

国产 CsI(Tl) 晶体辐照损伤实验研究

朱永生 陈宇 史焕章 喻纯旭
廖宜华 夏小米 赖元芬 张竹湘
钟学初 张彩娣 郑林生 张长春

(中国科学院高能物理研究所 北京 100039)

陈刚 任绍霞 郑燕宁

(北京玻璃研究所 北京 100062)

刘虎

(北京大学技术物理系 北京 100871)

摘要 研究了 CsI(Tl) 晶体在 1.3GeV e^- 束形成的电磁辐射场和 ^{60}Co γ 辐射场照射后的辐照损伤, 测量了晶体光输出和透射率的变化, 以及辐射损伤的自然恢复和加热恢复效应.

关键词 碘化铯晶体 辐照损伤 透射率 自然恢复 加热恢复

1 引言

高原子序数无机闪烁晶体(如 NaI(Tl)、CsI(Tl)、BaF₂、BGO 等)全吸收型电磁量能器可实现电子和光子能量的精确测量. 其中 CsI(Tl) 的光产额约为 NaI(Tl) 的 50% 左右, 明显高于其它所有晶体, 能获得好的能量分辨. 它只有轻度潮解, 避免了 NaI(Tl) 密封包装的不便; 辐射长度为 $X_0 = 1.85\text{cm}$, 优于 NaI(Tl) 和 BaF₂, 作为电磁量能器材料是可接受的; 其价格与 NaI(Tl) 相仿而低于其它所有晶体. 基于以上原因, CsI(Tl) 晶体被用作美国 SLAC B 介子工厂探测装置 BaBar 中电磁量能器材料^[1], 部分 CsI(Tl) 晶体将由上海硅酸盐研究所和北京玻璃研究所制作提供.

SLAC B 介子工厂加速器 PEP-II 设计为工作于质心系能量 $E_{\text{cm}} = 10.58\text{GeV}$ 、峰值亮度 $3 \times 10^{33}\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 的 e^+e^- 对撞机, 其亮度为现有 e^+e^- 对撞机的 10—100 倍, 束流强度高出一个量级以上. 粗略地估计, PEP-II 束流导致的辐照剂量率在距束轴半径 45cm 处为

1.5Krad / 年, 100cm 处为 0.5krad / 年 (BaBar 电磁量能器的设计位置). 但对撞机运行的实际经验表明, 束流注入阶段或对撞期间束流突然丢失会导致对探测器的瞬间大剂量辐照. 已有的研究报道^[2,3], CsI(Tl) 受到几百 rad 剂量后, 晶体光输出就有可感知的减少. 由于 BaBar 探测器将工作十年以上, 包括电磁量能器在内的各子探测器的抗辐照性能研究显然十分必要.

2 实验测量

2.1 CsI(Tl) 样品及其辐照

实验使用的 CsI(Tl) 晶体样品有: 优尼克公司与高能物理所合作生产的尺寸 $\phi 25 \times 15\text{mm}^3$ 和 $\phi 25 \times 10\text{mm}^3$ 的小圆柱晶体, 编号 ihcp 1[#], 2[#]; 北京玻璃研究所生产的五块晶体 bgri 1—5[#], 尺寸分别为 $40 \times 40 \times 35\text{mm}^3$ 、 $52 \times 53 \times 28\text{mm}^3$ 、 $20 \times 20 \times 20\text{mm}^3$ (两块) 和两底面分别为 48×48 、 $60 \times 60\text{mm}^2$ 、长 318mm 的梯形晶体. 其中梯形晶体 bgri 5[#] 与 BaBar 电磁量能器 CsI(Tl) 晶体单元的尺寸相仿. 所有晶体各端面均抛光. bgri 4[#] 除两个相对的端面外, 其余四面包以白纸, 其它晶体则除与光电倍增管 (PMT) 耦合的端面外均包白纸, 以提高脉冲输出幅度. 用肉眼观察, ihcp 1[#], 2[#] 透光性较好, bgri 1—5[#] 呈雾状, 透光性较差.

