

文章编号: 1000-324X(2001)02-0212-05

钨酸铅 (PbWO_4) 晶体的发光均匀性研究

齐玲均, 杨培志, 邓 群, 沈定中, 廖晶莹, 殷之文
(中国科学院上海硅酸盐研究所无机功能材料开放实验室, 上海 200050)

摘 要: 通过对下降法生长的全尺寸钨酸铅 (PbWO_4) 晶体沿长轴方向不同点的透过率和光产额的测量、分段晶体的透过率和光产额的测量, 研究了钨酸铅晶体的发光均匀性及其影响因素. 结果表明: 钨酸铅晶体发光均匀性主要由生长后期的钨酸铅晶体质量所决定, 采用品种为大头的加工取向有利于提高钨酸铅晶体的发光均匀性.

关 键 词: PbWO_4 晶体; 透过光谱; 光产额; 发光均匀性

中图分类号: O 734 **文献标识码:** A

1 引言

欧洲核子中心 (CERN) 将建造新一代大型强子对撞机 LHC (Large Hadron Collider), 它是一台超高能量、高流强的质子-质子对撞机. 工程的重要组成部分是建造一台具有极高探测精度的电磁量能器 (ECAL), 要求具有强的抗辐照能力 (10Mrad 和 10^{14} 中子 $/\text{cm}^2$) 和高的分辨率 (分辨时间 $<20\text{ns}$)^[1]. PbWO_4 晶体 (以下简称 PWO) 由于具有高密度 ($8.28\text{g}/\text{cm}^3$)、短的辐照长度 (0.89cm)、高的辐照硬度 ($>10^6\text{rad}$)、短的衰减时间 (90% 的发光成分衰减时间 $<20\text{ns}$) 和价格便宜等优点而被确定作为新一代电磁量能器用闪烁晶体^[2]. 探测器对 PWO 晶体的性能要求高: 晶体在 420nm 的轴向透过率 $>55\%$, 在时间门宽为 100ns 内测得的光产额 $>8\text{p.e.}/\text{MeV}$, 侧面辐照损伤 $<10\%$, 光产额均匀性指标 FNUF 在 $\pm 0.35\%/\chi_0$ 以内. 晶体光产额均匀性的好坏将直接影响实际应用中电磁量能器的能量分辨率的高低. 同时研究还发现晶体的透过率、光产额和辐照硬度等闪烁性能也与晶体的均匀性密切相关. 影响晶体发光均匀性的因素主要有: (1) 晶体本身的均匀性, 包括晶体的结构缺陷, 杂质分布的均匀性, 这与晶体生长工艺密切相关; (2) 晶体的几何形状和表面条件, 实际应用中要求 PWO 晶体加工成锥形, 晶体小头的聚光效应对晶体的发光均匀性也有很大影响^[3].

本文通过对坩埚下降法生长的 PWO 晶体进行全尺寸和分段的性能测量, 研究了 PWO 晶体的均匀性与晶体性能间的联系, 提出了改善晶体发光均匀性的方法.

2 实验

2.1 样品制备

收稿日期: 2000-03-22, 收到修改稿日期: 2000-04-06

基金项目: 国家自然科学基金重点项目 (59950220)

作者简介: 齐玲均 (1956-), 女, 工程师.

PWO 晶体用坩埚下降法沿 *c* 轴方向生长, 全尺寸实验样品的尺寸为: 晶体长度 230mm, 两个端面 25mm×25mm, 21mm×21mm, 晶体六面抛光. 样品编号为: No.1、No.2、No.3 和 No.4. 分段晶体样品取样方法如图 1 所示, 将晶体平均分为 5 段, 六面抛光, 尺寸为 25mm×25mm×45mm. 样品编号为 No.5.

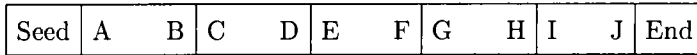


图 1 分段样品 No.5 的取样示意图

Fig. 1 Schematic diagram of different parts of ingot No.5

2.2 光产额均匀性的测量

除出光面外, 晶体其余表面用二层 Tyvek 包覆, 全尺寸晶体从顶部起每隔 1cm 测量一点, 共取 10 个点. 分段样品 A、C、E、G、I 端分别为出光面. 测量装置如图 2 所示, 用 ¹³⁷Cs 源激发样品, 用 XP2262B 型光电倍增管接收晶体发光, 最后经 QVT 多道分析显示能谱. 测量门宽为 100ns.

2.3 晶体透过光谱的测量

透过光谱测量是在 SHIMADZU UV-2501(PC)S 光谱仪上进行, 测量全尺寸样品和分段晶体样品的轴向透过光谱, 以及全尺寸样品的横向透过光谱 (沿其长轴方向每间隔 2cm 测量晶体的横向透过光谱).

