

BSOおよびPr添加LuAG シンチレーターの基礎特性測定

2010/2/22 @ 大洗 奈良女子大学 岩下 友子

Outline

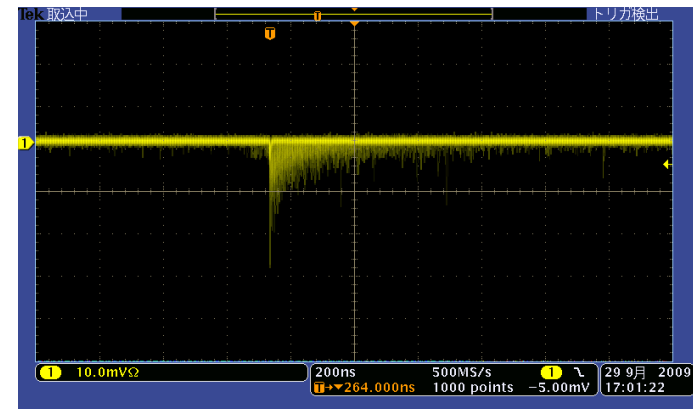
- ▶ 新型シンチレーター
 - ▶ BSOシンチレーター
 - ▶ Pr添加LuAGシンチレーター
- ▶ シミュレーションによるCsIとBSOの比較
- ▶ 新型シンチレーターの基本特性測定
 - ▶ 発光量・温度依存性・放射線耐性(γ 線耐性試験・中性子耐性試験)
- ▶ まとめ

BSOシンチレーター

- ▶ BGO($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$)のGeをSiに置換($\text{Bi}_4\text{Si}_3\text{O}_{12}$)した結晶
- ▶ 潮解性がなく扱いやすい
- ▶ 密度が大きく、 $X_0=1.15\text{cm}$ 、 $R_M=2.63\text{cm}$ と短い
 - 結晶を既存のものよりも小さくできる
- ▶ 発光量はPureCslと同等だが、**発光波長が480nmと長い**
 - ↓
- ▶ PureCsl(発光波長300nm)と比べ多くの光検出器において量子効率がよい



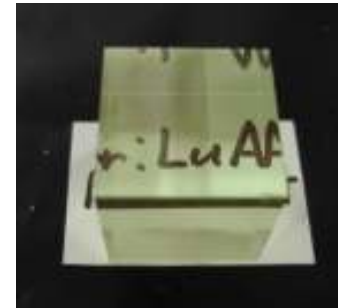
直方体 側面砂ずり Oxide(株)から購入
サンプルサイズ $10 \times 10 \times 20\text{mm}^3$



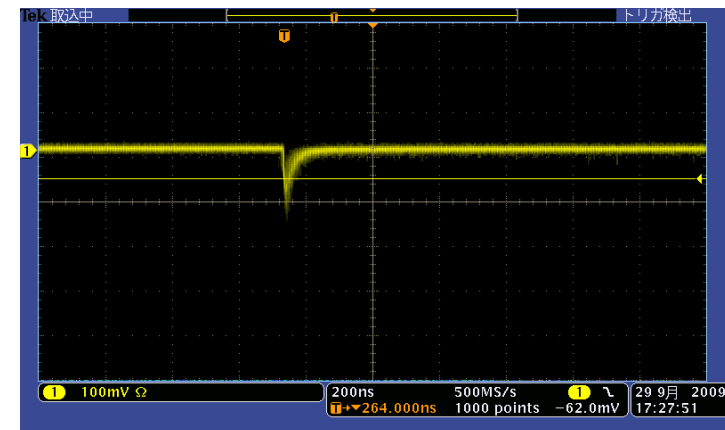
BSOのシグナルの様子

Pr:LuAGシンチレーター

- ▶ LuAGは $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ のことで、これにPrを添加した結晶がPr:LuAG
- ▶ 密度が大きく $X_0=1.47\text{cm}$ 、 $R_M=2.16\text{cm}$ と共に短い
- ▶ 蛍光時間が短く(25nsec)
発光量も豊富(PureCslの約10倍)
 - ▶ 発光波長は $\sim 300\text{nm}$ と短い
- ▶ 材料のLuが高く、融点が高いため(約 1970°C)非常に高価



立方体 6面鏡面研磨
古河機械金属から購入
サンプルサイズ $15 \times 15 \times 15\text{mm}^3$



Pr:LuAGのシグナルの様子

GEANT4を用いたカロリメーターの シミュレーション

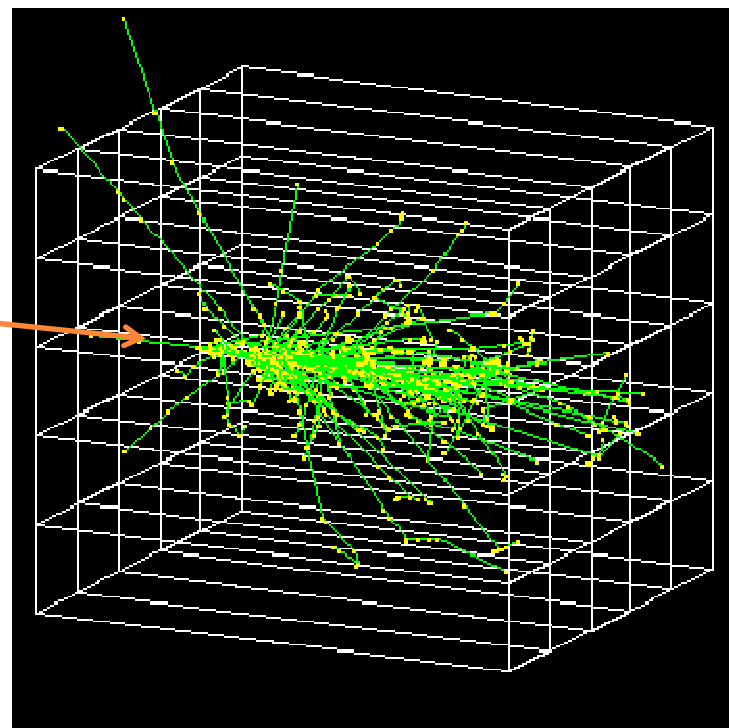
5 × 5 マトリックス カロリメーターによる シミュレーション

- ▶ 結晶1本のサイズ
 - ▶ BSO $40 \times 40 \times 230\text{mm}^3 (20X_0)$
 - ▶ CsI $55 \times 55 \times 300\text{mm}^3 (16X_0)$
 - ▶ 結晶の幅は R_M でスケール

- ▶ 仮定した雑音レベル
 - ▶ 全チャンネル同位相の雑音
0.05MeV
 - ▶ 各チャンネル独立の雑音
0.4MeV

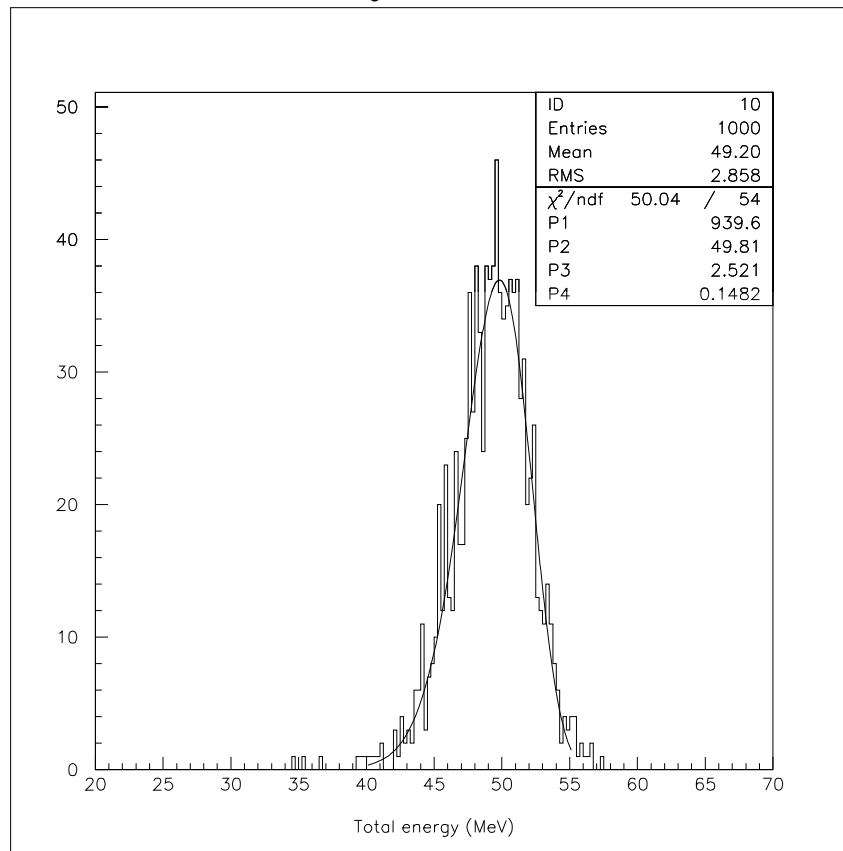
5 × 5 マトリックス BSOカロリメーター

Incident
(1GeV) γ -ray at
matrix center

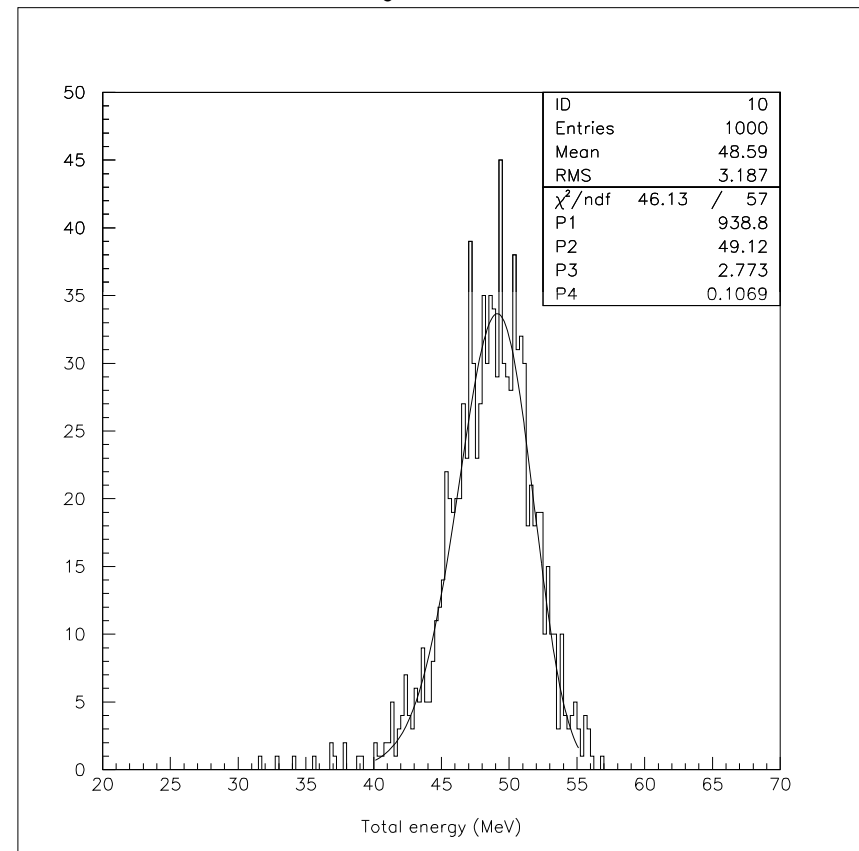


50MeVの γ 線入射時の 25本の結晶で検出したエネルギーの和

BSO $20X_0=230\text{mm}$



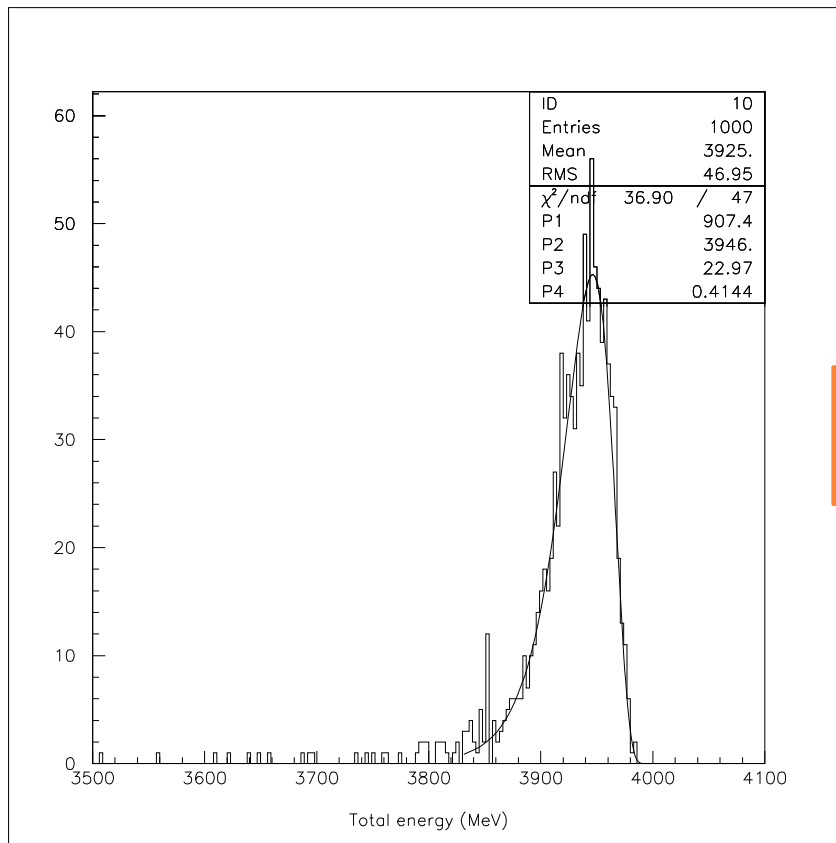
CsI $16X_0=300\text{mm}$



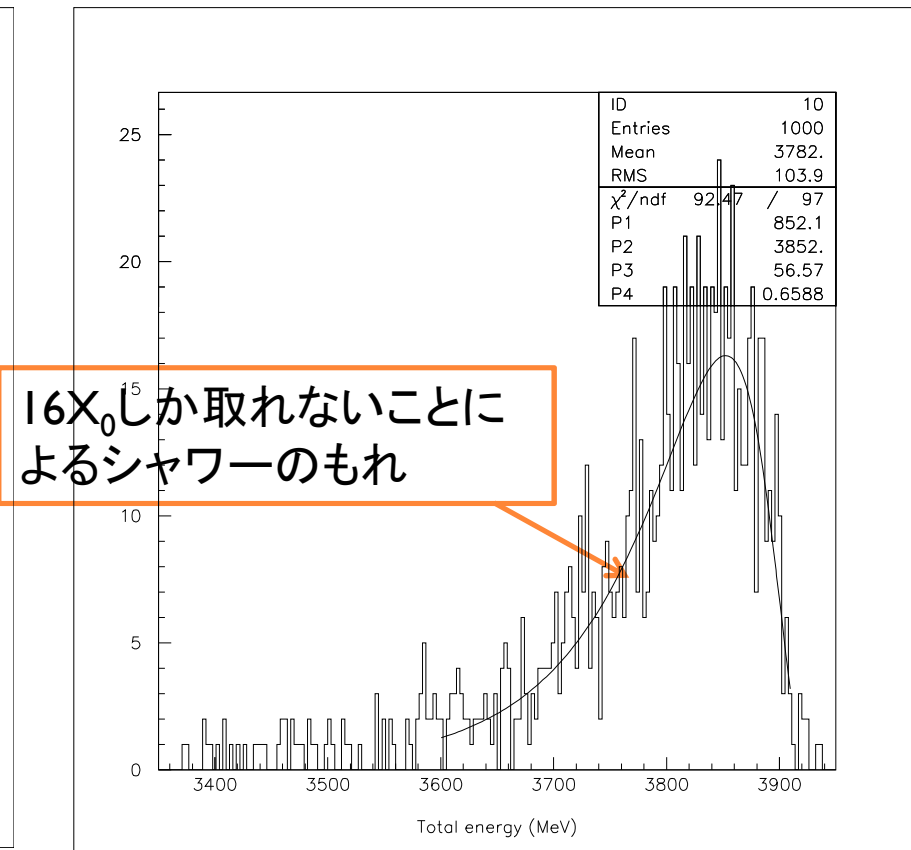
- ▶ 7 低エネルギーでは各チャンネルの雑音の和が大きく寄与するため、大きな差はない