晶体的辐照在两个辐射场中进行. 其一是北京正负电子对撞机 (BEPC) 的直线加速器电子束在束流垃圾筒 (beam dump) 上方辐照孔内的辐射场. 电子束 (频率 12.5Hz、脉宽 2.5ns、能量约 1.3GeV、流强可调) 直接打到 beam dump 内, 在其上方插有内径 15cm 不锈钢管的直径 20cm、深 6m 的辐照孔内形成辐射场 (见图 1). 由于高能电子与周围介质的相互作用, 次级粒子的成分比较复杂, 但辐照孔内粒子的主要成分是各种能量的电子和光子. 在离束不同垂直距离处放置热释光剂量片, 用 RGD-3 热释光剂量仪 (精度 2%) 测量剂量片的剂量, 得到剂量率的垂直分布如图 2 所示. 进行晶体辐照损伤研究时, 根据所要求的剂量值, 选定适当的垂直距离, 将晶体和若干个剂量片同时照射, 用多个剂量片测定

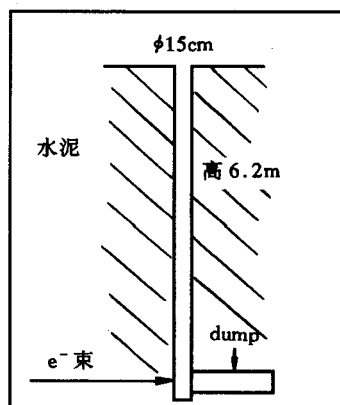


图1 BEPC beam dump
处辐照孔示意图

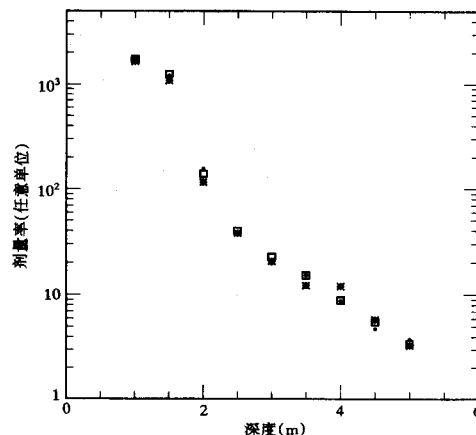


图2 BEPC beam dump 处辐照孔剂量率的垂直分布
□、* 分别表示剂量片的三种不同包装, 测得结果相近.

值的平均作为晶体所受的剂量, 以避免个别剂量片值不准确导致的误差. 该辐射场与 e^+e^- 对撞实验中探测器所处的辐射场相类似. 在 BEPC 辐照孔中的辐照损伤研究只进行到累积剂量 $\sim 10^4$ rad, 晶体样品为 ihep 1[#]和 bgri 1[#]、2[#].

本实验还利用了 中国军事医学科学院放射医学研究所 5.55PBq (150kCi) ^{60}Co 源, 该辐射场经实测和计算给出了空间辐照剂量率分布. 照射剂量由照射时间和样品位置确定, 误差小于 2%. 该辐射场优点是剂量值准确, γ 能量确定且单纯, 剂量容易控制且容易达到高的累积剂量. 缺点是剂量场与实验中探测器的辐射场差别较大. 样品 bgri 3—5[#] 在此场中进行了辐照研究, 其中长晶体 bgri 5[#] 在四次辐照中将四个长侧面分别面向辐照源, 因为在 BaBar 实验中, 如果发生束流丢失, 量能器 CsI(Tl) 晶体受到的照射主要来自侧面方向.

2.2 CsI(Tl) 晶体光输出测量

测量晶体光输出的装置见图 3. ^{137}Cs 源位于样品上方. 对长晶体 bgri 5[#], ^{137}Cs 源经 $\phi 10 \times 30\text{mm}^3$ 铅准直器垂直入射到晶体, 源位置到 PMT 窗的距离从 4—28cm 以 3cm 为间隔分 9 个点进行测量; 对其它样品, ^{137}Cs 到 PMT 窗的距离是固定的, 不使用准直器. 晶体与 PMT 窗之间为接触式空气耦合, 在光阴极附近用定位片保证样品重放时位置的重复性. 打拿极输出的正脉冲经放大成形, 其幅度由 ADC 测定并由多道分析器 MCA 分析. 为压低可能的噪声本底, 正确测量 ^{137}Cs 0.662MeV γ 射线的全能峰, PMT 阳极负脉冲经恒比定时甄别器 CFD 甄别后, 门电路产生一宽度适当的门控信号给 ADC 开门. ihep 2[#] 晶体 (不辐照) 作为标准样品, 其 0.662MeV 全能峰的多次测量表明, 系统的稳定性约为 $\pm 1\%$.

