

掺铈石英闪烁光纤的伽马传感特性研究

林施扬^{1,2} 郭 强^{1,2} 庞拂飞^{1,2*} 陈振宜^{1,2} 王廷云^{1,2}

¹上海大学特种光纤与光接入网省部共建重点实验室培育基地, 上海 200072

²上海大学通信与信息工程学院, 上海 200072

摘要 提出了基于溶胶-凝胶(Sol-Gel)法制备掺铈石英闪烁光纤,将其作为辐射传感头,搭建了对伽马辐射敏感的光纤传感系统。通过改变溶胶-凝胶中铈元素掺杂浓度,分别拉制出Ce与Si的摩尔分数分别为0.14%和0.22%的闪烁石英光纤。利用¹³⁷Cs伽马辐射源,研究了闪烁光纤涂覆层、铈元素掺杂浓度及闪烁光纤长度等参量对辐射传感特性的影响。

关键词 光纤光学; 光纤传感; 掺铈光纤; 伽马辐射; 溶胶-凝胶法

中图分类号 TN253 **文献标识码** A

doi: 10.3788/CJL201542.0305006

Gamma Sensing Characterization of Cerium-Doped Silica Scintillating Fiber

Lin Shiyang^{1,2} Guo Qiang^{1,2} Pang Fufei^{1,2} Chen Zhenyi^{1,2} Wang Tingyun^{1,2}

¹Key Laboratory of Specialty fiber Optics and Optical Access Networks, Shanghai University, Shanghai 200072, China

²School of Communication and Information Engineering, Shanghai University, Shanghai 200072, China

Abstract Scintillating silica optical fibers are fabricated by using Sol-Gel method. Based on the fabricated scintillating fibers, a Gamma radiation fiber sensor system is set up. Through doping different concentrations of cerium (Ce) element in Sol-Gel material, two scintillating fibers are fabricated with the Ce and Si mole fraction of 0.14% and 0.22%. By using a ¹³⁷Cs Gamma radiation source, the dependences of the sensing properties on the fiber coating, Ce-doped concentration and fiber length are investigated and analyzed.

Key words fiber optics; optical fiber sensing; Ce-doped fiber; Gamma radiation; Sol-Gel method

OCIS codes 060.2370; 060.2280; 160.2540; 160.5690

1 引 言

随着伽马辐射探测技术在医学放疗、石油测井、工业探伤及核能设施安全监控等领域的广泛应用^[1-3],人们对伽马辐射传感器件的功能提出了越来越高的要求,如在核能设施伽马辐射监控应用中,需要将辐射传感头与光电转换器件分离从而实现远程实时监控;在石油测井应用中,需要辐射传感头可工作于高温高压环境^[4];在医学放疗应用中,需要微小尺寸传感头进行在体检测辐射剂量等。

基于闪烁光纤的光纤传感器利用了闪烁体对伽马辐射敏感、体积小和与导光光纤易于耦合等特点,为实现远程、恶劣环境的辐射监测提供了可能^[5-6]。然而,目前的闪烁光纤受材料和制备工艺等因素的制约,只在放射性诊疗和高能物理实验等环境稳定安全的有限领域实现了应用^[7],而在其他诸如工业安全、石油开采和核工业等特殊环境中的应用还有局限性。

收稿日期: 2014-10-30; 收到修改稿日期: 2014-12-09

基金项目: 国家973计划(2012CB723405)、国家自然科学基金(61275090,61475096)

作者简介: 林施扬(1989—),女,硕士研究生,主要从事闪烁石英光纤方面的研究。E-mail: linshiyang@shu.edu.cn

导师简介: 王廷云(1963—),男,教授,博士生导师,主要从事光纤传感和特种光纤等方面的研究。

E-mail: tywang@mail.shu.edu.cn

* 通信联系人。E-mail: ffpang@shu.edu.cn

目前,闪烁光纤可根据材料分为有机和无机两大类。其中,有机闪烁光纤方面的研究主要集中在高分子有机材料聚甲基丙烯酸甲酯(PMMA)闪烁光纤上。该光纤具有制备工艺简单、成本低廉、发光效率高等优点,适用于放射性诊断和粒子追踪领域^[8-10]。但是PMMA存在耐强辐射性能差、使用寿命有限、无法在高温环境下使用等弊端,而且商用的塑料光纤尺寸最小只能达到毫米量级,难以弯曲置于复杂的辐射探测对象内部,不易与导光光纤耦合而实现远距离的实时辐射传感。

