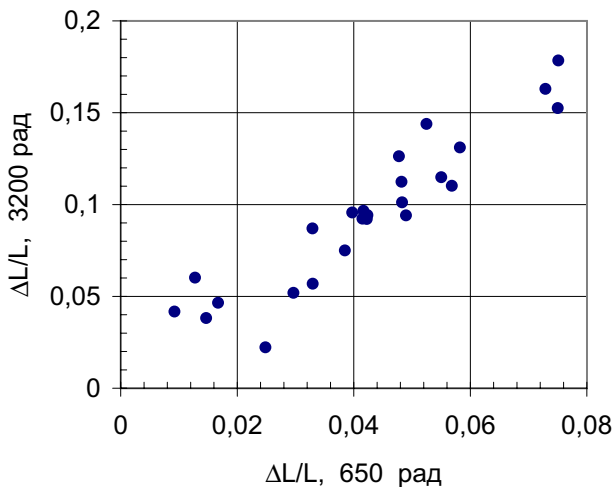


Рис. 13: Корреляция между падением световыхода 25 кристаллов "Р" после облучения дозами 650 и 3200 рад.

4.3 Изменение световыхода кристаллов типа "Р" при различных условиях светосбора

Как указывалось в разделе 2, для кристаллов "Р" имелась возможность измерения световыхода при съеме света с разных торцов (см. Табл.1). Для оценки точности измерения изменений световыхода и влияния неконтролируемой разницы в обработке торцов

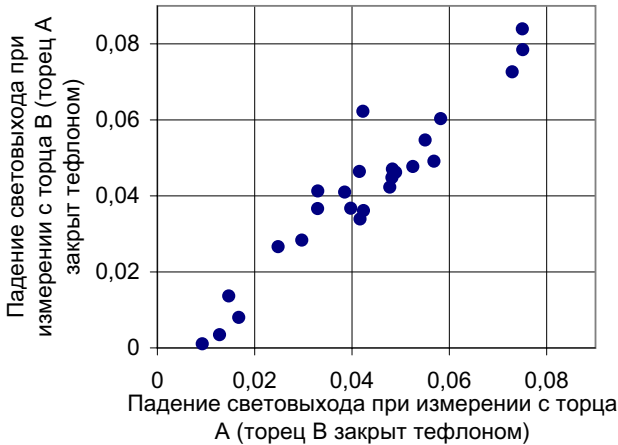


Рис. 14: Корреляция между падением световыхода кристаллов "Р" при измерении сигнала с разных торцов. Поглощенная доза составляет 650 рад.

кристалла, полировке боковых граней и оборачивании отражателем было проведено сравнение падения световыхода после облучения дозой 650 рад при измерении способом 1 (съём света с торца **a**, торец **b** закрыт двумя слоями тефлона) и способом 3 (съём света с торца **b**, торец **a** закрыт двумя слоями тефлона). Результаты измерений для 25 образцов представлены на Рис.14. Из рисунка видно, что измерения сигнала с различных торцов хорошо коррелируют, из чего можно сделать вывод о том, что неконтролируемая разница в процедуре подготовки детектора не вносит существенного вклада в наши измерения.

На Рис.15 произведено сравнение падения световыхода 25 образцов после облучения дозой 650 рад при измерении способом 1 (съём света с торца **a**, торец **b** закрыт двумя слоями тефлона) и способом 2 (съём света с торца **a**, торец **b** не закрыт). Имеется хорошая корреляция, причем оказывается, что падение световыхода при открытом дальнем торце несколько меньше чем при закрытом дальнем торце.

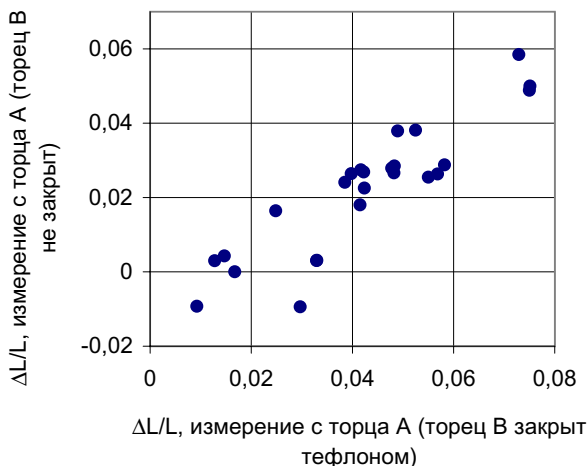


Рис. 15: Корреляция между падением световыхода кристаллов типа "Р" при измерении с закрытым и открытым дальним торцом. Поглощенная доза - 650 рад

5 Корреляция между радиационной стойкостью кристаллов изготовленных из одной були

Среди изучаемых образцов типа "В" имеется две пары кристаллов, каждая из которых изготовлена из одной були: кристаллы В67 и В62 вырезаны из були 49К3, кристаллы В65 и В64 вырезаны из були 65К1.

