



**НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЦЕНТР
«КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ»**
Институт физики высоких энергий имени А.А. Логунова
Национального исследовательского центра
«Курчатовский институт»

Препринт 2022–9

В.Н. Евдокимов

**Изучение долговременной стабильности счетчиков,
состоящих из экструдированного сцинтиллятора и
переизлучающих свет оптических волокон**

Направлено в *ИТЭ*

Протвино 2022

Аннотация

В.Н. Евдокимов. Изучение долговременной стабильности счетчиков, состоящих из экструдированного сцинтиллятора и переизлучающих свет оптических волокон: Препринт НИЦ «Курчатовский институт» – ИФВЭ 2022–9. – Протвино, 2022. – 13 с., 9 рис., библиогр.: 3.

Приведены результаты изучения долговременной стабильности счетчиков, состоящих из полос экструдированного сцинтиллятора и переизлучающих свет оптических волокон. Перед массовым изготовлением счетчиков для установки Mu2e было проведено исследование старения сцинтилляторов и волокон прототипов с использованием ускоренного старения при более высоких температурах, которое потом было продолжено как интересная методическая работа. За первые 5-6 лет происходит снижение световыхода на уровне 3% в год. Затем старение происходит медленнее, и после 26% снижения выхода света за 20 лет, почти прекращается. Проведенное после перерыва около двух с половиной лет повторение изучения ускоренного старения «состаренных» ранее образцов показало, что старение такого сцинтиллятора, приведенное к температуре 20°C, не превышало 0,5% в год. Проверка методики ускоренного старения прямыми измерениями в течение 4,5 лет показали, что результаты, полученные прямыми измерениями и с использованием методики ускоренного старения, хорошо согласуются между собой.

Abstract

Evdokimov V.N. The long-term stability study for counters consisting of extruded scintillator strips and wavelength shifting fibers: NRC «Kurchatov Institute» – IHEP Preprint 2022–9. – Protvino, 2022. – p. 13, fig. 9, refs.: 3.

Results of long term stability study for counters consisting of extruded scintillator strips and wavelength shifting fibers are presented. Aging study for scintillators and wavelength shifting fibers was performed before the start of counters production for Mu2e experiment using the increased aging rate by increasing the storage temperature; the study was continued later as interesting R&D work. During first 5-6 years the decrease of light yield is about 3% per year. Then the aging is slower, and nearly stops after 26% of decrease over 20 years. After 2.5 years, the next study of aged before samples at the increased aging rate showed the effective aging rate for these scintillators at 20°C become less than 0.5% per year. The results using faster aging at higher temperature and direct measurements of aging at room temperature during 4.5 years are in a good agreement.

1. Изучение с использованием ускоренного старения при более высоких температурах до начала массового изготовления сцинтиллятора

Группа ИФВЭ принята в эксперимент Mu2e и включена в состав коллаборации в 2017 году. Конечной целью эксперимента является наблюдение преобразования $\mu \rightarrow e$ или установка верхнего предела $< 6 \times 10^{-17}$ на 90% CL за три года работы, что в 10^4 раз лучше предыдущего предела. Основные усилия участников группы ИФВЭ были сосредоточены на разработке и создании детектора для активного подавления фона космических лучей. Важной и срочной частью этой работы являлось изучение долговременной стабильности характеристик счетчиков, включая изучение естественного старения экструдированного сцинтиллятора и смещающих спектр волокон WLS, а также всего прототипа. Проведенное перед изготовлением счетчиков для установки Mu2e исследование старения (уменьшения световыхода) сцинтилляторов и волокон прототипов далее продолжена как интересная методическая работа.

Использование ускоренного старения при более высоких температурах основано на возрастании скорости химических реакций от температуры (закон Аррениуса). Старение сцинтиллятора рассматривалось как простейшая химическая реакция вида $A \rightarrow X$, дающую в результате деградацию главных характеристик сцинтиллятора — световыхода и прозрачности. Скорость химической реакции определяется по формуле $dA/dt = k(T) \cdot A$, где A - концентрация реагента, $k(T)$ - константа химической реакции. Температурная зависимость константы скорости химической реакции описывается уравнением Аррениуса: $k(T) = k_0 \cdot \text{Exp}(E/RT)$, где k_0 - множитель, который не зависит от температуры, а определяется только видом реакции; R и T - универсальная газовая постоянная и температура соответственно. Здесь E - энергия активации, которую можно понимать как некоторую пороговую энергию: если энергия сталкивающихся частиц меньше E , то при столкновении реакция не произойдет, если энергия превышает E , реакция произойдет. Энергия активации не зависит от температуры и задает масштаб изменения скорости реакции при изменении температуры. Энергию активации полистирола можно определить, измерив константу скорости реакции при двух или более температурах.

