

新型闪烁晶体的性能与应用研究*

邓景康 徐四大 宁传刚 尚仁成 齐卉荃 陈迎棠 陈泽民 皮海峰
(清华大学物理系 北京 100084)

摘要 概述国际上一些新型闪烁晶体的研究状况,重点介绍对 BaF_2 和 $PbWO_4$ 闪烁晶体性能及其应用进行研究所取得的一些结果.

关键词 闪烁晶体 BaF_2 $PbWO_4$

分类号 TL8

1 引言

新型闪烁体材料是目前国内外研究的一个重要方面^[1]. 最近几年,一些新型闪烁晶体在各种性能上所表现出来的某些特点引起了人们很大的兴趣,人们对这些新型的闪烁晶体进行了比较深入和系统的研究.

氟化钡(BaF_2)晶体是一种高密度(4.89 g/cm^3)的无机闪烁晶体,由于其对 γ 射线具有响应时间快,并具有一定的能量分辨率、不潮解、对中子灵敏度低等独特优点,已在 γ 射线探测方面得到广泛的应用. BaF_2 晶体具有三个发光峰,其峰位分别为195、220和310 nm,而这些成分的发光衰减时间常数分别为0.87、0.88和600 ns^[2],其中的快成分是无机闪烁晶体中发光衰减时间最短的闪烁光. BaF_2 晶体快慢成分的强度比约为1:5,有研究^[3]表明,掺入1%的镧可将 BaF_2 晶体的慢成分强度减少大约5倍.特别是 BaF_2 晶体快慢成分的波长不同,因此可以采取一些特殊措施,如选用具有特殊端窗的光电倍增管,就可能在收集到的闪烁光中使发光衰减时间较短的闪烁光成为主要成分^[4].

碘化铯 $CsI(Tl)$ 晶体的密度略低于 BaF_2 晶体,为 4.51 g/cm^3 ,它的易加工性和机械强度大的特点使其应用非常方便. $CsI(Tl)$ 晶体的发光产额虽然只有 $NaI(Tl)$ 晶体的一半

左右,但其发光光谱与半导体硅光二极管的光谱响应非常接近.因此,将 $CsI(Tl)$ 晶体与半导体硅光二极管配合组成 γ 射线探测器,可以得到很好的能量分辨率,而且这样的 γ 射线探测器体积小,无需高电压供电.近年来,在若干高能加速器上使用的量能器都选用了由 $CsI(Tl)$ 晶体组成的探测器阵列^[5].

钨酸铅($PbWO_4$)晶体是90年代才出现的一种新型闪烁材料,由于其高密度、低成本、快衰减时间及耐辐射等特点,引起了高能物理学家的极大兴趣. $PbWO_4$ 晶体的密度为 8.3 g/cm^3 ,折射率为2.3.晶体的受激发射谱和衰减时间成分比较复杂,随生长方法而变.衰减时间中的快成分小于10 ns,慢成分为几十 ns,有时会含有非常慢的衰减成分^[6].受激发射谱中的快成分中心位置位于420 nm,慢成分为450 nm^[7].在受到 10^5 Gy 照射后,其光学透射系数变化不大^[8,9].目前在高能物理实验室中,它是一种很有竞争力的探测器材料.在CERN的大型强子对撞机LHC上,CMS探测器合作小组就决定采用110 000块 $PbWO_4$ 晶体建造一个精密电磁量能器^[10].

此外, CeF_3 晶体是近十年来发展起来的新型闪烁晶体,它具有密度高(6.16 g/cm^3)和发光衰减时间短(与 $PbWO_4$ 晶体相当)的特点^[11].近年来还有人研究了LSO晶体,它

* 北京市自然科学基金(项目号2952005)和清华大学理学院基金资助.

的密度为 7.41 g/cm^3 , 发光衰减时间快 (40 ns), 发光产额高, 为 NaI(Tl) 晶体的 75%, 而且其发光光谱能与双碱金属光阴极的吸收光谱非常好的配合^[12]. 只是目前价格太高, 一时难于推广应用.

最近几年, 我们对大体积的 BaF_2 晶体和 PbWO_4 晶体的性能及它们的应用进行了较多的研究, 本文介绍对这两种闪烁晶体进行实验研究的结果.