Среди кристаллов типа "Р", было 8 пар образцов, вырезанных из одной були. На двумерном распределении Рис.16 по оси абсцисс отложено значение $\Delta L/L$ для одного из кристаллов пары, а по оси ординат - значение той же величины для другого кристалла из той же пары. Представлены результаты измерений для всех десяти пар кристаллов после облучения дозой 650-780 рад (а) и дозой 3200 рад (б). Как видно из рисунка, радиационная стойкость кристаллов, изготовленных из одной були, с точностью до ошибок измерения одинакова, как в случае кристаллов типа "В", так и для образцов типа "Р".

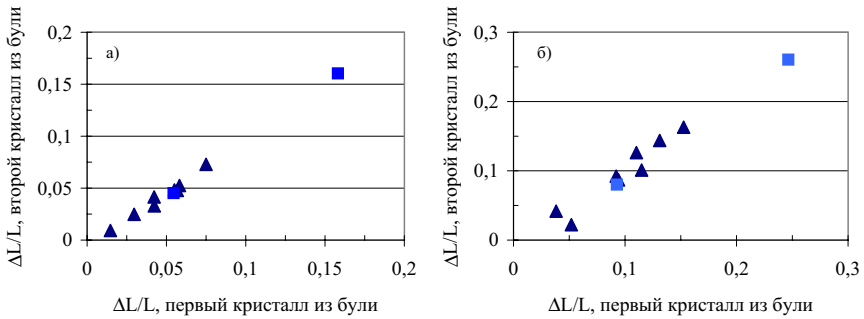


Рис. 16: Корреляция между уменьшением световыхода для 10 пар образцов обоих типов, вырезанных из одной були, после облучения дозой 650-780 рад (а) и 3200 рад (б). Δ — кристаллы "Р", \square — "В".

Таким образом, следует сделать вывод, что уменьшение световыхода облученных кристаллов определяется в основном свойствами выращенной були, в то время как вариации этих свойств по объему були, а также неконтролируемая разница в процедуре изготовления детектора, вносят существенно меньший вклад.

Существование корреляции между радиационной стойкостью кристаллов, вырезанных из одной були делает возможным массовый контроль радиационной стойкости кристаллов. Для этого достаточно облучить один кристалл из були и по результатам облучения сделать вывод о радиационной стойкости всего набора кристаллов, изготовленных из нее.

6 Восстановление световыхода со временем

Для некоторых сцинтилляционных кристаллов отмечено естественное частичное восстановление световыхода после облучения. Этот процесс наблюдался в кристаллах германата висмута [14], BaF_2 [15], $PbWO_4$ [16] и других. В работах [5, 17] отмечается наличие подобного эффекта и для кристаллов йодистого цезия.

В настоящей работе для изучения этого эффекта были проделаны специальные измерения с пятью кристаллами типа "Р" до и

после облучения дозой 3200 рад. Следует однако отметить, что наблюдение восстановления световыхода заметно осложняется сильным послесвечением CsI(Tl), которое непосредственно после облучения настолько существенно уширяет пьедестал, что измерение световыхода невозможно в течение первых суток.

На Рис.17 показана зависимость световыхода от времени для пяти кристаллов (P901 – P905) до и после облучения и одного необлученного кристалла (P925). Видно, что световыход кристаллов после облучения увеличивается с характерным временем несколько дней на величину порядка 20% от падения световыхода. Однако сделать надежный вывод о наблюдении восстановления нельзя, поскольку величина восстановления невелика и, в принципе, может быть связана с влиянием послесвечения на электронику и ФЭУ.

7 Изменение неоднородности световыхода кристаллов после облучений

На кристаллах типа "P" наблюдается некоторое изменение неоднородности световыхода после облучения дозой 3200 рад. Так, на Рис.18 представлена зависимость световыхода и неоднородности нескольких "P" кристаллов от времени. Виден рост неоднородности кристалла после облучения дозой 3,2 крад. Результаты измерения с кристаллом P925, не облучавшимся в данном сеансе, приведены для сравнения. Неоднородность световыхода кристалла определялась в соответствии с формулой (3).

