

掺杂BaF₂晶体闪烁性能的研究

龚 晓 辉

摘要: 在BaF₂晶体中掺入LaF₃, CeF₂, NaF结晶出BaF₂(La), BaF₂(Ce), BaF₂(Na)晶体, 经测试, 其中BaF₂(La)晶体闪烁发光快成分的强度比纯BaF₂晶体不减弱, 而发光慢成分被抑制3倍, 耐辐照能力可以达10⁶rad, 表明新晶体有希望满足未来高能物理实验的要求。同时我们对BaF₂晶体自身的损伤机制和闪烁机制进行了深入研究。

BaF₂晶体原只用于光学精密机械仪器的部件, 它有极好的透紫外性能。关于BaF₂的闪烁发光性能, 早年只知道在近紫外区(3100 Å)有一发光成份, 其发光强度为常用闪烁计数器NaI(Tl)晶体的20%, 且发光寿命(600ns)也比NaI(Tl)晶体的长, 所以作为核射线探测器使用来说BaF₂未引起重视。1983年Laval等人^[1]发现BaF₂在远紫外区还有一个寿命极短($\tau = 600$ ps)的发光成份, 他们利用这一成分得到的BaF₂的定时功能与塑料闪烁体NE111相当。这是其它无机闪烁体不能比拟的。BaF₂含重元素Ba且密度大(4.88g/cm³), 对 γ 射线阻止本领高, 其能量分辨本领略逊于NaI(Tl), 而优于CsF₂和BGO等, 且易加工不潮解, 所以BaF₂作为核探测器能够具有时间分辨, 空间分辨, 能量分辨及探测效率兼优的特点, 有关BaF₂闪烁体的性能改进等研究及有关BaF₂在各类实验物理(包括核医学等)中的应用正在迅速展开。

对快响应量能器, 快成分约占晶体光输出总量的20%。这个量对高能应用已够用, 但在高能物理实验及核医学中, 高计数率下使用时, 需要设法删除或减弱闪烁光慢成分, 以避免相邻事例的信号发生堆积, 增大噪声本底。Schotonus等人^[2]发现在BaF₂中掺入La可以有效地抑制慢成分, 之后人们还掺入其它杂质元素进行研究^[3]。为了发展我国的BaF₂探测技术, 我们在国内首次结晶出掺La的0.1%, 1%, 2%, 5%等一系列的BaF₂(La)晶体, 并同时生长了掺Ce的0.1%, 1%及掺Na的1%的BaF₂(Ce), BaF₂(Na)晶体, 本文中我们将逐个研究掺杂后每个品种的晶体的闪烁性能的变化, 对慢成分抑制效果, 及应用前景。我们进行了包括抗辐照损伤在内的诸项性能测试, 初步结果表明, BaF₂(La)这种新晶体有希望满足未来的实验要求。

用透射谱(UV-240荧光分光光度计)和X射线激发光学荧光光谱来检验掺杂效果。其中掺La, Na的晶体的紫外和可见区透射谱形状与未掺杂晶体非常相似, 只是透过率稍有降低。而掺Ce的BaF₂在快成分区域有强烈吸收, 由于Ce强烈的自吸收, 几乎没有快成分光输出。对比X射线激发光学荧光光谱中快、慢成分光强相对比(不考虑光电倍增管紫外响应曲线)掺La的BaF₂由纯的BaF₂的1:10提高到1:3。掺Na的仍保持未掺杂的水平。掺Ce的BaF₂只在330nm和310nm两处有特征发射峰, 无快成分输出。尤其是1%BaF₂(La)有明显

注: 本文作者的导师为于长江

的慢成分抑制作用。

在纯 BaF_2 中加入掺杂物有可能会影响它的抗辐照性能。杂质在晶体中或者在杂质原子本身或者在晶格中产生缺陷从而提供形成色心的格点。由以前的文献^{[4][5]}已知少量 Pb^{2+} 就会极大降低纯 BaF_2 的抗辐照性能。许多应用中既要求高速探测器,也要求高抗辐照性,因此有必要单独研究能抑制慢成分的掺杂晶体的辐照损伤。

