

锥形六面体 BGO 大单晶的 表面处理与均匀性*

沈定中 薛志麟 杨正泉 殷之文

(中国科学院上海硅酸盐所)

摘 要

闪烁晶体锗酸铋(简称 BGO)的均匀性除依赖于晶体的质量、外形外,还强烈地依赖于晶体表面的性质。本文以 $2 \times 2 \times 24 \times 3 \times 3 \text{ cm}^3$ 锥形六面体 BGO 大单晶为对象,研究晶体一对粗糙侧面的加工方法和热处理对晶体的光输出、均匀性和能量分辨率的影响,从而确定合适的表面粗糙度及其相应的表面处理工艺,实验结果表明,通过合宜工艺提高了锥形六面体晶体的光输出和均匀性,同时也改善了晶体的能量分辨率。

关键词: BGO 晶体; 均匀性; PVC 研磨技术; 热处理

一、引 言

BGO 晶体的密度大,平均原子序数高,使它对光子有较高的阻止能力,从而在相同功能条件下,可以缩小量能器的体积成为取代 NaI(Tl)的一个有利条件。BGO 晶体的折射率大($n=2.13$),所以 BGO 晶体在射线作用下的光输出和晶体的几何形状^[1]及表面性质密切相关。本文以 $2 \times 2 \times 24 \times 3 \times 3 \text{ cm}^3$ 锥形六面体(简称锥形)BGO 大晶体为对象,研究晶体一对粗糙表面的加工方法和热处理对晶体的光输出、均匀性和能量分辨率的影响,从而确定合宜的表面粗糙度及其相应的表面处理工艺。

二、实 验 条 件

实验用的 BGO 样品有:(1) $3 \times 3 \times 24 \text{ cm}^3$ 六面光学抛光的矩形晶体, (2) $2 \times 2 \times 24 \times 3 \times 3 \text{ cm}^3$ 六面光学抛光的锥形晶体, (3) $2 \times 2 \times 24 \times 3 \times 3 \text{ cm}^3$ 四面光学抛光,留一对粗糙侧面(A面, B面)的晶体(见图1)。

测量 BGO 大晶体均匀性的实验装置示于图2。图中的 MCA 是北京核仪器厂生产的 FH-1920 多道脉冲幅度分析器。光搜集使用 GDB-44 F 光电倍增管(PM)。晶体与光电倍增管之间用 $n \approx 1.5$ 的硅油耦合。每根晶体都用白纸和铝箔二层包裹。 γ 源是原子能所生产的 γ -系列源中的 Cs^{137} 。

晶体均匀性为:晶体光电峰脉冲输出幅度的归一化点取在靠近光电倍增管的第一个测试点上。铯源在其它各点的脉冲输出幅度的归一值为相对光输出(R, L, O.)。晶体各点

* 1987年4月29日收到初稿, 9月16日收到修改稿。

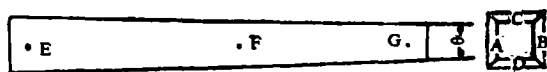


图 1 锥形 BGO 晶体
Fig. 1. Tapered BGO crystal

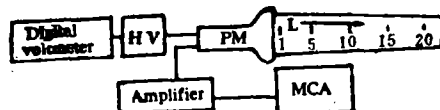


图 2 测试装置示意图
Fig. 2. Scheme of the measuring apparatus

的相对光输出与归一点之差的极大值或极小值(或二者兼有之)取为该晶体的均匀性。晶体的光输出, 是每根晶体在归一化点的铯峰脉冲输出幅度与在同样测试条件下的 $\Phi 3.0 \times 2.5$ (cm) 的 NaI(Tl) 晶体的铯峰脉冲输出幅度之比。晶体的能量分辨率(FWHM)是用铯峰的高宽 ΔA 与相应的幅度 A 之比, $FWHM = \Delta E/E = \Delta A/A(\%)$ 来定义的。

三、实验结果和讨论

通过以下三方面的工作, 得到了表 1~3, 图 3~10 的实验结果。

1. 两粗糙面的粗糙度对晶体均匀性的影响

在 BGO 晶体实际使用的各个场合中, 虽然对晶体形状的要求各异, 但都要求晶体有良好的均匀性, 即在 BGO 晶体长度方向的各个位置上要求有比较一致的 R. L. O.