4 GeVの γ 線入射時の 25本の結晶で検出したエネルギーの和

BSO $20X_0=230\text{mm}$

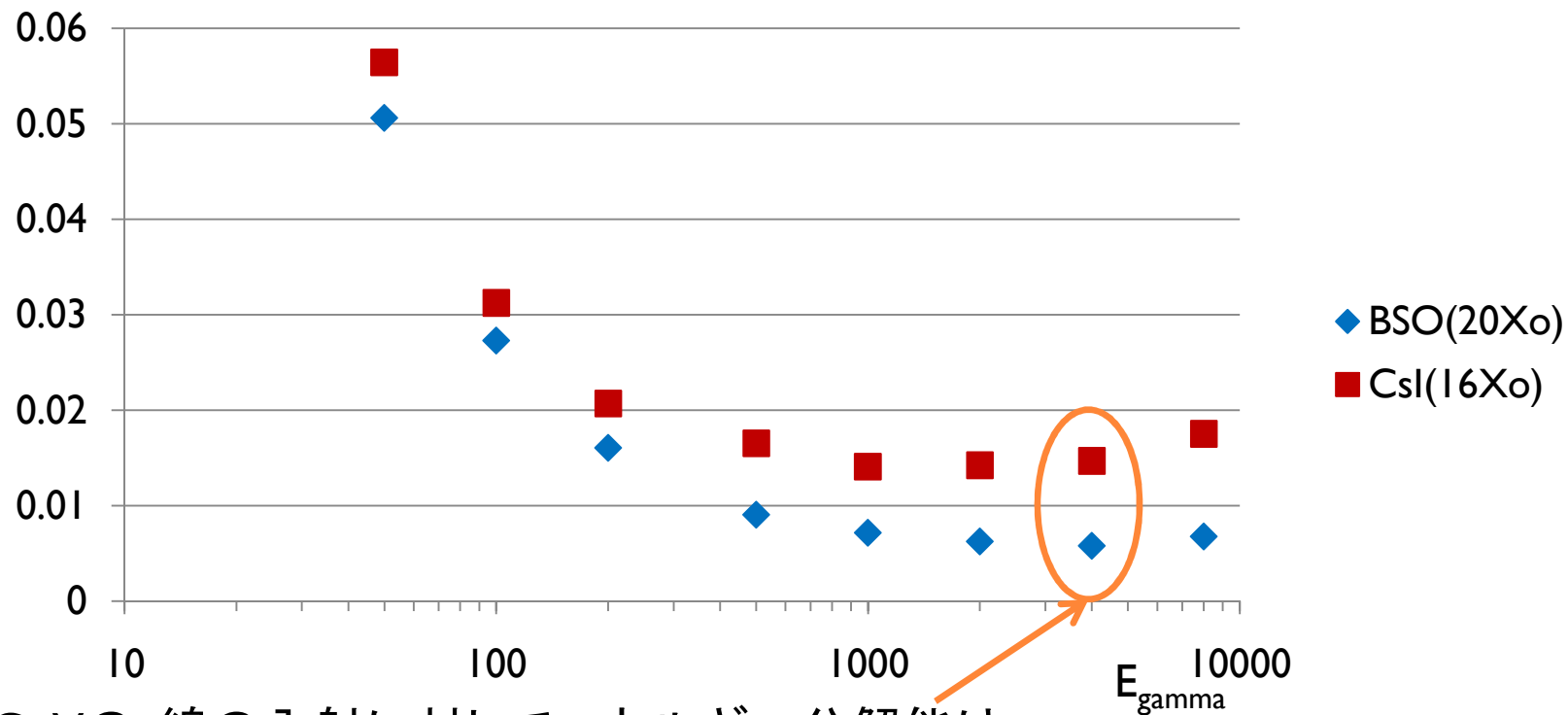


CsI $16X_0=300\text{mm}$



BSOとCsIのエネルギー分解能の比較

Energy resolution



4GeVの γ 線の入射に対してエネルギー分解能は

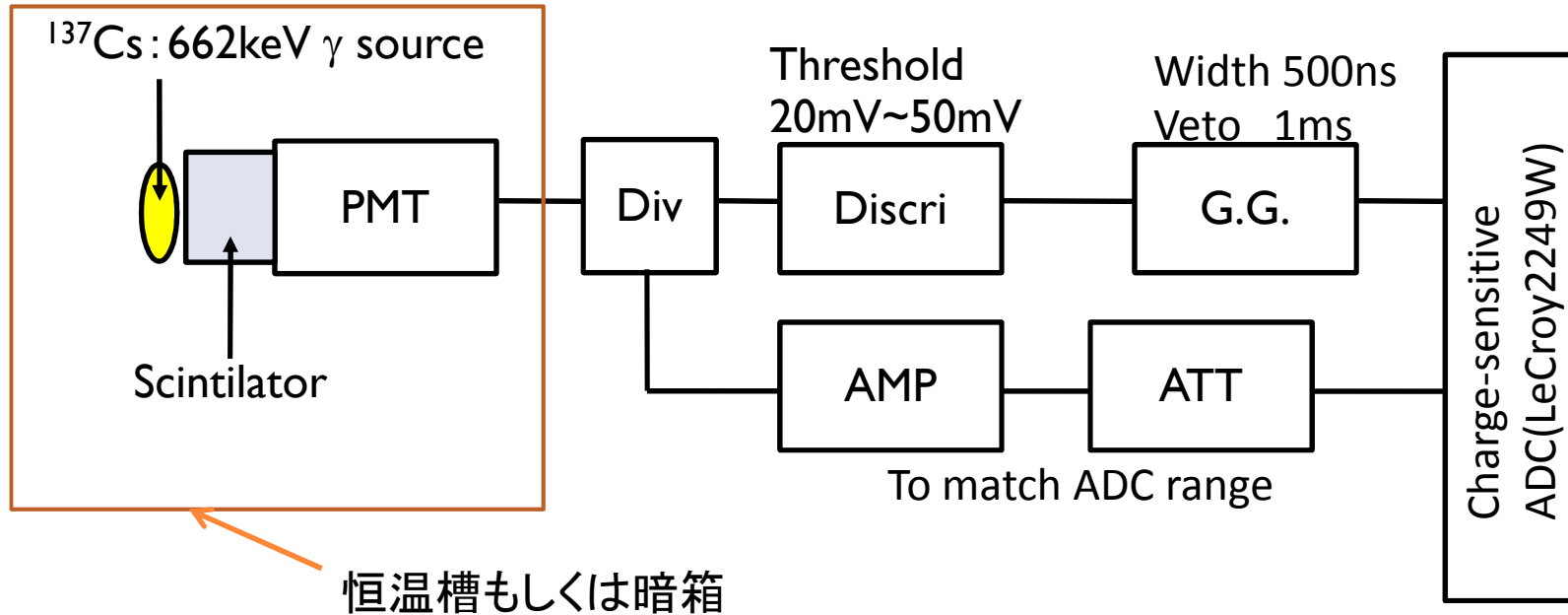
BSO(20X₀): 0.7%

CsI(16X₀): 1.5%

顕著な改善が期待される

**サンプル結晶による基本特性の測定結果
発光量・温度依存性・放射線耐性**

セットアップ



光電子増倍管はH3167、H1161(ほう珪酸ガラス窓・バイアルカリ光電陰極)を使用
HV1650V、AMPとATTを用いてADCのレンジに合うように調整

量子効率 BSO(480nm): 約20%
PureCsI·Pr:LuAG(300nm): 約10%

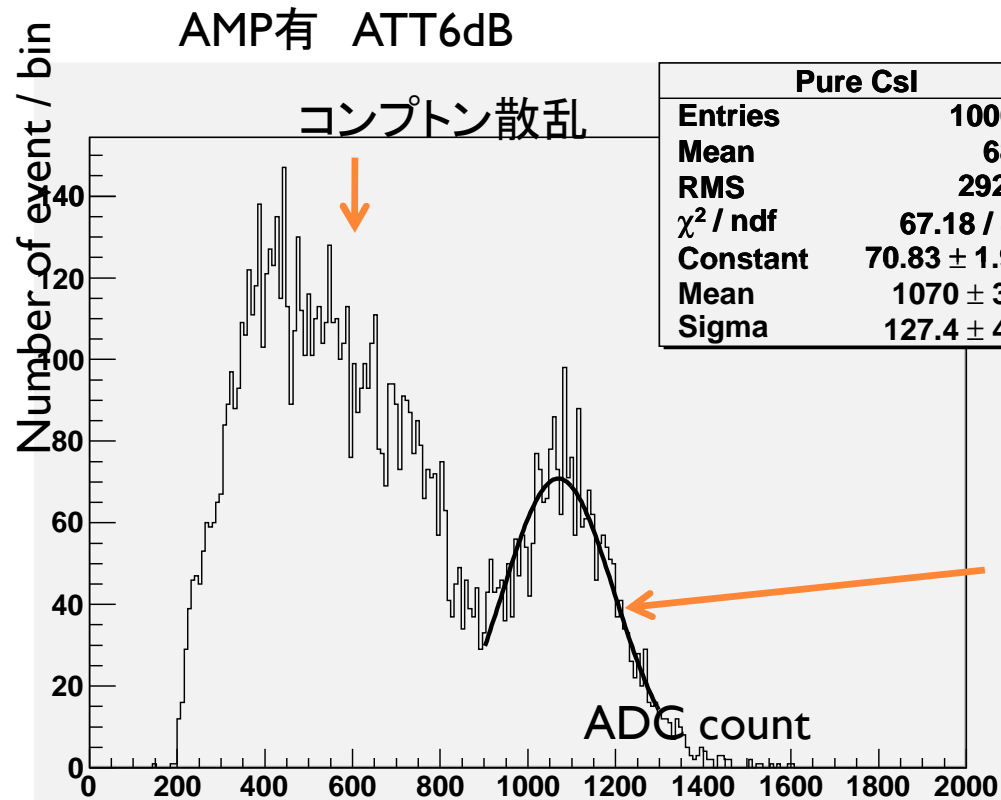
発光量・温度依存性

PureCsI(標準結晶)の波高分布

測定条件

使用した光電子増倍管はH3167

結晶と光電子増倍管はオプティカルグリースで粘着



PureCsI

($10 \times 10 \times 20 \text{mm}^3$

側面砂ずり、2面鏡面研磨)

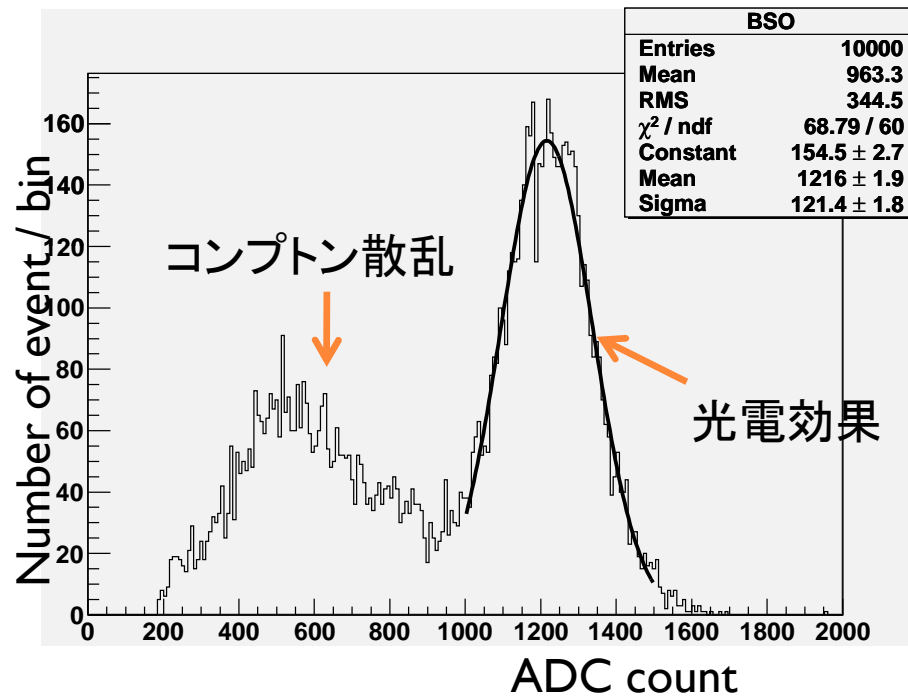
光電効果によるピーク
(正規分布でfit)