Измерения, проведенные с кристаллами типа "B", не показали заметного изменения однородности световыхода после облучения.

8 Обсуждение результатов

В большинстве работ, посвященных изучению радиационной стойкости сцинтилляционных кристаллов, считается, что основной причиной потери световыхода после облучения кристаллов является ухудшение оптической прозрачности (см. например [18, 6]). С

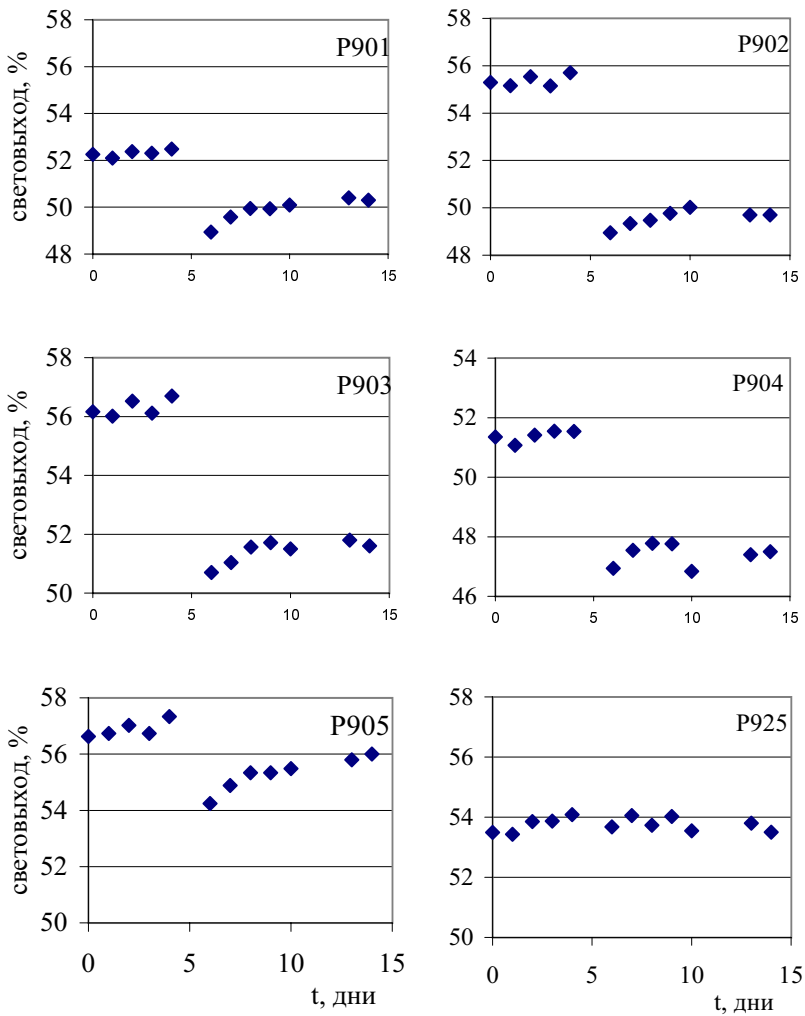


Рис. 17: Временная зависимость световыхода кристаллов. Скачок световыхода связан с облучением дозой 3200 рад. Результаты измерения с кристаллом P925, не подвергавшемся облучению, приведены для сравнения.