由图 3 的曲线 2^{*} 可见上海硅酸盐所生长的 $3 \times 3 \times 24$ cm³ 的矩形大晶体有很好的均匀性^[2], 一般六面抛光的这种晶体的均匀性在 $\pm 1\%$ 左右。近年来由于应用的需要, 把同样晶体的毛坯加工成 $2 \times 2 \times 24 \times 3 \times 3$ cm³ 的形状, 即将二对相对侧面的夹角 θ 从 0° 增加到 $\sim 2.2^\circ$ 。此时, 晶体的 R. L. O. 随着距离 L 的增加而显著增大。六面抛光的这种锥形晶体的均匀性竟达 $\sim 70\%$, 如图 3 中曲线 1^{*} 所示。

BGO 晶体的折射率 $n = 2.13$, 相对于空气的临界角 $\approx 28^\circ$, 所以图 3 中的现象完全可用几何光学观点对荧光在晶体中的传播过程来解释。当荧光入射到晶体内表面上的入射角小于临界角时, 荧光将折射出晶体, 造成光损失, 但经包裹晶体的白纸反射后其中部分光又又将折射回晶体。在矩形晶体中, 由于 $\theta = 0$, 所以除了靠近晶体二顶端的位置外, 在长度方向不同位置上激发的荧光有近似相同的传播条件, 因而在 PM 上搜集到的铯峰脉冲输出幅度基本相同。此时晶体的均匀性主要决定于晶体的质量。质量好的 BGO 晶体中各点的 R. L. O. 基本相同, 均匀性也好。

在 $\theta \approx 2.2^\circ$ 的锥形晶体中, 任何一点产生的荧光, 由于每对侧面的面法线之间有夹角 θ , 因此每经光滑侧面内表面反射一次, 入射角就增加或减少 2.2° 。这样向 PM 方向传播的荧光是增加 2.2° , 光损失量基本上不会增加。但向相反方向传播的部分荧光, 每反射一次入射角就减小 $\approx 2.2^\circ$, 反射次数越多光损失量也就越多。这样离 PM 越近的点激发的荧光, 到锥顶的光程就越长, 反射次数也就越多, 光损失量也就越大; 反之, 光损失量就减小。由此可知, 晶体的均匀性与 θ 角的大小有着密切的联系, θ 角越大, 相

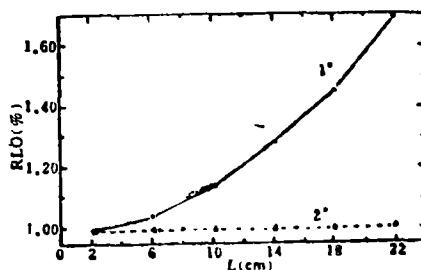


图 3 1^{*} 锥形 BGO 的均匀性和 2^{*} 矩形 BGO 的均匀性
Fig. 3. Uniformity of tapered BGO 1^{*}, and uniformity of cuboid BGO 2^{*}