^{137}Cs 線源からの γ 線(662keV)を
入射したときの波高分布

BSO及びPr添加LuAGの波高分布

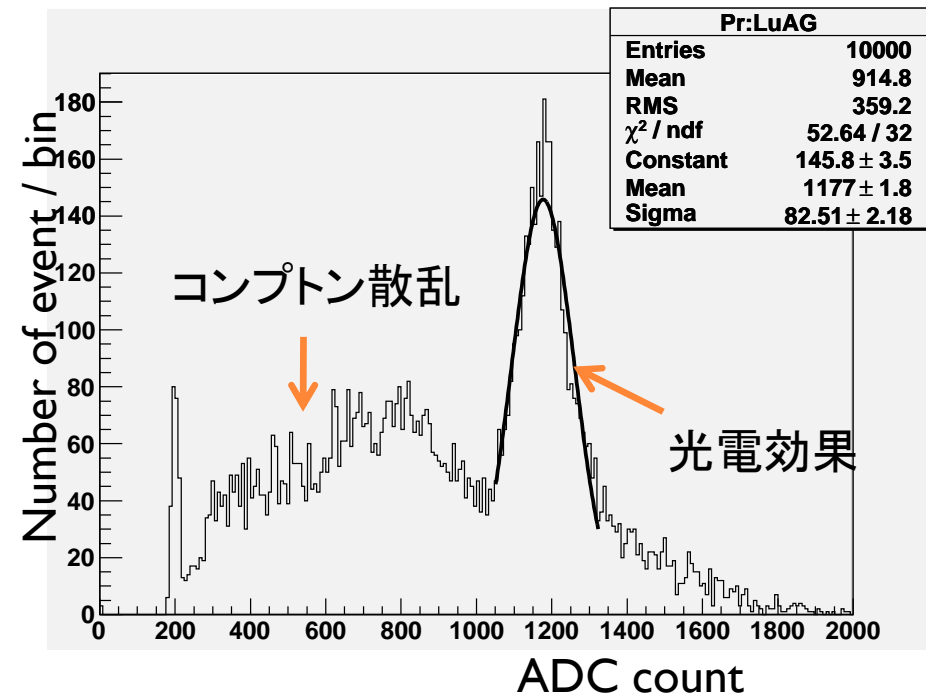
▶ BSO

AMP有 ATT6dB



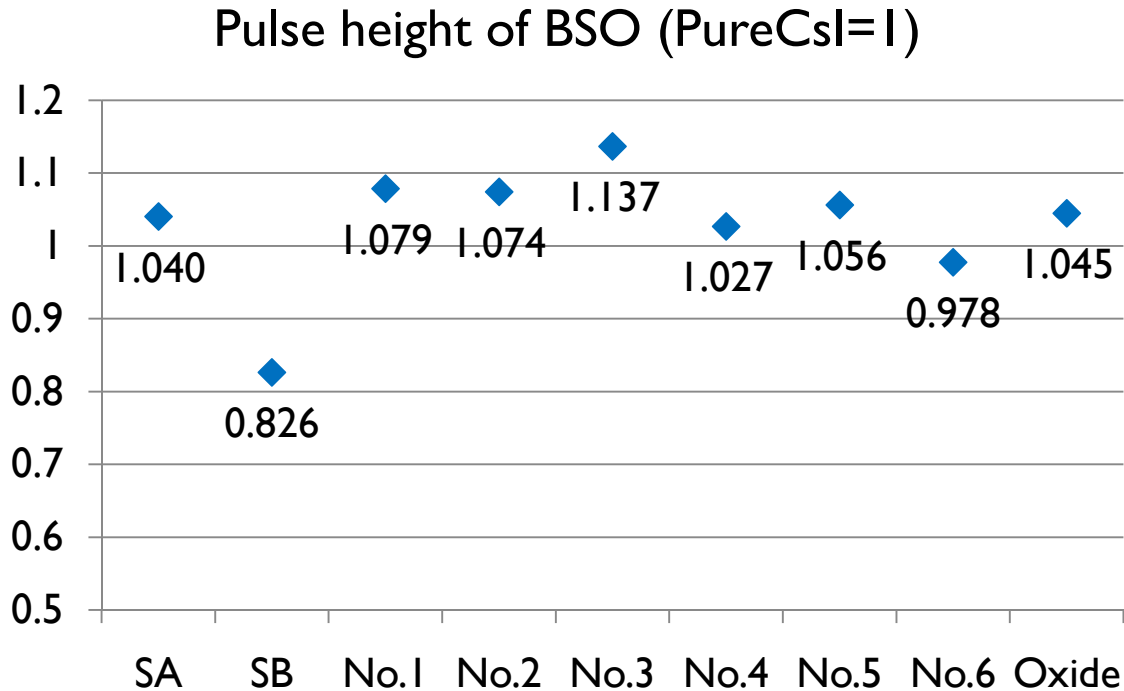
▶ Pr:LuAG

AMP有 ATT18dB



^{137}Cs 線源からの γ 線(662keV)を入射したときの波高分布

BSOサンプルの波高の測定結果



15°Cから30°Cで温度依存性を測定した結果は
-1.0%/°C

SA: FFT.co製

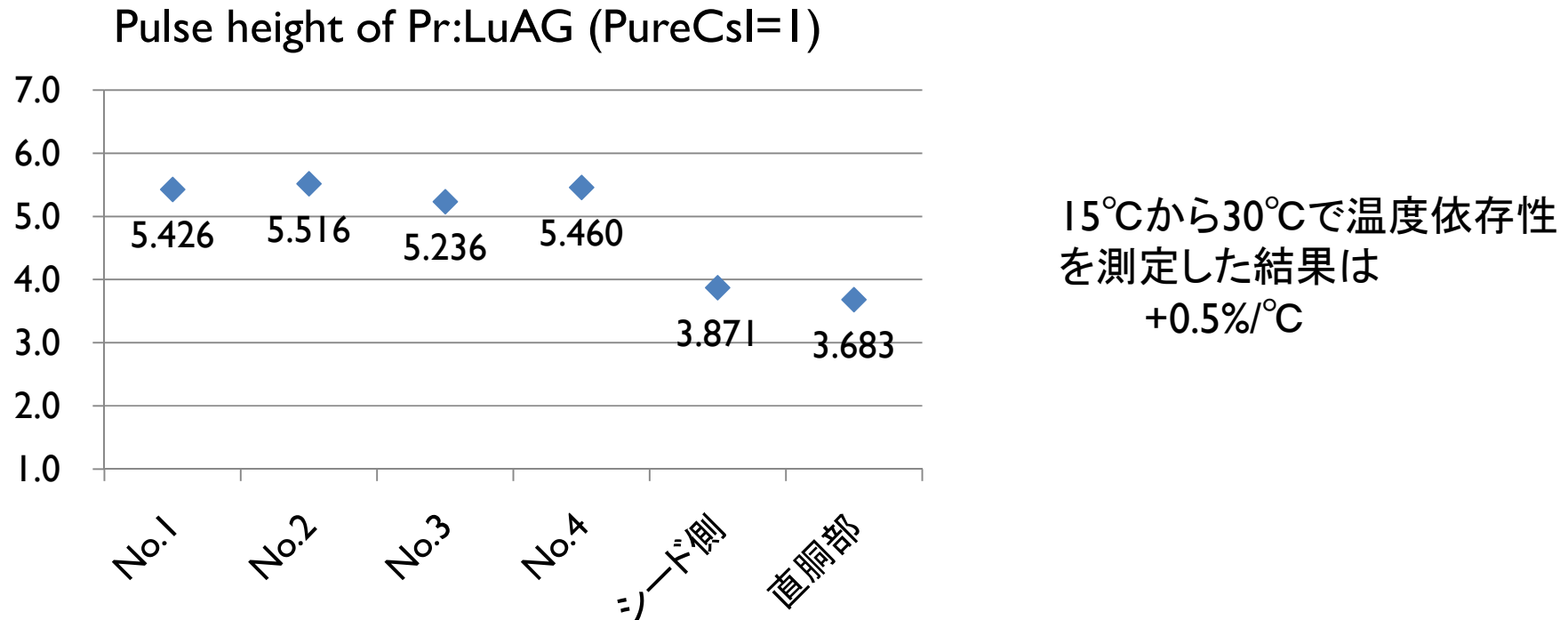
SB: 上海で製造されたもの

No.1~No.6: 上海で製造された同じインゴットから切り出したサンプル

Oxide: Oxide(株)で試験生産されたサンプル

PureCslとBSOで読みだされる波高はほぼ同じである

Pr:LuAGサンプルの波高の測定結果



No.1~No.4は同じインゴットから切り出した $15 \times 15 \times 15\text{mm}^3$ のサンプル
シード側及び直胴部は同じインゴット中の部位が違うもので、サイズは $20 \times 20 \times 20\text{mm}^3$

得られた波高はPureCslの5倍

→ 約10倍という期待値よりも低いのは全ての面が鏡面研磨であるため、結晶中で全反射を繰り返して読みだせないシンチレーション光が存在するためと考え

放射線耐性試験

Belle-IIのビームバックグラウンド

- ▶ γ 線被曝
 - ▶ 衝突点付近からくる～数MeV程度の低エネルギーの γ 線
 - ▶ Belle-IIの電磁カロリメーターでは空間線量に換算して10Gyから100Gyの γ 線被曝が予想される
- ▶ 中性子被曝
 - ▶ 高エネルギー γ 線の放出を伴うBhabha散乱により生じた γ 線が、加速器トンネル内の物質と相互作用し中性子を発生する
 - ▶ Belle-IIにおける中性子被曝量は $10^{11} \sim 10^{12}$ neutrons/cm²が予想される

これらのことを考慮して

γ 線: 1Gy, 3Gy, 10Gy, 100Gy

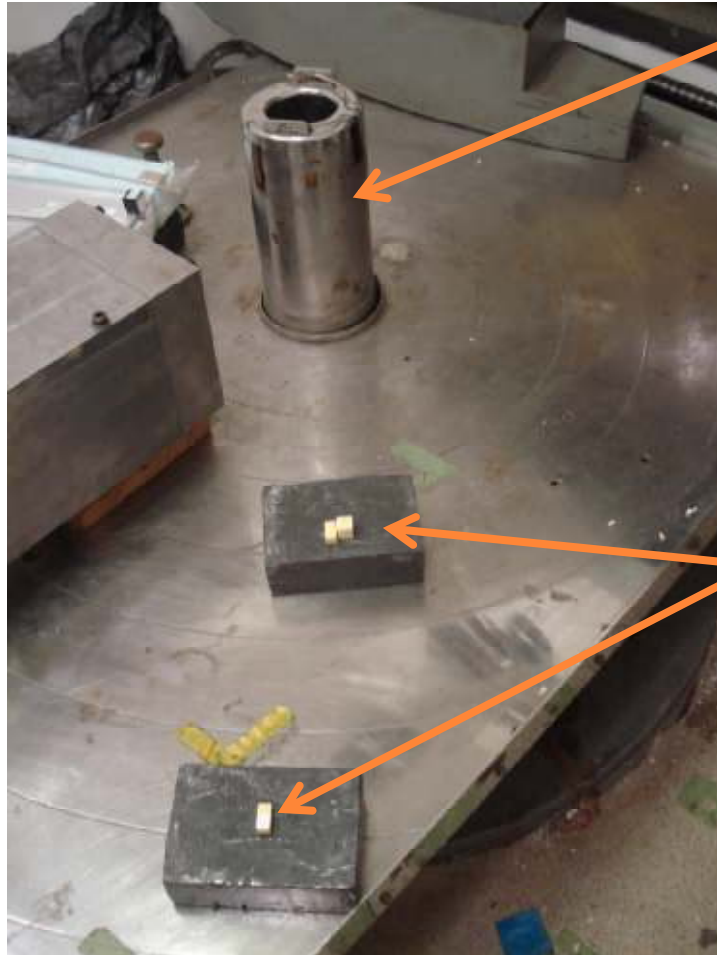
中性子: 10^{11} neutrons/cm², 10^{12} neutrons/cm²

の放射線を照射したときの発光量の変化について測定

放射線照射サンプルとその被曝量

- ▶ γ 線照射(東京工業大学放射線照射施設)
 - ▶ BSO(No.1) :1Gy 2009/10/1
 - ▶ BSO(SB) :3Gy 2009/10/1
 - ▶ BSO(SB) :10Gy 2009/11/27
 - ▶ BSO(No.1) :100Gy 2009/11/27
 - ▶ Pr:LuAG(No.1) :3Gy 2009/10/1
 - ▶ Pr:LuAG(直胴部):10Gy 2009/11/27
 - ▶ Pr:LuAG(No.1) :100Gy 2009/11/27
- ▶ 中性子(東京大学原子炉「弥生」)
 - ▶ BSO(No.5) : 10^{11} neutrons/cm² 2009/10/20
 - ▶ BSO(No.6) : 10^{12} neutrons/cm² 2009/10/20
 - ▶ Pr:LuAG(No.3): 10^{11} neutrons/cm² 2009/10/20
 - ▶ Pr:LuAG(No.4): 10^{12} neutrons/cm² 2009/10/20

γ線耐性試験の様子 2009/10/1



⁶⁰Co放射線源位置

線源の強度からサンプルの位置と照射時間を計算しサンプルを設置する。この月の強度は $0.57 \times 10^3 \text{Gy/h}$ であったため、1Gy:70cm、3Gy:40cm、の位置で10分間照射を行った。

サンプル
(白色ゴアテックスシート付)

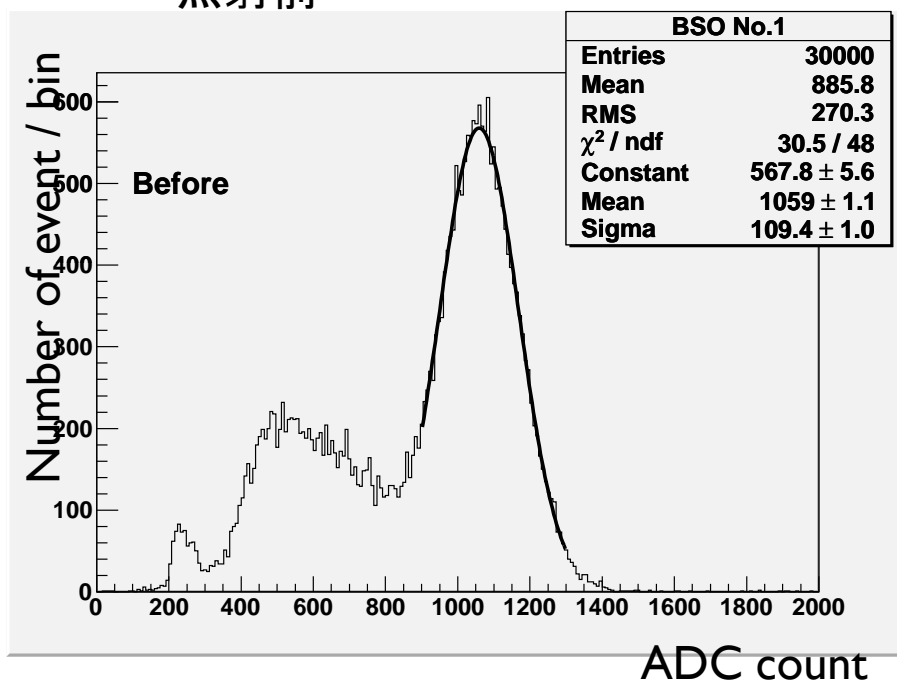
測定条件

光電子増倍管はH3167
結晶と光電子増倍管の間はグリースで粘着
恒温槽25°Cのもとで測定

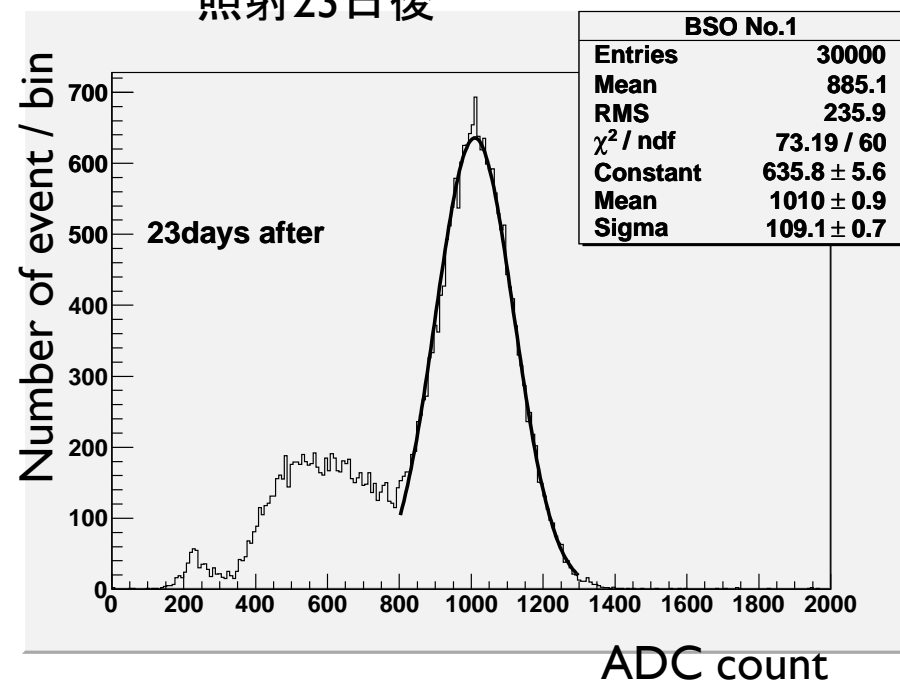
BSOの γ 線照射前後の波高分布

▶ 100Gy照射前後の波高分布

照射前



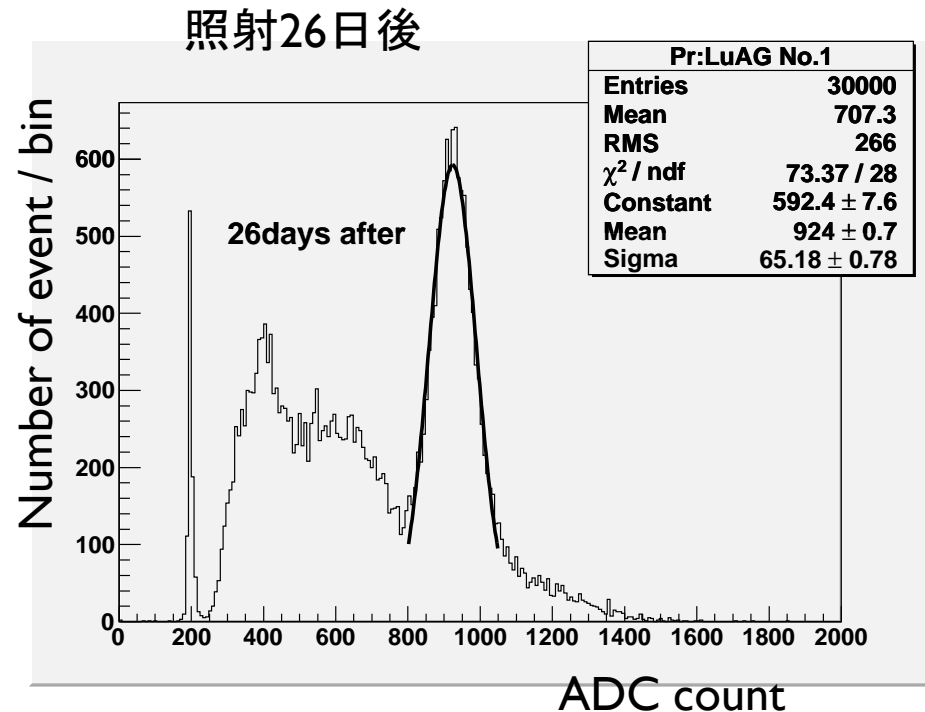
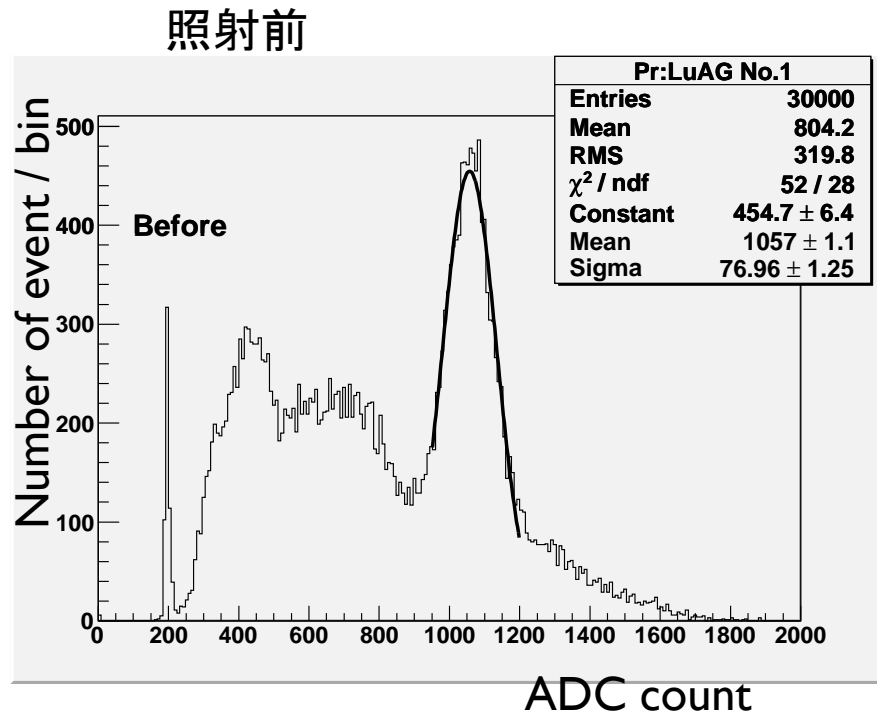
照射23日後