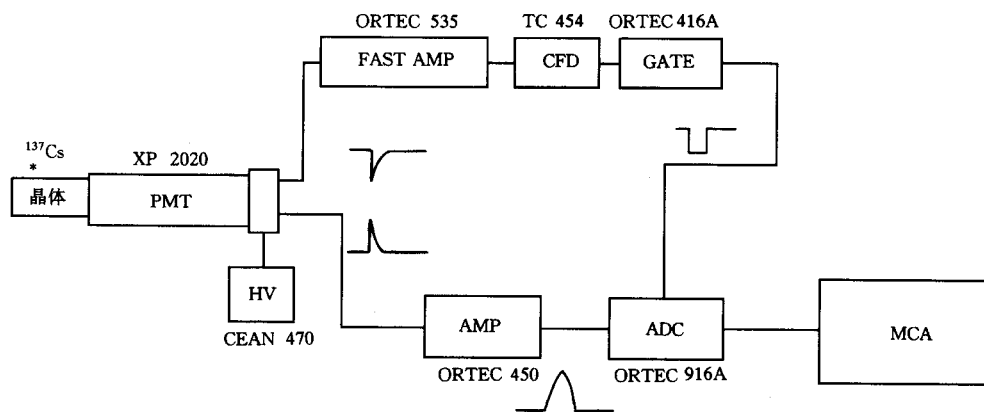


图3 测量CsI(Tl)晶体对 ^{137}Cs 源的光输出信号的实验装置

ihep 1[#]、bgri1、2[#] 在 BEPC beam dump 处辐照孔内辐照, bgri 3—5[#] 用 ^{60}Co 源辐照, 辐照剂量从小到大依次累加. 每次辐照前, 测量全能峰输出幅度, 然后用黑纸包装. 辐照后去掉黑纸进行输出幅度测量. 为避免天然光或日光灯照射对光输出性能的影响, 所有操作均在暗室红灯下进行.

3 实验结果

3.1 晶体辐照后的本底谱

实验中测量了 bgri 3[#] 样品经⁶⁰Co 源 3×10^3 rad 剂量辐照后的本底谱随时间的变化, 如图 4(a) 所示. 晶体受辐照后被激活, 出现的磷光衰减寿命约 49min. 随着照射剂量的加大, 本底计数率明显增加. 本底能谱未见明显的特征结构. 图 4(a) 中本底能谱随着时间向低能方向移动是由 ADC 的分辨时间 ($t_R = 15\mu\text{s}$) 造成的, 即当本底计数率很高时 (图 4(a) 中曲线 1、2、3), 在 t_R 时段内发生严重的堆积效应. 仅当样品辐照后放置足够长时间、本底计数率足够低时 (图 4(a) 曲线 4), 才呈现出本底能谱的本来形状. 这一点可由有源谱图 4(b) 得到印证. 当本底计数率很高时, ¹³⁷Cs 全能峰的位置由于堆积效应被抬高了 (曲线 1、2、3); 仅当本底计数率足够低, 不发生堆积效应时, ¹³⁷Cs 能谱才呈现正确的形状, 全能峰才到达其应有的位置.