All surfaces are optically polished

对光输出的变化也越大,晶体的均匀性越差。

改善六面光学抛光锥形晶体的均匀性可通过不同途径来达到,最常用的方法是使其中一对侧面足够粗糙(如比光面粗糙近20倍),使其为漫反射界面,使荧光在这界面上跑出晶体的几率大大增加,即用增加光损失量来达到改善均匀性的目的。这样离PM越远的点所发的荧光到达PM上的光损失量越大,相对光输出就越小,以致可使R. L. O. 远小于1。图4分别表示二支尺寸相同而表面粗糙度不同的晶体的均匀性和能量分辨率(FWHM)。由图4可知晶体粗糙表面的粗糙度对晶体不同位点上的光输出有着重大影响,可在很大范围内改变晶体的均匀性。晶体的粗糙度是用英国Taylor Hobson生产的Surtronic 3P型仪器测量,用 $R_a(\mu\text{m})$ 来表示。表1列出了用不同号磨料研磨的锥形晶体两侧面的粗糙度和晶体均匀性的关系。由表1可见,当 R_a 在 $0.25\sim 0.27\mu\text{m}$ 之间而且在晶体表面上的分布比较均匀时(见图1上的E、F、G各点位置)可以得到好的均匀性。

表1 锥形BGO晶体的粗糙度与均匀性

Table 1. Roughness and uniformity of the crystals in the shape of truncated pyramid

Crystal No.		41	47	44	10	155	50	133	
Roughness, R_a (μm)	A face	G	0.27	0.33	0.25	0.16	0.20	0.35	0.21
		F	0.28	0.35	0.25	0.17	0.21	0.35	0.21
		E	0.26	0.35	0.28	0.15	0.19	0.32	0.21
	B face	G	0.27	0.32	0.25	0.16	0.21	0.32	0.21
		F	0.28	0.32	0.25	0.15	0.24	0.33	0.22
		E	0.27	0.33	0.26	0.15	0.25	0.31	0.21
Average		0.27	0.33	0.26	0.15	0.23	0.33	0.21	
Uniformity (%)		-7.2	-24	-6.2	-24.5	-8.2	-27	-13.2	

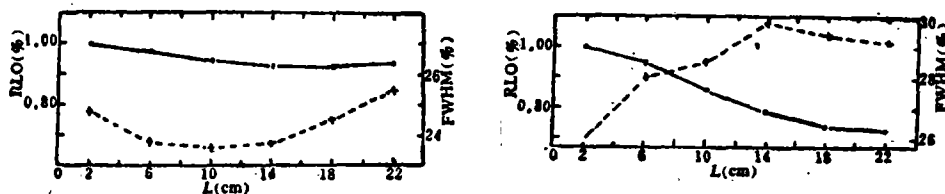


图4 具有两相对粗糙侧面BGO晶体的光输出(实线)和分辨率(虚线)
Fig. 4. R. L. O. (the solid line) and FWHM (the broken line) of BGO crystal with two opposite roughened sidefaces

2. PVC技术对晶体光输出的影响

锥形BGO晶体是利用一对粗糙面上的粗糙度控制荧光从粗糙表面光泄漏量的多少来达到改善均匀性的目的。显然这一方法所产生的副作用是使在PM上搜集到的荧光明显减少,给应用带来了一定的困难,从而就产生了提高光输出的问题。为了提高在PM上对荧光的搜集效率,进行了以下实验。

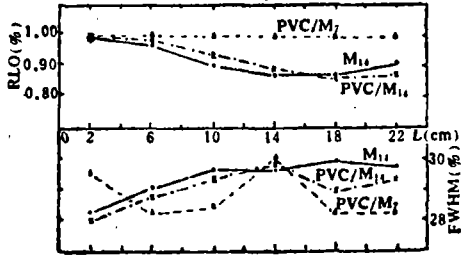


图 5 PVC 研磨技术对 No. 138 晶体的 R. L. O 和 FWHM 的影响
Fig. 5. Effect of PVC lapping on R. L. O. and FWHM of No. 138 crystal