相比于有机闪烁光纤,无机闪烁光纤具有对辐射线性响应好、尺寸小、重复性良好等优点,对辐射能量的吸收性也更好^[11]。常见的无机光纤有晶体闪烁光纤和石英闪烁光纤两种。晶体闪烁光纤的制备方法是在高温下拉制生长获得,可用于核科学和医学放疗等领域^[12]。但晶体闪烁光纤存在生长速度慢、均匀性差、生长长度短,而且不易与现有石英光纤熔接等问题。石英闪烁光纤则是利用特殊的掺杂工艺将Ce、Eu、Yb等元素掺入到石英光纤中使其对紫外(UV)及伽马辐照敏感^[13],具有价格低廉、均匀性好、拉制长度长等优点,是目前制备无机闪烁光纤方案中较好的选择。

溶胶-凝胶(Sol-Gel)法是一种可以均匀定量地向无机材料中掺入微量元素的成熟工艺,主要用于制备掺杂的玻璃、薄膜^[14]等。铈、铽、镱等稀土元素是无机闪烁体的常见激活剂,其在闪烁玻璃中的能量传递机理已趋成熟^[15],同样适用于无机闪烁光纤的掺杂。近年来,米兰比可夫大学和南安普斯顿大学等研究机构尝试以Sol-Gel法将掺铈元素的干凝胶粉末填入石英管制备闪烁石英光纤^[16-17],大大简化了制备的工序和成本。中国科学院上海光学精密机械研究所这两年也利用Sol-Gel法制备出掺铈的 $\text{Lu}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 光纤^[18]。但是,他们的工作主要集中在X-ray辐照下的传感性能,未涉及光纤对伽马辐射探测方面的传感性能研究。

本文提出采用Sol-Gel法制备掺铈二氧化硅粉末,基于粉末套管法拉制掺铈闪烁石英光纤,研究了该闪烁光纤对伽马辐射的传感特性。测试分析了闪烁光纤的辐射灵敏度,研究了不同掺杂浓度、不同长度的掺铈闪烁光纤的响应特性。

2 掺铈光纤制备及闪烁特性测试系统

2.1 闪烁光纤样品制备

采用Sol-Gel工艺制备掺铈二氧化硅粉末,利用粉末套管技术制备光纤预制棒并拉制掺铈闪烁石英光纤作为系统光纤传感头,具体制备工艺步骤如下^[19]:

- 1) 将正硅酸四乙酯(TEOS)、乙醇、去离子水按比例配置成溶液,加入合适浓度的硝酸铈乙醇溶液引入 Ce^{3+} ;
- 2) 硅油浴加热溶液至40℃并保持12天获得凝胶;
- 3) 将干凝胶研磨成粉末,放入管式炉中缓慢升温并分段保温,充分去除残余有机物得到掺铈石英粉末;
- 4) 取一端拉锥封口的石英管,将掺铈石英粉末填入,并通过超声浴致密粉末,获得光纤预制棒;
- 5) 将填有掺铈粉末的石英光纤预制棒在拉丝塔上进行拉丝。

为了分析不同掺铈浓度对闪烁光纤辐射敏感性能的影响,制备了A、B两组不同掺铈浓度的闪烁光纤样品,通过X-ray荧光光谱仪(XRF-1800,SHIMADZU)测试,可以得知掺杂粉末浓度,如表1所示。

表1 闪烁光纤样品制备使用的Sol-Gel粉末掺铈浓度

Table 1 Ce-doped fibers made from Sol-Gel powder with different concentrations of cerium