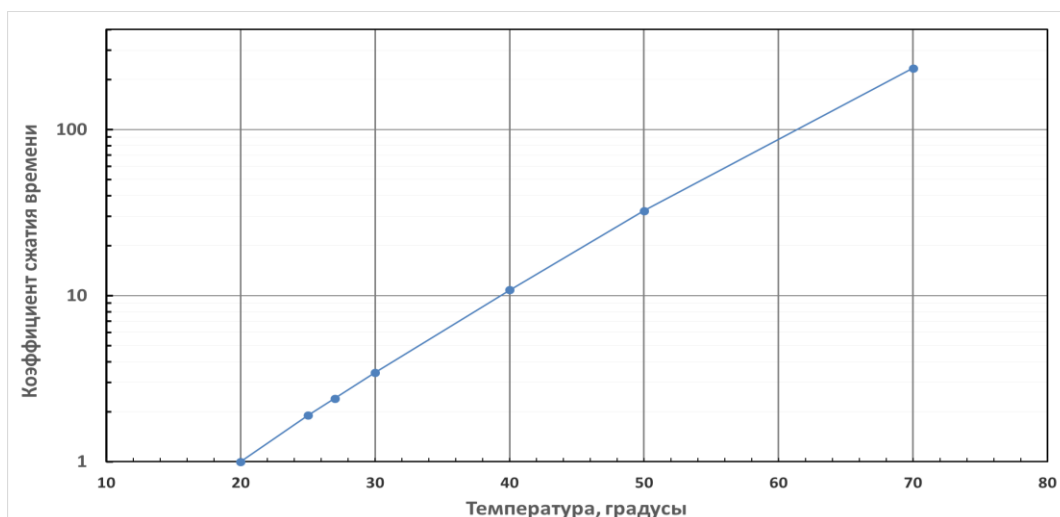


Рис. 1. Сжатие шкалы времени (в логарифмической шкале) химических реакций по формуле Аррениуса при данной температуре по сравнению с ожидаемой при температуре эксперимента 20°C.

Соотношение скоростей реакций, вычисленное по этой формуле, например, при температуре 20°C (рабочая температура эксперимента) и + 70°C (искусственное старение) при значении энергии активации для полистирола 91.19 кДж/моль, составляет 234. Один месяц старения при 70°C соответствует 19 лет старения при 20°C (Рис. 1).

Для измерения световых выходов был собран и налажен стенд с использованием космических частиц, состоящий из крейтов электроники NIM и CAMAC и контроллера связи «Wiener CC-USB CAMAC crate controller». В качестве триггера использовались два сцинтилляционных счетчика размером 98x180 мм². В качестве основных фотоприемников использовались модули Hamamatsu C13365-3050SA, состоящие из силиконовых фотоприемников SiPM (MMPC) S13360-3050CS и усилителей с встроенной компенсацией температурной зависимости усиления SiPM. Дополнительно в качестве фотоприемников использовались силиконовые фотоприемники SiPM S13360-3050CS с усилителями AMP-PLN05 без компенсации температурной зависимости усиления, которая достигает (6-8)% /°C. В этом случае температура внутри коробок с фотоприемниками измерялась с использованием температурных датчиков TMP35 для последующей компенсации усиления. Калибровочные сигналы светодиода (LED), отслеживаемые PIN-диодом Hamamatsu S3590-08, подмешивались непрерывно с частотой 1 Гц к триггерам от космических мюонов.

Изучались 6 образцов μe вето-счетчиков длиной 75 см и сечением 10 x 2 см², обозначенных как образцы от № 115 до № 120. Счетчики изготовлены путем склеивания из двух

сцинтилляционных полос с поперечным сечением $5 \times 2 \text{ см}^2$, с двумя оптическими волокнами в каждом. Каждый образец использует 4 волокна Kuraray Y11 смещающих спектр (WLS) волокон с диаметром 1,4 мм, вставленных в отверстия для волокон внутри сцинтиллятора, по два в каждой из двух склеенных вместе смежных полос. Для присоединения детектирующих коробок с SiPM и усилителями прототипы вето-счетчиков имеют на обоих концах приклеенные к сцинтиллятору пластины из непрозрачного пластика с отверстиями, куда вклеены концы WLS волокон. Эти пластины имеют также по 2 отверстия диаметром 4 мм, используемые для ввода калибровочного светового сигнала от LED прямо в сцинтиллятор. Использовался также второй способ ввода калибровочного светового сигнала – через оптические волокна, приставленные к противоположным от фотодетектора торцам WLS волокон, при этом способе старение сцинтиллятора не влияет на величину калибровочных сигналов.

Использовались 2 термостата ХТ-3/70, один поддерживал температуру 70°C , другой температуру 50°C . Образцы 115 и 118, после первоначального измерения амплитуд сигналов с обоих концов с помощью космических мюонов, хранились при 50°C , образцы 116 и 119 при 70°C . Разница в скорости старения сцинтиллятора из полистирола при этих температурах была, примерно, в 7 раз. Образцы вынимались из термостатов для измерений амплитуд при комнатной температуре на время около 10 часов примерно раз в неделю. Счетчики 117 и 120, как контрольные образцы, хранились при комнатной температуре около 27°C , амплитуды сигналов с них измерялись также примерно раз в неделю.

Результаты измерений старения сцинтиллятора показали уменьшение сигнала на 28% за 32 дня при температуре хранения сцинтиллятора 70°C , причем в первые дни старение происходит быстрее (Рис. 2 и Рис. 3). При температуре 50°C старение происходит гораздо медленнее, амплитуда сигнала уменьшается на 14% за 53 дня. Отображение результатов старения образцов при температуре 50°C и при 70°C в шкале времени, пересчитанной на 20°C по формуле зависимости скорости химической реакции от температуры (рис.4), показывает хорошее согласие данных. За первые 5-6 лет происходит около 15% снижения световыхода, или на уровне 3% в год. Затем старение происходит медленнее, в результате получается ~26% снижения выхода света с дальнего конца сцинтиллятора за 20 лет, что дает усредненную скорость старения на уровне 1,4% в год.