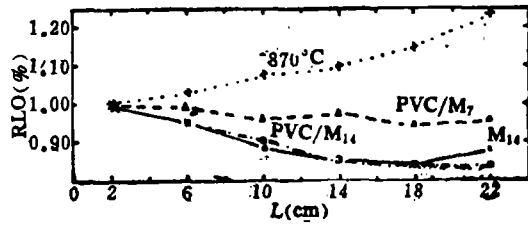


图 6 粗糙表面分别经 M_{14} , PVC/M_{14} , PVC/M_7 和 $870^\circ C$ 处理后所引起的 R. L. O. 的变化
Fig. 6. R.L. O. change caused by roughened surfaces, lapped with M_{14} , PVC/M_{14} , PVC/M_7 , treated at $870^\circ C$ respectively

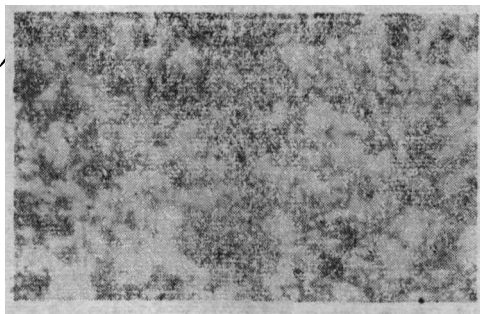
先将晶体在普通磨盘上用氧化铝磨料细磨，然后在磨盘上覆盖一块聚氯乙烯(PVC)厚板，再用氧化铝磨料进行细磨。观察和比较晶体均匀性与光输出的变化。实验结果示于图 5、6 和表 2。图中单注磨料(M_x)的曲线是指在普通磨盘上用 M_x 型号(粒度)氧化铝研磨的结果。

从图 5、6 可见，当使用同种磨料在 PVC 上再次研磨后，均匀性与分辨率一般仅稍

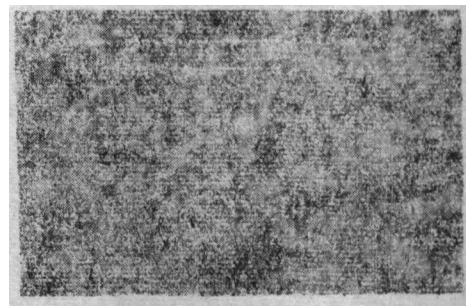
表 2 研磨条件对晶体均匀性和光输出的影响

Table 2. Effect of lapping conditions on uniformity and light yield of the crystals

Crystal No.	135		138			157			144
	M_{10}	PVC M_{10}	M_{14}	PVC M_{14}	PVC M_7	M_{14}	PVC M_{14}	PVC M_7	6 faces polished
Uniformity(%)	-13.6	-13.0	-12.7	-13.0	+0.7 -1.1	-15.8	-16.0	-5.7	+69
R. L. O. (%)	6.9	8.2	7.1	8.4	9.0	6.6	7.6	8.6	10.4



(a)



(b)

图 7 在显微镜下观察到的 PVC 技术前(a)、后(b)粗糙表面织构的变化 ($\times 300$)

Fig. 7. Textural change of the roughened surface before (a) and after (b) PVC lapping ($\times 300$)

有改善, 只有使用不同磨料后均匀性才有可能明显改善, 这又一次说明晶体的均匀性决定于锥形晶体一对粗糙面上的粗糙度。由表 2 可见, 使用 PVC/M₇ 研磨后有较好的均匀性。从表 2 可看出使用 PVC 技术的最大好处在于提高光输出。采用 PVC/M₇ 的研磨条件使晶体具有高的光输出, 比 M₁₄ 研磨条件下晶体的光输出高~30%, 比六面抛光晶体的光输出仅低 15-20% 左右。由此可以得出结论, 采用 PVC/M₇ 的研磨条件可使锥形 BGO 晶体具有较好的均匀性与光输出。

使用 PVC 技术后几乎能使光输出增加~30%, 其主要原因在于晶体粗糙表面的织构起了变化。在显微镜下观察晶体的粗糙面, 可以看到这种表面织构的变化。在普通磨盘上研磨的粗糙面显示出波峰起伏和峰顶尖锐, 而经 PVC 研磨后, 粗糙面上的尖峰变得平缓了(见图 7)。由于在 PVC 上研磨削去了部分峰尖, 致使几乎在每个峰上产生了一极小的平坦区, 使破坏了的全反射条件在这一小区内得到恢复, 由于光损失量的相应减少导致光输出明显增加。

