

ВЛИЯНИЕ СОДЕРЖАНИЯ АКТИВАТОРА НА ВЫХОД РАДИОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ, СВЕТОВОЙ ВЫХОД И ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЕ РАЗРЕШЕНИЕ КРИСТАЛЛОВ CsI(Tl)

В диапазоне содержаний таллия (C) от 0,01 до 0,32 мол.% Tl изучены концентрационные зависимости выхода радиолюминесценции (РЛ), светового выхода (L) и энергетического разрешения (R) кристаллов CsI(Tl), выращенных методом вытягивания на затравку. Показано, что в указанном диапазоне C концентрационное тушение выхода РЛ не наблюдается. Форма кривых $L(C)$ зависит от спектральной чувствительности использованных ФЭУ (Hamamatsu R1307, $\lambda_{\text{MAX}} \sim 415$ нм; и R669, $\lambda_{\text{MAX}} \sim 600$ нм). Независимо от фотоприемника значения R уменьшаются с ростом C , даже в области постоянства L .

ВВЕДЕНИЕ

Концентрационная зависимость светового выхода является важной характеристикой сцинтилляционных систем, так как содержание активатора (C) служит единственным реально управляемым параметром и существенно определяет свойства сцинтилляторов. Влияние C на световой выход (L) кристаллов CsI(Tl) при возбуждении гамма-квантами и альфа-частицами изучалось многими авторами [1-7]. Результаты этих работ суммированы на рис.1. Несмотря на то, что приведенные на рис.1 зависимости, за исключением [6], относятся к одному и тому же методу выращивания по Бриджмену, видно, что они существенно различаются. Вопрос об оптимальном содержании активатора нельзя считать разрешенным принципиально. Принято считать, что зависимость $L(C)$ характеризуется наличием плато в некотором интервале C , в пределах которого световой выход максимален, например кривые 3 и 4 рис.1. При выращивании кристаллов методом Бриджмена-Стокбаргера активатор по высоте слитка распределен неравномерно, в этом случае под оптимальным содержанием активатора часто понимают интервал, в пределах которого C не выходит за рамки плато зависимости $L(C)$. К сожалению, данных о зависимости $L(C)$ для кристаллов, полученных методом вытягивания на затравку, нет, за исключением работы [6], где изучен узкий интервал малых концентраций таллия. Практически нет данных об аналогичной зависимости энергетического разрешения (R).

Благодаря тому, что спектр люминесценции CsI(Tl) неплохо согласуется со спектральной чувствительностью кремниевых фотодиодов (ФД), эти кристаллы нашли широкое применение в физике высоких энергий, дефектоскопии, мониторинге АЭС и пр. [8]. Зависимости $L(C)$ с регистрацией сигнала при помощи ФД изучались в работах [4, 5] и представлены на рис.1 кривыми 4 и 5.

Целью настоящей работы было исследование влияния C на спектральный состав и выход радиолюминесценции (РЛ), а также на L и R для кристаллов, выращенных модифицированным методом Киропулоса, с использованием фотоприемников, имеющих максимум чувствительности в "синей" и "красной" области спектра.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Исследовались кристаллы CsI(Tl), выращенные автоматизированными методами вытягивания на затравку с подпиткой порошкообразным [9] или расплавленным сырьем [10]. Сцинтилляторы размером $\varnothing 25 \times 20$ мм вырезались из монокристаллических буль диаметром до 500 и высотой до 350 мм, с однородным ($\pm 5\%$) распределением C по объему. Для построения зависимостей использовались образцы с содержанием примесных молекулярных анионов не более 8×10^{-5} мол.%. Особенностью кристаллов было то, что они дополнительно содержали примесь натрия в качестве соактиватора [11] в количестве $(7-9) \times 10^{-3}$ мол.% NaI.

