

СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫЕ СВОЙСТВА КРИСТАЛЛОВ CaJ_2 И НЕКОТОРЫЕ ФАКТОРЫ, ВЛИЯЮЩИЕ НА НИХ

В. Р. Альперович, Н. И. Комяк, А. Б. Лыкович и Г. М. Пенцак

Исследуются люминесцентные и сцинтилляционные свойства чистых и легированных различными примесями кристаллов CaJ_2 . Установлена связь между интенсивностью пиков термовывесивания и скоростью счета импульсов, обусловленных высвечиванием запасенной на уровнях захвата светосуммы. Показано, что наибольшим сцинтилляционным выходом обладают кристаллы CaJ_2 , выращенные в кварцевых ампулах из чистого сырья при непрерывной вакуумной откачке ампулы в процессе роста кристалла. Плотность высокотемпературных уровней захвата у таких кристаллов мала.

При регистрации и диагностике рентгеновского и мягкого гамма-излучения с помощью сцинтилляционного счетчика весьма важной является величина световыхода сцинтилляций кристалла. Сравнительно высокая интенсивность свечения кристалла позволяет получать большие значения амплитуд сцинтилляций в фотопике, в результате чего фотопик более четко отделяется от аппаратурного фона и спектрометрические характеристики счетчика улучшаются.

В 1964 г. Хофштадтером было показано, что выращенные им кристаллы CaJ_2 и $\text{CaJ}_2(\text{Eu})$ обладают весьма высоким сцинтилляционным выходом (в $1.5 \div 2$ раза больше, чем у NaJ-Tl) [1].

Высокий выход сцинтилляций в кристаллах иодистого кальция делает весьма заманчивым возможность использования их в качестве детекторов длинноволнового рентгеновского излучения.

В процессе поиска оптимальной технологии выращивания монокристаллов CaJ_2 с высокими сцинтилляционными свойствами нами был получен ряд образцов, спектрометрические свойства которых оказались различными. Кроме того, для большинства кристаллов, возбужденных монохроматическим рентгеновским излучением, в дифференциальном спектре импульсов кроме фотопика наблюдались импульсы с меньшей амплитудой, которые не были связаны с импульсами аппаратурного фона.

В этой связи нами исследован ряд факторов, которые могут влиять на величину световыхода и спектрометрические свойства кристаллов иодистого кальция. Была изготовлена партия сцинтилляционных детекторов, исследованы сцинтилляционные, рентгенолюминесцентные свойства, центры захвата в кристаллах иодистого кальция, выращенных в кварцевых ампулах из чистого сырья при непрерывной вакуумной откачке ампулы в процессе роста кристалла,¹ а также выращенных в запаянных ампулах с примесью иодата J_2O_5 , с различной концентрацией примеси европия, меди и свинца.

Спектры рентгенолюминесценции кристаллов CaJ_2 исследованы в области температур $90-300^\circ\text{K}$ на монохроматоре ЗМР-3. В качестве источника рентгеновского возбуждения использовался аппарат типа УРС-55А (трубка с молибденовым антикатодом, режим работы: 12 ма и 40 кв).

¹ В дальнейшем такие кристаллы будем называть чистыми.

Термолюминесценция кристаллов изучалась в процессе нагревания образца с постоянной скоростью нагрева (0.03 град./сек.) от температуры 90° К, при которой образец предварительно возбуждался рентгеновскими лучами. Спектр рентгенолюминесценции, а также интегральное свечение термолюминесценции регистрировались с помощью ФЭУ-18 и отсчетного устройства УФ-206. Наряду с этим установка для измерений термолюминесценции позволяла одновременно анализировать спектральный состав свечения каждого пика термолюминесценции.

Спектрометрические свойства кристаллов изучались при комнатной температуре с помощью анализатора импульсов АИ-100-1 и сцинтилляционного счетчика СРС-1-0 с фотоумножителями ФЭУ-35А или ФЭУ-51. Кристаллы возбуждались рентгеновским излучением с энергией 5.9 кэВ от источника ^{55}Fe . Световыход, т. е. величина амплитуды сцинтилляций фотопика, определялся относительно эталонного сцинтиллятора NaJ-Tl, величина амплитуды сцинтилляций фотопика которого была принята за единицу.