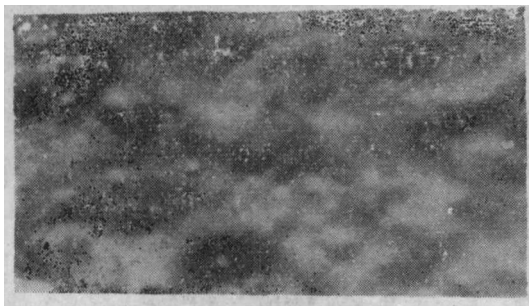
3. 高温热处理对晶体均匀性、光输出、分辨率的影响

在图 6 中经 PVC/M₇ 处理后的晶体再在 870℃ 条件下热处理, 则晶体的 R. L. O. 变化规律与其余三条曲线的规律完全不同, 有如六面抛光晶体 R. L. O. 的变化趋势。晶体的均匀性为~24%(见图 6)。在显微镜下观察, 可以看到晶体的粗糙表面起了相当大的变化, 产生了垂融现象。粗糙表面上不再看到尖峰, 峰尖部位已明显变得平坦(见图 8)。经观察 4 支在 870℃ 热处理过的晶体, 它们都有相似的表面织构, 而且不论它们原先的粗糙度如何, 有否经过 PVC 研磨, 它们的均匀性出奇地一致, 并且分辨率与光输出都有显著改善

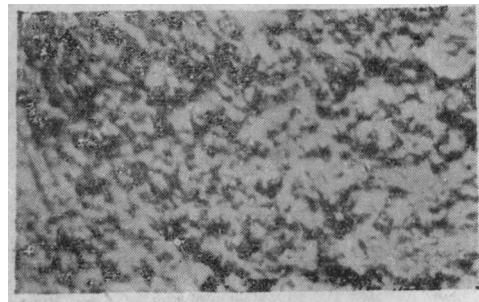
表 3 高温热处理对晶体闪烁性能的影响

Table 3. Effect of high temperature treatment on scintillation properties of the crystals

Crystal No.	135		157		76		132	
	PVC M ₁₀	870℃	PVC M ₇	870℃	M ₁₄	870℃	M ₁₄	870℃
Uniformity(%)	-13.0	24.3	-5.7	24.6	-14.4	24.0	-8.4	24.9
Resolution(%)	28.7	27.7	29.2	27.9	32.5	30.3	30.0	28.0
R. L. O. (%)	8.2	9.0	8.6	8.9	5.8	7.5	6.3	7.9



(a) After heat treatment at 870℃



(b) After heat treatment at 800℃

图 8 高温热处理后的粗糙表面织构 (×300)

Fig. 8. Textures of the roughened surface after heat treatment (×300)

(见表 3)。表 3 中的分辨率是指归一化点处的分辨率。从晶体表面织构的变化可以推测 870°C 热处理对晶体的粗糙面有类似 PVC 技术的效果。但 24% 的均匀性是太差了, 这主要是由于垂融过度引起粗糙面的峰尖过于平坦, 如垂融温度适当降低, 估计均匀性也会得到改善。通过实验我们找到了合适的垂融温度, 其温度范围在 800°C 左右(见图 8 b)。在这个温度区域, 晶体粗糙表面不经 PVC 研磨而直接进行高温热处理, 样品有比较好的均匀性, 并且与用 PVC/M₇ 处理过的晶体具有相同的光输出水平。实验结果示于图 9、10。由图 9、10 可见, 高温热处理不仅可以改善晶体的均匀性, 还能改善晶体的能量分辨率。