662keVの γ 線源を使用
AMP有、ATT6dB

Pr:LuAGの γ 線照射前後の波高分布

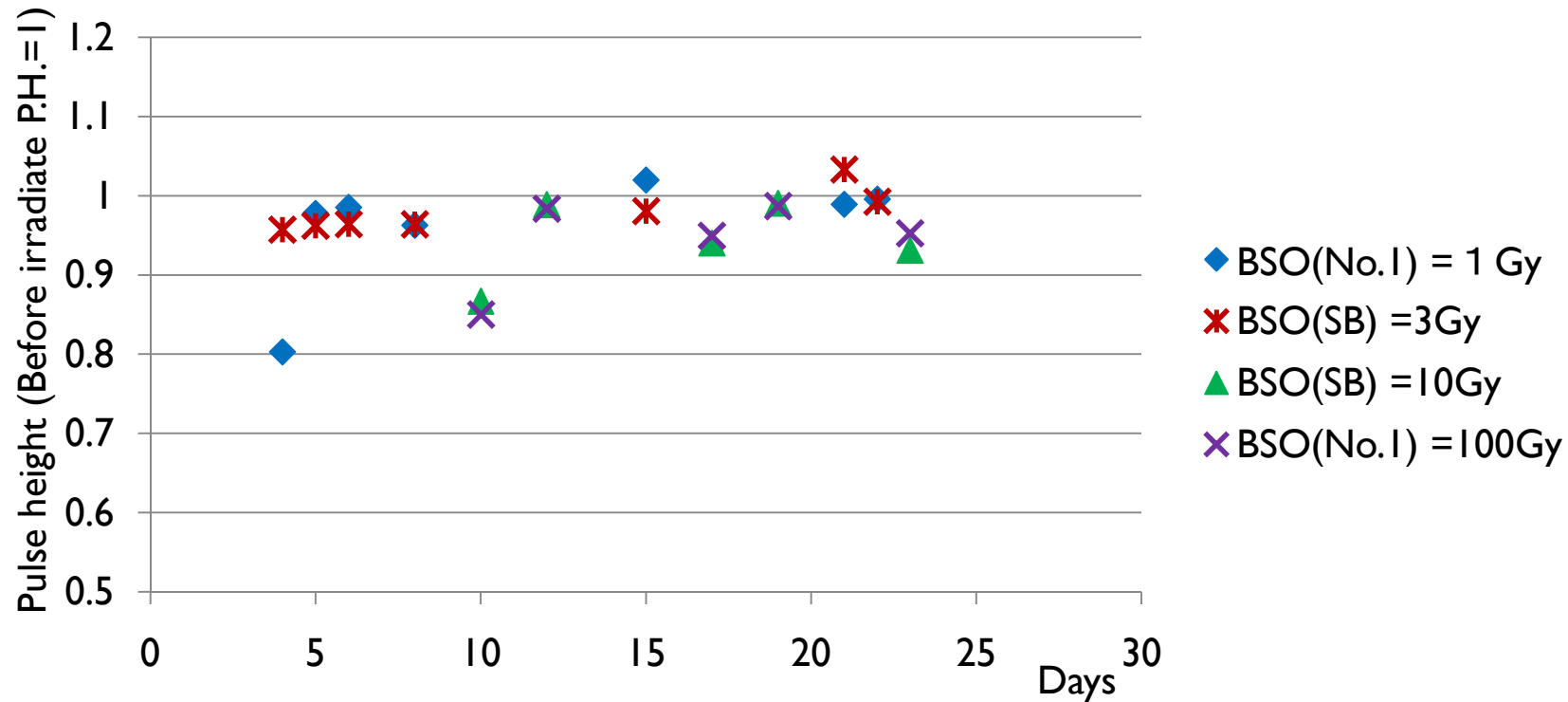
▶ 100Gy照射前後の波高分布



662keVの γ 線源 ^{137}Cs を
使用AMP有、ATT18dB

γ線照射後のBSOの経時変化

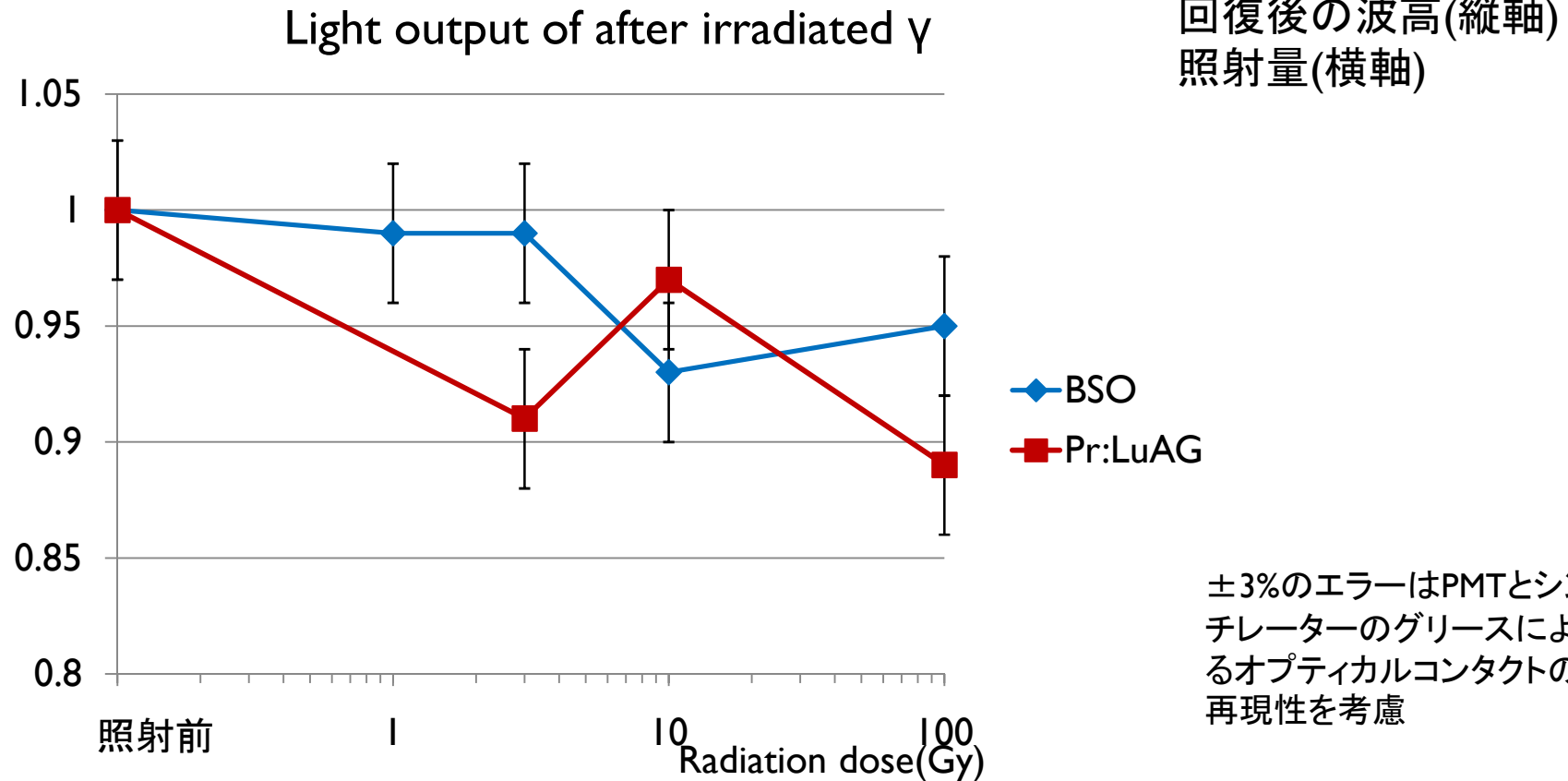
Relative light output of BSO after irradiation



$$\text{Relative pulse height} = \frac{L.O.(sample, x \text{ day}) / L.O.(ref. crystal, x \text{ day})}{L.O.(sample, before irradiation) / L.O.(ref. crystal, before irradiation)}$$

x = Days after irradiation

γ線耐性試験の結果



100Gyの照射で
BSO約5%、Pr:LuAG約11%
波高が減少

中性子照射

東京大学原子炉「弥生」



左の建造物が炉心を納めた遮蔽体
建造物上部のハッチからサンプルを
吊下げる

測定条件

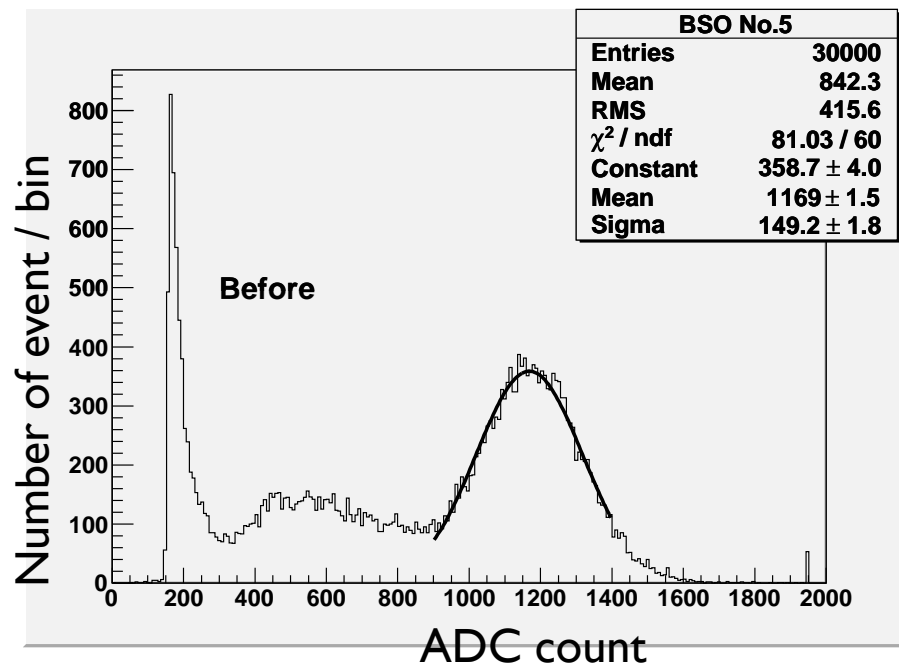
測定に用いた光電子増倍管はH1161
光電子増倍管と結晶の間はエアコンタクト

ウラン燃料空気冷却型高速炉
最大出力:2kW
照射できる中性子の平均運動エネルギー:
約1MeV

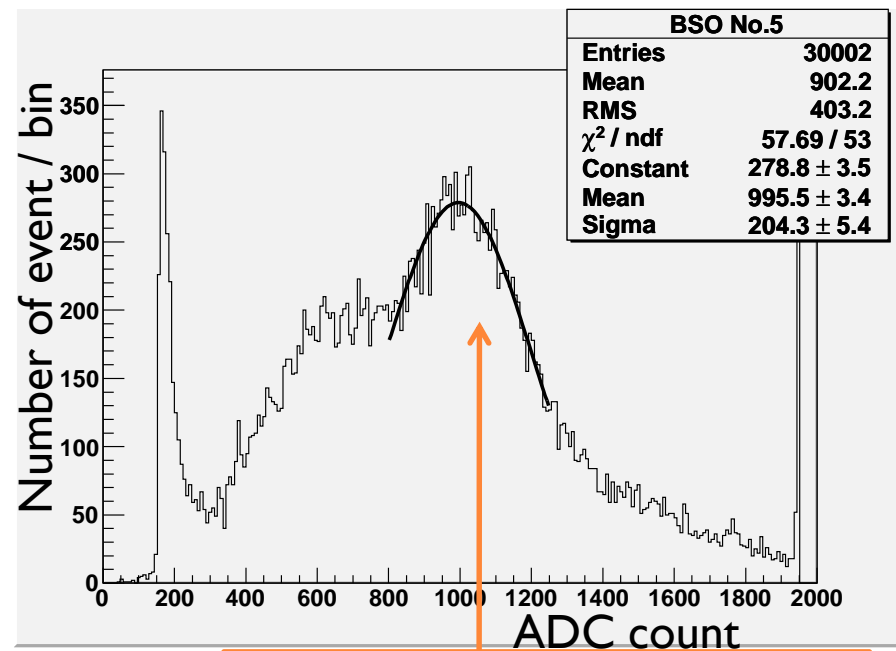
BSOの中性子照射前後の波高分布

▶ 10^{11} neutrons/cm²照射

照射前



照射直後



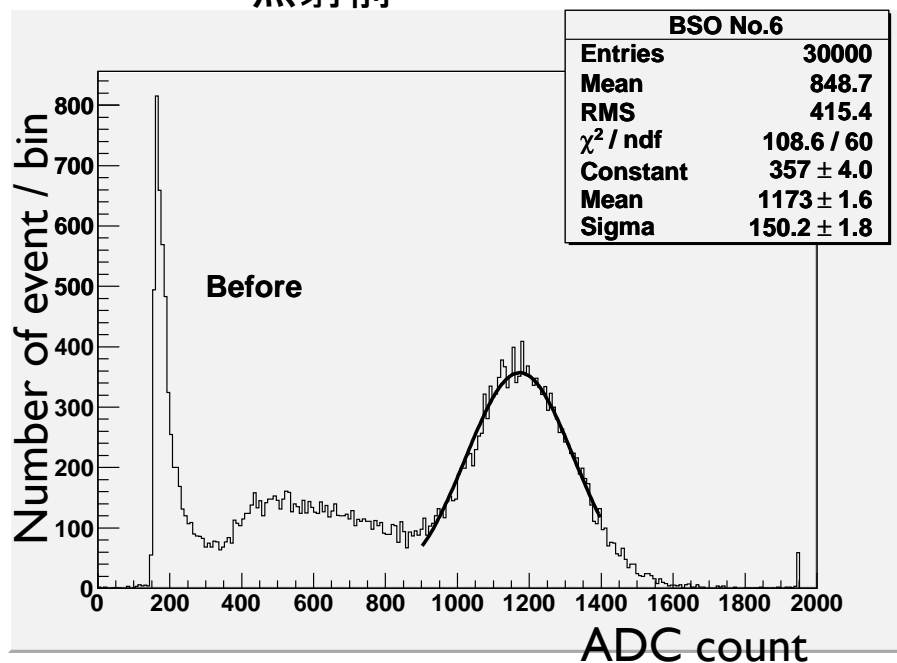
放射化が少ないため光電効果のピークが確認できる(他のシンチレーターでは見られない特質)