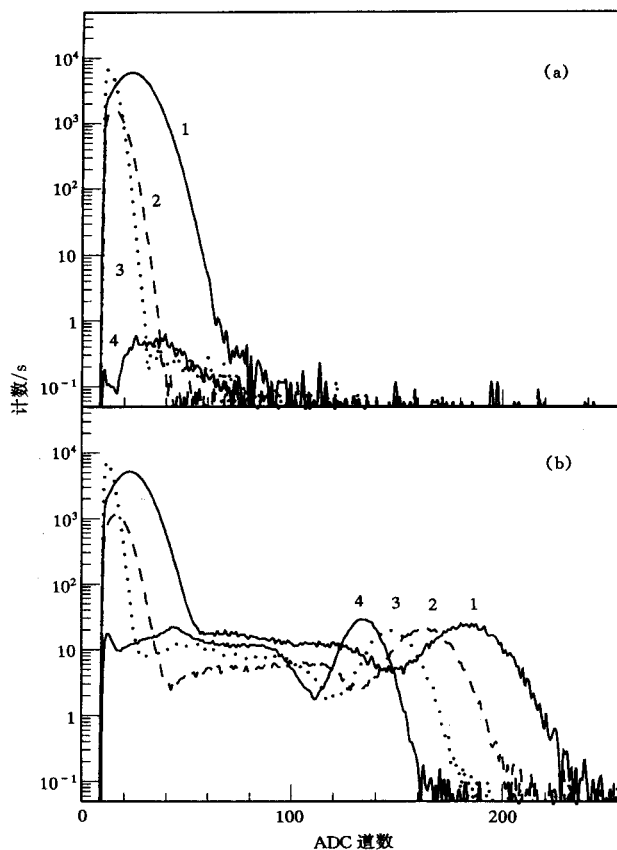


图 4 bgri 3[#] 晶体经⁶⁰Co 源 3×10^3 rad 辐照后的无源本底谱 (a) 和¹³⁷Cs 照射晶体的谱形 (b) 随时间的变化

- (a) 曲线 1、2、3、4 分别为辐照结束后 $t = 1.57$ 、 2.25 、 2.92 、 21.92 h 时测的谱形;
 (b) 曲线 1、2、3、4 分别对应于 $t = 1.65$ 、 2.10 、 3.22 、 21.52 h 时测的谱形.

其它样品如 bgri 5[#] 经辐照后, 同样观测到本底谱和本底计数率随时间衰减的现象, 但衰减寿命与 bgri 3[#] 并不一致, 表明这种被激活的磷光的特征与各晶体样品的内在品质相关联.

3.2 晶体辐照后的光输出

样品经辐照后放置一天, 本底谱已经稳定, 本底谱叠加影响已降到可忽略的水平, 再测量 ¹³⁷Cs 0.662MeV 全能峰的道数并与辐照前对比. 不经辐照的 ihcp 2[#] 样品的 0.662MeV 全能峰位置用作标定. ihcp 1[#]、bgri 1[#]、3[#]、5[#] 的相对光产额与辐照剂量的关系如图 5 所示. ihcp 1[#] 尺寸较小且透明度高, 实验显示有较好的抗辐照本领, 直到 2000 rad 其光产额保持不变. 其它样品则在 200 rad 辐照后即有可感知的损伤. bgri 1[#]、3[#] 损伤程度随剂量变化的大致趋势相近; 而体积较大的 bgri 5[#] 的光输出随剂量增大迅速降低, 在辐照剂量达 1.5×10^4 rad 后变成粉红色. 其它样品在相近剂量下颜色略微变深. 虽然 ihcp 1[#] 和 bgri 1[#] 在 BEPC 辐照孔内辐照, bgri 3[#]、5[#] 用 ⁶⁰Co 辐照, 两种不同辐射场中辐照损伤速率的差别似乎不明显, 但因样品尺寸、制备均不相同故难以作定量比较. 图 6 显示了 bgri 5[#] 晶体相对光输出沿长度方向的不均匀性. 辐照剂量 1.5×10^4 rad 以下, 其不均匀度好于 6%, 且与辐照剂量基本无关. 改进样品的包装和反射材料, 估计可进一步改善不均匀性.

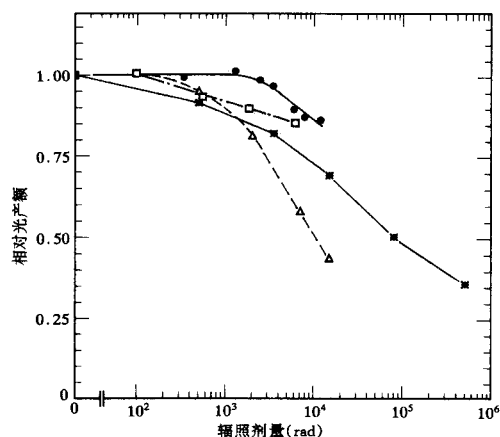


图 5 辐照后 CsI(Tl) 晶体光产额的实验测定

● ihcp 1[#]; □ bgri 1[#]; * bgri 3[#]; △ bgri 5[#].

