

氟化铅晶体的生长与 Cherenkov 辐射特性*

沈定中 任国浩 王绍华 邓群 殷之文

(中国科学院上海硅酸盐研究所 上海 200050)

摘 要

采用脱氧剂非真空坩埚下降法生长出的大尺寸 PbF_2 晶体具有优异的 Cherenkov 辐射特性, 其透光截止波长最短可达 245nm, 能量分辨率优于 $3.2\%/\sqrt{E}$, 辐照损伤很弱, 用 365nm 的过滤光漂白后, 透光能力几乎可以完全恢复到辐照之前的水平。

关键词 PbF_2 晶体, Cherenkov 辐射, 截止波长, 能量分辨率, 辐照损伤

分类号 O 78

1 引言

作匀速运动的带电粒子穿过透明介质时, 一旦速度 $V(V = \beta C, \beta < 1, C$ 是光在真空中的传播速度) 大于光在其中的传播速度 ($C/n, n$ 是介质的折光率) 时, 便会沿着与粒子运动方向成 θ 角的圆锥面上发出微弱的可见光, 这种光被称为 Cherenkov 辐射. 产生和记录这种辐射的装置称为 Cherenkov 电磁量能器. 它是高能物理实验中必不可少的设备. 全吸收簇射电磁量能器对辐射体的要求是: (1) 辐射长度小. (2) 没有闪烁光, (3) 折射率 n 要大, (4) 对光的透明度要高^[1]. 目前最常用的辐射体是光学铅玻璃, 但铅玻璃的密度较小. 辐射长度较大, 透光能力差, 产生 Cherenkov 辐射所需要的临界能量高(表 1). 1968 年, Dally and Hofstadter 根据 PbF_2 晶体具有密度高(立方相为 7.77g/cm^3 , 斜方相为 8.2g/cm^3)、辐射

表 1 铅玻璃与氟化铅晶体的物理性质

Table 1 Properties of lead glass and lead fluoride crystal

	n	Density/ $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	Radiation length/cm	Moliere radius/cm	Critical energy/MeV
F-2 ^[5]	1.62	3.61	3.22		17.3
SF-5 ^[2]	1.67	4.08	2.54	3.7	15.8
SF-6 ^[2]	1.81	5.20	1.69	2.7	12.6
PN-123 ^[1]	1.73	4.70	2.10		
β - PbF_2 ^[2]	1.82	7.77	0.93	2.22	9.04

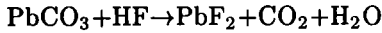
长度短、平均原子序数大及透光范围延伸至紫外的特点, 预言立方氟化铅晶体可望成为理想的 Cherenkov 辐射体^[3]. 但是长期以来, 氟化铅晶体的生长工艺问题未能很好解决, 生长出的晶体无论是性能, 还是尺寸都不能满足应用上的要求. 由于氟化铅晶体在高温下极易氧化, 所以传统上都采用真空法来生长氟化铅晶体. 但真空法设备投资大、生长工艺复杂, 尤其是氟化铅物质的熔点与沸点之间的温差较小, 熔体的蒸汽压较高, 使氟化铅组份

* 1998-01-04 收到初稿, 1998-03-23 收到修改稿
国家自然科学基金资助项目 (59272071)

在真空下更容易挥发. 虽然借助于惰性气体的填充可以减少组份的挥发, 但随惰性气体带入的杂质(如水分等)则会导致晶体性能下降, 甚至失透. 本文采用沈定中发明的掺脱氧剂非真空坩埚下降法^[4], 生长出了性能和尺寸均满足应用要求的氟化铅晶体, 并已开始向德国 Mainz 大学正在建造的 Cherenkov 电磁量能器批量提供这种晶体.

2 晶体生长与加工

以溶液法制备的纯度为 4N 的碳酸铅为原料, 加入过量的高纯氢氟酸, 使它们在一定的温度下充分反应:



经 XRD 鉴定, 该反应中生成的 PbF_2 为斜方氟化铅单晶. 原料烘干后与一定比例的脱氧剂混合, 再装入铂坩埚中. 为防止原料在高温下挥发, 坩埚口部需密封严实. 先将炉温升高到 1000°C 以上, 再把坩埚缓缓推入炉膛(图 1), 待原料充分融化后, 按照坩埚 1mm/h 的速度下降, 在整个生长过程中, 固-液界面处的温度梯度控制在 $40^\circ\text{C}/\text{cm}$.