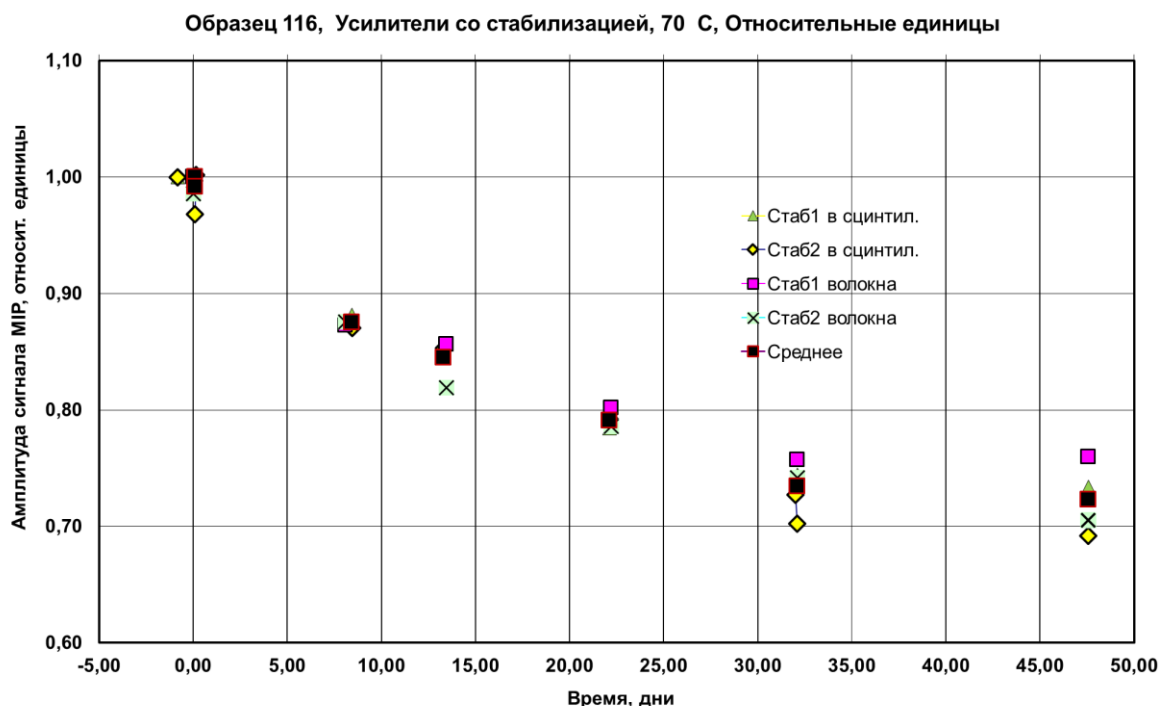


Рис. 2. Изменение амплитуды МІР сигналов со счетчика №116 при температуре 70°С для ускоренного старения. Стаб1 и Стаб2 - сигналы с различных полос сцинтиллятора, с использованием усилителей со стабилизацией температурной зависимости усиления. «В сцинт» и «волокна» - измерения, отличающиеся деталями ввода калибровочного сигнала от светодиода.

Сравнение уменьшения амплитуд сигналов с ближнего и дальнего от фотоприемников концов полосы сцинтиллятора показало, что старение, в основном, связано с уменьшением длины поглощения сцинтиллятора. Такой же вывод следует из сравнения уменьшения калибровочных сигналов от LED, вводимых через сцинтиллятор, и стабильность калибровочных сигналов от LED, вводимых через торцы WLS волокон. За время работы эксперимента 10 лет можно ожидать 20% уменьшения световыхода сцинтиллятора, что является вполне приемлемым результатом. Затем старение происходит медленнее, в результате получается ~26% снижения выхода света с дальнего конца сцинтиллятора за 20 лет. Использование большого числа данных измерений показало четкое насыщение изменений усиления, когда сигнал сцинтиллятора уменьшается до уровня около 73% от первоначального уровня и далее почти не изменяется.

Результаты старения при температуре 50°C и при 70°C в шкале времени, пересчитанной по формуле зависимости скорости химической реакции от температуры, хорошо согласуются и ложатся на общую кривую. Измерение старения при двух разных температурах равнозначно новому измерению энергии активации, а при использовании известной из литературы величины энергии активации позволяет делать перекрестную проверку результатов.