对掺Na, La, Ce和未掺杂的 BaF_2 晶体进行了抗辐照能力实验。大剂量($0.6 \times 10^6 \text{rad/h}$) $7.8 \times 10^6 \text{rad}$ 的 ^{60}Co 源辐照后,测了透过率曲线和辐照前作了比较,并用M 850型分光光度计测了辐照前后的光激发谱和光激发发射谱。受照后晶体明显变色,透射率下降,恢复缓慢,紫外光照射可以加速透射率的恢复。用205nm的光激发出307nm和324nm的荧光其平均值为315nm,与文献中给出的慢成分波长^[1]相同。不同晶体发射光谱不完全相同,但辐照后无明显变化。

关于 BaF_2 晶体的辐照损伤和杂质效应已有一些研究^[6]。处于热力学平衡状态下的晶体有一定的缺陷浓度,而等价阳离子的引入则增加了这些固有缺陷。如 Na^+ 引入 F^- 空位, Re^{3+} 引入间隙 F^- 。而 F^- 空位的热激活能比间隙 F^- 的激活能低。在低温(77k)这些缺陷的跳动频率就达 10^{13}s^{-1} ,若杂质在晶体中起发光中心作用,则会大大降低原有晶体的光输出,如 Gd^{3+} 而缺陷的引入更易在辐照下形成附加色心,如F心和H心。影响光输出的主要杂质离子有 Re^{3+} , Ag^+ 和 Fe^{3+} ,由于Pb有两种价态 Pb^{2+} 和 Pb^{4+} 。加入 PbF_2 后, Pb^{2+} 将起束缚电子的作用,使电子与空穴不能复合,导致色心的稳定存在。

在 BaF_2 中,辐射吸收产生电子和空穴。调整两个 F^- 离子的位置,使空穴易俘获,形成V心,当电子碰到这种V心就被它束缚住,形成自陷激子。电子通过自陷激子组态的三重态或单一态与空穴复合,同时发射光(荧光),自陷激子的组态也随电子由空穴中分离出来而消失。在这种分离中,电子与周围的 F^- 离子交换了位置,不产生光。在掺La的 BaF_2 晶格中,为了均衡 La^{3+} 的高正价,就形成一些填隙式的 F^- 离子,这些填隙式 F^- 离子能产生较大速度的自陷激子分离,所以随 La^{3+} 浓度增加,慢成分强度下降加深。受辐照后,导带上的或自陷激子分离的电子都可能被 La^{3+} 俘获而产生大量浓度的 La^{2+} 离子显色,被俘获的电子与自陷空穴复合,显色随时间消失。产生快成分的跨跃跃迁受 La^{3+} 影响很小, La^{3+} 浓度很高时,增加了 Ba^{2+} 以 La^{3+} 离子或填隙离子 F^- 为近邻的机会,填隙离子上的电子填充了核带上的空穴,快成分会有所下降。

关于 BaF_2 晶体发光机制的研究早在1960年就开始了,对于慢成分现在可公认为用 V_k 理论解释^[7]。即当电子被激发到导带后,在价带上留下一个空穴,这个空穴被2个 F^- 离子俘获形成 F_2^- 态(V_k), V_k 俘获形成 $V_k + e^-$ 激子(称自陷态激子)。一般认为310nm的光是自陷态激子三重态湮没的结果,快成分与阳离子电离有关。本文将对发光机制展开详细讨论。

参 考 文 献

- [1] W. Laval et al.; Nucl Instr. and Meth., 206(1983)169
- [2] P. Schotanus et al.; IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-34(1987)272
- [3] Optova Inc, North Brookfield, Mass., 01535
- [4] P. Schotanus et al.; Stratech Report 88-1, Delft Univ, Feb., 1988
- [5] F. Takasaki et al.; KEK Report 84-42, Feb., 1985
- [6] W. Hayes; «Crystals with the fluoride structure» (1974)
- [7] N. N. Ershov; Opt. Spectrosc. (USSR) 53(1982)51, 543

Investigation of the Scintillation Properties of Doped BaF₂ Crystal

Gong Xiaohui

Abstract

Doped BaF₂ crystals have been grown with LaF₃, CeF₂, NaF doped in BaF₂ and the scintillation properties of the new crystal have been investigated before and after a r irradiation of ⁶⁰Co source. The radiation resistance of the doped crystal can be up to a dose of 10⁶ rad. Comparing with a pure BaF₂ scintillator, it was found that the fast component of the BaF₂(La)scintillator was almost no change but its slow component was suppressed to a factor of 3. Furthermore, the scintillation mechanisms and damage mechanisms in BaF₂ are discussed.