Спектры РЛ измерялись для образцов размером $\varnothing 20 \times 4$ мм на монохроматоре МДР-23, оснащенный ФЭУ-100. В спектры внесены необходимые поправки на дисперсию монохроматора и чувствительность приемника. Люминесценция возбуждалась гамма-линией (60 КэВ) изотопа ^{241}Am активностью 1,8 Ки. Выход РЛ (η) в относительных единицах определялся как площадь под кривой интенсивности люминесценции от энергии фотонов. Сцинтилляции возбуждались гамма-квантами радионуклида ^{137}Cs с энергией 662 КэВ и регистрировались с помощью "синего" ФЭУ Hamamatsu R1307 ($\lambda_{\text{MAX}} \sim 415$ нм) и "красного" R669 ($\lambda_{\text{MAX}} \sim 600$ нм). Содержание активатора определялось абсорбционным методом и проверялось химическим анализом на таллий и приведено ниже в молярных долях %.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис.2 приведены спектры РЛ кристаллов с различным содержанием активатора. Для удобства сравнения концентрационных изменений РЛ спектры нормированы по максимальной интенсивности. Видно, что спектр состоит из двух главных полос. Первая полоса неэлементарна и состоит из ряда перекрывающихся полос в области 400-440 нм, которые обусловлены как внутрицентровыми переходами в ионе Tl^+ , так и свечением локализованных экситонов у дефектов решетки примесного и структурного характера. В нашем случае определяющую роль в это свечение вносит соактиватор, особенно при небольших содержаниях таллия. Вторая, более интенсивная, находится в области 560 нм и обусловлена свечением локализованных экситонов у Tl^+ [9]. Световой выход пары "CsI(Tl)+ФД" определяется выходом свечения 560 нм [4,12].

Соотношение указанных полос зависит от концентрации таллия, относительный выход неэффективного для "красного" фотоприемника свечения 400-440 нм довольно значителен при небольших содержаниях таллия. Суммарный выход РЛ, как это видно из данных рис.2, остается постоянным в рассматриваемом диапазоне содержаний таллия. В области постоянства η с ростом C происходит заметное перераспределение интенсивностей полос люминесценции в пользу длинноволновой. Начиная с $C \geq 0,09\%$ TlI изменения в спектрах менее заметны, а форма спектра практически не отличается от активаторного свечения при фотовозбуждении в длинноволновой полосе поглощения Tl^+ . Такое поведение РЛ свидетельствует о том, что концентрационного тушения выхода в рассматриваемом диапазоне содержаний таллия нет. В то же время относительный выход люминесценции в области чувствительности различных фотоприемников изменяется.

Рассмотрим полученные зависимости $L(C)$ и $R(C)$. На рис.3 приведены зависимости для случая, когда приемником света служил фотоумножитель с максимальной чувствительностью в области 415 нм. Плато зависимости $L(C)$, как это видно из кривой 1, простирается в диапазоне $0,01 < C < 0,12 \% \text{ TlI}$. Отличительной чертой этой зависимости есть то, что плато выхода расширено в сторону малых содержаний таллия. Объяснение такого характера зависимости состоит в постоянстве выхода РЛ и вытекает из данных рис.2 – недостаток таллиевых центров свечения компенсируется наличием соактиватора, люминесценция которого соответствует чувствительности ФЭУ. Спад выхода в области высоких концентраций таллия выражен слабо и не связан, как это видно из сопоставления данных рис.2 и 3, с концентрационным тушением люминесценции. Важное значение имеет характер зависимости $R(C)$ — значения R монотонно убывают с ростом C в области постоянства L .

На рис.4 приведены зависимости $L(C)$ и $R(C)$, полученные с использованием фотоумножителя с максимумом спектральной чувствительности в области 600 нм. Плато зависимости $L(C)$, как это видно из кривой 1, простирается в диапазоне $0,08 < C < 0,3 \% \text{ TlI}$. Разброс значений L при $C > 0,2 \%$ связан с тем, что прозрачность части кристаллов в области свечения была хуже, и может быть уменьшен дополнительным отжигом. Световыход детекторов меньшей толщины (5 мм) практически одинаков во всей области плато. Разрешение имеет тенденцию к улучшению во всем указанном интервале.

