

掺杂BaF₂晶体的性能研究

金 成 国

摘要: 为提高BaF₂晶体的性能, 生长了掺杂LaF₃、NaF、CeF₃及纯的BaF₂晶体. 测试了其紫外透过谱、X射线激发射谱、紫外光激发谱、抗辐照性能及能谱, 发现只有掺杂1.0% LaF₃的BaF₂晶体能大幅度降低慢成份而对快成份影响不大且在10⁰~10⁹rad辐照剂量之下和纯BaF₂一样在快成份光输出上有抗辐照能力, 首次发现掺杂LaF₃的BaF₂晶体紫外光激发谱中, 385nm处新激发峰。

一、引 言

1982年法国Laval等^[1]发现BaF₂晶体闪烁光谱中220nm快成份, 其光衰减时间仅为0.6ns比以快著称的有机闪烁体还快, 于是BaF₂晶体在原来的原子序数高、密度大、阻止本领高、不潮解等特点基础上, 又具有发光时间快的特点, 且慢成份的能量分辨率也较好, 这种一晶多用的晶体是前所未有的, 引起了核物理实验工作者和物理学家的极大关注, BaF₂晶体在高能物理、核医学等众多领域得到了广泛应用。

做为一种新型闪烁晶体, 要求其具有以下性质: 高密度、高探测效率; 在紫外波段有高透过率; 快时间性能; 强的抗辐照性能及能在高计数率下工作, 本实验的目的就是希望通过掺杂提高BaF₂晶体的上述性能。

通过大量的调查研究, 我们了解到掺杂CeF₃的BaF₂晶体光衰减时间明显降低^{[2]、[3]、[4]}; 掺杂NaF的BaF₂晶体抗辐照及辐照后恢复性能好^[5]; 掺杂1% LaF₃的BaF₂晶体能大大降低慢成份光强而对快成份影响不大^{[6]、[7]}, 故我们用真空下降法生长了纯BaF₂晶体, 掺CeF₃ (1%和0.1%) BaF₂晶体, 掺NaF (1%) BaF₂晶体及掺LaF₃ (1%和0.1%) 的BaF₂晶体, 经过精密退火, 消除应力, 加工成 $\phi 14 \times 6$ (mm)的样品, 两面抛光用于测试。

二、性能测试

1. 首先我们测了样品的透过率曲线, 如下图1所示, 图中曲线(1)代表纯BaF₂的, 掺1.0%和0.1% LaF₃的和掺1.0% NaF的比纯晶体的稍微有些下降, 用曲线(2)表示, 曲线(3)为掺0.1% CeF₃的, 曲线(4)为掺1% CeF₃的。

2. 测了辐照前后X射线发射谱, 如图2和3所示, 图2中, 曲线(1)代表纯BaF₂、掺0.1% LaF₃、掺1% NaF的发射谱, 曲线(2)为掺1% LaF₃的, 图3中, 曲线(1)代表掺1% CeF₃的, 曲线(2)代表掺0.1% CeF₃的, 在大剂量辐照后(7.8×10⁹rad)测的X