2 BaF_2 晶体

BaF_2 晶体的闪烁性能已得到深入的研究, 用 BaF_2 闪烁晶体装备的 γ 能谱仪也已得到广泛的应用^[13]. 但是, 当利用 BaF_2 γ 能谱仪测量数 MeV 的较高能量的 γ 射线时, 单逃逸峰和双逃逸峰的存在使 γ 能谱变得更加复杂, 给 γ 能谱分析带来极大的困难, 测量精度不可能提高. 采用大体积的 BaF_2 晶体, 使高能 γ 射线的双逃逸峰显著降低, 同时具有较高的探测效率, 自然成为测量和分析高能 γ 射线的十分有效的方法. 用这一方法测量 γ 射线, 既有较好的能量分辨率, 又有较快的时间响应, 还能在较强的中子场中工作. 因此, 大体积的 BaF_2 晶体在伴随粒子成像等系统中成为最佳的 γ 射线探测器^[14].

大体积的 BaF_2 晶体由北京玻璃研究所研制, 晶体截面的直径已大于 100 mm, 长度也已达 100 mm 以上.

BaF_2 晶体三个发光峰中的 195 和 220 nm 快成分决定了闪烁晶体的定时能力, 而晶体的能量分辨率主要由占发光产额 80% 的 310 nm 的慢成分决定. 为使 BaF_2 晶体具有优良的能量分辨和定时性能, 经过对初始原料的合成、处理和生长工艺的改进, 消除了位于上述三个发光峰附近的 190、205 和 290 nm 等波段的吸收峰, 使 BaF_2 晶体对紫外光的透射率明显提高, 定时和能量分辨性能也明显得到改善. 此外, 经过一系列试验研究, 减少和消除了晶体的散射颗粒、气泡开裂等宏观

缺陷, 降低了大截面 BaF_2 晶体的内应力, 使其光程差达到 20 nm/cm 以下, 提高了大截面晶体的完整性, 满足了光学冷加工和使用的要求.

为配合大截面的 BaF_2 晶体, 所选用的光电倍增管必须对紫外光灵敏, 其灵敏区短波长端应小于 190 nm, 还需有 ns 量级的快时间响应. 此外倍增系数足够高, 端窗直径大于 100 mm. 经过比较, 我们选用了 EMI 9823 QKA 光电倍增管, 其综合性能相对较好. 该光电倍增管的石英端窗直径为 127 mm, 阳极脉冲上升时间 2 ns. 采用透紫外光的优质耦合剂将 $\phi 100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm}$ 的大体积 BaF_2 晶体与光电倍增管耦合起来, 得到一台大体积的 BaF_2 γ 探测器. 对 ^{137}Cs 放射源 662 keV 的 γ 射线的能量分辨率为 12.6%. 测得的 γ 能谱中已观察不到双逃逸峰, 而全能峰的高度已高于单逃逸峰. 同时, 用该大体积 BaF_2 晶体的 γ 探测器与另一台小 BaF_2 晶体的 γ 探测器对 ^{60}Co 放射源的级联 γ 射线进行符合测量, 测得时间分辨率 (FWHM) 为 0.9 ns. 这一大体积的 BaF_2 γ 探测器已用于快中子飞行时间成像系统的研制, 可以同时测得 C、N 和 O 元素的特征 γ 能谱, 提高了系统的灵敏度和位置分辨率^[15].

3 PbWO_4 晶体

PbWO_4 晶体由于其高密度、低成本、快衰减时间及耐辐射等特点, 在高能物理研究中被看作是一种很有竞争力的探测器材料. 目前, 各实验室对 PbWO_4 晶体的闪烁性能都进行了大量的研究, 但是对其发光产额和发光衰减时间等闪烁性能测量的结果很不一致, 因此对 PbWO_4 晶体的闪烁性能还需进行深入研究^[16]. 通常, 测量 PbWO_4 晶体的发光产额是用放射源或粒子束照射 PbWO_4 晶体, 由脉冲幅度谱中的峰宽, 根据统计规律来估算其光电子数^[8], 或将其峰位与其他晶体, 如 BGO 等比较得到相对发光效率^[9,17]. 当光

电子数较少时, 脉冲幅度峰形明显偏离高斯分布, 或晶体形状和光学耦合情况不同时, 都会对发光效率的测量引起较大的误差. 由于 PbWO_4 的发光产额很低, 当用放射源如 ^{137}Cs 或 ^{60}Co 照射时, 产生的光子数很少, 因此准确地确定其发光产额就显得更为重要.

本工作所涉及的 PbWO_4 晶体均为北京玻璃研究院研制. 它们的外形尺寸为长方体 $21\text{ mm} \times 21\text{ mm} \times 180\text{ mm}$ 和圆柱形 $\phi 21\text{ mm} \times 25\text{ mm}$ 等.