生长出的氟化铅晶体为立方结构(Fm3m). 毛坯尺寸一般为 $38\text{mm} \times 38\text{mm} \times 220\text{mm}$. 采用传统的切、磨、抛等冷加工工艺, 可将毛坯加工成规定的尺寸. 例如, 德国 Mainz 大学规定的晶体形状为长方锥形, 长度在 $150\sim 185\text{mm}$ 之间. 本文测试的氟化铅晶体尺寸, 除特殊说明以外, 一般均为 $30\text{mm} \times 30\text{mm} \times 175\text{mm}$ 的长方柱.

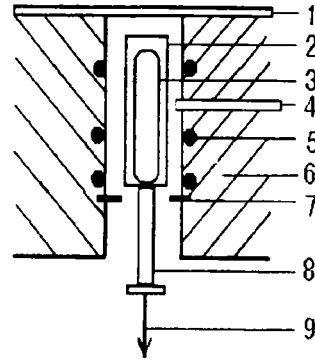


图 1 氟化铅晶体生长示意图

Fig. 1 Schematic diagram of PbF_2 crystal growth

1. Furnace cover; 2. Porcelain tube; 3. Platinum crucible; 4. Control thermocouple; 5. Heating elements; 6. Refractory materials; 7. Heat insulation shield; 8. Pedestal; 9. Downward mechanism with gear drive

3 透光率与透光范围

用日本岛津生产的 UV-265 型 Spectrophotometer 测量氟化铅晶体的透光率, 测量时仪器的狭缝宽度为 2nm . 图 2 示出了沿晶体长轴方向和垂直于长轴方向的透光率曲线. 各曲线均未经反射损失校正. 图中的曲线 1 是氟化铅晶体沿长轴方向的透射光谱, 它表明, 在可见光区晶体的透光率在 75% 以上, 而在紫外区透光率陡然降低, 透光的截止波长(有时又称吸收边)为 255nm . 而在垂直于长轴方向, 不同部位的透光率存在一定的差异, 从点 2 至点 5, 越是靠近晶体生长的开始端, 晶体的透光率越高(这种差异在紫外区尤为明显), 透光率截止边越陡, 截止波长更靠近短波, 最短处只有 245nm .

由于 Cherenkov 辐射的大部分光为连续的可见光, 波长为 λ 至 $\lambda+d\lambda$ 之间的 Cherenkov 光子数 (dN) 与波长 (λ) 的关系为:

$$dN \propto d\lambda/\lambda^2$$

说明辐射能量随 λ 的减小而很快地增大, 波长较短的紫光和紫外光的光子数较多. 因此 Cherenkov 辐射体在短波区的截止波长越短、透光率越高, 就能接收到更多的光子, 获得更强的 Cherenkov 信号. 因此, 透光范围是评价 Cherenkov 辐射体的一个非常重要的性能指

标. 与以往使用的铅玻璃^[5]相比(图3), 氟化铅晶体的截止波长比目前性能最佳的铅玻璃(PN-123)还短了将近40nm, 透光范围大大拓宽, 可见氟化铅晶体在用作 Cherenkov 辐射材料方面明显优于铅玻璃.

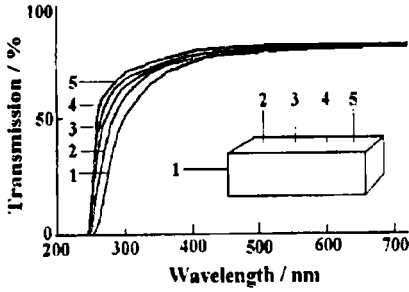


图 2 氟化铅晶体的透光率曲线
Fig. 2 Transmission curves of a lead fluoride crystal
Crystal size 30×30×175mm

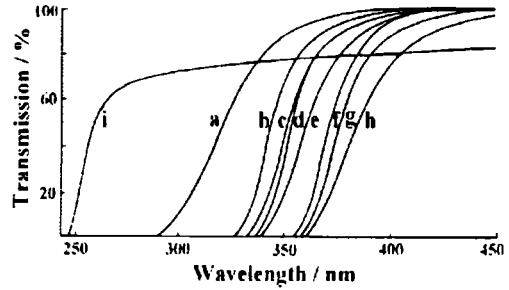


图 3 氟化铅晶体与铅玻璃的透光率曲线 (L=1X₀)
Fig. 3 Transmission curves of lead glass and a PbF₂ crystal per one radiation length
a-h: lead glass, a: PN-123, b: F-2; c: SF-2; e: SF-6; i: PbF₂ crystal

