

# 用同步辐射光源研究掺铈对 闪烁体发光性质的影响

王德武 将海音 刘建飞 吴忠华  
(中国科学院高能物理所, 北京 100039)

**摘 要** 描述了在北京同步辐射装置上, 利用同步辐射作为激发光源, 观测微量元素铈对闪烁体 GSO、PbF<sub>2</sub> 和 BaF<sub>2</sub> 发光性质的影响。

**关键词** 同步辐射, 闪烁体, 发光衰减。

## 1 引 言

同步辐射光源强度高、准直性好、频带宽、频谱连续可调和具有标准脉冲时间结构等特点。北京正负电子对撞机(BEPC)运行在单束团的条件下, 脉冲周期为 800 ns, 脉冲宽度为 160 ps。这种特有的 X 射线脉冲时间结构为研究物质的发光衰减时间提供了极好的条件。

四十六年前 Hofstadter 发现了 NaI(Tl) 晶体, 从此开始了闪烁计数器的新纪元<sup>[1]</sup>。八十年代又先后研制了 BGO、BaF<sub>2</sub>、CeF<sub>3</sub> 等新型闪烁体<sup>[2, 3]</sup>。因为许多无机闪烁体都是辐射探测的敏感材料, 因此被广泛地应用于高能物理、核物理、核医学成像以及同步辐射 X 射线的探测。不同的应用领域对闪烁体性能要求是不同的。总的来说, 期望闪烁体具有以下主要特性: 1) 高密度。高密度可以减少探测器的尺寸, 这对高能物理实验中量能器的建造是重要的。2) 高的发光光子产额。3) 快的时间响应。4) 好的透光性以及价格低廉等。近年来, 在寻找新的闪烁体、改进闪烁体的性能方面, 已取得相当显著的进展<sup>[4]</sup>。

在实验室条件下, 研究闪烁体发光衰减时间比较常用的方法, 是时间关联单光子计数法<sup>[5]</sup>。这种方法通常是用放射源或氙灯作为激发光源, 测量被检样品的发光衰减时间。本实验将采用毫秒时间分辨技术, 以同步辐射光源作为标准定时触发信号, 来代替以往的放射源, 研究 Ce<sup>3+</sup> 对某些闪烁体材料发光性质的影响。

## 2 实验结果和讨论

该实验是在北京同步辐射装置(BSRF)上完成的。用 4W 1B 束线单色化的 X 射线作为样品的激发光源。实验装置主要由样品室、光子探测器、X 射线探测器、读出电子学、多道脉冲分析器和计算机组成。

选择 XP2020Q 光电倍增管作为发光光子探测器, 探测发光发射方向与光束线成  $90^\circ$  角的那些光子, 避免光束的入射光子直接打在光电倍增管的光阴极上。实验中为保证单光子测量, 在光电倍增管的光阴极上加一个小的孔径光阑, 使探测到单光子的几率为 99%。一个塑料闪烁体和 XP2020 光电倍增管组成的 X 射线探测器, 用来接收直接透过样品或擦过样品边缘的 X 光, 该信号作为定时触发。由时间分辨谱仪获取发光衰减时间谱, 一台微型计算机完成数据存储和数据分析。