实验中所用的光电倍增管为由美国 Burler 公司生产的 RCA8850, 其端窗直径为 50.8 mm . RCA8850 的光阴极材料为 KCsSb , 典型的暗电流脉冲计数小于 170 s^{-1} . 第一打拿极材料为 GaP , 其二次电子发射系数高达近 40, 因而其电子倍增过程具有较小的统计涨落, 脉冲幅度谱中单光电子峰的分辨率可达 40%.

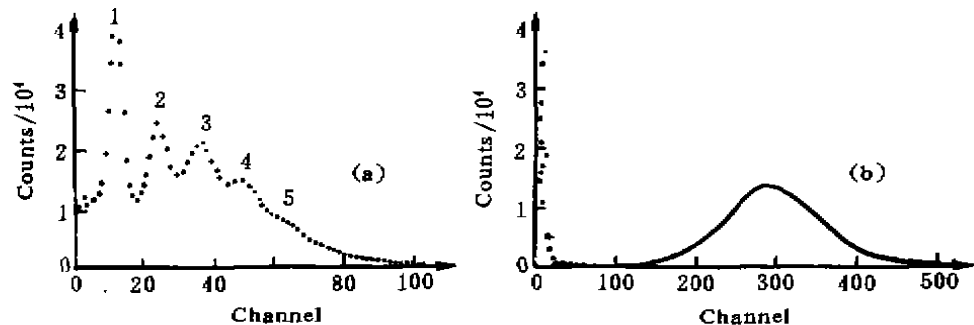


图1 定标所用的少光电子占优势的脉冲幅度谱(a)和多光电子占优势的脉冲幅度谱(b)

输出回路的积分时间常数为 $10\text{ }\mu\text{s}$, 用弱光照射时实际测得的脉冲幅度谱如图1所示, 图中的单光电子峰分辨率约为 40%. 除单光电子峰外, 图中还可看到清晰的双光电子和三光电子等峰. 用这几个光电子峰位的信息, 可以对小幅度区的光电子数定标. 对大幅度区, 则用发光二极管照射光电倍增管的端窗, 并调节二极管的发光强度, 从而在脉冲幅度谱上得到一系列包含不同光电子数的峰. 利用峰位与峰宽的信息, 可根据(1)式求得该峰所

代表的电子数. 根据理论计算可得, 代表 N 个光电子数的峰位 P 及其方差 σ 与单光电子峰相应参数的关系可以表示为^[6]

$$N = \left[1 + \left(\frac{\sigma}{P} \right)_s^2 \right] \left(\frac{P}{\sigma} \right)_s^2, \quad (1)$$

式中, 下标 s 表示单光电子峰. 这样, 可同时利用样品脉冲幅度谱中的峰位与峰宽信息求得等效光电子数. 同时, 根据光电倍增管对单光电子峰的分辨率, 还可以得到脉冲幅度谱上峰可以分辨的最大光电子数

$$N_{\max} = \frac{1}{2.355^2} \left(\frac{P}{\sigma} \right)_s^2 = \frac{1}{\eta_s^2}, \quad (2)$$

式中, η_s 为单光电子峰的分辨率. 由式(2)可知, 对 RCA8850 光电倍增管, 在脉冲幅度谱上最多有 6 个光电子峰可被分辨.

实验测量中, RCA8850 光电倍增管阳极

代表的光电子数. 当所加电压较低时, 2~3 个光电子峰占优势, 所得脉冲幅度谱如图(a)所示; 当所加电压较高时, 多光电子如 20~30 个光电子峰占优势, 典型的幅度谱如图(b)所示. 将光电子数 N 和峰位 P 作线性拟合, 还可得到光电子数与脉冲幅度的刻度曲线.

PbWO_4 晶体的一端面用有机硅油将晶体耦合在光电倍增管端窗上, 其余表面包上四层聚四氟乙烯膜作为反射层. 经准直后的 γ 射线从晶体顶端入射, 可测得脉冲幅度分布

谱. 由函数拟合可得到其峰位与峰宽, 并可从光电子数与脉冲幅度的刻度曲线或(1)式求得晶体的一个光脉冲在光阴极上打出的光电子数^[10]. 当 PbWO_4 晶体和 RCA8850 光电倍增管配合使用时, 量子效率约为 10%, 再考虑到晶体形状等因素, 可计算出这些样品吸收 1 MeV 能量后所发出的光子数.