662keVの γ 線源を使用
AMP有、ATT4dB

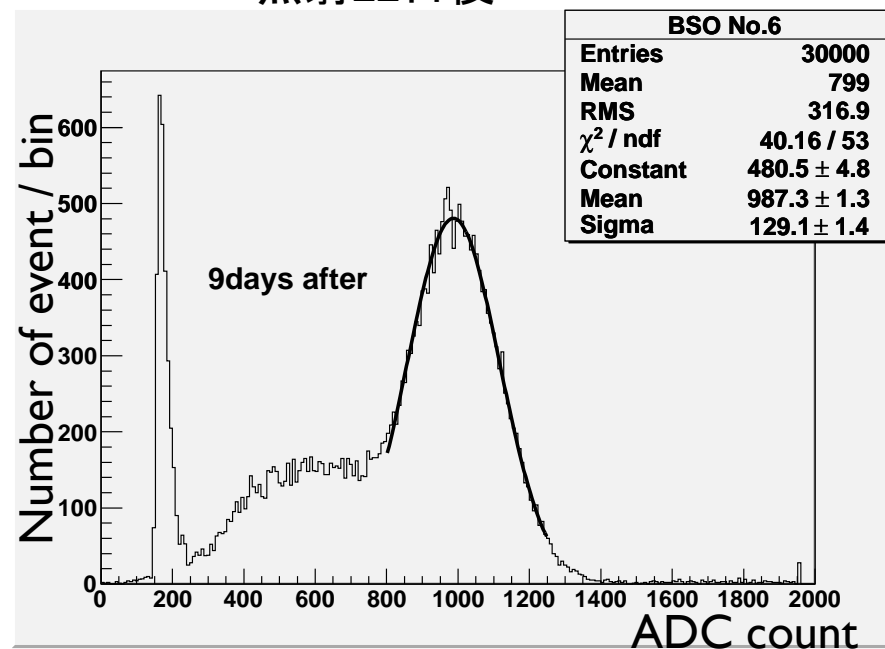
BSOの中性子照射前後の波高分布

▶ 10^{12} neutrons/cm²照射

照射前



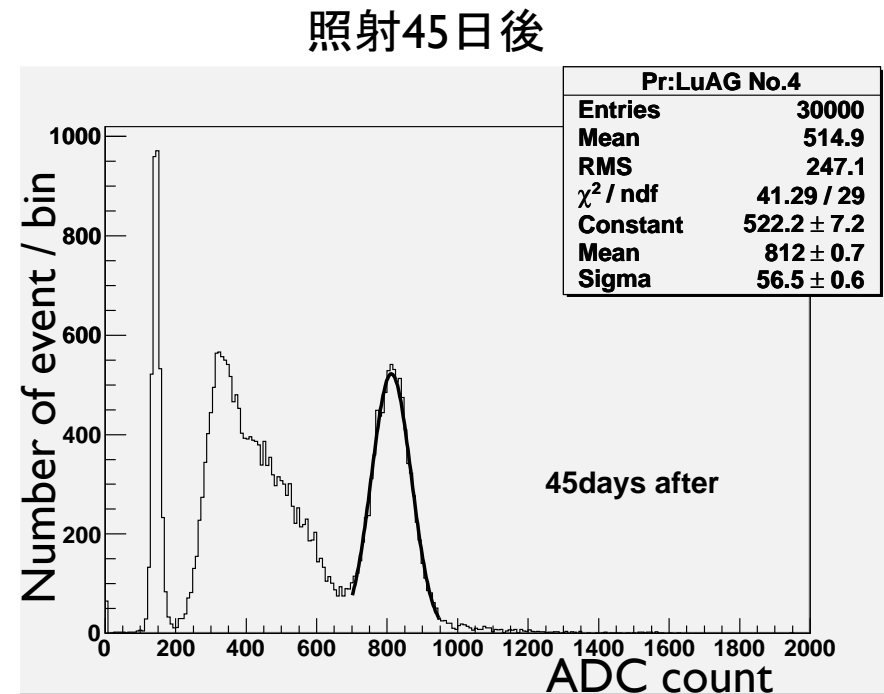
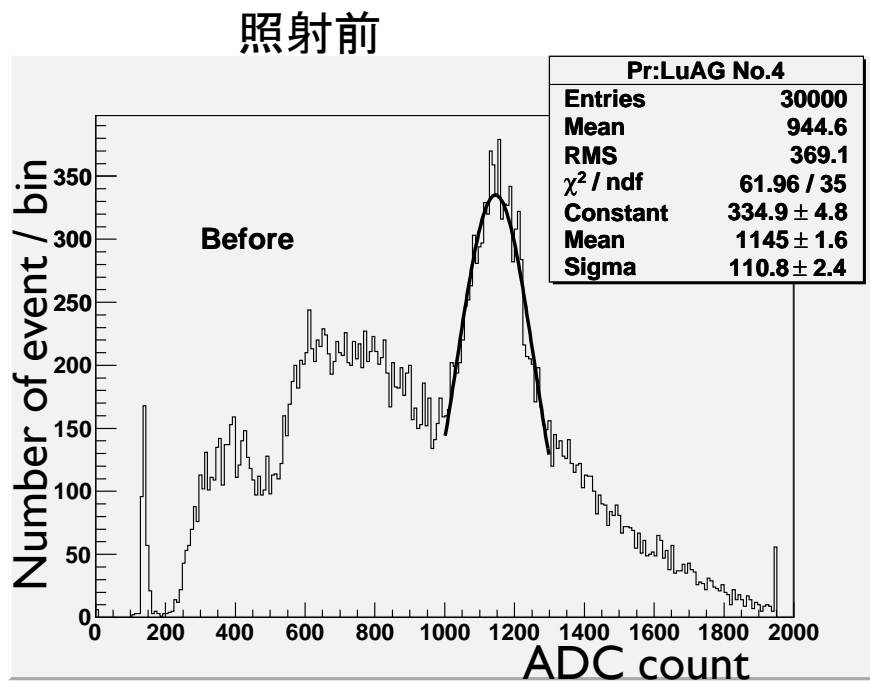
照射22日後



662keVの γ 線源¹³⁷Csを使用
AMP有、ATT4dB

Pr:LuAGの中性子照射前後の波高分布

▶ 10^{12} neutrons/cm²照射

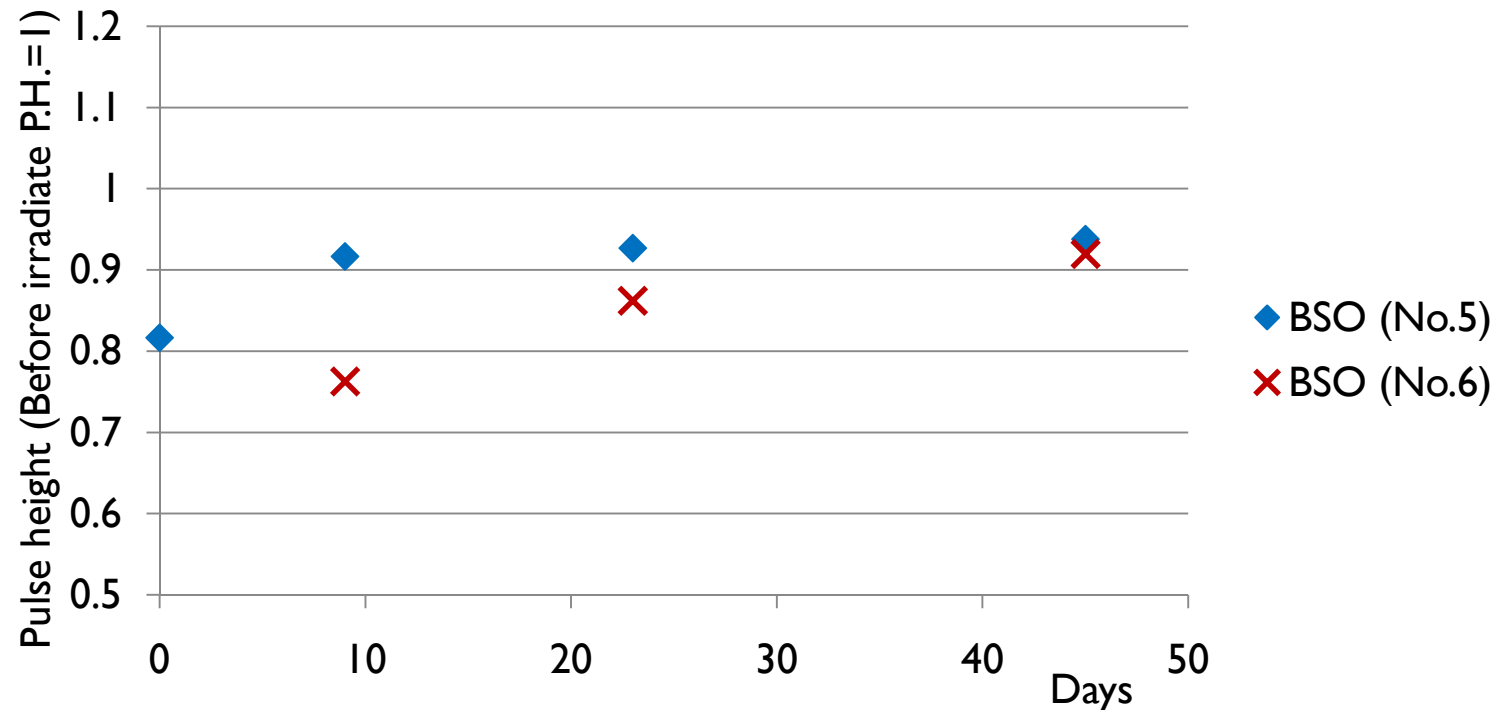


662keVの γ 線源 ^{137}Cs を
使用AMP有、ATT18dB

照射後は放射化によるバックグラウンドが多くなったため
強度の大きい線源を用いた
強度は照射前41.2kBq、照射後3.7MBqである

中性子照射後のBSOの経時変化

Relative light output of BSO after irradiation

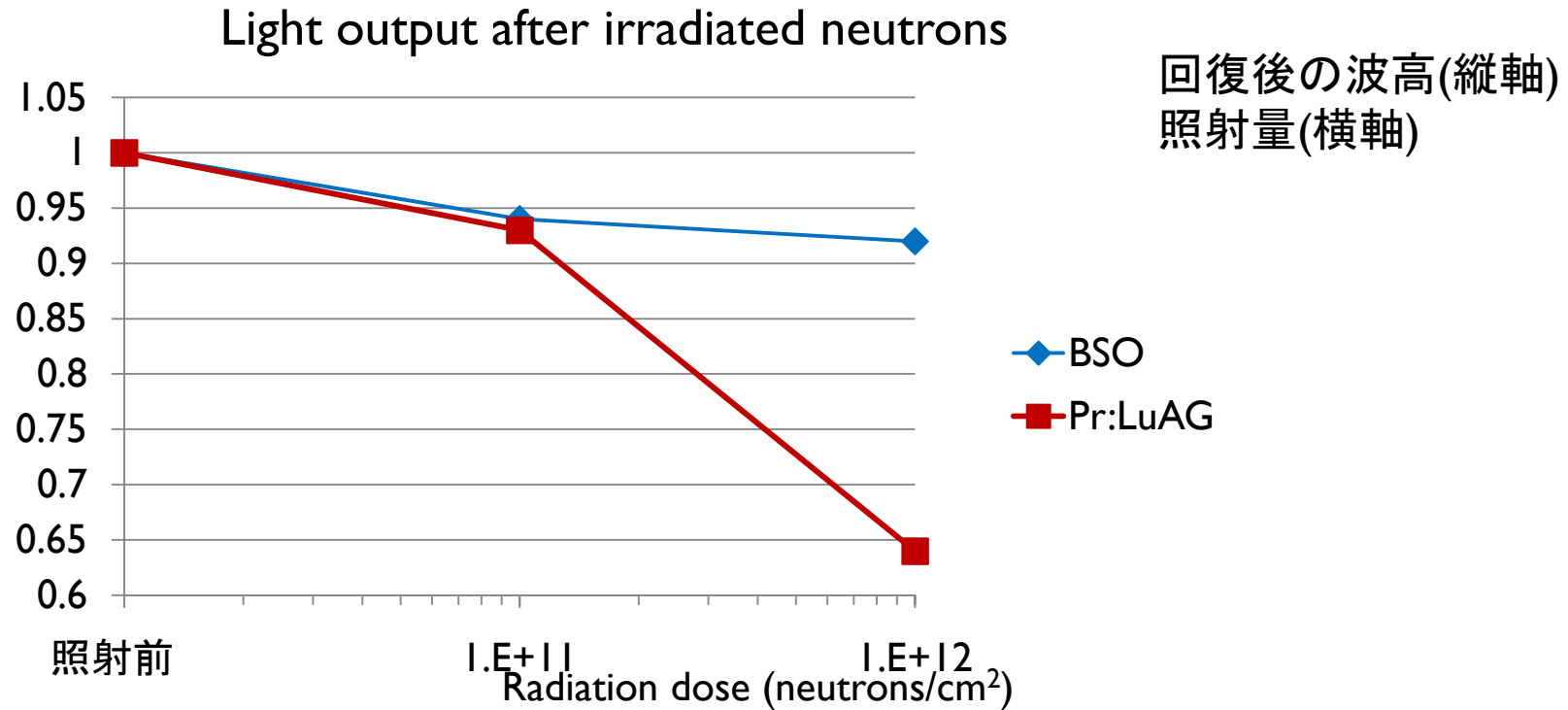


$$\text{Relative pulse height} = \frac{L.O.(sample, x \text{ day}) / L.O.(ref. crystal, x \text{ day})}{L.O.(sample, before irradiation) / L.O.(ref. crystal, before irradiation)}$$

x = Days after irradiation

- ▶ 27 中性子照射後波高は一旦下がるが10日から20日間は回復がある。

中性子耐性試験の結果



中性子照射後の波高の低下は
BSO約8%(10^{12} neutrons/cm²)
Pr:LuAGは約40%(10^{12} neutrons/cm²)
中性子に対してもBSOは放射線耐性があることがわかる

まとめ

- ▶ Belle-II測定器のエンドキャップカロリメーターに用いるシンチレーターの候補としてBSOシンチレーターとPr:LuAGシンチレーターについて基本特性を調べた
 - ▶ シミュレーションによるCsIとBSOの比較
 - ▶ 5×5マトリックスカロリメーターでのエネルギー分解能
4GeVの入射に対して、CsI:1.5%、BSO:0.7% → 顕著な改善
 - ▶ 波高 BSO : PureCsIと同等程度
Pr:LuAG: PureCsIの5倍程度
 - ▶ 温度依存性 BSO : -1.0%/°C
Pr:LuAG : +0.5%/°C } いずれも実用に支障はない
 - ▶ 放射線耐性 放射線を当てた前後で発光量の変化を調べた
 - ▶ γ線耐性 BSO : 100Gy照射で約5%減
Pr:LuAG : 100Gy照射時約8%減
 - ▶ 中性子耐性 BSO : 10¹²neutrons/cm²照射で約8%減
Pr:LuAG : 10¹²neutrons/cm²照射で約40%減





END

BACK UP

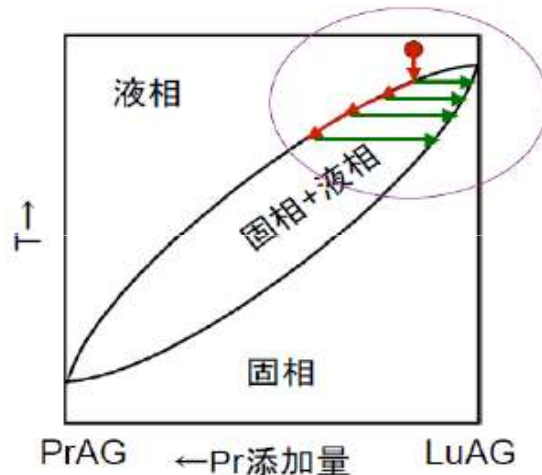
X0 と RM

$$X_0 = \frac{716.4 \cdot A}{Z(Z+1) \ln(287 / \sqrt{Z})} \text{ gcm}^{-2}$$

$$\frac{1}{R_M} = \frac{1}{E_S} \sum \frac{w_j E_{cj}}{X_j}$$

Pr:LuAG シード側と直胴部

結晶成長法による シード側と直胴部の違い



- 純物質ではないので固相と液相の共存領域に幅がある。また、Prのドーブ量が変わると相転移する温度が変わる。

- 早い段階で析出する部分はPrの含有量が少ない
- あとから析出する部分はPrの含有量が多い

素粒子実験に必要な大きさのものはPr含有量を均一にできない

→セラミック(焼結)製法を用いるとPrの量を均一にできる

GEANT4シミュレーション

//

// define Elements

//

元素の定義

```
G4Element* H = new G4Element("Hydrogen",symbol="H" , z= 1., a= 1.01*g/mole);
G4Element* C = new G4Element("Carbon" ,symbol="C" , z= 6., a= 12.01*g/mole);
G4Element* N = new G4Element("Nitrogen",symbol="N" , z= 7., a= 14.01*g/mole);
G4Element* O = new G4Element("Oxygen" ,symbol="O" , z= 8., a= 16.00*g/mole);
G4Element* Si = new G4Element("Silicon",symbol="Si" , z= 14., a= 28.09*g/mole);
G4Element* Bi = new G4Element("Bismuth",symbol="Bi" , z= 83., a= 209.*g/mole);
G4Element* W = new G4Element("Tungsten",symbol="W" , z= 74., a= 183.8*g/mole);
G4Element* Cs = new G4Element("Cesium" ,symbol="Cs" , z=55., a=132.9*g/mole);
G4Element* I = new G4Element("Iodine" ,symbol="I" , z=53., a=126.9*g/mole);
G4Element* Pb = new G4Element("Lead" ,symbol="Pb" , z=82., a=207.2*g/mole);
```

結晶の定義

```
G4Material* BSO =
new G4Material("BSO",density= 6.800*g/cm3, ncomponents=3);
BSO->AddElement(Bi, natoms=4);
BSO->AddElement(Si, natoms=3);
BSO->AddElement(O, natoms=12);
```

計算結果

Material: BSO density: 6.800 g/cm3 RadL: 1.149 cm Nucl.Int.Length: 23.387 cm lmean: 460.448 eV
---> Element: Bismuth (Bi) Z = 83.0 N = 209.0 A = 209.00 g/mole ElmMassFraction: 75.16 % ElmAbundance 21.05 %
---> Element: Silicon (Si) Z = 14.0 N = 28.1 A = 28.09 g/mole ElmMassFraction: 7.58 % ElmAbundance 15.79 %
---> Element: Oxygen (O) Z = 8.0 N = 16.0 A = 16.00 g/mole ElmMassFraction: 17.26 % ElmAbundance 63.16 %

PDG

Table 28.4: Properties of several inorganic crystal scintillators. Most of the notation is defined in Sec. 6 of this *Review*.