Ce-doped fiber	Mole fraction of Ce and Si (in Ce-doped powder /%)
A	0.14
B	0.22

闪烁光纤样品A的端面如图1所示,不存在明显的芯包层结构,这是因为在该浓度范围内的样品粉末掺



图1 闪烁石英光纤端面

Fig.1 Scintillating silica optical fiber end face

杂浓度较低,粉末所形成的芯层部分折射率与石英包层较为接近,无法形成折射率差明显的芯包层结构。闪烁光纤样品 B 存在类似情况。

2.2 测试系统

利用光电倍增管(PMT,H8259)搭建了用于伽马射线辐射探测的光纤传感系统。由于PMT的敏感窗口是在可见光波段,为防止环境光的影响,PMT和闪烁光纤均置于暗箱内测试。PMT存在系统暗噪声,主要由电路噪声和环境射线辐射背底噪声所引起,本研究所选用的PMT暗噪声在20℃室温下约为每秒2至4个光子。本实验采用的伽马源为¹³⁷Cs,该源的射线能量为662 keV,放射性活度为40.2 kBq(1 Bq表示放射源每秒发生1次放射性衰变)。测试过程保持室温为20℃。

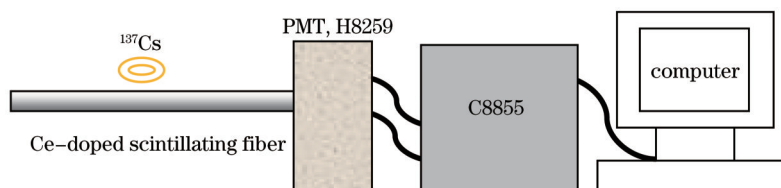


图2 基于闪烁光纤的伽马传感系统原理图

Fig.2 Schematic diagram of the scintillating fiber Gamma radiation sensing system

3 伽马传感特性及分析

利用所制备的掺铈闪烁光纤以及搭建的测试系统对伽马辐射源¹³⁷Cs进行伽马传感测试,考察该闪烁光纤的辐射灵敏度,并研究影响该灵敏度的因素,包括掺杂浓度、光纤长度,此外对该光纤进行重复性测试。

3.1 闪烁光纤伽马辐射传感响应特性

考虑到所制备光纤纤芯折射率差较小,常规光纤涂覆层对掺铈闪烁光纤的辐射传感特性可能会产生影响,故对有、无涂覆层的闪烁光纤样品分别进行辐射灵敏度测试。

截取一段27 cm长的带涂覆层A组样品光纤进行测试,记录1 min内系统测得的每秒光子数,即CPS读数,之后,剥离光纤的涂覆层后,进行同样的测试并记录数据。如图3(a)所示,剥离涂覆层后的CPS示数较高。可见,实验用的掺铈闪烁光纤辐射传感特性确实受涂覆层影响,这主要是由于芯层的掺铈浓度较低,与周围石英未形成明显的芯包层折射率差,光纤中传输光子的反射主要依靠光纤与空气的界面完成,而涂覆层的折射率高于石英,在包层和涂覆层界面处将引起光线外泄。鉴于此,接下来的测试中使用的光纤样品均为剥除涂覆层后的裸纤。

取10 cm直径为150 μm的A组无涂覆层的光纤样品进行测试:将辐射源¹³⁷Cs置于该样品光纤中段,记录1 min内的CPS读数;取出光纤后,保持Cs源位置不变,同样记录1 min内系统暗噪声输出CPS。如图3(b)所示,有辐射源作用的A组光纤输出的CPS曲线显著高于暗噪声的输出CPS,1 min内记录的60组CPS的平均值为12,根据光纤尺寸可得单位面积每秒产生的光子数为 6.8×10^8 。

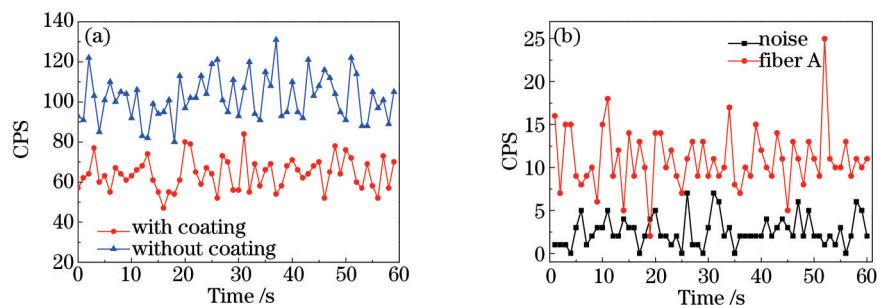


图3 (a) 涂覆层对掺铈闪烁光纤伽马传感灵敏度的影响;(b) 1 min内系统实时CPS

Fig.3 (a) Impact of coating to the Gamma sensitivity of cerium-doped scintillating fiber; (b) real-time CPS in 1 min