Результаты исследований и их обсуждение

Исследования спектров рентгенолюминесценции различных кристаллов на основе CaJ_2 показали (табл. 1), что их свечение находится в области 410—435 нм при комнатных температурах, за исключением кристаллов

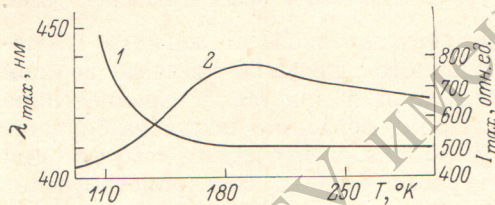


Рис. 1. Зависимость положения максимума полосы рентгенолюминесценции (1) и ее интенсивности (2) от температуры для чистых кристаллов CaJ_2 .

с примесью европия, которые люминесцируют в области 470 нм. Полуширина полос люминесценции в разных кристаллах, кроме активированных европием, также мало отличается. Отсюда следует, что все рассмотренные кристаллы люминесцируют в сравнительно узкой спектральной области и это соответствует определенной спектральной чувствительности данного типа фотоумножителей. В этой связи спектральный состав люминесценции кристаллов с различными примесями практически не должен влиять на сцинтилляционные свойства детекторов. Сцинтилляционные свойства детекторов при регистрации рентгеновского или мягкого гамма-излучения в первую очередь зависят от интенсивности люминесценции кристалла. Среди исследованных кристаллов наибольшей интенсивностью свечения при комнатных температурах обладают чистые кристаллы CaJ_2 , максимум полосы люминесценции которых находится в области 410 нм. Для этих кристаллов на рис. 1 приведены зависимости положения максимума полосы (кривая 1) и интенсивности люминесценции (кривая 2) от температуры. При понижении температуры до 180° К максимум полосы люминесценции находится в области 410 нм, а при более низких температурах он смещается в длинноволновую область спектра к 445 нм. В то же время интенсивность люминесценции с понижением температуры не только возрастает, а при температурах ниже 180° К начинает убывать и при 90° К почти в два раза меньше, чем при комнатных температурах.

Не останавливаясь на обсуждении природы центров люминесценции, которая представляет самостоятельный интерес, отметим, что в области комнатных температур в чистых кристаллах свечение обусловлено радиационным распадом экситонов, локализованных на анионных вакансиях. При низких температурах выступают другие центры люминесценции, которые в большинстве кристаллов, очевидно, обусловлены наличием в них иодатов.

В прямой зависимости с интенсивностью рентгенолюминесценции при комнатных температурах находится величина амплитуды сцинтилляций фотопика, значения которой в относительных единицах приведены

Таблица 1

Люминесценция, термовысвечивание и спектротрические свойства кристаллов	Температура, °C	Кристаллы									
		CaJ ₂ , чистый	CaJ ₂ (0.1 мол. % J ₂ O ₂)	CaJ ₂ (10 ⁻² мол. % EuCl ₂)	CaJ ₂ (0.2 мол. % EuCl ₂)	CaJ ₂ (0.5 мол. % EuCl ₂)	CaJ ₂ (0.005 мол. % CuJ)	CaJ ₂ (0.01 мол. % CuJ)	CaJ ₂ (0.1 мол. % CuJ)	CaJ ₂ (0.1 мол. % PbJ ₂)	CaJ ₂ (1 мол. % PbJ ₂)
Максимумы полос рентгенолюминесценции, нм	295 90	410 445	425 445	470 470	470 470	470 470	420 445	420 445	420 445	410 525	520 525
Полуширина полос люминесценции, нм	295 90	106 132	124 144	— —	30 18	— —	108 126	124 107	— —	112 80	85 70
Величина сцинтилляций в кристаллах CaJ ₂ относительно NaJ-Tl при возбуждении рентгеновскими лучами с энергией 5.9 кэв *	—	1.57	1.06	1.14	1.24	1.14	1.02	1.05	1.14	0.86	0.82
Энергетическое разрешение (в %) для монохроматического рентгеновского излучения 5.9 кэв	—	51	50	45	41	40	52	43	63	55	64
Интенсивность максимумов термовысвечивания в относительных единицах **	130 144 180 260 320	1.0 — — — —	3.4 13.5 — — —	12.1 3.6 4.8 — —	13.8 13.5 58.0 — —	60.0 20.0 50.0 — —	3.3 4.2 — — —	3.2 2.7 — — 1.0	1.7 — — 4.7 —	67.5 — 6.5 — —	11.2 — 13.2 — —
Относительная интенсивность импульсов сцинтилляций, обусловленных запасенной светосуммой	—	0.25	0.31	0.68	1.1	1.66	1.0	0.56	2.82	1.4	0.7

* Световыход эталонного кристалла NaJ-Tl принят за единицу.