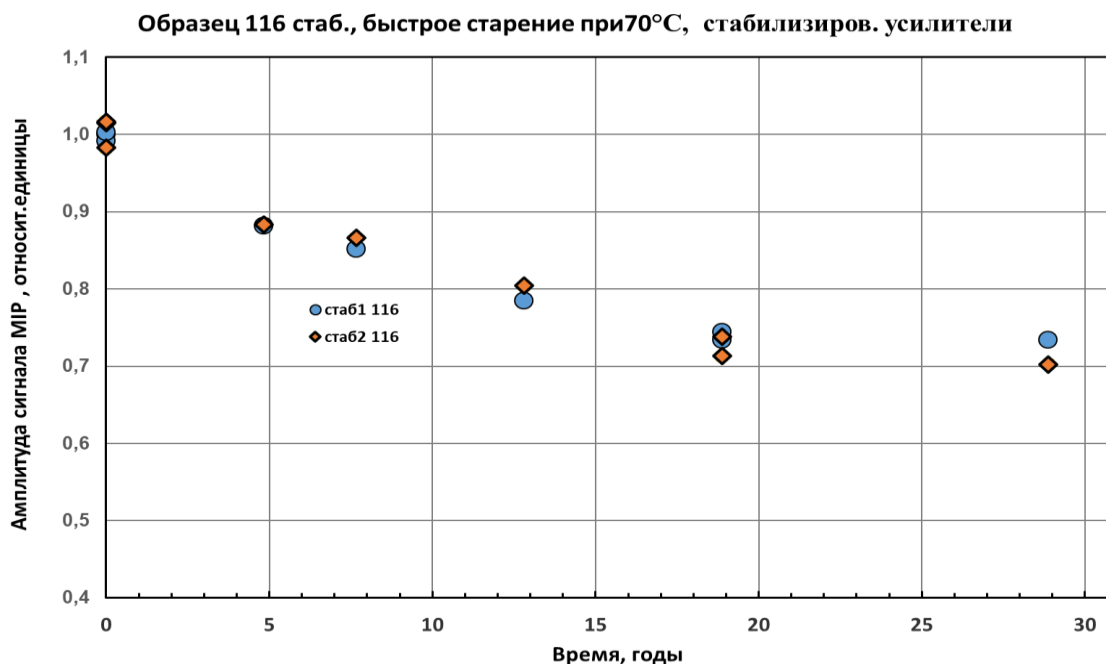


Рис. 3. Изменение амплитуды МІР сигналов с №116 от времени при температуре 70°C для ускоренного старения. Приведены сигналы с различных полос сцинтиллятора, с вводом калибровочных сигналов прямо в сцинтиллятор. Шкала времени пересчитана по формуле Аррениуса от 70°C к температуре эксперимента 20°C.

Такие измерения были проведены и их основные результаты были доложены на совещании коллаборации в 2017 году, что позволило вовремя начать производство экструдированного сцинтиллятора. Однако, доклад перед коллаборацией вызвал ряд вопросов о надежности полученных данных при использовании ускоренного старения, особенно о смысле и точности имеющихся данных об энергии активации полистирола, что потребовало дополнительных из-

мерений и изучения данных. Крайне желательным для будущих использований метода ускоренного старения для сцинтиллятора является прямое сравнение данных, полученных при ускоренном старении и (требующих много времени) прямых измерений старения.

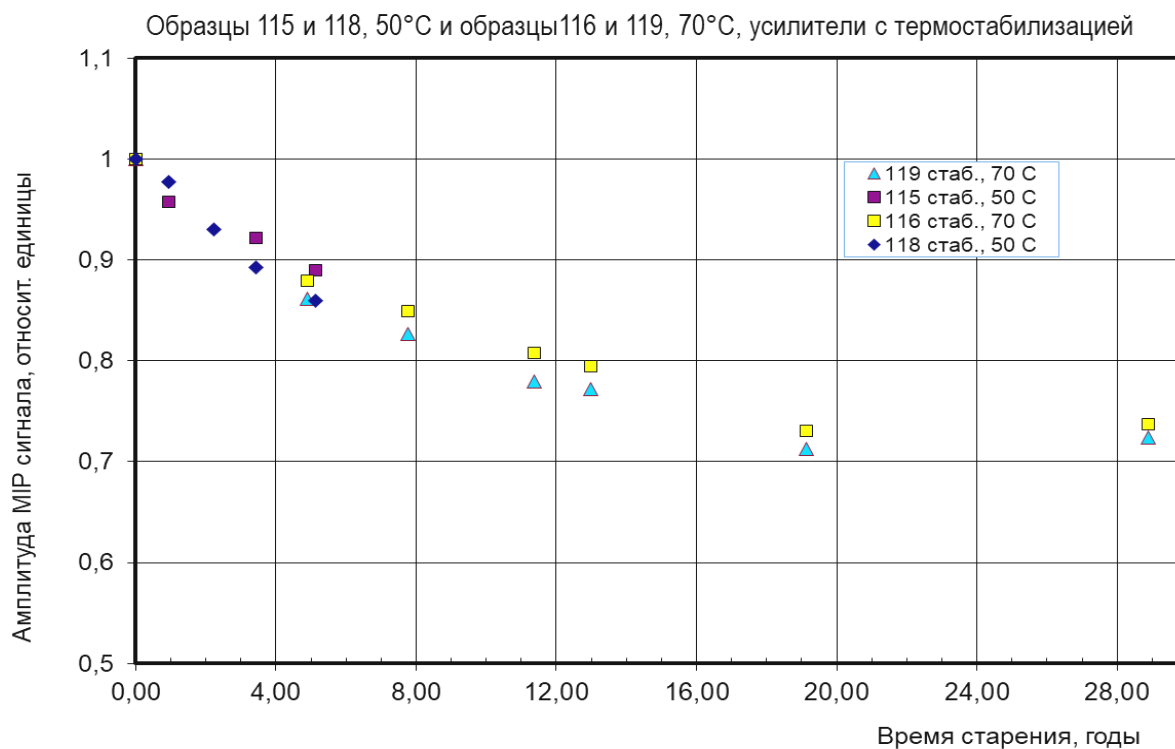


Рис. 4. Отображение результатов старения образцов 115 и 118 при температуре 50°C и образцов 116 и 119 при 70°C в шкале времени, пересчитанной по формуле Аррениуса. Показаны усредненные по двум волокнам в сцинтилляторе данные с использованием усилителей с термостабилизацией.

Совпадение результатов по старению, полученных при двух различных температурах, показывает надежность использования ускоренного старения и правильность расчетов увеличения скорости старения от температуры (использованного значения энергии активации для полистирола). Анализ данных показал, что изменение значения энергии активации на 10% приводит изменению соотношения скоростей старения температурах 50°C и 70°C на 20%. Результаты экспоненциального фита скорости уменьшения сигнала при этих температурах показали, что точность определения энергии активации из наших данных составляет 10%, а ее величина совместима с данными из литературы. Таким образом, измерение старения при двух

разных температурах оказалось равнозначно новому измерению энергии активации, совместимой с известной из литературы величиной.