把镧系三价元素  $Ce^{3+}$  掺进不同粉晶体或晶体中, 观察它对样品光子产额以及发光衰减时间的影响。

## 2.1 掺铈对闪烁体发光产额的影响

把不同量的铈元素分别掺入 GSO 和  $PbF_2$ , 用同步光源 20 keV X 射线激发样品。由于发光产额的测量与发光衰减时间无关, 光子探测器记录了来自受激样品的所有发光光子。而实验中所用的光子探测器波长响应范围为 170 nm ~ 580 nm, 量子效率是非线性的。为了减少实验误差, 便于比较光子产额, 用 BGO( 锗酸铋) 作为标准, 对被测样品的光子产额进行归一化。实验发现, 铈元素掺入 GSO 后, 改善了 GSO 的发光强度。例如, 将 0.5%  $CeF_3$  和 1.0%  $CeF_3$  分别掺进 GSO, 实验结果表明, 后者的发光强度比前者增加了 2.8 倍, 比纯 GSO 发光强度增加 6 倍。这说明随着铈掺入量的增加, 发光光强也在增大。然而, 将 100 ppm  $CeF_3$  和 160 ppm  $CeF_3$  分别掺进  $PbF_2$ , 实验结果表明, 微量的  $CeF_3$  对  $PbF_2$  的发光性质没有明显改变。

## 2.2 掺铈对闪烁体发光衰减时间的影响

选择  $BaF_2$  作为样品,  $BaF_2$  有快慢两种发光成份, 快成分发光衰减时间大约为 800 ps, 发光波长的峰值集中在 195 nm 和 220 nm 处;  $BaF_2$  还有一个 620 ns 的慢发光成分, 波长的峰值分布在 310 nm 波段范围。若将  $BaF_2$  晶体充当辐射探测器的敏感材料, 这个慢的发光成分限制了计数率, 不利于高强度辐射探测。为了改进  $BaF_2$  闪烁体的发光性质, 分别将 0.56mol%  $Ce^{3+}$  和 1.64mol%  $Ce^{3+}$  掺进  $BaF_2$ , 观测  $Ce^{3+}$  对  $BaF_2$  慢发光成分的抑制作用。图 1 (a)、(b) 和 (c) 分别给出  $BaF_2$  及这两种掺杂闪烁体的发光衰减时间谱。对不同衰减时间谱的

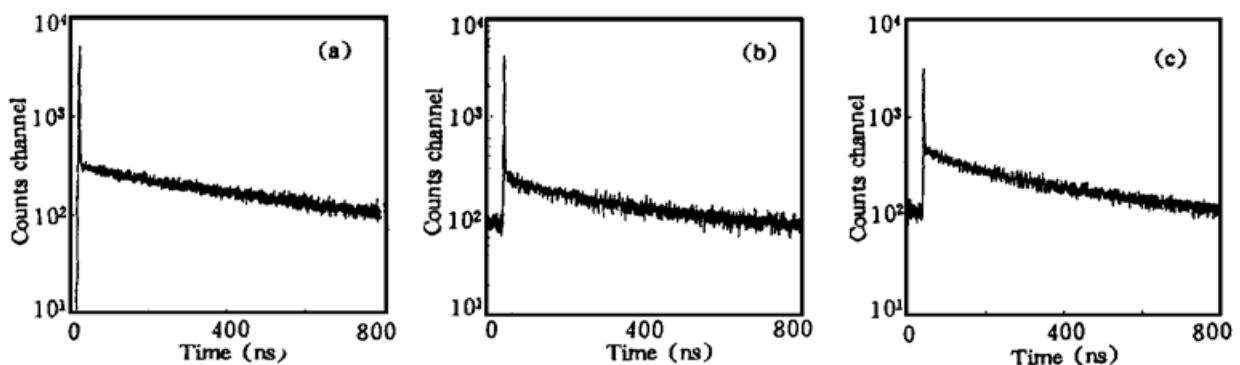


Fig. 1 The scintillators are excited with 20 keV X-ray from the synchrotron radiation, the spectra of fluorescence decay time emitted by a pure  $BaF_2$  and  $Ce^{3+}$  doped  $BaF_2$  are obtained. (a) The spectrum of a pure  $BaF_2$  fluorescence decay time; (b) The spectrum of 0.56mol%  $Ce^{3+}$  doped  $BaF_2$  fluorescence decay time; (c) The spectrum of 1.64mol%  $Ce^{3+}$  doped  $BaF_2$  fluorescence decay time

各衰减成分作常数拟合, 使用的公式如下:

$$N(t) = \sum_{i=1}^k A_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \quad (1)$$