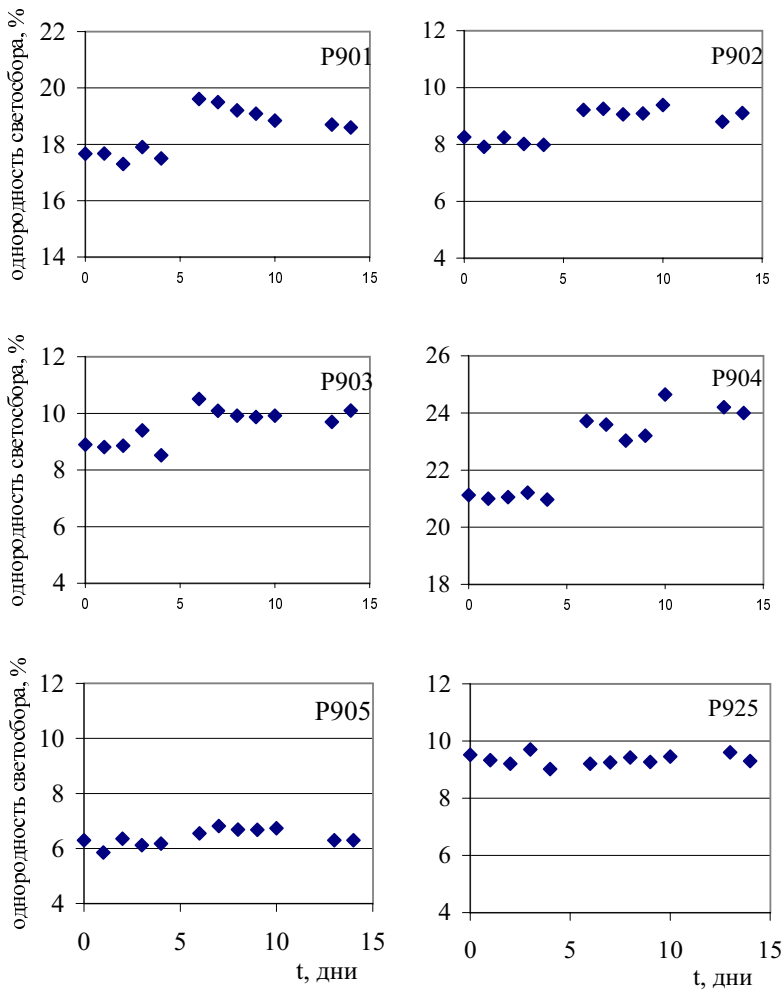


Рис. 18: Временная зависимость однородности кристаллов. Скачок связан с облучением дозой 3200 рад. Результаты измерения с кристаллом P925, не подвергавшемся облучению, приведены для сравнения.

другой стороны в ряде работ рассматривается эффект уменьшения сцинтилляционной эффективности материала, возникающий в результате облучения [19, 20]. Подробное обсуждение физических механизмов радиационно-стимулированных изменений свойств сцинтилляционных кристаллов, а также обширную библиографию по данному вопросу можно найти в книге [21].

В рамках настоящей работы не проводилось специальных исследований механизма ухудшения световыхода кристаллов. Заметим, однако, что для измерения мощности дозы на протяжении всей работы использовался один и тот же кристалл CsI(Tl) размером $2 \times 2 \times 1 \text{ cm}^3$, который периодически калибровался. Полная поглощенная этим кристаллом доза за все время измерений составила около 50 крад, однако не было обнаружено заметного (с точностью несколько процентов) уменьшения световыхода. В то же время, как было описано выше, потеря световыхода больших кристаллов наступает при значительно меньших дозах, что можно объяснить, предполагая, что основную роль в нашем случае играет увеличение поглощения сцинтилляционного света.

В целом, нам кажется достаточно обоснованным вывод о том, что, по крайней мере при умеренных дозах облучения, основным радиационно-стимулированным эффектом является ухудшение оптической прозрачности кристалла. В пользу этого свидетельствуют следующие аргументы:

- радиационно-индуцированное поглощение действительно наблюдается в прямых измерениях оптической прозрачности кристаллов [5, 22] и его величина не противоречит наблюдаемому уменьшению световыхода для детекторов с реальными размерами;
- кристаллы малого размера характеризуются меньшей деградацией световыхода при равных дозах, чем большие кристаллы.

Следует отметить, что помимо ухудшения оптической прозрачности кристалла, в результате облучения может появиться и дополнительное рассеяние фотонов в материале кристалла, как упругое,

так и неупругое, которое также может приводить к уменьшению сигнала детектора. Однако до настоящего времени этот эффект практически не исследовался.

Обсудим теперь результаты, полученные в разделе 4. Здесь в первую очередь обращают на себя внимание два обстоятельства — а) большой разброс по величине падения световыхода образцов после облучения и б) значительная разница в потере световыхода кристаллами в форме усеченных пирамид и в форме параллелепипедов.

Из а), с учетом высокой корреляции в радиационной стойкости кристаллов, изготовленных из одной були (см. раздел 5), следует вывод о том, что небольшие неконтролируемые вариации в процессе выращивания кристалла заметно влияют на его радиационную стойкость. В том случае, когда радиационная стойкость детектора является критическим параметром, необходимо проводить проверку радиационной стойкости образцов, вырезанных из каждой були.