2. Повторение изучения старения «состаренных» ранее образцов сцинтиллятора после выдержки около двух с половиной лет

Данные проведенных подробных измерений на нескольких образцах с использованием методики ускоренного старения показали, что за 20 лет сигнал сцинтиллятора уменьшается до уровня около 70% от первоначального уровня и далее практически не изменяется. Такое поведение сигнала побудило нас провести дополнительное изучение «состаренных» ранее образцов сцинтиллятора. **После выдержки около двух с половиной лет (для стабилизации или возможного восстановления свойств)** в конце 2019 года было проведено новое изучение старения этих образцов сцинтилляторов с использованием космических частиц и уже отлаженной техники ускоренного старения. Два крайних варианта ожидаемых результатов – или это теперь стабильные сцинтилляторы, почти без старения, или старение продолжится, например, за счет других реакций, приводящих к ухудшению сцинтиллятора.

Два прототипа, содержащий каждый два изолированных друг от друга по сбору света полос сцинтиллятора, всего 4 счетчика, были 2017 году подвергнуты ускоренному старению выдержкой в течение 53 дней в термостате при температуре 70°C, что было эквивалентно старению в течение 30 лет при температуре при 20°C. (Рис. 3). Сигнал сцинтиллятора за это время уменьшился до уровня около 70% от первоначального уровня и далее практически не изменялся в течение 2,5 лет. После этого, в конце 2019 года, эти же образцы были подвергнуты новому сеансу ускоренного старения выдержкой в термостате при температуре 70°C, с перерывами для измерений, в течение 20 дней, что соответствовало старению в течение 13 лет при температуре 20°C. Результаты измерений всех 4 счетчиков показали стабильные амплитуды сигналов от мюонов, старение сцинтиллятора не превышало 0,5% в год при температуре 20°C (Рис. 5 и Рис. 6).

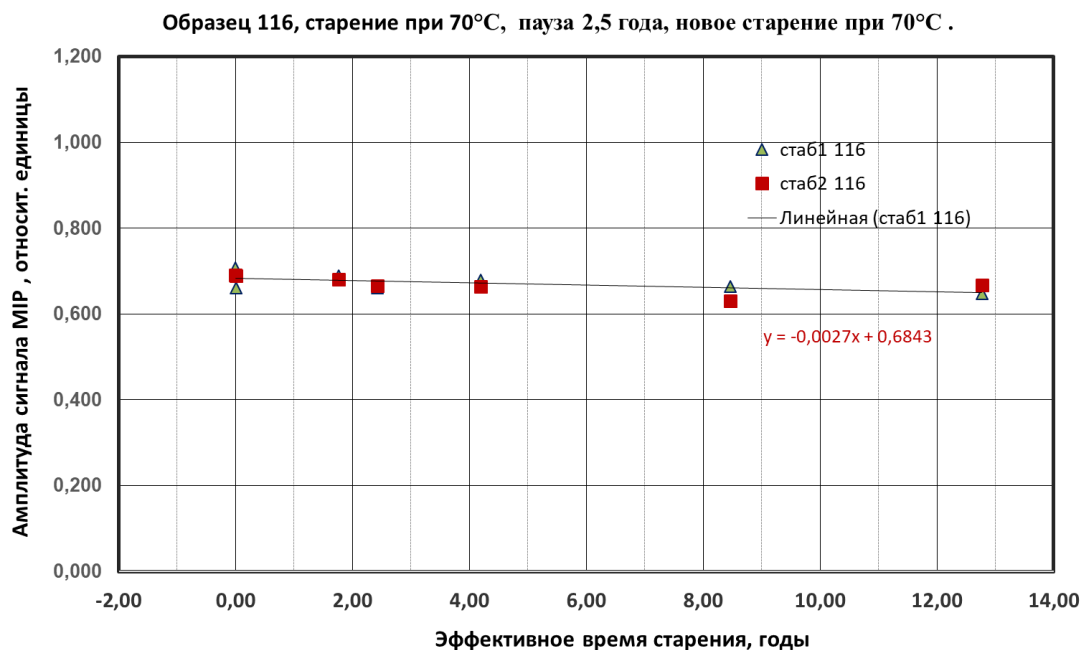


Рис. 5. Изменение амплитуды МПР сигналов с прототипа сцинтилляционного счетчика № 116 от времени во втором сеансе ускоренного старения при температуре 70°C. Стаб1 и стаб2 - сигналы с различных полос сцинтиллятора.

