

国产 BaF₂ 闪烁晶体特性的测试

郑志鹏 祝玉灿 邵毓莺 吕军光 孙汉生

张宁杰 魏新贵 杜冠群 张宗进

(中国科学院高能物理研究所)

蒋崇义

(国家建材局北京人工晶体研究所)

摘 要

观察到了人工晶体所生长的 BaF₂ 闪烁晶体发光的快、慢成分, 并对其光产额、时间分辨率、能量分辨率、能量线性、技术衰减长度等特性进行了测试。对 Co⁶⁰ γ 源, 时间分辨率(标准偏差 σ) 为 59ps (微微秒); 对 Cs¹³⁷ γ 源, 能量分辨率为 12.1%。这些指标都接近国际 BaF₂ 闪烁晶体先进水平, 展现出在核物理、核医学、粒子物理实验中应用的广泛前景。

一、引 言

近两年来, BaF₂ 晶体引起了人们的极大兴趣, 它有快、慢两种发光成分, 光产额都不低。快成分可以用作时间测量, 有极好的时间分辨率(可以与快塑料闪烁体相比拟); 全成分

可以用作能谱测量, 能量分辨率比 BGO (锗酸铋) 还好。再加上其密度较高 (4.9g/cm³), 对 γ 探测效率高; 有接近于玻璃的折射率 (1.56), 发出的光易进入光电倍增管玻璃窗; 不怕潮解; 价格较便宜(只有 BGO 的四分之一)等优点, 因此 BaF₂ 是一种十分有前途的闪烁体材料。

1971年, M. Farukhi 等人测试了 BaF₂ 晶体发光特性, 当时只看到了波长峰值为 325nm, 光衰减时间为 0.63 μ s 的磷光成分。一直到十年以后, 由于使用了对紫外灵敏的光阴极和透紫玻璃窗的光电倍增管, 人们才看到了 BaF₂ 的另一种发光成分——荧光, 其波长峰值为 225nm, 光衰减时间只有 0.6ns。这样快的时间(比塑料 NE111

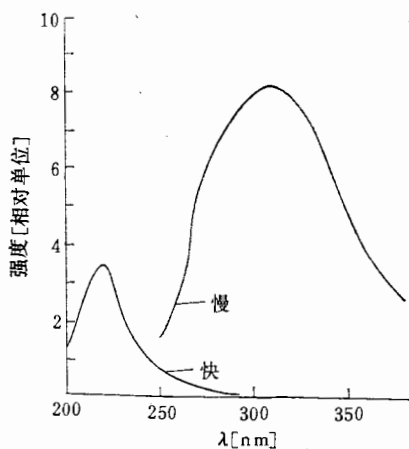


图1 BaF₂ 的发射光谱

光衰减时间 1.6ns 还快), 再加上不低的光产额 (2×10^3 光子/MeV), 很自然使人们联想起用它作时间测量. 它的慢成分光产额更高 (6.5×10^3 光子/MeV), 适宜作能谱测量. 像 BaF₂ 这样“一晶二用”的闪烁体是十分罕见的. 图 1 给出了 BaF₂ 快、慢成分的发射光谱^[1].

M. Laval 等人^[2]利用 BaF₂ 作正电子断层照相的探测器, 不但用 γ 符合的信息而且用飞行时间的信息来定位, 大大改善了信-噪比, 提高了位置分辨率, 使图象格外清晰.

G. Charpak 等人^[3]将 BaF₂ 与低气压多丝室联用, 以一种称为 TMAE 的材料为光阴极, 转换来自 BaF₂ 的紫外光子为电子. 这样, 获得了很好的能量分辨率 (对 18MeV 的质子为 28.5%) 和时间分辨率 (对 350MeV 的 α 粒子为 540ps), 而且还具备好的位置分辨及允许高计数率等优点.

还有人尝试将 BaF₂ 用作正电子湮灭寿命测量的探测器, 利用其较好的时间分辨及较高的 γ 探测效率等优点.