Приведем некоторые соображения, которые могут объяснять эффект б). Прежде всего обратим внимание на условия светосбора для образцов "В" и "Р". Чувствительная область фотокатода ФЭУ, $S_{ph} \approx 16\text{см}^2$, полностью покрывает выходной торец кристалла типа "Р", $S_{out}^P = 4\text{см}^2$, и лишь частично — торец кристалла типа "В", $S_{out}^B = 35 \div 47 \text{см}^2$, $S_{ph}/S_{out}^B = 0.35 \div 0.44$. Тем не менее средний световыход кристаллов "В" всего на 15% меньше, чем для кристаллов "Р" (см. Рис.2). Можно предположить, что для сбора света в кристаллах "В" существенную роль играет многократное прохождение светового фотона через кристалл и, возможно, рассеяние при отражении от боковых граней и в объеме кристалла. Кроме того существенную роль при сборе света играет и форма кристалла. Все это должно приводить к увеличению средней длины пробега фотона до попадания на ФЭУ и, соответственно, к большей чувствительности к ухудшению оптической прозрачности кристалла.

На Рис.19 представлены значения начального световыхода 19 кристаллов типа "В" и величина падения световыхода, $\Delta L/L$, после экспозиции образцов до накопления дозы 3200-3700 рад в зависимости от площади выходного торца кристаллов, S . На фоне

большого разброса экспериментальных точек заметна некоторая корреляция между $\Delta L/L$ и S .

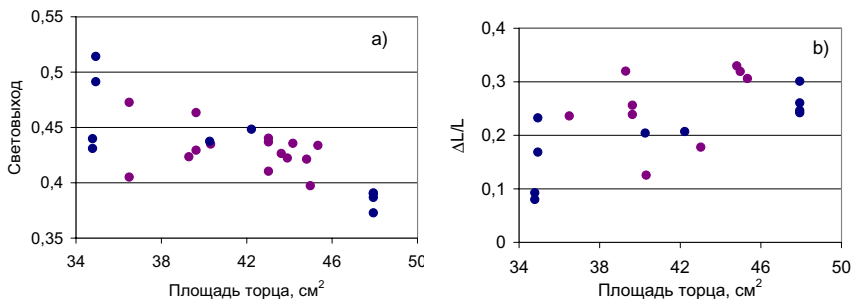


Рис. 19: **a)** – величина световыхода кристаллов типа "В" в зависимости от площади выходного торца; **b)** – потеря световыхода образцов при поглощенной дозе 3200-3700 рад в зависимости от площади выходного торца.

9 Заключение

В заключение перечислим основные результаты работы:

- в целом все исследованные кристаллы обладают достаточно высокой радиационной стойкостью для работы в детекторах на существующих В-фабриках;
- Кристаллы, изготовленные по одной технологии с использованием сырья одного производителя демонстрируют, тем не менее, значительный разброс по величине радиационно-стимулированной потери световыхода;
- однако кристаллы, изготовленные из одной були имеют одинаковый уровень радиационной стойкости;
- наблюдается большая разница в величине радиационно-стимулированной потери светосбора для образцов различной геометрии, что свидетельствует о существенной зависимости

радиационной стойкости детектора от его формы и условий светосбора.

- Наличие образцов с весьма высокой для щелочно-галогидных сцинтилляционных кристаллов радиационной стойкостью ($\Delta L/L=8\%$ при дозе 3,2 крад) свидетельствуют о принципиальной возможности массового производства таких кристаллов после определенной доработки технологии их выращивания.

Авторы выражают свою признательность Р.А.Салимову и Н.К.Куксанову за предоставленную возможность использования ускорителя ЭЛВ-6 и А.Е.Бондарю за многочисленные плодотворные обсуждения.

А Измерение поглощенной дозы

В настоящей работе в качестве детектора радиационной дозы используется кристалл CsI(Tl) размером $20 \times 20 \times 10$ мм обернутый тефлоновой пленкой (2 слоя 200 мкм пленки). Световой сигнал регистрируется вакуумным фотодиодом с массивным фотокатодом. Как показано на Рис. 4 на фотодиод подается напряжение ~ 40 В и измеряется протекающий через него фототок.

Выбор фотодиода с массивным фотокатодом обусловлен тем, что, как показывают оценки, при измерении радиационной дозы фототок может оказаться довольно большим, до 10-20 мкА. Поскольку при величине фототока ~ 10 нА и более у вакуумных фотоприемников с полупрозрачным фотокатодом падает эффективность сбора фотоэлектронов из-за нарушения однородности распределения потенциала по поверхности фотокатода, использование как фотодиода, так и ФЭУ с таким фотокатодом оказывается невозможным.

Использовать в качестве фотоприемника кремниевый фотодиод неудобно из-за того, что наряду с током от светового сигнала с кристалла CsI, I_{CsI} , в кремниевом фотодиоде будет течь ток I_{Si} , обусловленный поглощением в кремнии γ -квантов. Оценки показывают, что I_{CsI} и I_{Si} одного порядка и необходимость разделения этих токов уменьшает точность измерения.