$A_i$  和  $\tau_i$  分别是第  $i$  种发光成分的相对峰值计数和时间常数。拟合过程采用欧洲核子中心 (CERN) 程序库中的 PAW 程序。其中  $A_i$ 、 $\tau_i$  归一化后, 即为各成分的相对强度。

### 2.2.1 纯 BaF<sub>2</sub>、CeF<sub>3</sub> 晶体及粉晶样品的发光衰减时间

纯 BaF<sub>2</sub> 晶体的发光衰减时间谱的测量结果显示, 它的两个发光成分分别为  $\tau_1 = 0.95 \pm 0.01$  (ns) 和  $\tau_2 = 621 \pm 10$  (ns); 对 BaF<sub>2</sub> 粉晶体的测量结果,  $\tau_1 = 1.08 \pm 0.01$  (ns),  $\tau_2 = 623 \pm 8$  (ns), 不难看出, BaF<sub>2</sub> 晶体与 BaF<sub>2</sub> 粉晶体的发光衰减时间的值基本相符。就其 BaF<sub>2</sub> 晶体的发光衰减时间而言, 本实验得到的结果与一般公认的值 800 ps 和 620 ns 非常接近。

对于纯 CeF<sub>3</sub> 而言, 它有两个较快的衰减成分, 其中,  $\tau_1 = 6.81 \pm 0.33$  (ns),  $\tau_2 = 31 \pm 2$  (ns); 对于 CeF<sub>3</sub> 粉晶体而言,  $\tau_1 = 2.48 \pm 0.13$  (ns),  $\tau_2 = 16.7 \pm 1.7$  (ns)。由此可见, 晶体与粉晶的发光衰减时间略有差异, 粉晶样品的两个衰减成分的衰减时间比晶体要快, 这可能是由于粉晶的内场作用与晶体的不同, 影响了 5d 态, 从而造成 5d - 4f 态跃迁几率的改变, 也就改变了跃迁时间, 表现出晶体与粉晶的发光衰减时间的差别。

### 2.2.2 掺 Ce<sup>3+</sup> 的 BaF<sub>2</sub> 闪烁体的发光衰减时间

对于掺 Ce<sup>3+</sup> 的 BaF<sub>2</sub> 样品, 实验数据拟合过程采用了三指数的拟合方法, 它的慢成分变为两个成分  $\tau_2$ 、 $\tau_3$  的相加。表 1 给出掺 0.56mol% Ce<sup>3+</sup> 的 BaF<sub>2</sub> 和掺 1.64mol% Ce<sup>3+</sup> 的 BaF<sub>2</sub> 闪烁体发光衰减时间和相关参量。

Table 1. Fluorescence decay properties with different quantity of Ce<sup>3+</sup> doped scintillator BaF<sub>2</sub>

parameters	$A_1$	$\tau_1$	$A_1\tau_1$	$A_2$	$\tau_2$	$A_2\tau_2$	$A_3$	$\tau_3$	$A_3\tau_3$
	(%)	(ps)	(%)	(%)	(ns)	(%)	(%)	(ns)	(%)
dopants 0.56mol% Ce <sup>3+</sup>	96.4	960 $\pm 13$	8.5	2.2	98 $\pm 13$	19.9	1.4	554 $\pm 68$	71.6
dopants 1.64mol% Ce <sup>3+</sup>	88.3	894 $\pm 19$	3.7	7.1	84 $\pm 13$	27.7	4.6	321 $\pm 60$	68.6