一射线激发谱，和辐照前相比，基本未变，测量是在辐照后 2 小时后进行的。

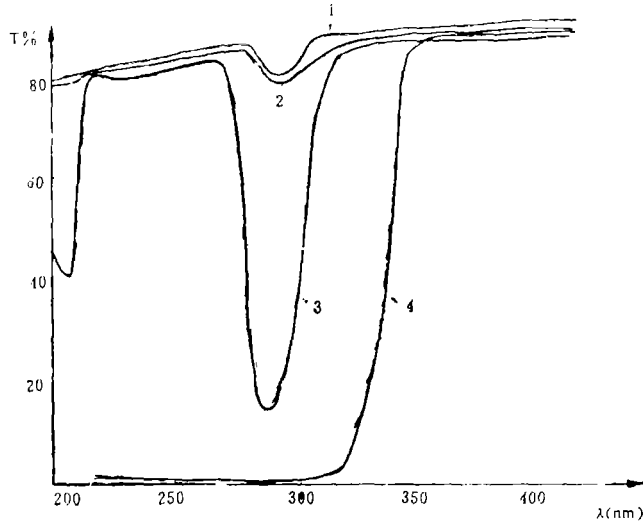


图 1 样品透过率曲线

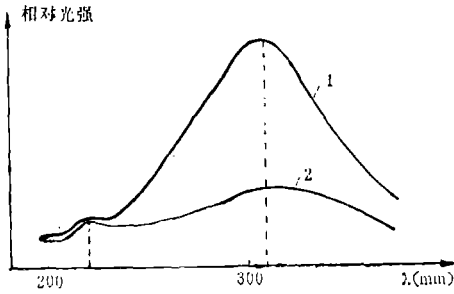


图 2 辐照前 X-射线发射谱

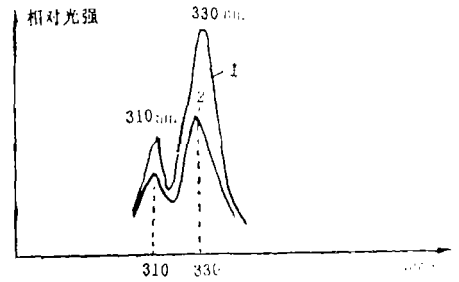


图 3 辐照前 X-射线发射谱

3. 用 M850 型分光光度计测试了紫外光激发谱，我们发现纯 BaF_2 ，掺 1% NaF 的 BaF_2 ，掺 1% 和 0.1% LaF_3 的 BaF_2 样品的 205nm 激发谱中，均在 307nm 和 324nm 处有两发射峰，如图 4 所示，和 CeF_3 特征激发发射峰相同，辐照以后，上述晶体的紫外光激发谱中仍有 CeF_3 特征激发峰，当用 300nm 光激发时，我们发现掺 1% LaF_3 的 BaF_2 晶体 385nm 处新的激发峰，以前未见报导，大剂量辐照后，仍有 385nm 新激发峰，如图 5 所示。

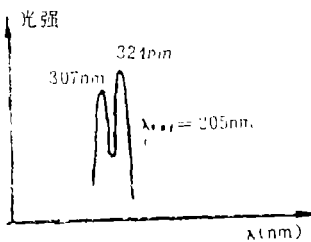


图 4 光激发谱

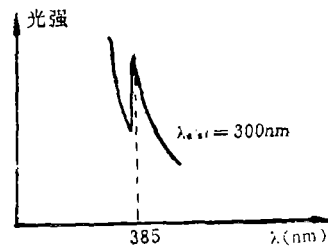


图 5 光激发谱

4. 大剂量辐照, 受照样品有纯 BaF_2 、晶体, 掺1% NaF的 BaF_2 、掺1%和0.1% LaF_3 的 BaF_2 及掺1% CeF_3 的 BaF_2 晶体, 辐照剂量为 $0.6 \times 10^6 \text{rad/hour} \times 13 \text{hour} = 7.8 \times 10^6 \text{rad}$. 辐照后晶体的透过率曲线如下图 6 所示。

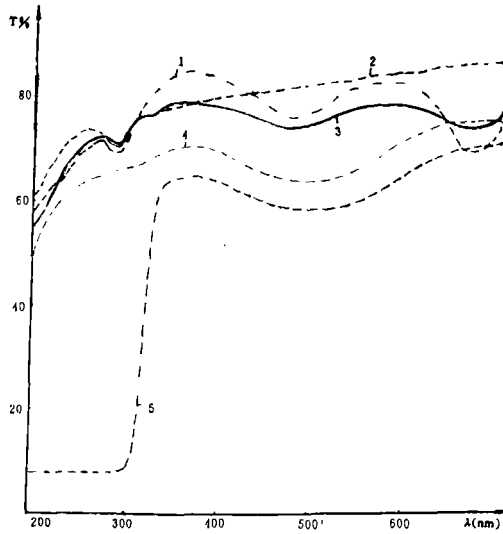


图 6 大剂量 ($7.8 \times 10^6 \text{rad}$) 辐照后 2 小时后透过率曲线

三、结果分析

1. 比较辐照前后透过率曲线图 1 和图 6 可以看出, 纯 BaF_2 晶体、掺 LaF_3 晶体、掺 NaF 晶体在 290nm 处均有一小吸收峰, 在文献^[6]上, 掺杂 LaF_3 的 BaF_2 晶体透过率曲线上, 290nm 处也有一小吸收峰, 在图 1, 我们还发现掺 0.1% CeF_3 的 BaF_2 晶体在 290nm 处有一大吸收峰, 从我们测的 205nm 紫外光激发谱图 4 中可以看出, 掺杂 1% NaF、掺 1% 和 0.1% LaF_3 及纯的 BaF_2 晶体的 205nm 紫外光激发谱和 CeF_3 特征激发峰相同, 均在 307nm 和 324nm 处有两发射峰, 综合上述情况, 我们很易得出这样的结论: 我们所用原料中含有杂质 CeF_3 , 我们认为 CeF_3 含量小于 0.1%。我们认为 290nm 处小吸收峰是由于含 CeF_3 引起。