Мощность дозы определяется выражением:

$$\frac{dD}{dt} = I_D/I_R, \quad (4)$$

где I_D — измеренный фототок, а I_R — калибровочная константа, равная величине фототока при мощности дозы 1 рад/сек.

$$I_R = C \cdot m \cdot e \cdot N_e^M \cdot K_\tau, \quad (5)$$

где $C=6,24 \times 10^8$ МэВ/г; m — масса кристалла в г; e — заряд электрона, N_e^M — нормировочная константа, число электронов, проходящих через фотодиод на 1 МэВ поглощенной в CsI энергии; K_τ — поправочный множитель, смысл которого будет объяснен ниже.

Таким образом ключевой задачей при использовании данного детектора (ИД) является калибровка, т.е. определение значения N_e^M и, с ее помощью, величины I_R . Схема стенда для калибровки детектора радиационной дозы изображена на Рис. 20

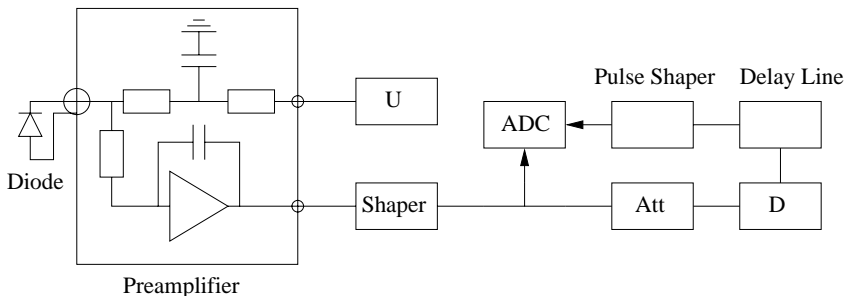


Рис. 20: Схема калибровки детектора радиационной дозы. Diode – кремниевый или вакуумный фотодиод, Preamplifier – зарядочувствительный усилитель, U – источник напряжения, Shaper – усилитель-формирователь, Att – аттенюатор, D – дискриминатор, Delay Line – линия задержки, Pulse Shaper – формирователь импульсов, ADC – АЦП.

Фотодиод подключается ко входу зарядочувствительного усилителя (ЗЧУ). С выхода ЗЧУ сигнал поступает на усилитель-формирователь (УФ) с временем формирования – 2 мкс. После этого сигнал оцифровывается АЦП.

На первом этапе процедуры калибровки определялась цена канала АЦП, κ , то есть число электронов в импульсе на входе ЗЧУ, соответствующее одному каналу АЦП. Для этого ко входу ЗЧУ присоединялся кремниевый PIN фотодиод, который облучался γ -квантами с энергией $E_\gamma = 60$ кэВ от источника ^{241}Am . Наблюдаемый амплитудный спектр представлен на Рис. 21 Один канал гистограммы соответствует 20 каналам АЦП. Калибровочная кон-

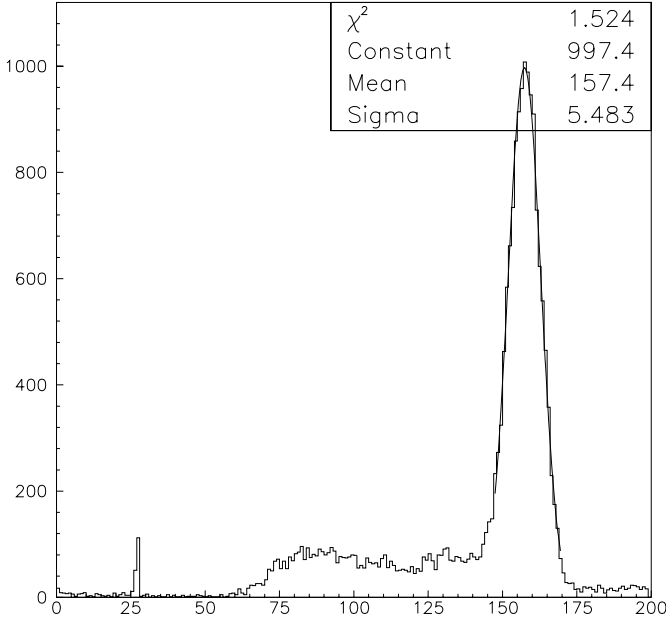


Рис. 21: Спектр ^{241}Am .