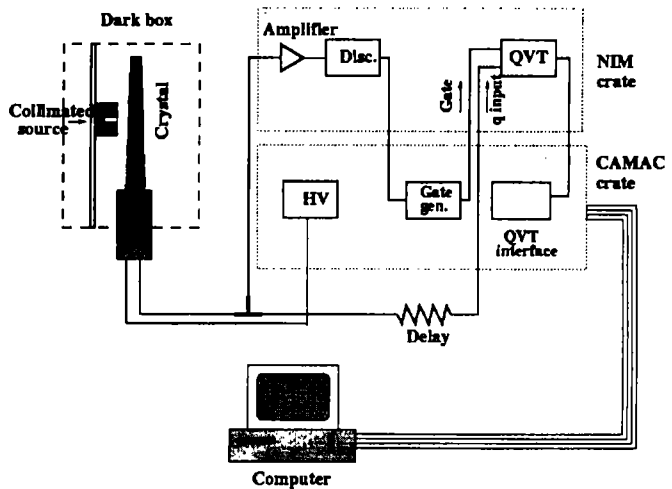


图 2 PWO 晶体光产额和发光均匀性测量装置示意图

Fig. 2 Schematic diagram for measuring the light yield and uniformity of PWO crystals

3 结果和讨论

3.1 光学透射谱的横向透过率均匀性

图 3 给出了 4 根全尺寸晶体的横向透过率, 每隔 2cm 测量一个点, 一共测 12 个点. 从图看出: No.1 和 No.4 晶体样品的横向透过较均匀, No.2、No.3 晶体的横向透过均匀性较差, 其最差部位在晶体大头端 (小头端为晶种); No.1 和 No.4 晶体样品的横向透过稍差部位则在晶体的小头端 (No.1、No.4 大头为晶种). 四根晶体样品的横向透过曲线从晶种部分开始, 到后期生长部分其 350~420nm 的光学吸收逐渐增加, 横向透过率最差的部位均是晶体后期生长部分, 这说明后期生长的晶体质量较差. 从图 3 还可看出 No.2、No.3 后期生长部分从 420nm 起短波吸收尤为明显, 两根晶体的均匀性较差. 而 No.1、No.4 的横向透过光谱则显示晶体的均匀性较好.

图 4 为分段晶体 AB~IJ 的轴向透过光谱. 按图中显示测量结果, 从晶种到晶体生长后期晶体的轴向透过率逐渐降低, 最后一段 IJ 尤其明显. 这也说明了生长后期的钨酸铅晶体

质量较差.

3.2 光产额均匀性

表 1 给出 FNUF 及晶体的切割方向, FNUF 代表晶体的均匀程度, 其计算方法参见 [4], FNUF 大于零表示光产额从小头开始由高到低, FNUF 值越大, 晶体的光产额均匀性越差,

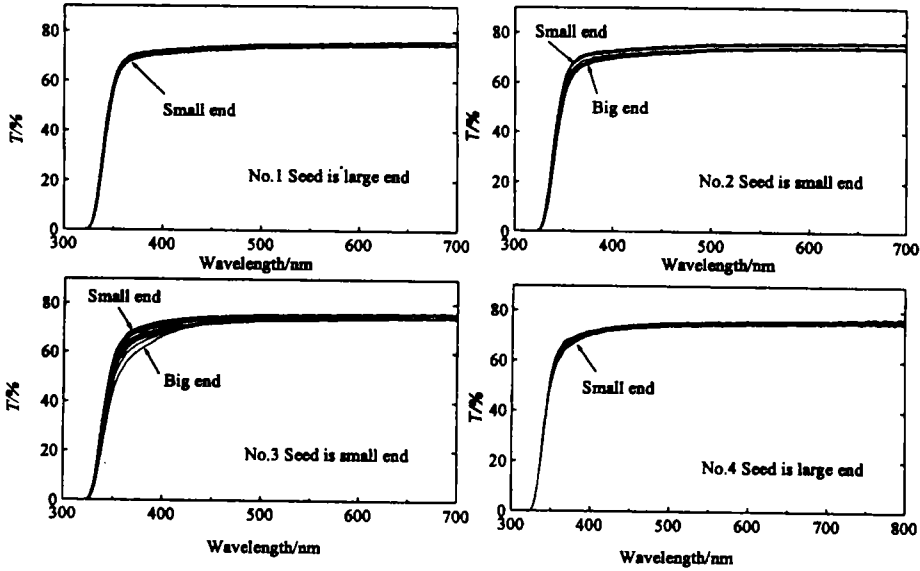


图 3 四根全尺寸晶体的横向透过光谱

Fig. 3 Transversal transmission of four full-size PWO crystals

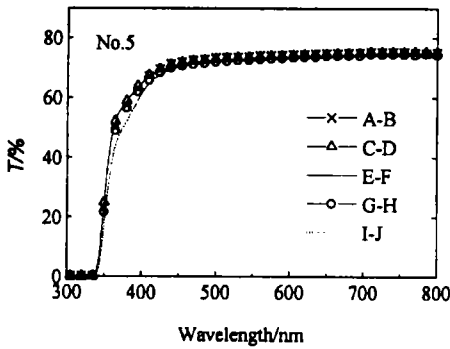


图 4 分段晶体轴向透过光谱

Fig. 4 Longitudinal transmission of different parts of ingot No.5

FNUF 值越小, 晶体的光产额均匀性越好.