以往文献中报道的氟化铅晶体的吸收边多数在 280~290nm 之间^[2], 图 2 给出的氟化铅晶体的截止波长则是 245~255nm, 明显地向短波方向移动了大约 30nm. 按照晶体的能带理论, 吸收边的位置是由晶体的禁带宽度决定的 ($E_g = h\nu$). 当 $h\nu < E_g$ 时, 光子能量不足以引起电子从价带向导带的跃迁, 因而应该是无吸收的; 只有当 $h\nu \geq E_g$ 时, 才能引起晶体对光子的吸收. 根据能带计算和光电子能谱测定, 氟化铅晶体的禁带宽度为 5.84eV^[6], 对应

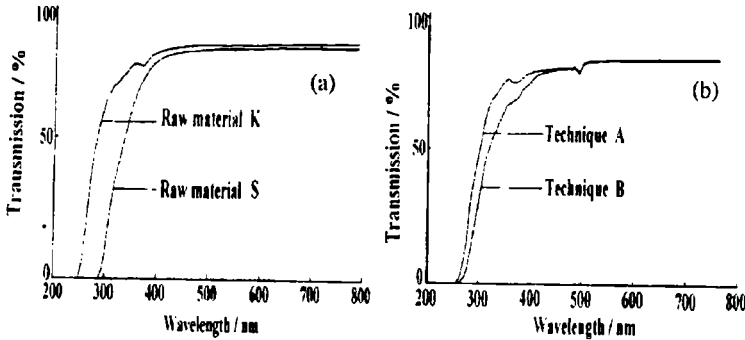


图 4 原料和工艺对氟化铅晶体吸收边的影响
Fig. 4 Effects of growth technique and raw materials on the cut-off edge of PbF₂ crystals

的吸收边波长应为 212nm. 而实测到的截止波长均大于这个值, 说明晶体对能量低于禁带宽度的光子也有吸收. 这种吸收多数是由于晶体中的激子或杂质缺陷在禁带内形成一些局域能级, 从而造成激子或杂质吸收, 使晶体的吸收边向长波方向移动. 图 2 中氟化铅晶体的透光率, 从结晶开始端向结晶结束端 (5→4→3→2) 逐渐降低的现象有可能就是杂质吸收所致. 因为随着杂质的分凝作用, 越到结晶后期, 杂质含量越高, 杂质吸收越强, 透光率随之降低. 实验研究表明, 用不同原料生长的氟化铅晶体, 即便生长工艺相同, 晶体的吸收边

会有很大的差异(图 4(a)); 而同一种原料, 由于生长工艺的不同, 晶体的吸收边也会出现一定的差异(图 4(b)).

严格地讲, 吸收边与截止波长这两个概念是有区别的, 前者是指能引起带-带跃迁的光子能量或波长, 后者则是指晶体透光率为零时所对应的波长. 对于理想晶体在理想条件下, 这两者应该相等, 但对于实际晶体, 由于存在各种局域能级所引起的吸收效应, 截止波长总是比理论吸收边更靠近长波方向. 既然这两者之间存在有一定的差距, 而且这种差距又与原料纯度和工艺制度有关, 那么, 通过提高原料纯度和改善工艺制度, 则可有效地促使氟化铅晶体的截止波长向其理论吸收边逼近. 从而大大提高氟化铅晶体在紫外区的透光能力和 Cherenkov 辐射强度. 在这方面, 我们的尝试已经取得了积极的效果.

4 能量分辨率

德国 Mainz 大学对我们生长的氟化铅晶体进行了束流测试, 结果表明, 当电子束的能量为 855MeV 时, 晶体的能量分辨率为 3.5%; 当电子束的能量为 450MeV 和 705MeV 时,

表 2 氟化铅晶体的能量分辨率
Table 2 Energy resolution of lead fluoride crystals

Supplier	Crystal size/mm	Energy/MeV	Resolution/%
OPTOVAC ^[7]	21×21×186	1000	5.9
		2000	4.1
		3000	3.4
		4000	3.4
SiC*	30×30×185.4	855	3.5
		734	3.7
		450~705	3.2/ \sqrt{E}

* Provided by Shanghai Institute of Ceramics

晶体的能量分辨率为 $3.2\%/\sqrt{E}$. 此外, 还用来自液氢靶的散射粒子测得当弹性电子的能量为 734MeV 时的能量分辨率为 3.7%. 而以往的氟化铅晶体只有在 GeV 级以上的能量激发下才能获得这么高的能量分辨率(表 2). Maas 认为, 这是迄今为止, 在他们所测试的氟化铅晶体中获得的最佳能量分辨率.