станта определялась как

$$\kappa = \frac{E_\gamma}{E_i} \cdot \frac{1}{A_{peak}},$$

где A_{peak} — положение фотопика, E_i — средняя энергия ионизации кремния, $E_i = 3.62$ эВ.

Следующим шагом было измерение амплитуды сигнала ИД, соответствующего поглощенной в кристалле CsI(Tl) энергии γ -кванта 1 МэВ. К сожалению, прямое измерение этой величины с помощью монохроматических источников γ -квантов ^{137}Cs (602 кэВ) или ^{22}Na (511 кэВ и 1275 кэВ) оказалось невозможным, так как измеренный уровень шумов (около 300 электронов) не позволяет наблюдать фотопик при полученном значении световыхода такого детектора $\sim 1000 e^-/\text{МэВ}$.

Для калибровки ИД использовался источник α -частиц ^{238}Pu ($E_\alpha = 5.1 \text{ MeV}$). Для того, чтобы α -частицы не поглощались в тефлоновой упаковке кристалла, в ней было проделано отверстие площадью $\sim 1 \text{ мм}^2$. Полученный спектр представлен на Рис. 22. Один канал гистограммы соответствует 5 каналам АЦП.

Из-за большой плотности ионизации на треке α -частицы с такой энергией, световыход для нее оказывается существенно ниже аналогичной величины для γ -квантов или электронов. Отношение сигналов от ^{238}Pu и от пика полного поглощения γ -квантов ^{137}Cs для данного кристалла измерялось отдельно с регистрацией сигнала с помощью ФЭУ. Пик ^{238}Pu соответствует энергии γ -кванта, поглощенной в CsI(Tl), равной $3.71 \pm 0.09 \text{ МэВ}$.

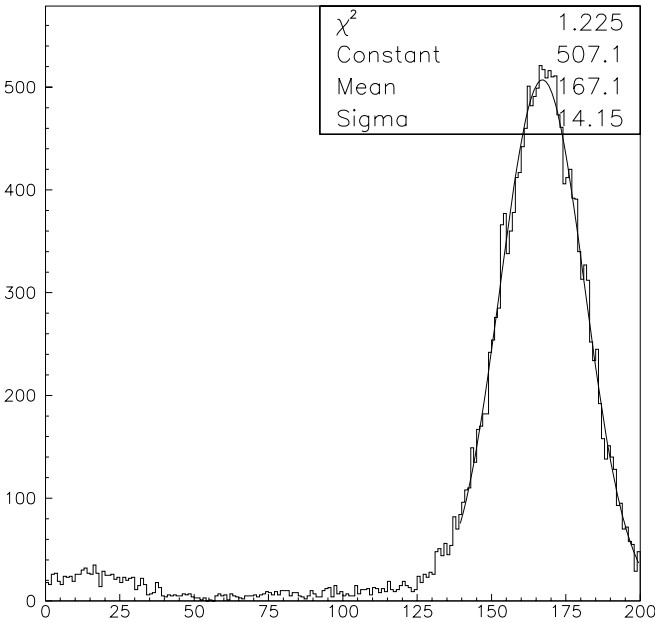


Рис. 22: Спектр ^{238}Pu .

В результате число электронов на выходе фотодиода на 1 МэВ выделенной энергии оказалось равным $N_e^M = (1180 \pm 30) \text{ эл./МэВ}$.

Следует отметить, что для калибровки цены канала АЦП использовался короткий (порядка 10 нс) импульс с PIN фотодиода, в то время как сцинтилляционная вспышка кристалла CsI(Tl) имеет гораздо большую длительность с основной компонентой высвечивания порядка 1 мкс, и меньшими по величине более медленными компонентами.

Для учета этого эффекта в формулу (5) был введен поправочный множитель K_τ . Его значение вычислялось с использованием формы световой вспышки, измеренной в работе [23], в которой экспериментальная зависимость с хорошей точностью аппроксимировалась тремя экспонентами с временами — $\tau_1 = 0,7$ мкс, $\tau_2 = 2,5$ мкс и $\tau_3 = 17$ мкс. В качестве лапласовского образа функции передачи усилителя-формирователя использовалась форма:

$$K_L(p) = \frac{p}{\tau_s^2(p + 1/\tau_s)^3},$$

с одинарным дифференцированием и двойным интегрированием, где τ_s — время формирования УФ. Такая форма соответствует появлению максимума выходного импульса для входного импульса-ступеньки при $t_{max} = 2\tau_s$, что и наблюдалось для используемого УФ. Значение поправочного множителя оказалось $K_\tau = 1,4$.