** Интенсивность максимумов термовысвечивания во всех кристаллах приведена относительно максимума при 130 °K в чистом кристалле, интенсивность которого принята за единицу.

в табл. 1. При этом следует подчеркнуть, что спектрометрические свойства кристаллов исследованы с помощью фотоумножителя типа ФЭУ-35А. Ниже будет показано, что амплитуда импульсов сцинтилляций кристаллов иодистого кальция существенно зависит от типа применяемого фотоумножителя.

Таким образом, среди исследованной серии кристаллов наиболее высокими сцинтилляционными свойствами при комнатных температурах обладают чистые кристаллы CaJ_2 .

Центры захвата в кристаллах CaJ_2 исследованы методом термического высвечивания. Обнаруженные максимумы термолюминесценции и их относительная интенсивность приведены в табл. 1. Отсюда следует, что в чистых кристаллах имеется один максимум термолюминесценции, расположенный при температуре 130°K . Этот максимум термовысвечивания присутствует не только в чистых, но также и в кристаллах, содержащих примеси. Причем хотя в кристаллах с примесями интенсивность пика при 130°K в общем возрастает, однако разные примеси не одинаково влияют на его интенсивность. Если при увеличении концентрации европия в CaJ_2 интенсивность пика при 130°K возрастает, то влияние примесей меди и свинца в аналогичной зависимости является обратным, однако во всех примесных кристаллах интенсивность данной термолюминесценции выше, чем в чистых. Очевидно, центры захвата, разрушающиеся термически при 130°K , обусловлены наличием определенных дефектов в решетке кристалла, концентрация которых зависит также от сорта и количества введенной примеси.

Кроме этих центров захвата в кристаллах с примесью иодатов образуются новые центры, термовысвечивание которых происходит при температуре 144°K . С примесью европия связаны центры, термически разрушающиеся при 180°K . Примеси свинца и меди создают более глубокие центры захвата в кристаллах CaJ_2 , энергия активации которых составляет 0.56 и 0.69 эв соответственно.

По теории, изложенной в работах [2-5], определены энергия активации и частотные факторы для уровней захвата на соответствующих уровнях при комнатной температуре. Последний параметр определен с целью установления возможного вклада определенных уровней в длительность сцинтилляций.

Полученные параметры для низкотемпературных максимумов термолюминесценции приведены в табл. 2.

Т а б л и ц а 2

Максимум термолюминесценции, $^\circ\text{K}$	Энергия активации, эв	Частотный фактор, сек.^{-1}	Время жизни носителей заряда на центрах захвата при комнатной температуре, сек.
130	0.28 ± 0.02	$1.0 \cdot 10^{12}$	$4 \cdot 10^{-8}$
144	0.31 ± 0.02	$2.4 \cdot 10^{10}$	$4 \cdot 10^{-6}$
180	0.39 ± 0.02	$4 \cdot 10^{10}$	$7 \cdot 10^{-6}$

Отсюда следует, что время жизни носителей заряда на самых мелких уровнях захвата достаточно малое и влияние этих центров на сцинтилляционный процесс должно быть самым незначительным. Более глубокие уровни захвата, время жизни носителей заряда на которых порядка 10^{-6} сек. и больше, влияют на сцинтилляционный процесс путем уменьшения амплитуды отдельных сцинтилляций. При наличии подобных уровней захвата в кристаллах количество сцинтилляций в области фотопика уменьшается и одновременно возникают импульсы с меньшей амплитудой, которым обязан выделяющийся над аппаратурным фоном максимум в дифференциальном спектре импульсов. Относительная интенсивность импульсов сцинтилляций, обусловленных запасенной на уровнях захвата светосуммой, для разных кристаллов иодистого кальция приве-

дена в табл. 1. Среднее значение этой величины для чистых кристаллов составляет 0.25 относительных единиц. Причем для отдельных образцов чистых кристаллов относительная интенсивность импульсов, обусловленных запасенной светосуммой, значительно меньше средней величины. Одновременно в таких кристаллах наблюдается только слабый пик термолюминесценции при 130° K и отсутствуют какие-либо следы более высокотемпературных пиков термолюминесценции.