3.2 光纤长度、掺杂浓度对辐射敏感特性的影响

利用闪烁光纤进行伽马辐射源探测时,闪烁光纤的长度、伽马辐射源与光纤相对位置、敏感元素铈的掺

杂浓度都将影响传感系统的测量性能。

分别截取长度为 18 cm 的 A、B 两组样品光纤进行辐射传感测试,记录 1 min 内有、无伽马辐射源情况下的 CPS 数,之后以 4 cm 为单位截短光纤,依次测得两组光纤在 18, 14, 10, 6 cm 四个长度光纤的 CPS 数。此外,在测试光纤前后分别记录系统的暗噪声,以便排除温度变化造成暗噪声上升的影响。将测得每个长度上的 CPS 数减去测试前后测得的系统暗噪声的平均数,得到两组光纤不同长度下的 CPS 数,结果如图 4 所示。可以看出,摩尔分数为 0.14% 掺铈浓度光纤的灵敏度高于摩尔分数为 0.22% 掺铈浓度光纤。这主要是由三价铈离子的发光机理决定的:掺铈光纤在辐照下能产生光子是由于伽马射线辐照光纤使得 Ce^{3+} 在 4f 轨道上的自由电子激发到 5d 轨道上,然后放射出一部分能量跃迁回 4f 轨道并发出光子。如果掺铈浓度过高, Ce^{3+} 容易被氧化成四价,失去该自由电子,同时,掺杂浓度过高的 Ce^{3+} 也容易发生团簇现象,发生猝灭效应^[16-17,20],因此,摩尔分数为 0.14% 掺杂浓度的光纤具有较高的灵敏度。

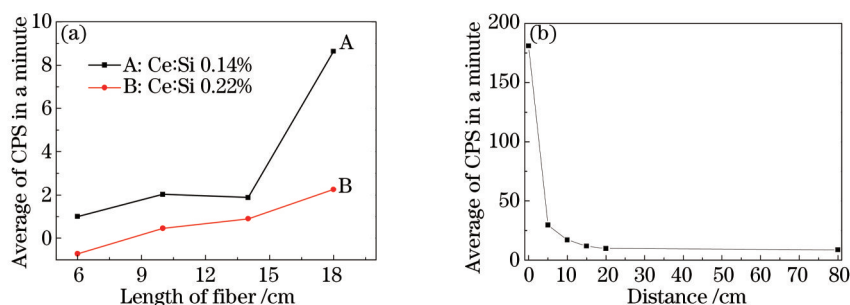


图 4 (a) 不同长度、浓度的掺铈光纤辐射传感测试; (b) 伽马源与样品光纤的距离对测试结果的影响

Fig.4 (a) Radiation sensing characteristics of the Ce-doped fiber with different concentrations and lengths; (b) impact of the distance between the Gamma source and scintillating fiber

另外,比较 A、B 两组不同长度光纤样品的 CPS 读数可以发现,相同浓度的光纤,长度越长,受辐射发光区域越大,产生的光子数也就越多,然而,两者之间并非具有线性关系。1) 辐射源到达光纤各点的距离并不一致,当距离过大时,辐射能量随距离大幅度衰减,呈现非线性,为此,通过横向移动 ^{137}Cs ,研究辐射源到光纤的距离对 CPS 读数的影响,移动方向与光纤保持垂直。实验结果如图 4(b)所示,横坐标是辐射源到定长闪烁光纤中点的距离,当辐射源与光纤的距离从 0 增大到 5 cm 时,源辐射产生的光子数已经迅速衰减至 1/5;距离超过 15 cm 时,光子数已经趋向于零。可见,闪烁光纤长度超过 30 cm 的部分已经无法再受该辐射源激发产生光子。2) 到达 PMT 窗口的光子数不仅受光纤发光效率的影响,同时也受其传光效率的制约。当光纤长度过长,远端产生的光子在到达 PMT 窗口前已全部衰减,无法被系统检测。