Характер зависимости $R(C)$ – значения R монотонно убывают с ростом C независимо от фотоприемника – имеет принципиальное значение. Это означает, что собственное разрешение детектора можно улучшить путем увеличения концентрации центров свечения, как и предполагалось в [13]. Аналогичный результат ранее был получен для кристаллов NaI(Tl) [14]. Для CsI(Tl) подобный ход зависимости $R(C)$ наблюдал автор [7] при регистрации сигнала ФД, но в цитируемой работе кривая $L(C)$ не имела выраженного участка плато. Ценность настоящих результатов состоит в том, что улучшение разрешения наблюдается в интервале концентраций, где световыход постоянен и имеет максимальные значения.

Этот факт является экспериментальным подтверждением того, что в собственное разрешение кристалла важный вклад вносит непропорциональность выхода энергии электронов. Нелинейность $L(E)$ в области низких энергий (5,9 КэВ) можно частично исправить увеличением C [15]. Соответственно, флуктуации локального выхода в треке, связанные с рождением δ -электронов, будут уменьшены и собственное разрешение улучшено.

Из полученных результатов можно сделать некоторые выводы об оптимальной концентрации активатора для спектрометрических применений CsI(Tl). Нам неизвестны работы, где бы этот вопрос обсуждался с использованием зависимости $R(C)$. Важное значение имеет тип фотоприемника. Следует еще раз отметить [8], что лучшее разрешение достигается для пары "CsI(Tl)+ФЭУ". Наш опыт показывает, что для стандартно упакованных детекторов размером 51×51 мм с содержанием таллия в пределах от 0,1 до 0,14 % TlI разрешение по ^{137}Cs обычно составляет 6,2-6,4% (для Hamamatsu R1306 и R1307) при максимальном световом выходе. Лучшие результаты для "красного" фотоприемника (R669) составляют 8,1-8,4 % и достигаются при несколько большей

концентрации активатора: $0,15 < C < 0,22$ % TlI. Значения $R \sim 6$ % для пары "CsI(Tl)+ФД" достигнуты только для кристаллов небольшого ($10 \times 10 \times 10$ мм) размера [8].

В течение довольно продолжительного времени полагалось, что указанные концентрации недопустимы, т.к. попадают в область концентрационного тушения световых выходов. Тушение выходов объясняли агрегатизацией активатора [16], т.е. начальными стадиями распада твердого раствора. В настоящее время понятно, что до значений C , по крайней мере, 0,3 % (а по данным [7] до 0,6%) тушения выходов нет. Более того, теоретические оценки показывают [17], что ионы Tl^+ вообще не склонны к образованию сложных центров сверхстатистически равновесного их количества, в отличие от активаторов в системах CsI(Na) и NaI(Tl). Предельная растворимость TlI в CsI по оценкам, выполненным в [12], составляет 1,27 %.

Из кристаллов с содержанием активатора в диапазоне $0,15 < C < 0,22$ % TlI были изготовлены как стандартные сцинтилляторы небольшого размера, так и длинномерные модули в виде усеченных пирамид длиной до 327 мм для калориметра BaBar [18]. В проекте [18] сцинтилляции регистрируются ФД, т.к. калориметр находится в магнитном поле. Модули с указанным C обладают высоким световыходом и энергетическим разрешением, лучшим соответствием спектрального состава РЛ чувствительности кремниевых фотодиодов и выгодно отличаются от таковых с меньшей концентрацией активатора высокой однородностью L вдоль оси пирамиды.

Возвращаясь к данным рис.1, отметим, что наши выводы об оптимальном содержании активатора не могут носить общего характера, т.к. зависимости $L(C)$ существенно определяются способом и технологией выращивания кристаллов. Еще раз подчеркнем, что весомым аргументом в этом вопросе является характер зависимости $R(C)$.