В кристаллах, содержащих примеси, относительная интенсивность импульсов малой амплитуды возрастает, ибо в этих кристаллах увеличивается концентрация более глубоких уровней захвата. Отсюда вытекает, что поставщиками импульсов малых амплитуд являются центры захвата, обусловленные наличием примесей в кристалле. Взаимосвязь между импульсами сцинтилляций малой амплитуды и светосуммой, запасаемой на уровнях захвата, также вытекает из рис. 2.

Аналогичные импульсы, обусловленные величиной запасенной энергии на уровнях захвата, т. е. импульсы сцинтилляций малых амплитуд, наблюдались также при регистрации рентгеновского излучения малых энергий сцинтилляционным счетчиком с кристаллом NaJ-Tl [6]. В работе [7] было показано, что в кристаллах NaJ-Tl, содержащих дефекты решетки, имеет место асимметричное распределение импульсов в фотопике по амплитудам, причем асимметрия наблюдалась со стороны малых амплитуд.

Все эти эффекты, наблюдаемые в кристаллах CaJ₂ и NaJ-Tl, имеют одну и ту же природу — в зависимости от концентрации центров захвата и времени жизни носителей заряда на них соответственно запасается определенная светосумма. В результате этого спектрометрические свойства детектора несколько уменьшаются и одновременно возникают импульсы меньших энергий. Такое явление, особенно противопоказано для детекторов, применяемых при спектрометрии рентгеновского и мягкого гамма-излучения, где средняя величина амплитуды сцинтилляций в фотопике мало отличается от амплитуды импульсов аппаратурного фона. Подробный анализ закономерностей в амплитуде и скорости счета дополнительного пика в предположении мономолекулярного закона затухания фосфоресценции произведен в работе [8].

На качество получаемых результатов при работе со сцинтилляционным счетчиком немаловажную роль оказывают свойства фотоумножителя. Для выяснения роли фотоумножителя в сцинтилляционном счетчике с кристаллом CaJ₂ нами проведены сравнительные испытания сцинтилляционных свойств кристаллов NaJ-Tl и CaJ₂ с фотоумножителями типа ФЭУ-35А и ФЭУ-51, имеющих различные спектральные характеристики. Исследования показали, что амплитуда сцинтилляционного импульса для кристаллов иодистого кальция с ФЭУ-51 значительно выше, чем с ФЭУ-35А, и превышает у отдельных образцов CaJ₂ в 2 ÷ 2.4 раза амплитуду NaJ-Tl. Это явление можно объяснить наличием в спектре сцинтилляций CaJ₂ красной полосы, совпадающей с областью сравнительно высокого квантового выхода фотокатода ФЭУ-51.

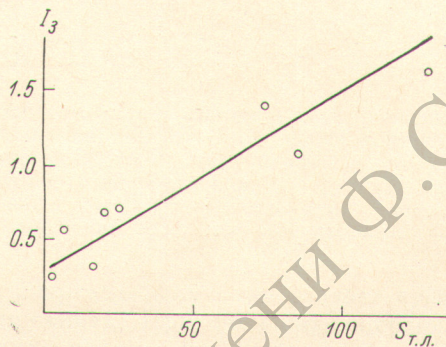


Рис. 2. Зависимость относительной величины импульсов малых амплитуд от запасенной светосуммы на центрах захвата.

Литература

- [1] R. Hofstadter, E. W. O'Dell, C. T. Schmidt. IEEE. Trans. Nuclear Sci., 11, 12, 1964.
- [2] Ч. Б. Луцкий. Тр. ИФА АН ЭССР, 3, 3, 1965.

- [3] М. Л. Кац. Люминесценция и электронно-дырочные процессы в химически окрашенных кристаллах щелочно-галогидных соединений, Изд. Саратов, стр. 76, 1960.
- [4] A. Halperin, A. Braner. Phys. Rev., 117, 408, 1960.
- [5] A. Halperin, A. Braner, A. Ben-Zvi, N. Kristianpoller. Phys. Rev., 117, 416, 1960.
- [6] Н. Б. Гринберг, Д. М. Хай. Монокристаллы, сцинтилляторы и органические люминофоры. 5, 1, Харьков, 1969.
- [7] Я. М. Захарко, В. В. Чепелев. Укр. физ. ж., 9, 1026, 1964.
- [8] В. Р. Альперович, Н. Б. Гринберг, Н. И. Комяк, Л. Я. Морцовский, Б. Т. Плаченков. ПТЭ, № 1, 232, 1971.

Поступило в Редакцию 3 июля 1970 г.