В результате описанной процедуры калибровки было получено значение $I_R = 0,3$ мкА·с/рад. Процедура калибровки повторялась несколько раз с интервалом в несколько месяцев давая близкие значения константы I_R .

Мы оцениваем относительную ошибку измерения поглощенной дозы данным методом величиной около 10%. Основные погрешности связаны с неточностью описания медленных компонент высвечивания сцинтиллятора, а также с неточностью в измерении отношения сигналов для α -частиц и γ -квантов.

Список литературы

- [1] R.S.Kessler *et al.*, Nucl. Inst. &Meth., **A368** (1996) 653.
- [2] K.Miyabayashi (For the Belle Electromagnetic Calorimeter Group) Nucl. Inst. &Meth., **A494** (2002) 298.
- [3] M.Kobayashi and S.Sakuragi, Nucl. Inst. &Meth., **A254** (1987) 275.
- [4] D. Renker, Proc. of 4th Topical Seminar on Perspectives for Experimental Apparatus for High-energy Physics and Astrophysics, San Miniato, Italy, 1990, p.350-356.
- [5] K.Kazui, *et al.*, Nucl. Inst. &Meth., **A394** (1997) 46.
- [6] M.A.H.Chowdhury, *et al.*, Nucl. Inst. &Meth., **A432** (1999) 147.
- [7] M.Yamauchi, Nucl. Phys. B (Proc.Suppl.) **111** (2002) 96.
- [8] D.Hitlin, **A494** Nucl. Inst. &Meth., (2002) 29.
- [9] A.Abashian, *et al.*, (Belle collaboration), Nucl. Inst. &Meth., **A479** (2002) 117.
- [10] С.Б.Орешкин, Квалификационная работа на соискание степени магистра, НГУ, Новосибирск, 1996.
- [11] Belle collaboration, Progress report, KEK Progress Report 97-1, April 1997.
- [12] B.Shwartz, Nucl. Inst. &Meth., **A453** (2000) 205.
- [13] Ю.И.Голубенко и др., Препринт ИЯФ 97-7, Новосибирск 1997.
- [14] G.J.Bobbink, *et al.*, Nucl. Inst. &Meth., **A227** (1984) 470.
- [15] R.Y.Zhu, Nucl. Inst. &Meth., **A340** (1994) 442.
- [16] R.Y.Zhu, *et al.*, Nucl. Inst. &Meth., **A376** (1996) 319.

- [17] R.Y.Zhu, *et al.*, Proc. 6th Int. Conf. on Calorimetry in High Energy Physics, Frascati Physics Series, 1996, p.577.
- [18] R.Y.Zhu, Nucl. Inst. & Meth., **A413** (1998) 297.
- [19] M.E.Globus and B.V.Grinyov, Functional materials, **3**, No.2 (1996) 231.
- [20] A.V.Gektin, Proc. of The 5th Int. Conf. on Inorganic Scintillators and their Applications, Moscow, 1999, p.79.
- [21] М.Е.Глобус, Б.В.Гринев, Неорганические сцинтилляторы, Акта, Харьков, 2000.
- [22] L.N.Shpilinskaya, *et al.*, Proc. of The 5th Int. Conf. on Inorganic Scintillators and their Applications, Moscow, 1999, p.79.
- [23] А.Ю.Гармаш, Квалификационная работа на соискание степени магистра, НГУ, Новосибирск, 1998.

*Д.М. Бейлин, А.И. Корчагин, А.С. Кузьмин,
Л.М. Курдадзе, С.Б. Орешкин, С.Е. Петров, Б.А. Шварц*

**Изучение радиационной стойкости
сцинтилляционных кристаллов CsI(Tl)**

*D.M. Beylin, A.I. Korchagin, A.S. Kuzmin,
L.M. Kurdadze, S.B. Oreshkin, S.E. Petrov, B.A. Shwartz*

**Study of the radiation hardness
of the CsI(Tl) scintillation crystals**

ИЯФ 2003-25

Ответственный за выпуск А.М. Кудрявцев
Работа поступила 25.03.2003 г.

Сдано в набор 27.03.2003 г.

Подписано в печать 28.03.2003 г.

Формат бумаги 60×90 1/16 Объем 1,4 печ.л., 1.1 уч.-изд.л.

Тираж 95 экз. Бесплатно. Заказ № 25

Обработано на IBM PC и отпечатано на
ротапринтере ИЯФ им. Г.И. Будкера СО РАН
Новосибирск, 630090, пр. академика Лаврентьева, 11.