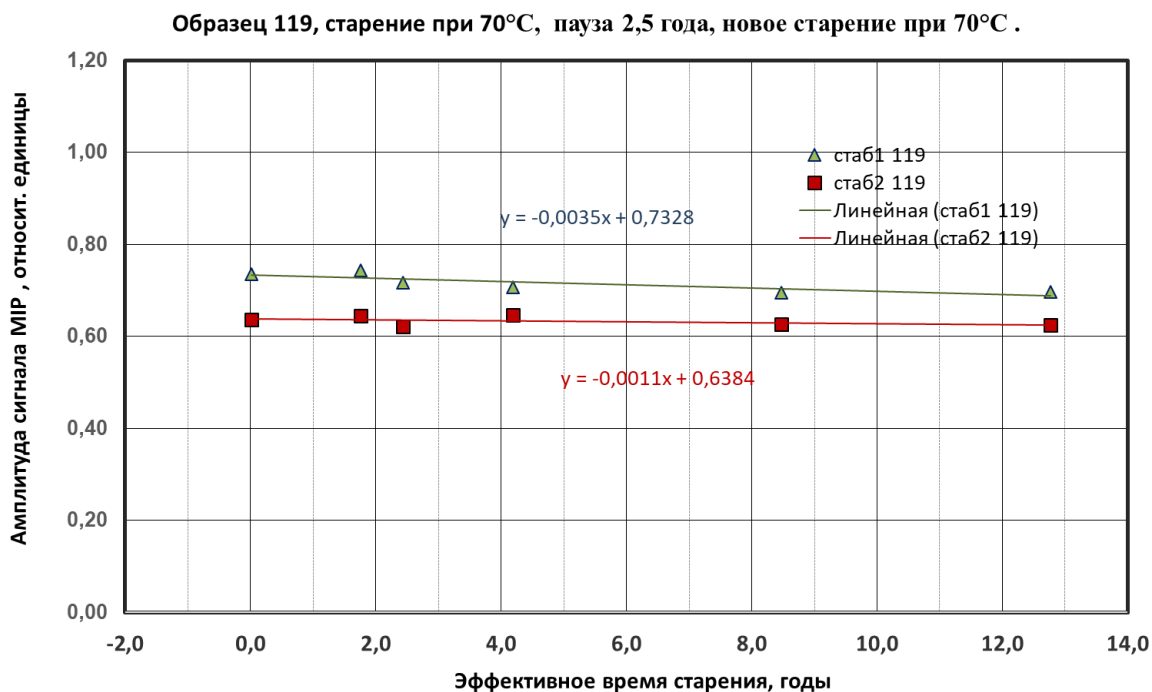


Рис. 6. Изменение амплитуды МПР сигналов с образца №119 от времени во втором сеансе ускоренного старения в шкале эффективного времени старения в годах.

Приведены данные линейного фита, показывающего, что уменьшение величины сигнала со сцинтиллятора после предварительного ускоренного старения не превышает $0.27\% / 0.67 = 0.4\%$ в год для стаб1 и стаб2 на рис. 5 и $0.35\% / 0.73 = 0.5\%$ в год для стаб1 и $0.11\% / 0.63 = 0.2\%$ в год для стаб2 на рис. 6.

Новое изучение старения дало интересный результат - состаренные ранее сцинтилляторы теперь стабильны и дальше не стареют.

3. Проверка методики ускоренного старения прямыми измерениями

Согласованность наших результатов по старению, полученных для нескольких образцов при двух различных температурах, показало надежность данных изучения старения и правильность расчетов увеличения скорости старения от температуры. Тем не менее, проверка методики ускоренного старения прямыми измерениями имеющихся образцов сцинтиллятора, которые были реперными в предыдущих измерениях, хранились при комнатной температуре и не подвергнуты ускоренному старению, представляется интересной. В основных измерениях по изучению старения, проведенных в 2017 году течение пары месяцев, естественное старение этих образцов было меньше разброса данных измерений. При повторении таких измерений в конце 2019 года, через 2,5 года, прямые измерения старения стали доступны по точности, так как ожидается уже уменьшение сигнала в результате старения около 10%, что в несколько раз больше ошибки измерений. Новые циклы таких измерений, проведенные в конце 2020г. и в сентябре-декабре 2021г. позволили получить еще более надежные результаты. Проведено сравнение величины сигнала от космических мюонов в этих двух сериях измерений, проведенных для 2-х образцов счетчиков, каждый из которых имеет 2 отдельных канала измерений, двумя разными по способу температурной стабилизации кремниевыми фотодетекторами.

Несмотря на небольшое различие в поведении образцов, данные показали устойчивый результат. Средний результат по скорости уменьшения сигнала от времени