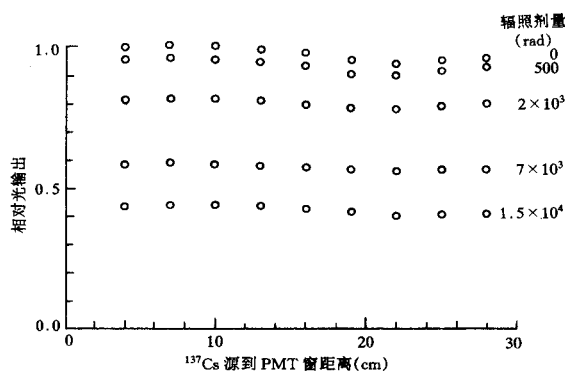


图 6 不同辐照剂量下, bgri 5[#] 样品相对光输出沿长度方向的不均匀性

3.3 晶体辐照后的透射率变化

测量透射率的装置是 PERKIN-ELMER, Lambda 17 紫外 / 可见分光光度计, 可测的波长范围为 200—800nm. bgri 3[#]、4[#] 样品是从同一块大晶体切割下来的, 且尺寸形状

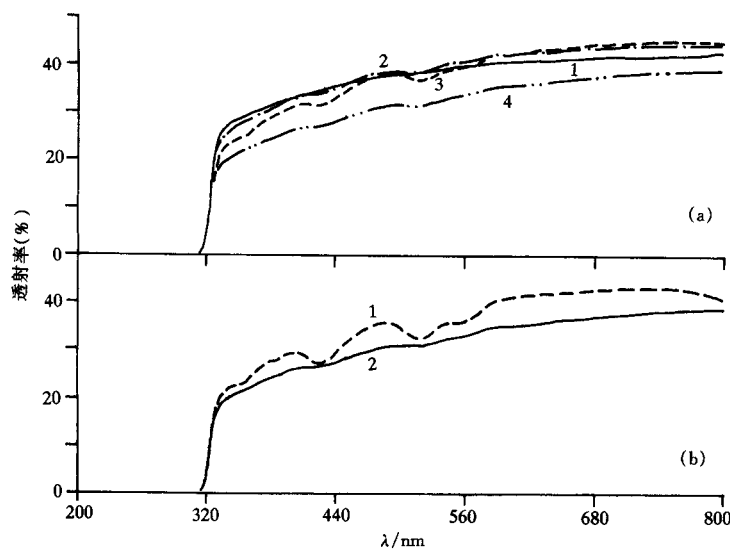


图 7 透射率随辐照剂量的变化

(a) bgrI 4[#] 样品透射率与辐照剂量的关系.

1. $\leq 3 \times 10^3$ rad; 2. 1.15×10^4 rad; 3. 6.5×10^4 rad; 4. 4.2×10^5 rad.

(b) bgrI 4[#] 样品辐照 4.2×10^5 rad 后, 透射率随时间的变化.

1. 辐照后 2.2 小时; 2. 辐照后 97.3 小时.

均相同. 在辐照时它们放在相同位置故辐照剂量相同. 每次照射后, bgrI 4[#] 作透射率测量, 它的透射率变化可反映 bgrI 3[#] 在同样剂量下的变化. 测量透射率时, 光束在晶体入射表面的反射损失未加考虑.

透射率随辐照剂量的变化如图 7 所示. 辐照剂量 500rad 和 3000rad 时的透射率曲线与未经照射的样品没什么差别, 如图 7(a) 中曲线 1 所示. 当辐照剂量增大, 样品在波长 320—560nm 区间内透射率变差; 当剂量增加到 4.2×10^5 rad 时, 整个测量波长区间内透射率下降, 而且随着时间的延长, 透射率有进一步变差的趋势 (见图 7(b)). 这种行为可能反映了晶体受辐照后被激活 (见 3.1 节本底谱的讨论) 因而释放出光子, 使“表观”透射率增大; 待到冷却一段时间后, 样品“平静”下来, 测量的透射率才反映其本来的透射特性.