由表 1 的结果不难看出, 发光快成分随着掺 Ce<sup>3+</sup> 浓度增加, 似乎变化不大, 而慢成分变化较明显, 随着掺 Ce<sup>3+</sup> 浓度增加, 它的发光衰减时间逐渐变短。可见, 在 BaF<sub>2</sub> 中掺进微量 Ce<sup>3+</sup> 对它的慢成分有一定的抑制作用。对于 Ce<sup>3+</sup> 而言, 当 BaF<sub>2</sub> 的自陷激子态的能量转移给 Ce<sup>3+</sup> 时, 激发 Ce<sup>3+</sup> 的 5d 态, 而后发生 5d - 4f 跃迁。测量 BaF<sub>2</sub>、掺 0.56mol% Ce<sup>3+</sup> 的 BaF<sub>2</sub> 和掺 1.64mol% Ce<sup>3+</sup> 的 BaF<sub>2</sub> 的发射谱, 结果表明, 峰值分别为 304 nm 和 323 nm。304 nm 峰位与 CeF<sub>3</sub> 晶体短波长 305 nm 的发光相一致, 它刚好对应 Ce<sup>3+</sup> 的 5d 能级到自旋轨道 4f 能级的跃迁。由于电子在 5d 态寿命很短, 因此对 Ce<sup>3+</sup> 本身来说有一个很快的、时间为几十纳秒的衰减成分, 至于衰减时间的长短, 将取决于跃迁激发能和 5d-4f 的跃迁几率<sup>[6]</sup>。

**结 论** 用同步辐射脉冲光源和毫微秒时间分辨技术来研究无机闪烁体发光衰减时间是个十分有效的方法。铈元素的掺入, 可以改变 GSO 闪烁体的发光产额; 掺 Ce<sup>3+</sup> 对 BaF<sub>2</sub> 闪烁体的慢发光成分有一定的抑制作用。微量 Ce<sup>3+</sup> 对 PbF<sub>2</sub> 激发发光没有明显的影响。时间谱仪系统分辨率为 960 ps, 因此, 对非常快的发光测量精度还有待改进。

感谢朱祖祺教授和陈玲燕教授提供的实验样品。本实验是在北京同步辐射实验室的 EX-AFS 实验站上完成的。其间得到了实验站同志的热情帮助, 在此表示衷心的感谢。

## 参 考 文 献

- [1] Robert Hofstadter, Twenty five years of scintillation counting. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 1975, **NS-22** (1) : 13~ 25
- [2] R. L. Heath, R. Hofstadter, E. B. Hughes, Inorganic scintillators. *Nucl. Instrum. & Methods*, 1979, **162**(1~ 3) : 431~ 476
- [3] W. W. Moses, S. E. Derenzo, Cerium Fluoride, A new fast, heavy scintillator. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 1989, **NS-36**(1) : 173~ 176
- [4] I. A. Kamenskikh, M. A. MacDonald, V. N. Makhov *et al.*, Fast crystalline scintillators for high counting rate X-ray detectors. *Nucl. Instrum. & Methods.*, 1994, **A348**(2, 3) : 542~ 545
- [5] Colin Lewis, William R. Wave, Laurence J. Doemeny *et al.*, The measurement of short-lived fluorescence decay using the single photon counting method. *Rev. Scien. Instrum.*, 1973, **44**(2) : 107~ 114
- [6] P. Dorenbos, R. Visser, C. W. E. van Eijk *et al.*, X-ray and gamma ray luminescence of Ce<sup>3+</sup> doped BaF<sub>2</sub> crystals. *Nucl. Instrum. & Methods.*, 1991, **A310**(1~ 3) : 236~ 239

## Observation of Fluorescence Properties of Cerium Doped Scintillators in Synchrotron Radiation Source

Wang Dewu    Jiang Haiyin    Liu Jianfei    Wu Zhonghua

(*Institute of High Energy Physics, The Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039*)

(Received 11 June 1996; revised 28 October 1996)

**Abstract** The observation of fluorescence properties of cerium doped inorganic scintillators GSO, PbF<sub>2</sub> and BaF<sub>2</sub> using synchrotron radiation as a exciting source at the Beijing Synchrotron Radiation Facility is described and discussed.

**Key words** synchrotron radiation, scintillator, fluorescence decay.