此外, B 组光纤在 6 cm 处出现负值是由于在该长度和浓度下光纤本身受辐照产生的光子已经完全被系统暗噪声掩盖。由图 4(b)可初步得到在摩尔分数为 0.22% 掺铈浓度下, B 组光纤样品在这一系统中所使用光纤长度应大于 8 cm。

3.3 闪烁光纤伽马辐射传感重复性测试

为验证光纤样品可以在多次伽马辐照后保持一定的辐射灵敏度,进行以下实验:每隔 2 min 重复测试同一段光纤样品对 ^{137}Cs 的辐射响应,记录 10 组 CPS 数据(每组 60 个数据)。实验结果的箱式图如图 5 所示。其中,星号表示异常值,上下短横线表示除异常值外的边缘值,矩形框阴影部分表示近半数的数据分布区域,矩形框中的横线表示每组 CPS 的中位数,小正方形表示其平均数。可见在 1 min 内,每组 CPS 的波动范围大多不超过 5。利用每组 CPS 的平均数进行表征,在持续一段时间(20 min)的伽马射线辐照下,样品光纤仍有较好的辐射灵敏度,CPS 无显著变化。图 5 中首次测量的平均 CPS 数比后面的高出 2~3 个 CPS,这是打开暗箱放置光纤样品时因引入环境光造成的。为排除放置光纤样品的过程对实验结果的影响,每次测试需在放置光纤样品 5 min 后进行。此外,采用直径为 1 mm 的塑料光纤进行间隔 5 min 的重复性测试,发现 5 min 后的测试得到的 CPS 数减少了约 30 个,可见掺铈石英闪烁光纤具有良好的耐辐照能力。

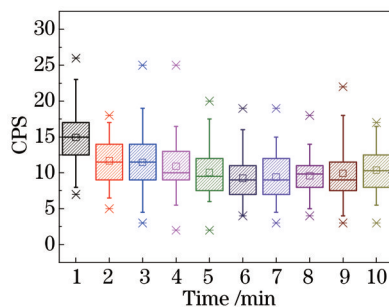


图5 20 min内的每分钟平均CPS统计情况

Fig.5 Statistics of CPS per minute in 20 min

4 结 论

利用Sol-Gel法结合管棒拉丝技术制备的掺铈石英光纤作为辐射传感头,搭建了对低浓度伽马辐射敏感的光辐射传感系统。经实验证实,该工艺下的闪烁光纤对伽马辐射敏感,单位面积每秒产生的光子数达 6.8×10^8 。考虑常规光纤涂覆会对该光纤的辐射传感性能产生影响并设计实验得到了验证。通过对不同浓度、不同长度的掺铈光纤裸纤进行辐射传感测试发现,掺铈浓度较低的闪烁光纤灵敏度较高,这符合了三价铈离子的发光机理(Ce^{3+} 的猝灭效应)。此外,相同浓度的光纤越长,受辐射发光区域越大,产生的光子数也越多。最后通过可重复性测试证实,光纤样品可以在多次伽马辐照后保持一定的辐射灵敏度。