在测量晶体样品时, 若光电倍增管输出脉冲幅度大于 20 等效光电子数时, 脉冲幅度

谱中峰的形状比较接近高斯分布, 这时可同时利用峰位与峰宽的信息求得样品的发光产额, 所得误差较小; 若输出脉冲幅度小于 20 等效光电子数时, 峰形偏离高斯分布较大, 这时只能利用峰位由刻度曲线求得发光效率, 可能会增大测量误差. 这时, 利用单光电子、双光电子和三光电子等峰的峰位信息, 可以对小幅度区的光电子数作出精确的刻度.

参 考 文 献

- 1 Weber M, Lecoq P, Ruchti R *et al.* Scintillator and Phosphor Materials. San Francisco; MRS Symposium, 1994
- 2 Schotanus P, Van Eijk C W E, Hollander R W *et al.* Photoelectron Production in BaF_2 -Tmas Detector. Nucl Instr and Meth, 1987, A259, 586~588
- 3 Woody C L, Levy P W, Kierstead J A *et al.* Slow Component Suppression and Radiation Damage in Doped BaF_2 Crystal. IEEE Trans Nucl Sci, 1989, 36, 536~542
- 4 Wei Z Y, Zhu R Y, Newman H *et al.* Light Yield and Surface Treatment of Barium Fluoride Crystals. Nucl Instr and Meth, 1991, B51, 61~66
- 5 Zhu R Y, Gratta G, Newman H. Crystal Calorimeters for Particle Physics. Nucl Phys, (Proc Suppl) 1995, B44, 88~108
- 6 Zhu R Y, Ma D A, Newman H B *et al.* A Study on the Properties of Lead Tungstate Crystals. Nucl Instr and Meth, 1996, A376, 319~334
- 7 Zhu R Y, Gratta G, Newman H. Crystal Calorimeters for Particle Physics. CALT 68-1968, DOE R & D Report, 1994
- 8 Peigneux J P. PbWO_4 —a Challenging Crystal for New Calorimetry. Nucl Instr and Meth, 1994, A351, 197~200
- 9 Kobayashi M, Ishii M, Usuki Y *et al.* Scintillation Characteristics of PbWO_4 Single Crystals at Room Temperature. Nucl Instr and Meth, 1993, A333, 429~433
- 10 Compact Muon Solenoid Technical Proposal, CERN/LHCC, 94-38, LHCC/P1, 1994
- 11 Moses W W, Dereazo S E. Cerium Fluoride, A New Fast, Heavy Scintillator. IEEE Trans Nucl Sci, 1989, NS-36, 173~176
- 12 Melcher C, Schweitzer J. A Promising New Scintillator; Cerium-doped Lutetium Oxyorthosilicate. Nucl Instr and Meth, A, 1992, 314, 212
- 13 Wagner V, Kugler A, Pachr M *et al.* Detection of Relativistic Neutrons by BaF_2 Scintillators. Nucl Instr and Meth, 1997, A 394, 332~340
- 14 徐四大, 任绍霞, 齐卉茎等. 大体积 BaF_2 能谱仪. 核电子学与探测技术, 1996, 16(4), 249~251
- 15 徐四大, 齐卉茎, 陈泽民等. 快中子飞行时间法检测隐藏爆炸物系统. 清华大学学报(自然科学版), 1996, 36, 88~94
- 16 Notaristefani F, De Lecoq P, Schneegans M. The Proceedings of the "Crystal 2000" International Workshop. France; Chamonix, Sept 1992
- 17 Buyanov O V, Chipaux R, Fyodorov A A *et al.* A First Electromagnetic Calorimeter Prototype of PbWO_4 Crystals. Nucl Instr and Meth, 1994, A349, 62~69
- 18 Deng J K, Shang R C, Ning C G *et al.* Measurements of Scintillation Characteristics of PbWO_4 Crystals. International Sym on Hard X-Ray and Gamma-Ray Detector Physics, Optics, and Applications. Proceedings of the Society of Photo-optical Instrumentation Engineers (SPIE), 1997, 3115, 30~37

Study on New Scintillator Properties and Their Applications

Deng Jingkang Xu Sida Ning Chuangang Shang Rencheng

Qi Huiquan Chen Yintang Chen Zemin Pi Haifeng

(Department of Physics, Tsinghua University, Beijing 100084)

Abstract The status of the study on some new scintillators is summarized, and the results of our researches on the properties and applications of BaF_2 and PbWO_4 crystals are described.

Key words scintillator BaF_2 PbWO_4

Classifying number TL8

(上接第60页)

on polarized electrons, and the principle of Beijing Electron Positron Collider (BEPC) Compton polarimeter are shortly discussed. The energy spectrum, vertical distributions and the intensity of Compton scattering under particular conditions are also calculated.

Key words polarization compton scattering spectrum

Classifying number TL8