Parameter:	ρ	MP	X_0^*	R_M^*	dE^*/dx	λ_I^*	τ_{decay}	λ_{max}	n^{\ddagger}	Relative output [†]	Hygroscopic?	$d(\text{LY})/dT$
Units:	g/cm^3	$^{\circ}\text{C}$	cm	cm	MeV/cm	cm	ns	nm				$\%/^{\circ}\text{C}^{\ddagger}$
NaI(Tl)	3.67	651	2.59	4.13	4.8	42.9	230	410	1.85	100	yes	-0.2
BGO	7.13	1050	1.12	2.23	9.0	22.8	300	480	2.15	21	no	-0.9
BaF ₂	4.89	1280	2.03	3.10	6.5	30.7	630 ^s 0.9 ^f	300 ^s 220 ^f	1.50	36 ^s 3.4 ^f	no	-1.3 ^s $\sim 0^f$
CsI(Tl)	4.51	621	1.86	3.57	5.6	39.3	1300	560	1.79	165	slight	0.3
CsI(pure)	4.51	621	1.86	3.57	5.6	39.3	35 ^s 6 ^f	420 ^s 310 ^f	1.95	3.6 ^s 1.1 ^f	slight	-1.3
PbWO ₄	8.3	1123	0.89	2.00	10.1	20.7	30 ^s 10 ^f	425 ^s 420 ^f	2.20	0.083 ^s 0.29 ^f	no	-2.7
LSO(Ce)	7.40	2050	1.14	2.07	9.6	20.9	40	402	1.82	83	no	-0.2
LaBr ₃ (Ce)	5.29	788	1.88	2.85	6.9	30.4	20	356	1.9	130	yes	0.2

* Numerical values calculated using formulae in this review.

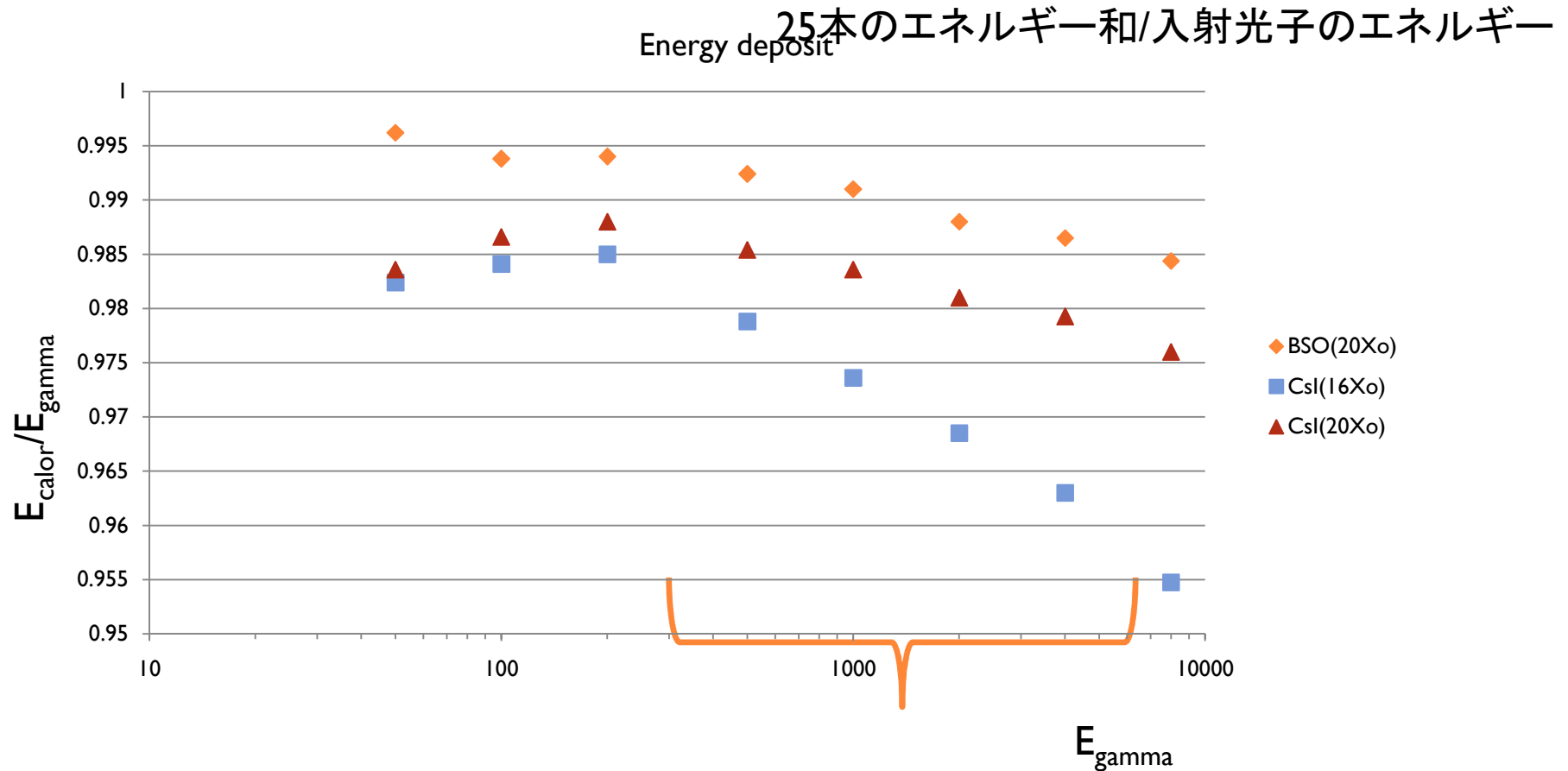
[‡] Refractive index at the wavelength of the emission maximum.

[†] Relative light output measured for samples of 1.5 X_0 cube with a Tyvek paper wrapping and a full end face coupled to a photodetector. The quantum efficiencies of the photodetector is taken out.

[‡] Variation of light yield with temperature evaluated at the room temperature.

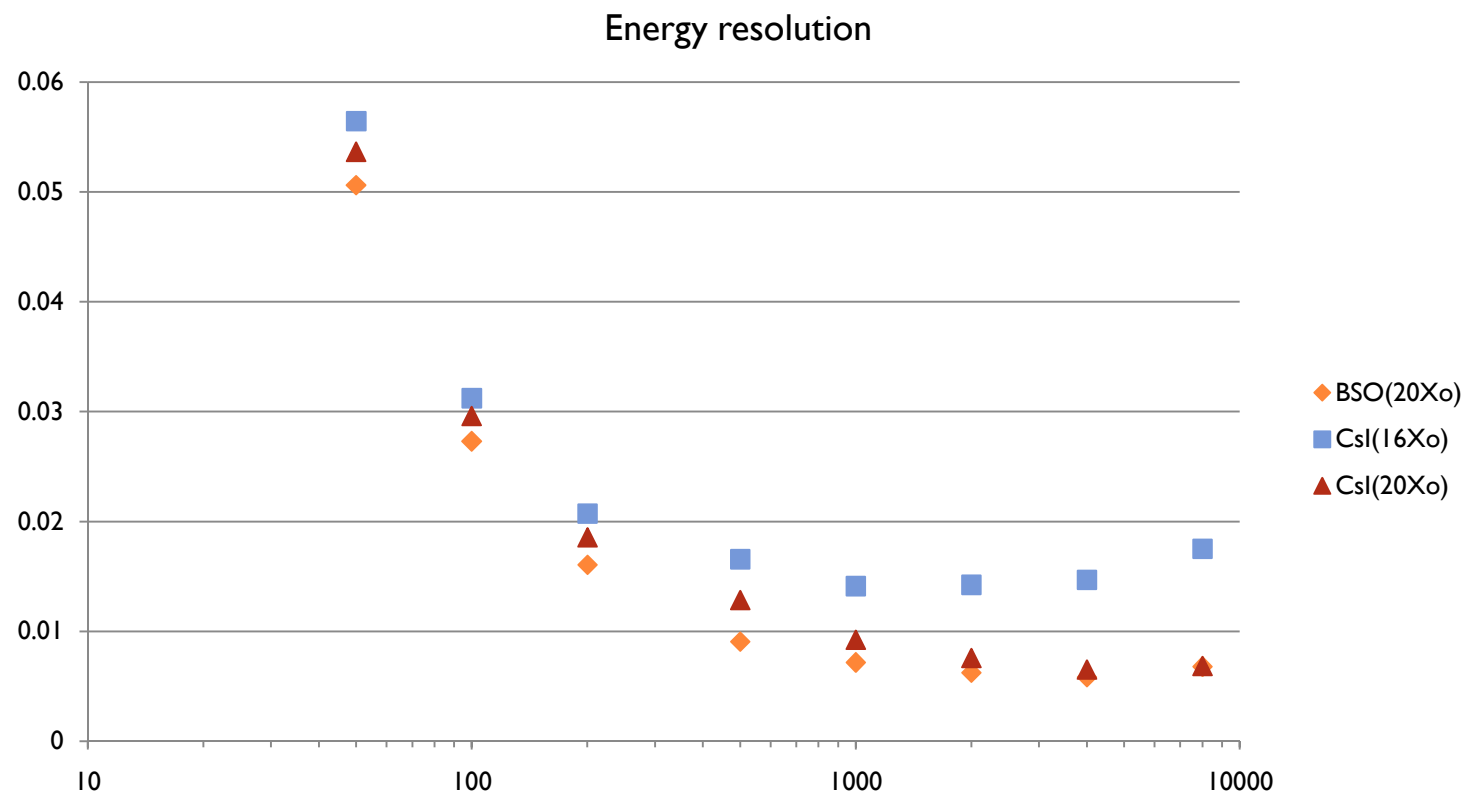
f = fast component, *s* = slow component

分布のピークと入射エネルギーの比



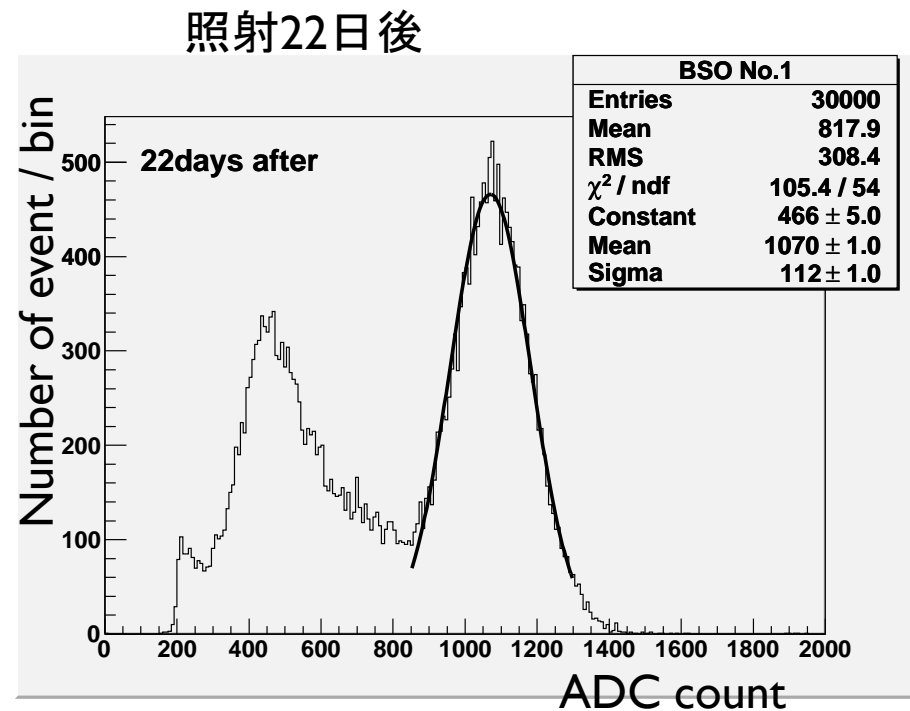
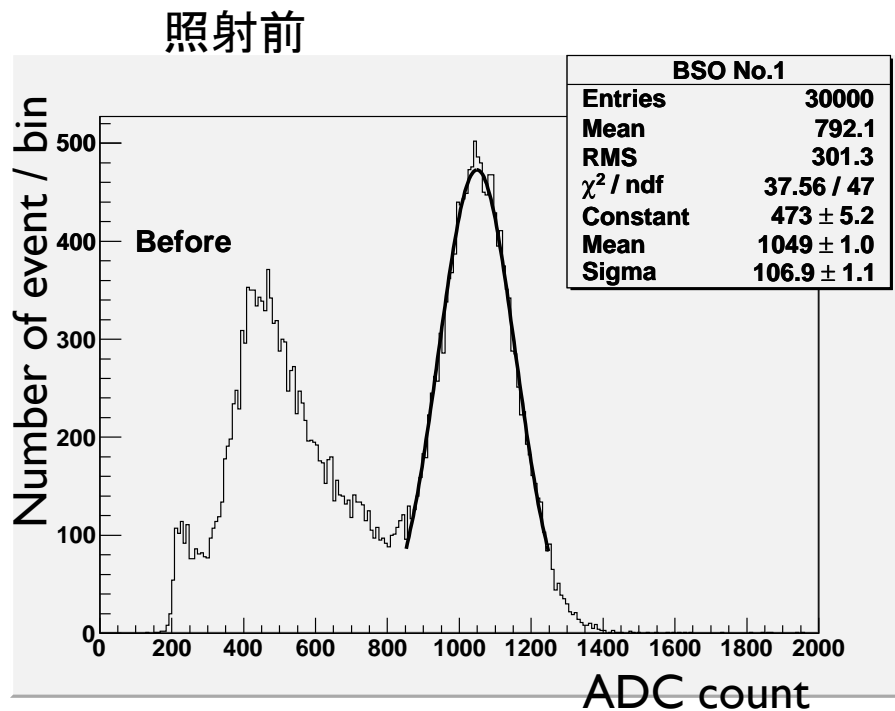
BSOは $20X_0=230\text{mm}$ に対してCsIは $16X_0=300\text{mm}$ のため
高エネルギー領域でのシャワーのもれが大きい

20X0のCsIを入れたもの (GEANT4によるシミュレーション)