参 考 文 献

- 1 B Baumbaugh. Studies of pattern of light emitted from waveshifting, scintillating, and waveguide fibers used in detectors for particle physics[C]. Knoxville: IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record(NSS/MIC),2010. 847-851.
- 2 K T Han, W J Yoo, J K Seo, *et al.*. Optical fiber-based Gamma-ray spectroscopy with cerium-doped lutetium yttrium orthosilicate crystal[J]. Optical Review, 2013, 20(2): 205-208.
- 3 Liu Minmin, Zhou Feng, Du Zhishun. Application of optic fiber sensors in petrol well logging[J]. Optics & Optoelectronic Technology, 2008, 6(3): 18-21.
刘敏敏,周峰,杜志顺. 光纤传感器在石油测井中的应用[J]. 光学与光电技术, 2008, 6(3): 18-21.
- 4 S Prenskey. What's new in well logging and formation evaluation[J]. World Oil, 2011, 232(6): 85-95.
- 5 R T Ramos, W D Hawthorne. Survivability of optical fiber for harsh environments[C]. SPIE, 2008. 3031-3040.
- 6 A L Huston, B L Justus, P L Falkenstein, *et al.*. Remote optical fibre dosimetry[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 2001, 184(1-2): 55-67.
- 7 J Moon, K W Jang, W J Yoo, *et al.*. Water-equivalent one-dimensional scintillating fiber-optic dosimeter for measuring therapeutic photon beam[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2012, 70(11): 2627-2630.
- 8 D M Carthy, S O'Keefe, E Lewis, *et al.*. Radiation dosimeter using an extrinsic fiber optic sensor[J]. IEEE Sensors Journal, 2014, 14(3): 673-685.
- 9 B Beischer, R Greim, T Kirn, *et al.*. The development of a high-resolution scintillating fiber tracker with silicon photomultiplier readout[J]. Nucl Instr and Meth A, 2011, 628(1): 403-406.
- 10 Y Matsuda, T Kobayashi, M Itoh, *et al.*. Scintillating fiber detector for momentum tagging light unstable nuclei at intermediate energies[J]. Nucl Instr and Meth A, 2012, 670(1): 25-31.
- 11 S O'Keefe, C Fitzpatrick, E Lewis, *et al.*. A review of optical fibre radiation dosimeters[J]. Sensor Review, 2008, 28(2): 136-142.
- 12 J Didierjean. Oxide crystal-fibers grown by micro-pulling-down technique and applications for lasers and scintillators[C]. SPIE, 2012. 8263.
- 13 M Chiesa, K Mattsson, S Taccheo, *et al.*. Defects induced in Yb^{3+}/Ce^{3+} co-doped aluminosilicate fiber glass preforms under UV and γ -ray irradiation[J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 2014, 403: 97-101.
- 14 Hu Wenjie, Jia Hongbao, Sun Jinghua, *et al.*. Magnesium fluoride anti-reflective films for fluorophosphate glass prepared by Sol-Gel method[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(5): 0531001.
胡文杰,贾红宝,孙菁华,等. 溶胶凝胶法制备用于氟磷酸盐玻璃的氟化镁减反射膜[J]. 光学学报, 2013, 33(5): 0531001.

- 15 Yang Bin, Wang Qian, Xia Haiping, *et al.*. Energy transfer mechanisms of Ce^{3+}/Tb^{3+} doped scintillating glasses with high $[Gd_{(1-x)}Lu_x]_2O_3$ concentration[J]. Chinese J Lasers, 2013, 40(5): 0506001.
杨 斌, 王 倩, 夏海平, 等. 铈/铽掺杂高钆镧闪烁玻璃能量传递机理[J]. 中国激光, 2013, 40(5): 0506001.
- 16 A Vedda, N Chiodini, D D Martinoet, *et al.*. Insights into microstructural features governing Ce^{3+} luminescence efficiency in sol-gel silica glasses[J]. Chem Mater, 2006, 18(26): 6178–6185.
- 17 N Chiodini, A Vedda, M Fasoli, *et al.*. Ce-doped SiO_2 optical fibers for remote radiation sensing and measurement[C]. SPIE, 2009, 7316: 731616.
- 18 Q Lu, Q Liu, J Zhuang, *et al.*. Ce^{3+} -doped $Lu_2Si_2O_7$ luminescent fibers derived from electrospinning: Facile preparation and flexible fiber molding [J]. J Mater Sci, 2013, 48(24): 8471–8482.
- 19 Shiyang Lin, Qiang Guo, Fufei Pang, *et al.*. Fabrication of cerium-doped silica scintillating fiber based on sol-gel and powder-in-tube technique[C]. Beijing: Asia Communications and Photonics Conference, 2013, AF2D: AF2D.1.
- 20 I Veronese, M Martini, F Moretti, *et al.*. Phosphorescence of SiO_2 optical fibres doped with Ce^{3+} ions[J]. Physica Status Solidi (C), 2007, 4(3): 1024–1027.

栏目编辑: 王晓琰