5 抗辐照损伤能力

在实验高能物理领域, 随着所研究粒子的能量的不断提高, 高能粒子对辐射体的辐照损伤作用也越来越强, 因辐照而造成的晶体缺陷使辐射体的透光率和光产额大大降低, 进而影响到量能器的能量分辨率. 因此, 近年来对用于建造高能物理电磁量能器的 Cherenkov 辐射体在抗辐照强度方面有严格的规定^[8]. 目前国内外评价晶体抗辐照强度普遍采用的方法有两种: 一是测量晶体在辐照前后光输出的变化, 二是测量其透光率的变化. 这里, 我们以 ^{60}Co 为激发源, 以剂量为 10krad 的 γ 射线辐照氟化铅晶体(晶体尺寸为 $30\times 30\times 185.4\text{mm}$), 辐照前后的透光率曲线示于图 5. 由图可见, 氟化铅晶体被辐照之后, 400~800nm 波段内晶

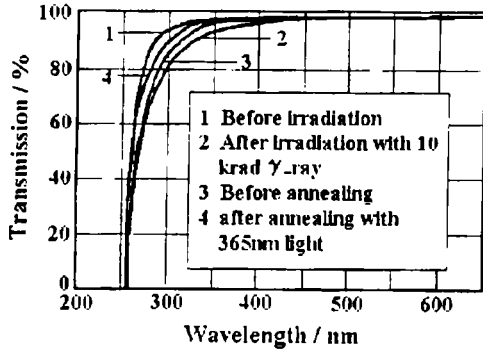


图 5 氟化铅晶体被 10 krad 的 γ 射线辐照前后和被 365nm 光漂白前后的透射光谱

Fig. 5 Transmission spectra for PbF_2 crystal (30mm \times 30mm \times 185mm) before and after an irradiation dose of 10k rad γ -rays as well as before and after annealing with 365nm filtered light (The curves are corrected by reflection loss)

体的透光率几乎没有任何明显变化, 只有在 260~400nm 波段有较大的下降, 其中以 280nm 处降低幅度最大, 约为 8%~10%. 但在用 365nm 的紫外光漂白之后, 晶体的透光率得到明显恢复, 除了 280nm 处的透光率恢复程度较低 (比辐照前大约低 1%~2%) 之外, 总体上可以与辐照之前晶体的透光率曲线相重合. 这说明, 至少在 10krad 的能量之内, 氟化铅晶体有比较强的抗辐照强度.

致谢 本文作者高度评价和感谢德国 Mainz 大学 Frank Maas 教授对 PbF_2 晶体所进行的性能测试工作, 他提供的能量分辨率数据和辐照损伤性能为本文的撰写奠定了坚实的基础. 此外, 中国科学院上海硅酸盐所谢幼玉副研究员进行了透射光谱的测试, 作者在此一并致谢.

参 考 文 献

- 1 徐克尊等. 粒子探测技术, 上海科学技术出版社, 1981, 159-166
- 2 Anderson D F, et al. *Lead fluoride: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1990, **A290**: 385-389
- 3 Dally E B, Hofstadter R. *The Review of Scientific Instruments*, 1968, **39**: 658-659
- 4 沈定中等. 中国发明专利, 公开号: CN1093419A
- 5 Yoshi Yoshimura, Akihiro Maki. *Nuclear Instruments and Methods*, 1975, **126**: 541-547
- 6 Paul R. Findley, et al. *Phys. Rev. B*, 1983, **28**: 4761-4767
- 7 Woody C L, et al. *IEEE Transactions on Nuclear Sciences*, 1993, **40**: 546-551
- 8 Appuhn R D, et al. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 1994, **A359**: 208-215

Growth And Cherenkov Radiation Characteristics of PbF_2 Crystals

SHEN Ding-Zhong REN Guo-Hao WANG Shao-Hua DENG Qun YIN Zhi-Wen
(Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences Shanghai 200050 China)

Abstract

A large size PbF_2 crystal was grown with the modified non-vacuum Bridgeman method. It possesses outstanding Cherenkov radiation properties. Its cut-off edge is as short as 245nm, the energy resolution is superior to $3.2\%/\sqrt{E}$, and the radiation damage is weak and can be cured by annealing with 365nm filtered light.

Key words PbF_2 crystal, Cherenkov radiation, cut-off edge, energy resolution, radiation damage