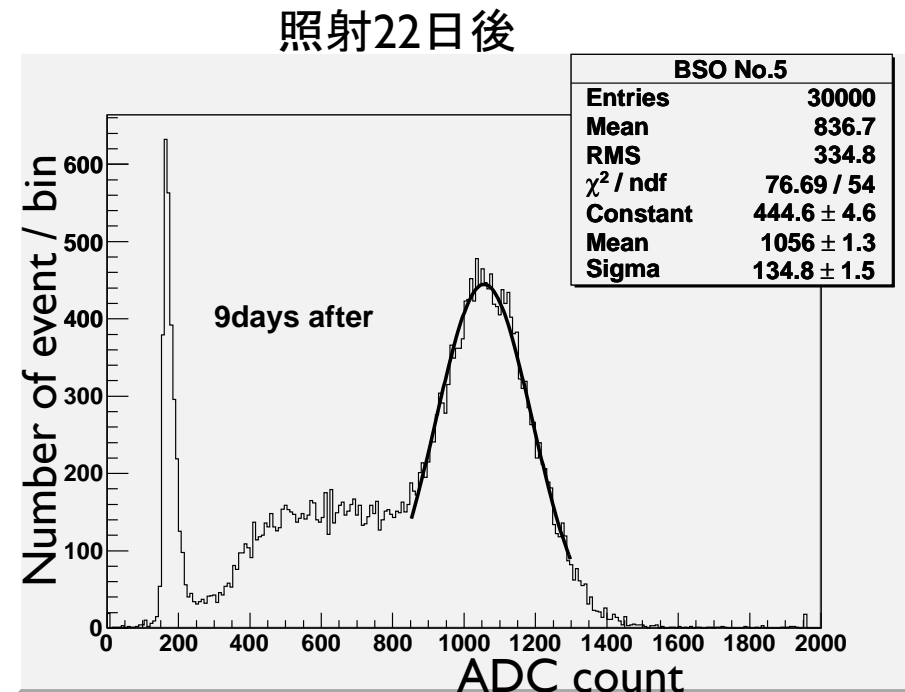
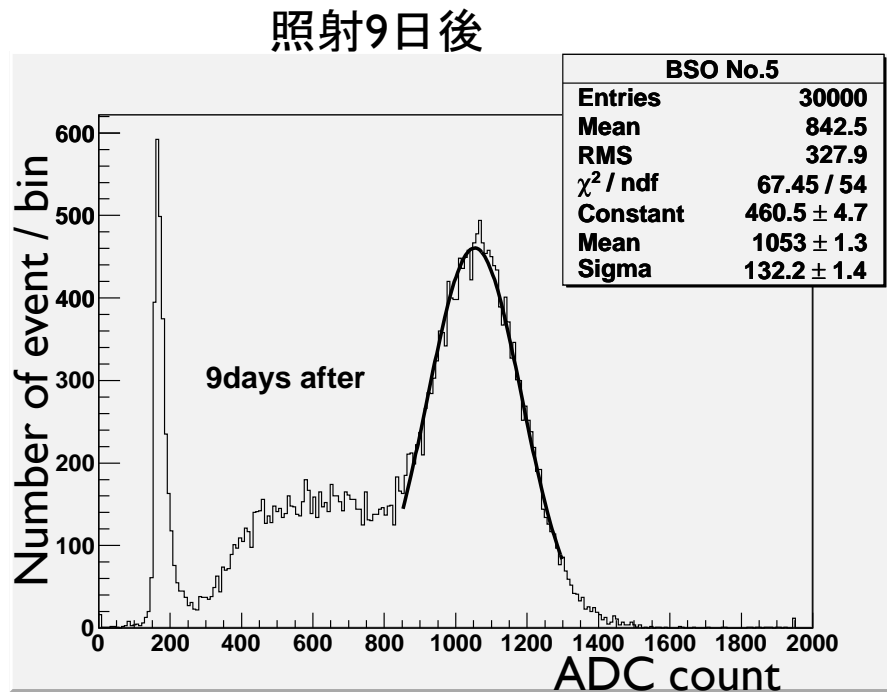
BSOの γ 線照射前後の波高分布

・1 Gy照射前後の波高分布



662keVの γ 線源 ^{137}Cs を
使用AMP有、ATT18dB

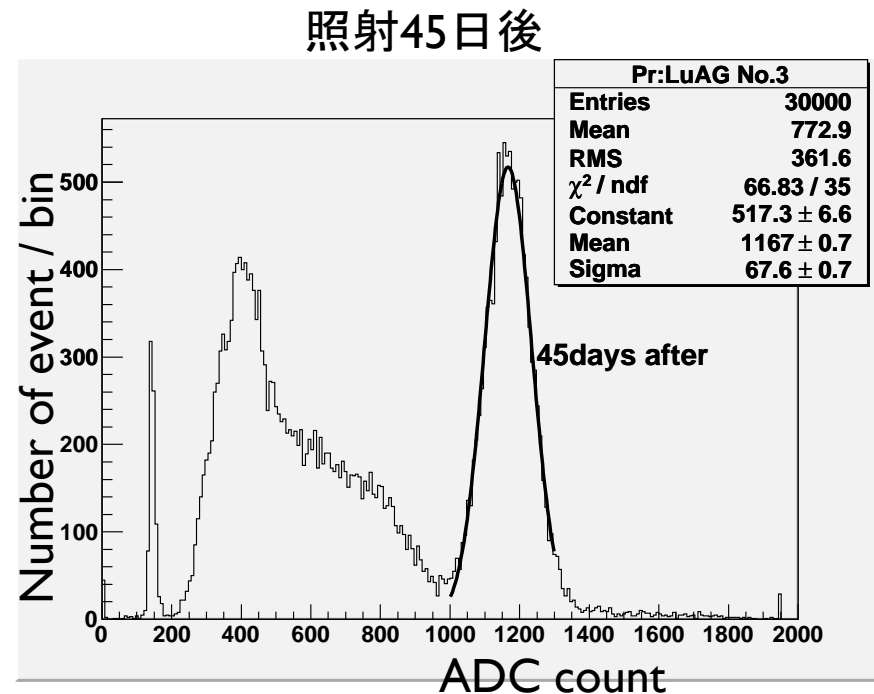
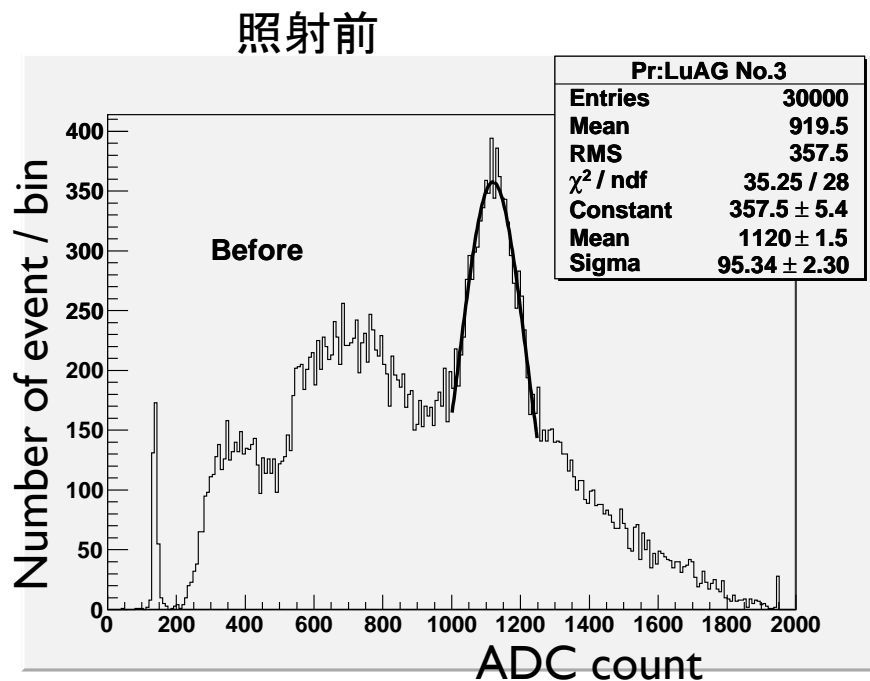
BSOの中性子照射前後の波高分布



662keVの γ 線源 ^{137}Cs を使用
AMP有、ATT4dB

Pr:LuAGの中性子照射前後の波高分布

▶ 10^{11} neutrons/cm²照射



662keVの γ 線源 ^{137}Cs を
使用AMP有、ATT18dB

照射後は放射化によるバックグラウンドが多くなったため
強度の大きい線源を用いた
強度は照射前41.2kBq、照射後3.7MBqである

電磁カロリメーター(ECL)の原理

電子や光子のエネルギーの測定

カロリメーターに入射した電子や光子



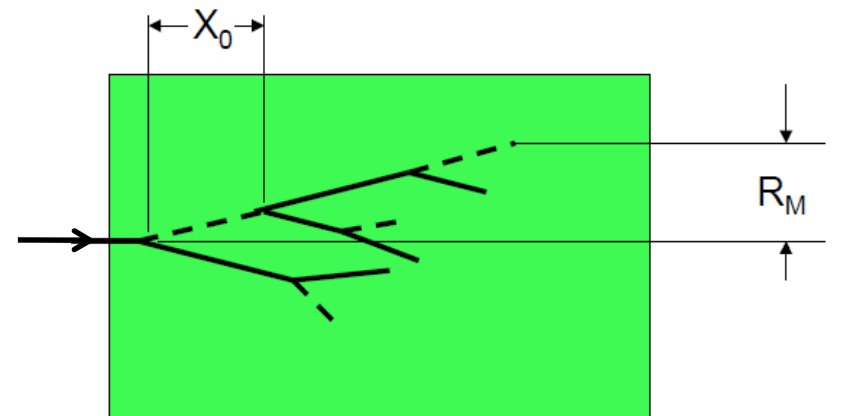
制動放射や電子対生成といった反応を起し、電磁シャワーを形成



シャワーはそのエネルギーのほとんどをカロリメーター中で失う



失ったエネルギーを信号に変換して読みだす



カロリメーター中のシャワーの様子

X_0 : 輻射長

高エネルギーの電子が物質を通過した際、制動放射によりエネルギーの平均値が最初の $1/e$ になるまでの長さ

カロリメーターの長さを決める指標となる量

R_M : モリエール半径

シャワーの横方向の広がりの指標となる量

R_M の短い材料を用いた場合、近接して入射した2つの粒子の分離が容易になる

現在のBelle検出器の電磁カロリメーター結晶

▶ TI添加CsIシンチレーター

- ▶ 多量の発光量
- ▶ ただし発光時間が長い(1 μ sec)



- ▶ Belle-IIではパイルアップによりエネルギー分解能が悪化するため、発光時間の短いシンチレーターが適している

Ex. PureCsI ~10nsec

- ▶ X_0 は1.86cm R_M は3.57cm

- ▶ 結晶のサイズは

長さ30cm=16 X_0

前面の幅5.5cm=1.5 R_M



- ▶ さらに重い(X_0 、 R_M が小さい)結晶を使えば

$B^0 \rightarrow \pi^0 \pi^0$

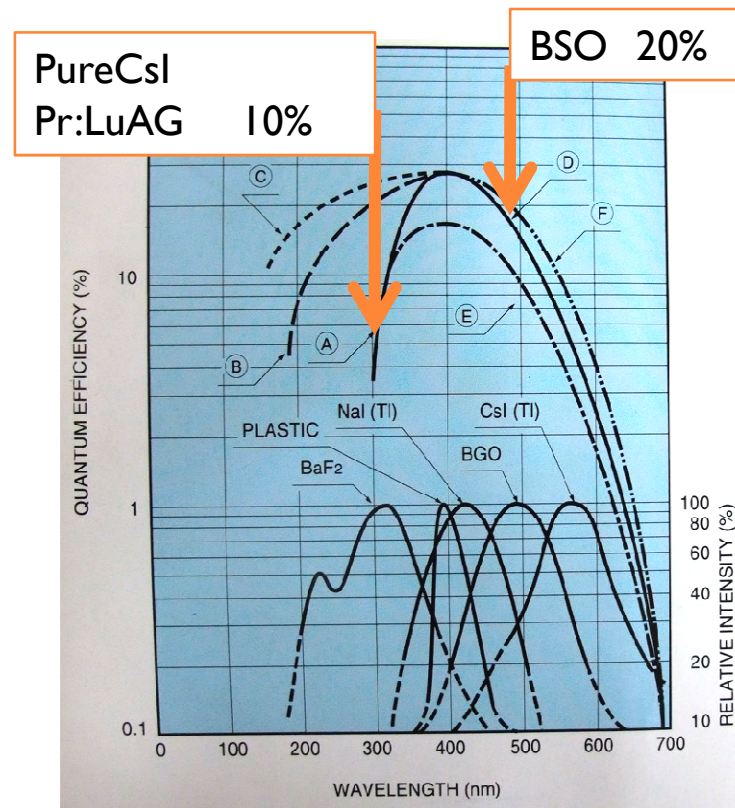
の再構成などに有利となる

光電子増倍管の仕様：H3167とH1161

- ▶ ほう珪酸ガラス窓
- ▶ バイアルカリ光電陰極
(最大量子効率～27%)