Библиографический список

1. Цирлин Ю.А., Комник С.Н., Соيفер Л.М. // Оптика и спектроскопия. 1959. Т. 4. Вып.3. С. 422-424.
2. Gwin R., Murray R. // Phys. Rev. 1963. V. 131. N 2. P. 501-512.
3. Аверкиев В.В., Лухачев В.Н., Ляпидевский В.К. и др. // Сб. Трудов VIII Всесоюзной конференции по сцинтилляторам, Харьков. 1981. С. 83-86.
4. Schotanus P., Kamermans R., Dorenbos P. // IEEE Trans.Nucl.Sci. 1990. V. 37. N 2. 177-182.
5. Renker D. // CERN (Rep). CERN 89-10, ECFA Study. Week Instrum.Technol. High-Luminosity Hadron Colliders. 1989. V. 2, P. 61-67.
6. Grabmaier B.C. // IEEE Transactions on Nuclear Science. 1984. V. NS-31. N 2, 372-376.
7. Zheng J.N., Ren S.X., Zheng F.Y. // Proc. Int. Conf. SCINT-95, Delth, The Netherlands. 1995. P. 88-91.
8. Атрощенко Л.В., Бурачас С.Ф., Гальчинецкий Л.П., Гринев Б.В., Рыжиков В.Д., Старжинский Н.Г. Кристаллы сцинтилляторов и детекторы ионизирующих излучений на их основе.– Киев: Наукова думка, 1998. С.310.
9. Goryletsky V.I., Eidelman L.G. et al. // J.Crystal Growth. 1993. V.128. P. 1059-1064.
10. Zaslavsky B.G., Kudin A.M., Vasetsky S.I., et al. // J. Cryst. Growth. 1999. V. 198/199. P. 856-859.

11. Сцинтилляционный материал на основе йодида цезия и способ его получения. Патент. Украина – заявка № 96051870 от 14.05.96. Положительное решение от 08.10.99; Россия – № 2138585 от 27.09.99; США № 5876630 от 02.03.99.
12. *Shakhova K.V., Kovalyova L.V., Grinyova T.B.* // Functional materials. 1998. V. 5. N 1. P.36-39.
13. *Цирлин Ю.А.* // Физика и химия органических и неорганических материалов. Харьков: ВНИИ монокристаллов. 1986. № 16. С. 8-20.
14. *Кудин А.М., Панова А.Н., Удовиченко Л.В.* // Сцинтилляционные материалы, Харьков: ВНИИ монокристаллов. 1987. № 20. С. 30-34.
15. *Загарий Л.Б., Выдай Ю.Т.* // Оптические и сцинтилляционные материалы, Харьков: ВНИИ монокристаллов. 1982. № 9. С. 154-155.
16. Розенберг Г.Х., Чайковский Э.Ф. // Монокристаллы и сцинтилляторы, их получение и свойства. Харьков: ВНИИ монокристаллов. 1979. № 3. С. 151-154.
17. *Гектин А.В., Шепелев А.А., Шуран Н.В.* // Известия ВУЗов. Материалы электронной техники. 1999. № 4. С. 33-35.
18. *VaBar Collaboration* // Technical design report. 1995. SLAC-R-95-457.

Abstract

V.I. Goryletsy, B.G. Zaslavsky, D.I. Zosim, L.V. Kovalyova, A.M. Kudin, L.N. Shpilinskaya

Effect of the activator concentration on the radioluminescence yield, light output and energy resolution of CsI(Tl) crystals

The concentration dependencies of the radioluminescence (RL) yield, light output (L) and energy resolution (R) of CsI(Tl) were studied in the range of Tl content (C) 0.01- 0.32 mol.% of TlI for crystals grown by pulling on the seed. It has been shown that concentration quenching of RL yield is not observed in the range of C shown. The shape of $L(C)$ curves varies depending on the spectral sensitivity of used PMT (Hamamatsu R1307, $\lambda_{\text{MAX}} \sim 415\text{nm}$ and R669, $\lambda_{\text{MAX}} \sim 600\text{nm}$). Regardless of the type of PMT, R value decreases with the C growth, even in the range of L constancy.