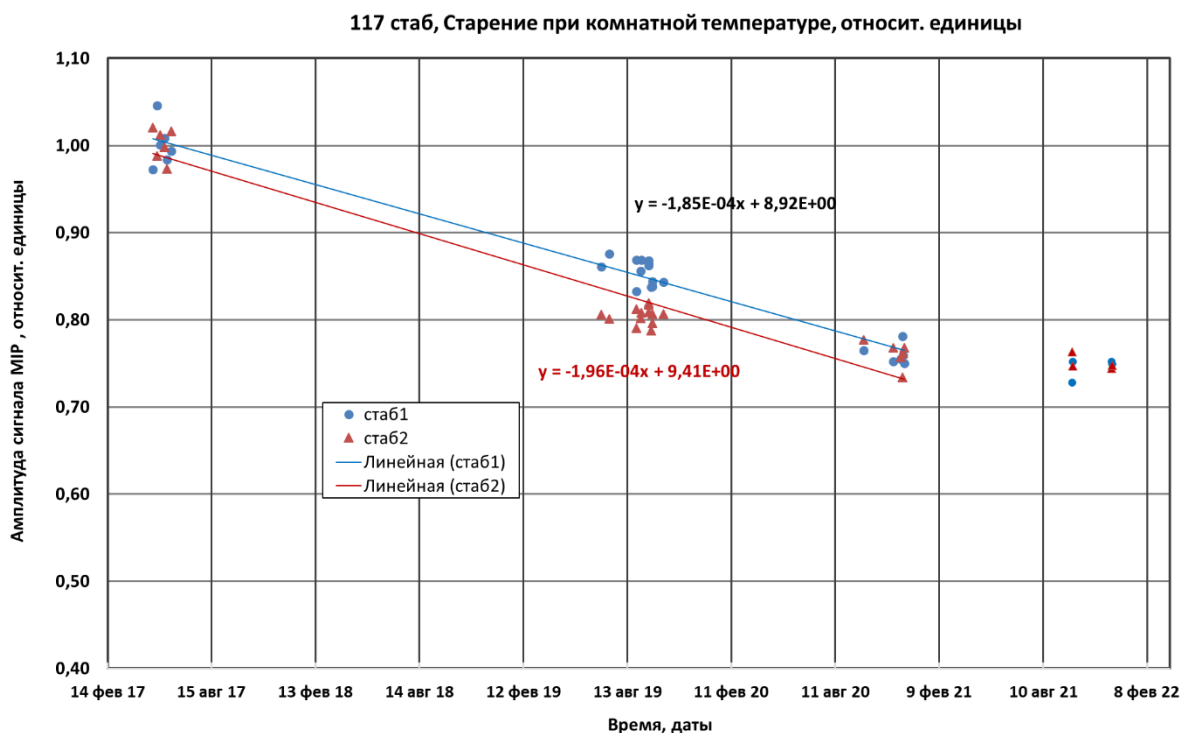


Рис. 7. Изменение амплитуды MIP сигналов счетчика №117 при естественном старении в лабораторной комнате при температуре 27°C в течение 4,5 лет. Стаб1 и стаб2 - сигналы с различных полос сцинтиллятора.

для образцов №117 и №120 показан на рис. 7 и рис. 8. Приведен линейный фит данных без включения измерений, проведенных в 2021 году, так как они выпадают (из-за начала насыщения изменений усиления) из простого линейного фита, удобного для сравнения данных в начале цикла старения сцинтиллятора с прежними измерениями при ускоренном старении. Результат фита на рис. 7 и рис.8 дает скорость старения $1.9 \cdot 10^{-4}$ в день, или $1.9 \cdot 10^{-4} / \text{день} \cdot 365$ дней/год = 6.9% /год.

Пример данных с использованием кремниевых ФЭУ (SiPM) и усилителей без компенсации температурной зависимости SiPM, при учете зависимости от температуры внесением поправок при обработке, показаны на Рис. 9. Результаты фита дают скорость старения около 8% в год. Разброс точек значителен, но результат устойчив и совместим с данными рис.7 и рис. 8.

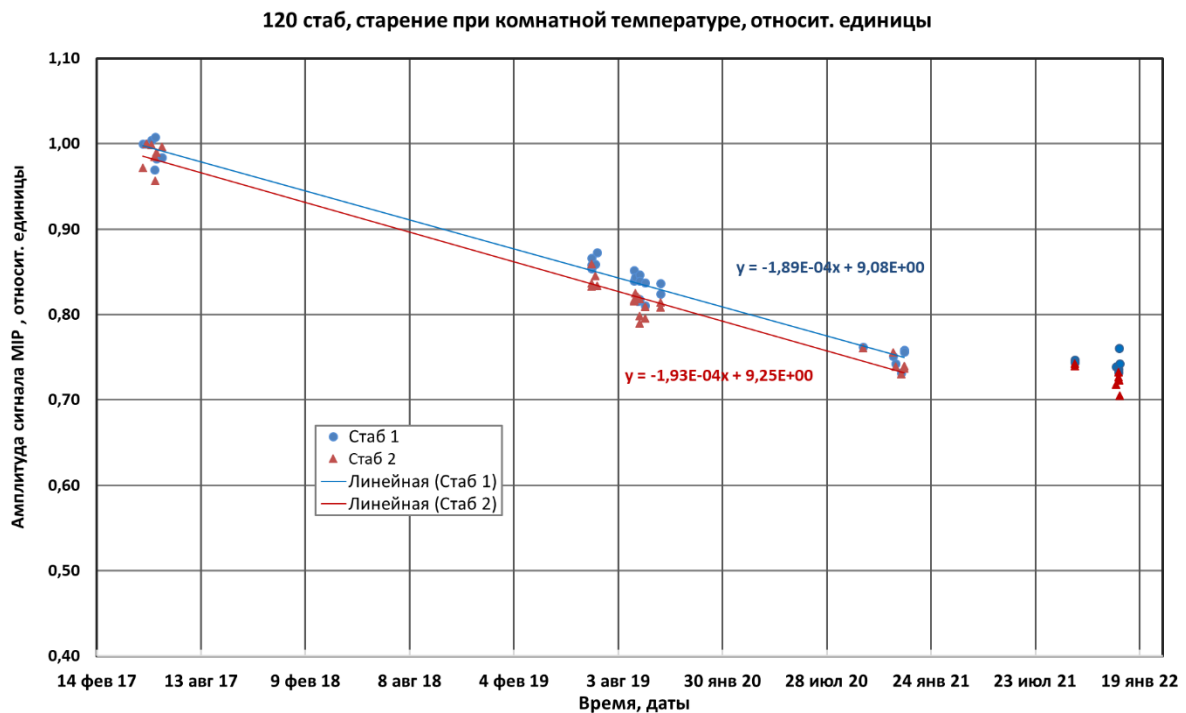


Рис. 8. Изменение амплитуды сигналов счетчика №120 от времени при естественном старении в лабораторной комнате при температуре 27°C в течение 4,5 лет.