2. 我们首次发现掺 1% LaF_3 的 BaF_2 晶体用 300nm 紫外光激发时, 在 385nm 处新的激发峰, 该新激发峰还有待理论进一步解释。

3. 我们发现掺杂 NaF 后, 有助于抗辐照和辐照后恢复, 但不能抑制慢成份。

4. 我们发现掺杂 CeF_3 后, 无论掺杂浓度为 1% 还是 0.1%, 在紫外波段透过率均很低, 如图 1 所示, 掺杂 CeF_3 后的 X-射线发射谱 (如图 3) 中, 快成份消失, 在 330nm 左右有一发射峰, 该发射峰由 $5d-4f$ 跃迁引起, 在掺杂浓度为 1% 时, 光衰减时间为 50ns, 比 BGO (300ns)、NaI (Tl) (230ns)、 BaF_2 慢成份 (600ns) 要低得多, 因掺 CeF_3 晶体在大于 300nm 处闪烁, 故可很易被带玻璃窗的光电倍增管探测器, 而为探测 BaF_2 220nm 快成份, 须用带石英窗的光电倍增管, 掺 CeF_3 后唯一缺点是大剂量辐照后, 紫外区损伤严重, 见图 6, 不适合大剂量辐照下探测工作。

5. 我们发现掺 1% LaF_3 的 BaF_2 晶体应用前景很广, 掺 1% LaF_3 后, 辐照前后 X-射

线发射谱(图2)中,快、慢成份光强比由纯 BaF_2 的1:10提高到1:3(相对光强比),由此可以看出,掺1% LaF_3 的 BaF_2 有明显的慢成份抑制作用,这在应用上有重要意义,纯 BaF_2 晶体闪烁光中,慢成份光强远大于快成份,在大于几百kHz的高计数率下,慢成份能引起很严重的堆积效应,现在通过掺杂大大抑制了慢成份,这对提高 BaF_2 闪烁器探测效率,应用于极高能加速器提高计数率均有重要意义,掺1% LaF_3 的 BaF_2 晶体抗辐照性能也好,在 $10^6 \sim 10^8 \text{rad}$ 辐照剂量之下和纯 BaF_2 一样在快成份光输出上有抗辐照能力。

掺 La^{3+} 后抑制慢成份的原因在于, BaF_2 晶体慢成份源于自陷激子的长寿命三重态^[1],自陷激子的分离导致慢成份光强下降,掺 La^{3+} 后,为补偿 La^{3+} ,隙间 F^- 也结合到 BaF_2 骨架中,由于隙间离子的存在,导致掺 La^{3+} 后慢成份光强的下降。

6. 辐照损伤效应:发现 $7.8 \times 10^8 \text{rad}$ 辐照后,晶体均变色,纯 BaF_2 变蓝灰色,掺1% NaF 的 BaF_2 变蓝褐色,掺1% LaF_3 的 BaF_2 变血红色,掺1% CeF_3 的 BaF_2 变深粉红,从图6可看出,辐照后晶体透过率均下降,但不影响X-射线发射谱中快慢成份光,我们认为引起辐照损伤的原因是辐照引起的色心及晶体中所含杂质吸收引起的。

四、结 束 语

综合以上结果分析,我们认为掺1% LaF_3 的 BaF_2 晶体的综合性能最好,除具有探测效率高、快时间性能、抗辐照外,还能显著抑制慢成份,这在极高能加速器应用,提高计数率具有广阔的应用前景,建议继续全面测试掺 LaF_3 的 BaF_2 晶体的性能,在大块晶体上测试其性能

参 考 文 献

- [1] W. Laval; NIM, A206 (1983) 169
- [2] R. C. Taylor; IEEE, NS-33, (1986) 243
- [3] M. R. Farukhi; NIM, A143(1977) 481
- [4] R. Visser; IEEE, NS-38, (1991) 178
- [5] 郑宇; 1985届硕士生论文长春光机所
- [6] P. Schotanus; IEEE, NS-34(1987) 272
- [7] C. L. Woody; IEEE, NS-36(1989) 536
- [8] S. Kvbota; NIM, A242(1985) 291

Investigation on the Properties of Doped Barium Fluoride

Jin Chengguo

Abstract

Pure BaF_2 crystal and La, Na, Ce doped BaF_2 crystals have been grown to improve the properties of BaF_2 crystal. UV transmission spectra, X-ray emission spectra, UV light excitation spe-

tra, radiation hard property and energy spectrum of these crystals have been investigated. We found only 1% La doped BaF_2 crystal showed strong suppression on slow component and very slight reduction to fast component and 1% La doped BaF_2 crystal had the same radiation resistance as the pure BaF_2 in terms of its fast component light output when the radiation doses changed from 10^5 rad to 10^6 rad. We first found 385 nm new excitation peak when La doped BaF_2 crystal was excited by UV light.