3.4 辐照损伤的恢复

对辐照后样品光输出的自然恢复和加热恢复效应进行了测量.

样品 bgrI 3[#] 在最后一次照射后 (剂量为 3×10^5 rad) 在四天内光产额恢复了 8%, 其后恢复速率变缓. 但在 192 天后恢复到辐照前的 65%, 较之刚辐照完时的 37% 上升了 28%, 长期自然恢复效应相当明显. bgrI 5[#] 的恢复行为则有所不同, 在辐照 (剂量为 1.5×10^4 rad) 后 12 天内观测不到自然恢复效应, 173 天后光产额恢复到辐照前的 46%, 仅比刚辐照完时的 42% 上升了 4%, 长期恢复效应不显著.

将 bgrI 3[#]、5[#] 放在恒温加热箱中, 加热四小时使温度由室温 ($\sim 15^\circ\text{C}$) 上升到 200°C , 在该温度下保持二小时后自然冷却. 与辐照前相比, bgrI 3[#] 光产额由加热处理前的 65% 上升到 76%, bgrI 5[#] 由加热处理前的 46% 上升到 57%, 辐照造成的粉红色明显消退.

4 讨论

本实验中观测到 CsI(Tl)晶体受大剂量辐照后被激活而发射磷光的现象,其强度及衰减寿命与辐照剂量大小有关,且因各样品而异;不同样品辐照损伤的自然恢复特性不尽相同;此外,辐照损伤后的样品经加热处理后,其光输出产额较辐照前仍有较大差别,这一结果与文献 [4]不同. CsI(Tl)晶体不同样品的这种不同的性质是否与其杂质成分和含量有直接联系,是一个值得深入研究的课题. 无论如何,在如 BaBar 量能器这样使用大量 CsI(Tl)晶体单元的实验中,保持各晶体单元品质的一致性是十分重要的.

中国科学院高能所一室和优尼克公司 CsI(Tl)晶体制备小组为本实验提供了两块样品,北京正负电子对撞机运行组和军事医学科学院放射医学研究所钴源室为本实验作了样品辐照,高能物理所同步辐射研究室杨雨林作了透射率测量,在此一并表示感谢.

参 考 文 献

- [1] The BaBar Collab. Letter of Intent for the Study of CP Violation and Heavy Flavor Physics at PEP-II. SLAC-443, 1994. 167—200
- [2] Bieler Ch, Burkart D, Marks J et al. Nucl. Instr. Meth., 1985, A234(3):435—442
- [3] Woody C L, Kierstead J A, Levy P W et al. IEEE Trans. on Nucl. Sci., 1992, 39(4):524—531
- [4] He Jingtang, Mao Yufang, Do Xiaoli, et al. High Energy Phys. and Nucl. Phys, (in Chinese), 1997,21(1): 21—24
(何景棠, 毛裕芳, 董晓黎等. 高能物理与核物理, 1997, 21(1):21—24)

Experimental Studies on Radiation Damage of China Made CsI(Tl) Crystals

Zhu Yongsheng Chen Yu Shi Huanzhang Yu Chunxu
Liao Yihua Xia Xiaomi Lai Yuanfen Zhang Zhuxiang
Zhong Xuechu Zhang Caidi Zheng Linsheng Zhang Changchun

(Institute of High Energy Physics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039)

Chen Gang Ren Shaoxia Zheng Yanning

(Beijing Glass Research Institute, Beijing 100062)

Liu Hu

(Technical Physics Department, Beijing University, Beijing 100871)

Abstract The radiation damage of CsI(Tl) crystals after irradiation in radiation fields formed by 1.3 GeV electron beams and Cobalt-60 radiative source are investigated. The variations of the light yield and the transmittance, the natural recovery and the heat annealing recovery of the radiation damage are measured.

Key words CsI(Tl) crystal, radiation damage, transmittance, natural recovery, heat annealing