Измерения старения сцинтиллятора, проведенные ранее способом ускоренного старения, результаты которых были приведены выше и доложены ранее на совещании коллаборации, показали, что при приведении к температуре экспериментальной установки 20°C за первые 5-6 лет происходит 15% уменьшения световыхода, на уровне 3% в год, что почти втрое меньше результатов данных прямых измерений. Однако, следует учесть, что температура в лабораторной комнате, где хранились изучаемые образцы счетчиков, не стабилизировалась, непрерывного отслеживания температуры не было (прямые измерения этих образцов ранее не планировались). Проведенные позже измерения температуры в комнате, где хранились сцинтилляторы, показали величину от 23°C до 32°C, и в среднем, около 27°C (окна на юг). Пересчет скорости старения с 20°C на 27°C дает увеличение скорости старения в 2.4 раза от величины около 3% в год до величины около 7% в год, полученные при 27°C. В данном случае пересчет скорости

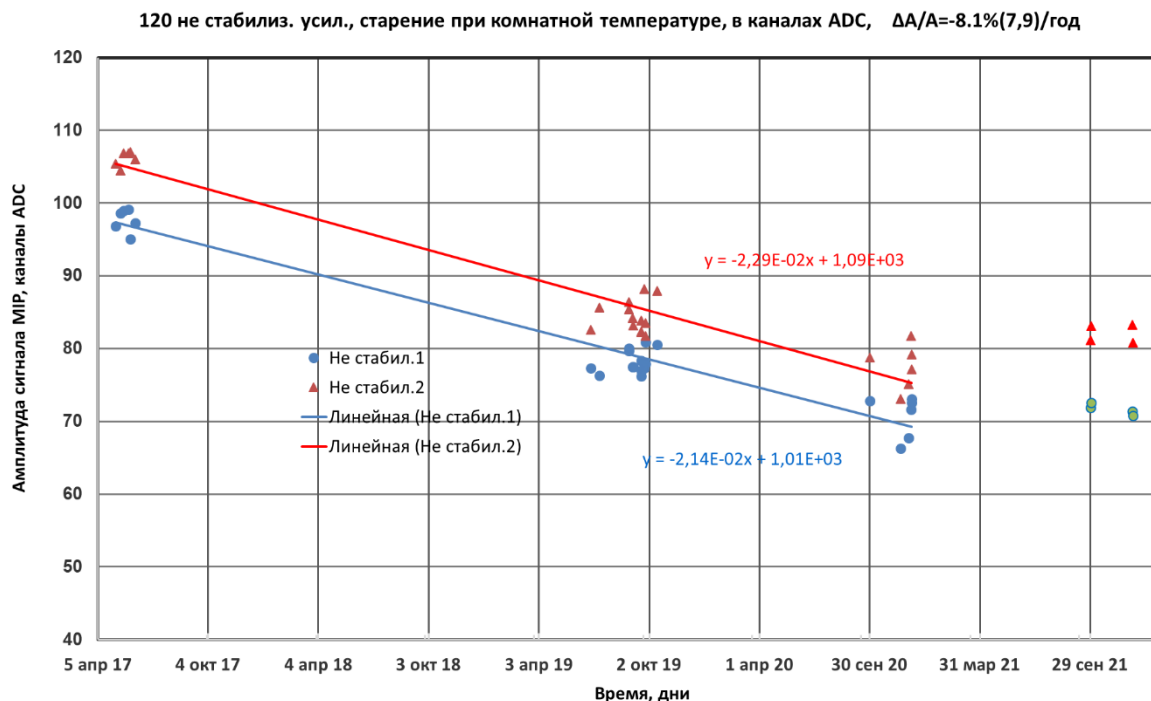


Рис. 9. Изменение амплитуды MIP сигналов с прототипа №120 от времени при естественном старении в лабораторной комнате при температуре 27°C в течение 4,5 лет. Приведены сигналы с кремниевых ФЭУ с усилителями без компенсации температурной зависимости SiPM, при учете зависимости от температуры внесением поправок.

старения с 20°C на 27°C носит условный характер и потребовался лишь для сравнения с данными по изучению старения, полученными при 50°C и 70°C, которые были ранее пересчитаны (и приведены на рисунках) на ожидаемую в эксперименте температуру 20°C. Реально, изучение старения было выполнено, в разное время, при температурах 27°C (прямые измерения), 50°C и 70°C (ускоренное старение), и пересчет для сравнения результатов можно было сделать прямо между этими температурами. Насыщение изменений усиления, выражающееся в том, что сигнал сцинтиллятора уменьшается до уровня около 75% от первоначального уровня и далее почти не изменяется, также повторяется в прямых измерениях. Таким образом, результаты, полученные прямыми измерениями и с использованием методики ускоренного старения, хорошо согласуются между собой.

Список литературы

- [1] Mu2e Collaboration, Mu2e Technical Design Report, <http://arxiv.org/abs/1501.05241>, TDR, 2015.
- [2] Карюхин А.Н. Разработка и исследование сцинтилляционных детекторов в экспериментах на ускорителях и коллайдерах. ИФВЭ 2000-51. Автореферат диссертации.
- [3] В.В. Еремин, С.И. Каргов, Н.Е. Кузьменко. Задачи по физической химии, Часть 2. Химическая кинетика. Электрохимия. Москва, 1999.

Рукопись поступила 3 октября 2022 г.

В.Н. Евдокимов.

Изучение долговременной стабильности счетчиков, состоящих из экструдированного сцинтиллятора и переизлучающих свет оптических волокон.

Препринт отпечатан с оригинала-макета, подготовленного авторами.

Подписано к печати 04.10.2022 Формат 60 x 84/16. Цифровая печать.

Печ.л. 1,1. Уч.- изд.л. 1,4. Тираж 60. Заказ 9. Индекс 3649.

НИЦ «Курчатовский институт» – ИФВЭ

142281, Московская область, г. Протвино, пл. Науки, 1

www.ihep.ru; библиотека <http://web.ihep.su/library/pubs/all-w.htm>