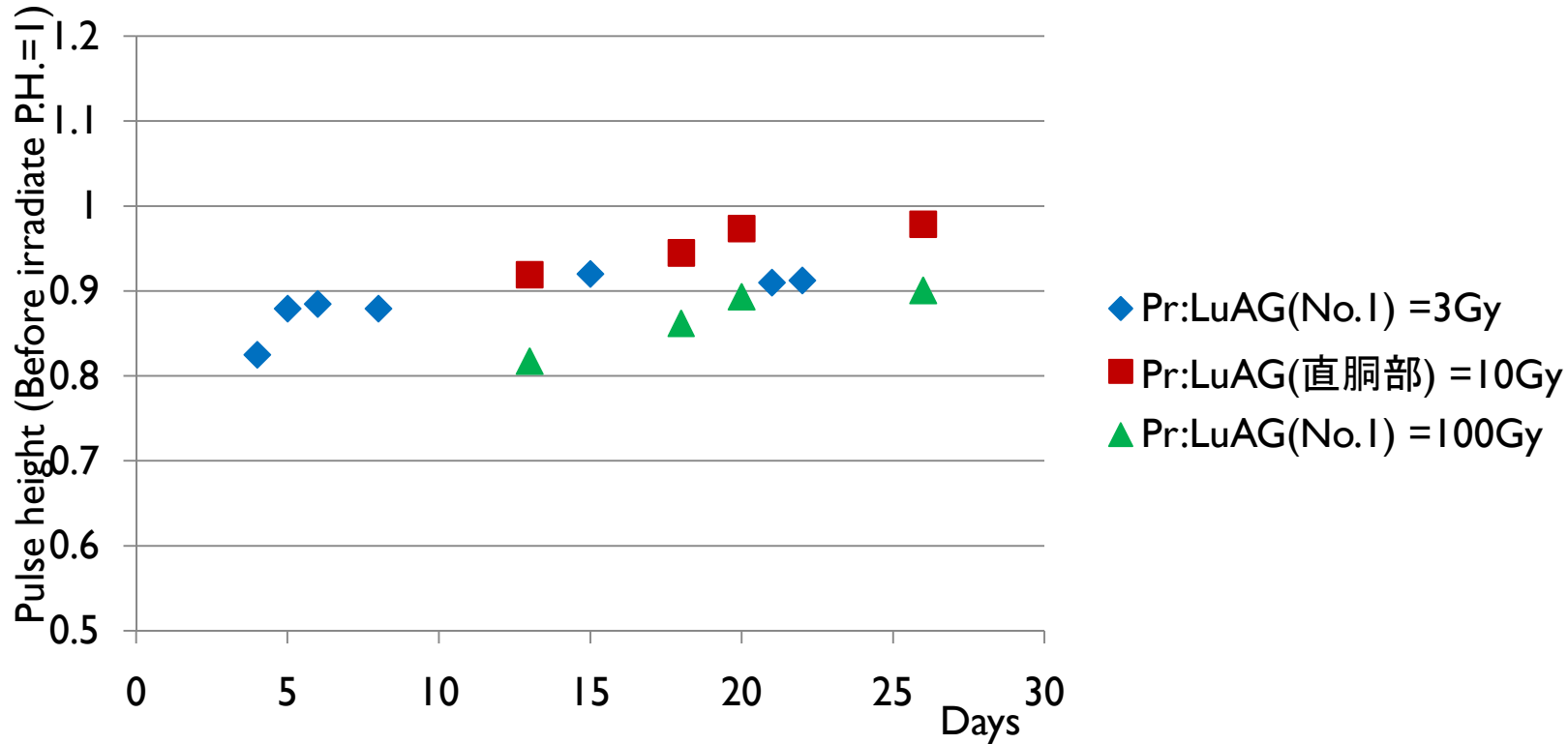


量子効率はBSOで20%
PureCsI及びPr:LuAGで10%



γ線照射後のPr:LuAGの経時変化

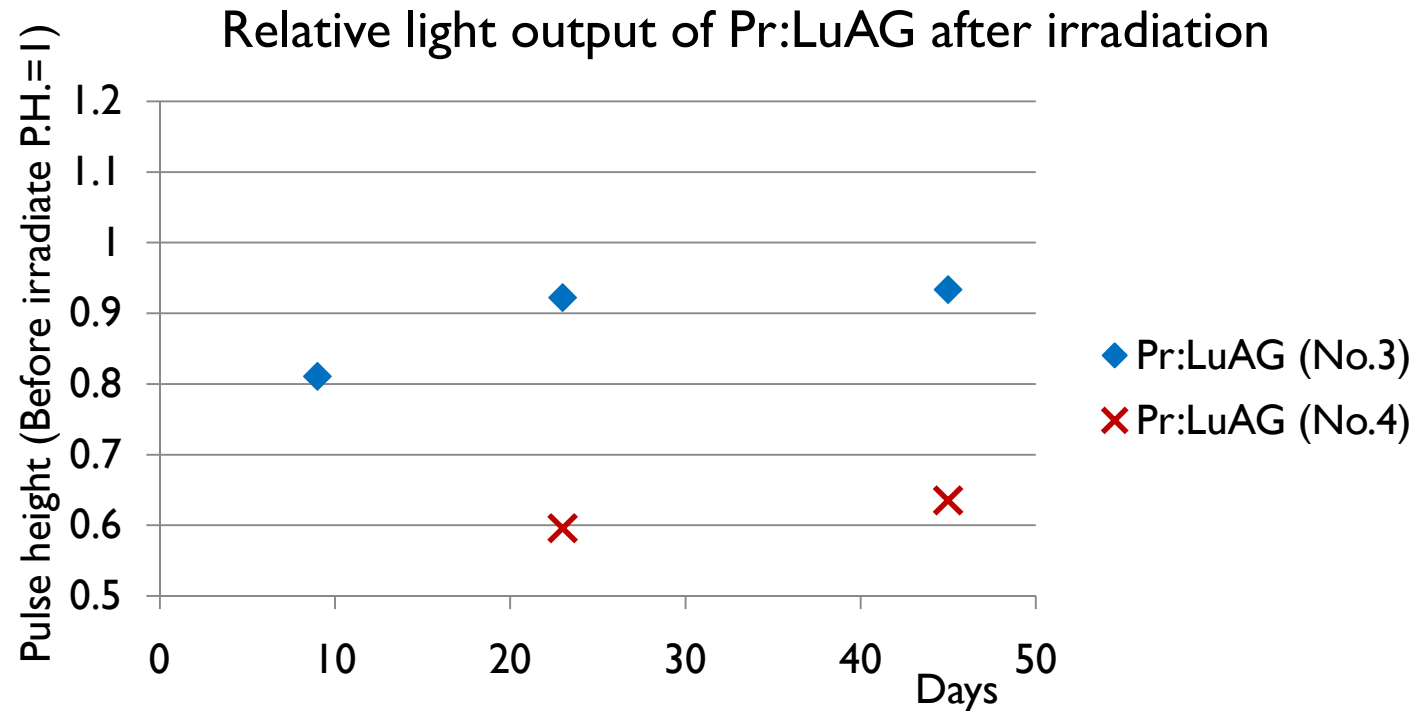
Relative light output of Pr:LuAG after irradiation



$$\text{Relative pulse height} = \frac{L.O.(sample, x \text{ day}) / L.O.(ref. crystal, x \text{ day})}{L.O.(sample, before irradiation) / L.O.(ref. cristal, before irradiation)}$$

x = Days after irradiation

中性子照射後のPr:LuAGの経時変化



$$\text{Relative pulse height} = \frac{L.O.(sample, x \text{ day}) / L.O.(ref. crystal, x \text{ day})}{L.O.(sample, before irradiation) / L.O.(ref. cristal, before irradiation)}$$

x = Days after irradiation

10^{11} neutrons/cm²照射した場合は照射前の95%まで回復する。

10^{12} neutrons/cm²照射した場合、波高は4割程度減少する。

温度依存性

PureCsIの温度依存性

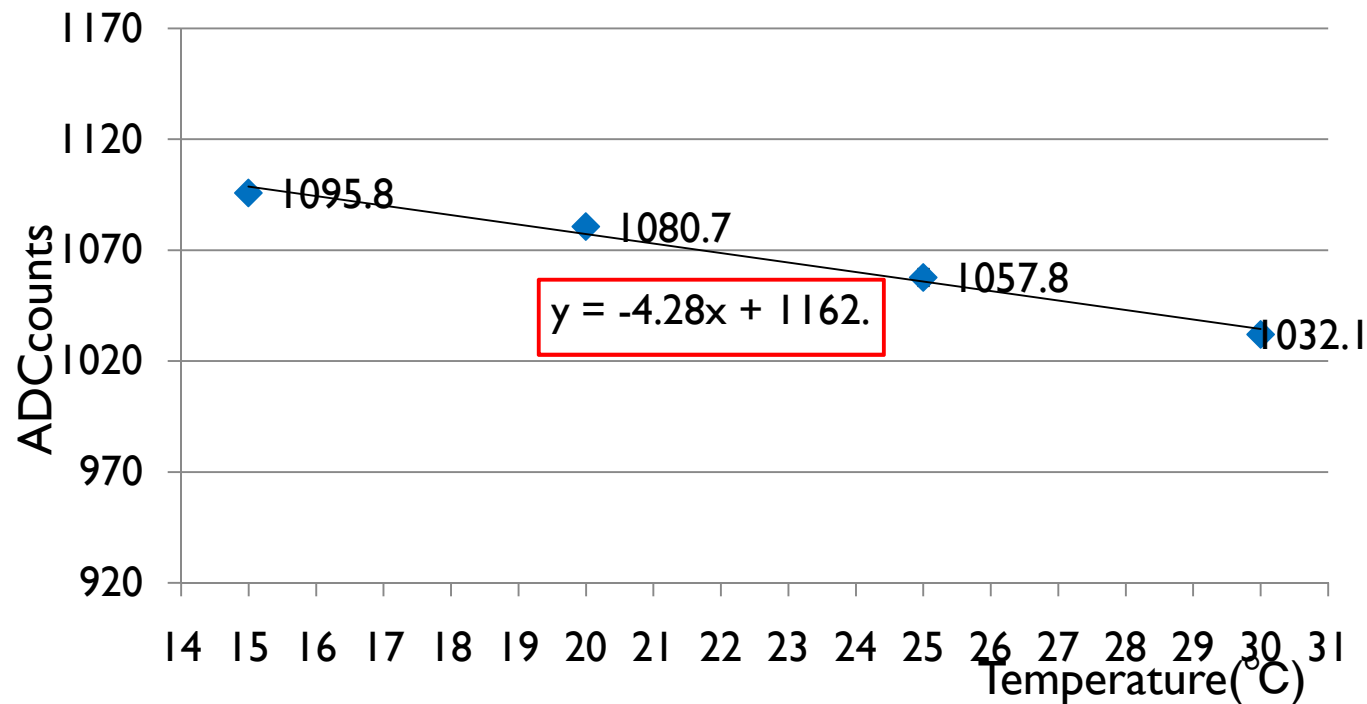
測定手順

測定範囲は15°Cから30°C

使用した光電子増倍管はH3167

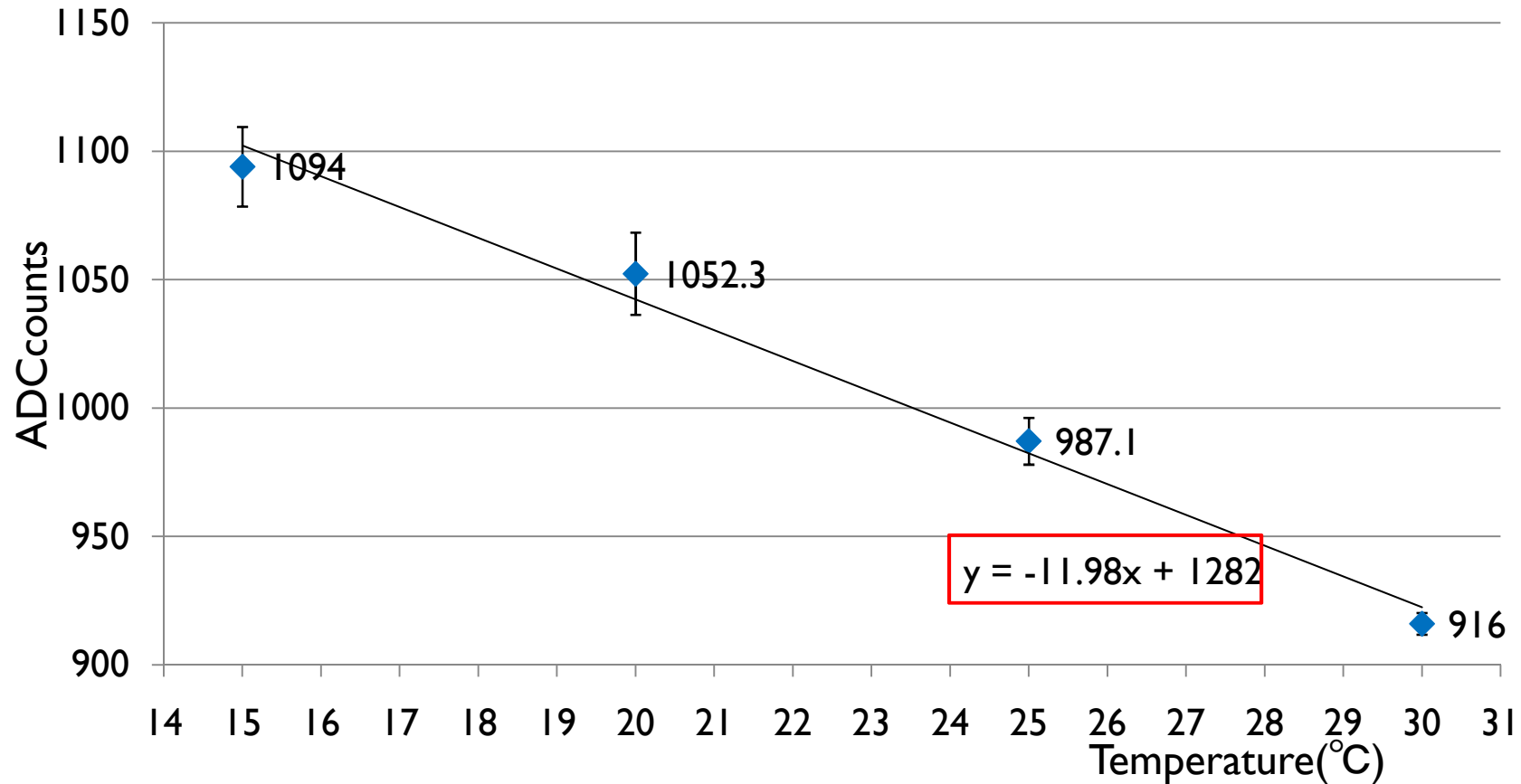
結晶と光電子増倍管はオプティカルグリースで粘着

Temperature dependence of PureCsI



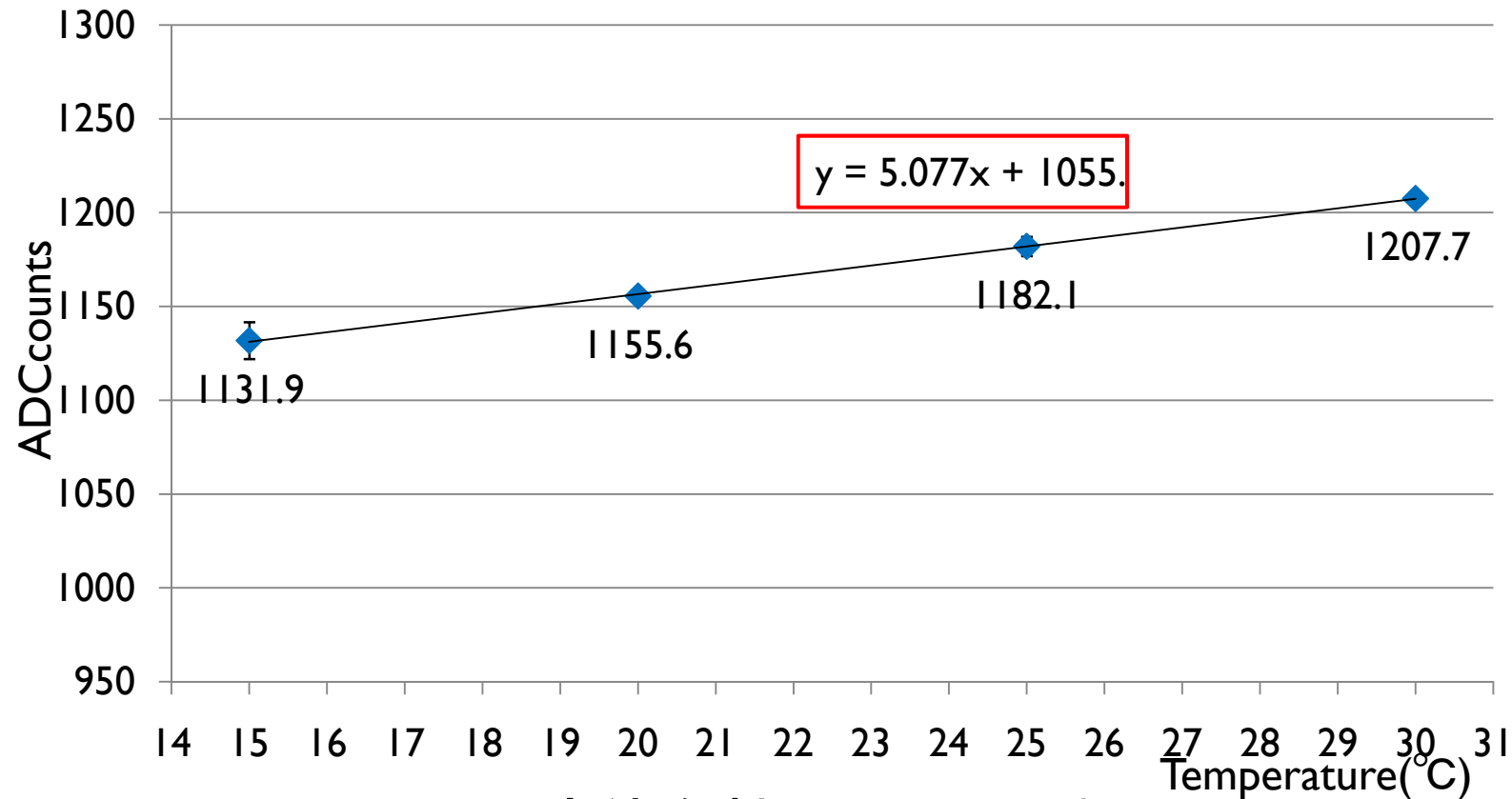
BSOの温度依存性

Temperture dependence of BSO



Pr:LuAGの温度依存性

Temperature dependence of Pr:LuAG




Pr:LuAGの温度依存性は +0.5%/°C

いずれの結晶も実機を較正する際に支障はない程度の
温度依存性であった

シンチレーターの特徴

	PureCsI	Pr:LuAG	BSO	BGO	PWO	CsI(Tl)
密度(g/cm ³)	4.53	6.68	6.80	7.13	8.28	4.53
輻射長(cm)	1.86	1.47	1.15	1.12	0.92	1.86
モリエール半径(cm)	3.57	2.16	2.63	3.10	2.00	3.57
発光波長(nm)	300	310	480	480	430	560
光量(NaI(Tl)=100)	3.7	33	2	10	0.26	165
減衰時間(ns)	~10	~25	100	300	10	1300
潮解性	若干有	無	無	無	無	若干有


 現在のBelle
 で使用