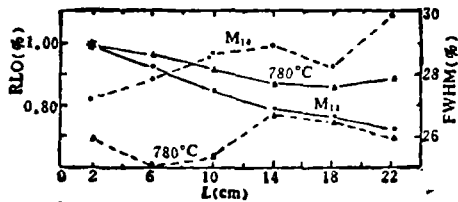


图 9 780°C 热处理对 No. 82 晶体的 R.L.O (实线) 和 FWHM (虚线) 的影响

Fig. 9. Effect of heat treatment at 780°C on RLO (solid line) and FWHM (dotted line) of No. 82 crystal

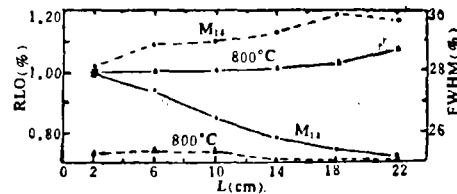


图 10 800°C 热处理对 No. 107 晶体的 R.L.O (实线) 和 FWHM (虚线) 的影响

Fig. 10. Effect of heat treatment at 800°C on RLO (solid line) and FWHM (dotted line) of No. 107 crystal

四、结 论

六面抛光的矩形 BGO 晶体的均匀性为 $\sim \pm 1\%$, 而锥形 BGO 晶体的均匀性为 $\sim 70\%$ 。为了改善锥形 BGO 晶体的均匀性, 本文采用留下一对粗糙侧面其余四面光学抛光的加工方法。实验结果表明这一对粗糙侧面的粗糙度 (R_a) 可决定锥形 BGO 晶体的均匀性。当 $R_a = 0.25 \mu\text{m}$ 时, 晶体的均匀性在 $0 \sim 10\%$ 范围内。但采用这方法的缺点是使晶体的光输出降低 $\sim 30\%$ 。

本文介绍了二条途径来提高上述晶体的光输出。其一是用 PVC/M₇ 技术研磨锥形 BGO 晶体的这一对粗糙侧面, 可使粗糙表面的粗糙度值 $R_a \approx 0.25 \mu\text{m}$, 而光输出可比 M₁₄ 研磨条件高 30% 左右; 其二是将具有一对粗糙侧面的锥形 BGO 晶体在 $\sim 800^\circ\text{C}$ 下进行热处理, 使粗糙面上产生垂融现象, 这样处理过的锥形 BGO 大单晶的均匀性和光输出达到与 PVC/M₇ 相同的水平, 并且晶体的能量分辨率至少改善 1%。

致谢: 作者衷心感谢法国 LAPP 研究所 Mr. M. Lebeau 建议使用 PVC 研磨技术和 BGO 课题组同志为本工作加工、研磨了许多晶体。

参 考 资 料

- [1] Anderson, S. and Salomon, M.: Proc. of International Workshop on Bismuth Germanate, ed. C. Newman-Holmes, Princeton University, 1982: 158.
- [2] 顾以潘等: 高能物理与核物理, 10 (1) 1986: 1

Effect of Surface Treatment on Uniformity of Large BGO Crystals in the Shape of Truncated Pyramid

Shen Dingzhong, Xu Zhilin, Yang Zhengquan and Yin Zhiwen
(Shanghai Institute of Ceramics, Academia Sinica)

Abstract

Besides depending on quality and configuration of the scintillation crystal, the light output uniformity of bismuth germanate (BGO) strongly relates to its surface state. In present work, large BGO crystals in the shape of truncated pyramid and with dimension $\overline{2 \times 2} \times 24 \times \overline{3 \times 3}$ cm³ were taken for studying the effects of the processing method for two opposite roughened faces and heat treatment of the crystal on its relative light output (R. L. O.), the uniformity and the energy resolution (FWHM). In this manner, the appropriate roughness and corresponding surface treatment technique can be determined. The experimental results indicate that by applying the proper technique, the uniformity and the R. L. O., as well as the resolution of tapered BGO crystals have been improved.

Keywords: BGO crystal; Uniformity; PVC lapping; Heat treatment