从表 1 可看出加工取向以晶种为小头的晶体均匀性较差, 以晶种为大头的晶体则均匀性较好. 由于全尺寸钨酸铅晶体光产额均匀性是晶体本身质量的均匀性和晶体几何形状的叠加结果. 利用锥形的几何聚光效应, 可弥补晶体的发光不均匀性. 因此, 采用晶种为大头的加工取向将有利于调节钨酸铅晶体的发光均匀性.

分段晶体样品的光产额测量结果如表 2 所示, 表现出与其轴向透过率相同的变化规律, 从晶种到晶体顶部, 光产额逐渐变小, 显示晶体本身质量的不均匀. 钨酸铅

在晶体生长过程中, 由于两种组分 PbO 和 WO₃ 的饱和蒸气压相差较大 [5], 到晶体的生长后期, 随着组分的挥发和杂质含量的增多, 将形成较多的缺陷而使晶体质量变差, 晶体的发光性能也受到了影响. 因此, 改善钨酸铅晶体生长后期的晶体质量将会提高晶体的发光均匀性.

表 1 全尺寸钨酸铅晶体的加工方向和晶体均匀性关系

Table 1 Relation between cut direction and the uniformity of full-size PWO crystal

Sample	FNUF	Cut direction
No.1	0.896	Seed is large end
No.2	1.545	Seed is small end
No.3	1.463	Seed is small end
No.4	0.933	Seed is large end

表 2 分段晶体 No.5 的光产额测量结果

Table 2 Results of light yield measurement for different parts of ingot No.5

Sample	A-B	C-D	E-F	G-H	I-J
Light yield/p.e.(MeV) ⁻¹	15.3	16.3	15.3	13.8	11.5

表 3 晶体辐照前后光产额变化

Table 3 Changes of light yield before and after irradiation

Sample	irradiation		Light yield before	Light yield after	Light loss /%
	Dose rate	Irradiation time	irradiation	irradiation	
	/rad.h ⁻¹	/h	/p.e.(MeV) ⁻¹ (100ns)	/p.e.(MeV) ⁻¹ (100ns)	
No.1	35	70	9.9	9.4	-5.1
No.2	35	70	10.4	8.9	-14.4
No.3	35	70	11.4	9.9	-13.2
No.4	35	70	9.4	8.9	-5.3

表 3 为四根晶体样品辐照损伤的测量结果, 从中可以发现, 发光均匀性和透过率均匀性较好的晶体 (No.1、No.4) 抗光伤较好; 发光均匀性和透过率均匀性较差的晶体 (No.2、No.3) 则辐照后光损失均 >10%, 抗光伤较差。

4 结论

1. 后期生长的钨酸铅晶体质量是影响晶体发光均匀性的主要因素, 改善后期晶体的生长质量有利于提高晶体的发光均匀性。

2. 利用锥形的几何聚光原理可弥补晶体发光不均匀, 晶体的加工取向以晶种为大头将有利于提高钨酸铅晶体的发光均匀性。

3. 发光均匀性和透过率均匀性较好的钨酸铅晶体抗光伤也较好, 因此改善晶体均匀性有利于提高晶体辐照硬度。

参考文献:

- [1] Lecoq P. *Proc. Int. Conf.on Inorganic Scintillators and Their Applications*, SCINT95. The Netherlands: Delft Uni.press, 1996. 52-67.
- [2] Baryshevsky V G, *et al. Nucl.Instr. and Meth.*, 1992, **A322**: 231-234.
- [3] 沈定中, 薛志麟, 杨正泉, 等 (SHEN Ding-Zhong, *et al*), 无机材料学报 (Journal of Inorganic Materials), 1988, **3 (2)**: 186-192.
- [4] Auffray E, *et al. Nucl. Instr. and Meth.*, 1998, **A402**: 75-84.
- [5] Pascal P. *Nouveau Traite De Chimie Minerale, Masson E T. Cie. Editeur. Paris: TOM8*, 1963. 581

Uniformity of PbWO_4 Crystals

QI Ling-Jun, YANG Pei-Zhi, DENG Qun, SHEN Ding-Zhong, LIAO Jing-Ying, YIN Zhi-Wen

(Laboratory of Functional Inorganic Materials, Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050 China)

Abstract: The uniformity of PbWO_4 crystals grown by the Bridgman method was investigated by the measurements of transmission and light yield for full-size crystals and the different parts of ingot. The results show that the crystal quality in the later growth period is the main factor influencing the uniformity, and a favorable geometric shape can improve the uniformity of PbWO_4 .

Key words PbWO_4 crystals ; transmission spectra ; light yield ; uniformity