人工晶体所生长的 BaF₂ 晶体纯度为 99.99%, 这种新型晶体能否用在核物理、粒子物理方面? 其性能如何? 这是我们的研究课题, 并获得了初步的结果.

二、测试方法和结果

1. 脉冲形状

一块 BaF₂ 样品 ($\phi 2\text{cm} \times 0.5\text{cm}$) 置于 RCAC 31000M 光电倍增管的中心, 之间以 DC 200 硅油耦合, 当用 Ru¹⁰⁶ β 放射源照射, 光电倍增管高压为 1900 V, 输出脉冲用 Tektronix 485 (350M) 示波器观察, 可明显看见快、慢两种成分, 如图 2.

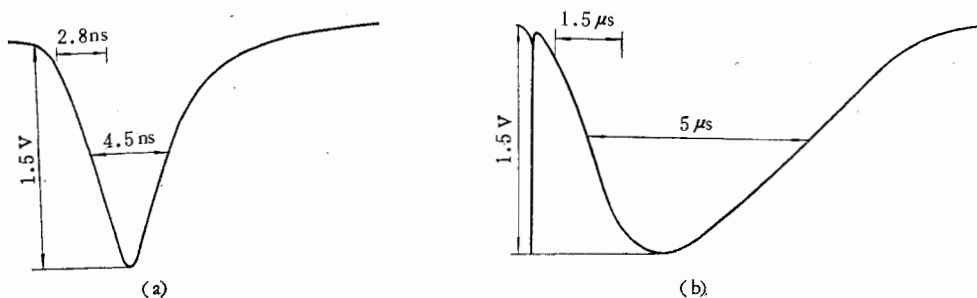


图 2 脉冲形状

(a) 示波器时标 1ns/cm, 输入阻抗 50 Ω (b) 示波器时标 1 μ s/cm, 输入阻抗 1M Ω

图 2(a) 给出快成分的脉冲形状, 上升时间为 2.8ns, 后沿拖一尾巴为慢成分. 当示波器时标变慢, 输入阻抗增至 1M Ω 时, 慢成分幅度变得足够大了 (图 2(b)). 在示波器上可见到前沿起始处有一尖脉冲, 为快成分.

在 BaF₂ 与光电倍增管之间加入一片波移计 (BBQ) 后, 快成分输出幅度提高了两倍, 但上升时间变慢. BBQ 将 225nm 波长移至 500nm, 提高了光阴极量子转换效率, 因而增加了输出幅度.

观察、测试 BaF_2 的快成分,要求光电倍增管具有如下特点: 1) 窗口必须是石英或透紫玻璃的; 2) 光阴极对紫外光灵敏; 3) 时间响应好. 国产的 GDB 48Q, GDB 49Z 以及国外的 RCAC 31000M, XP 2020Q 等都满足上述要求.

2. 光产额

闪烁体的光产额是一项十分重要的参数,它与时间、能谱特性直接有关. 我们测量了 BaF_2 样品 ($\phi 2\text{cm} \times 0.5\text{cm}$) 快、慢成分以及 BGO ($2 \times 2 \times 4\text{cm}^3$)、NE111 ($2 \times 2 \times 0.5\text{cm}^3$) 相对于 NaI(Tl) 晶体 ($\phi 3\text{cm} \times 2\text{cm}$) 的光产额. 上述闪烁体都在相同条件下封装 (MgO 粉作反射层); 使用同样的 Cs^{137} (或 Co^{60}) 源; 光电倍增管皆为 RCAC 31000 M; 都在同样高压 (1900V) 下; 放大器的增益不变; 然后比较其输出脉冲幅度 (由多道分析器读出), 再考虑脉冲宽度 (由示波器读出) 的修正, 则可得到相对于 NaI(Tl) 的光产额.

其中 BaF_2 快成分的相对光产额是通过与 NE111 幅度比较、脉冲宽度修正后得到的 (因为二者脉冲宽度相近, 易于比较).

几种样品相对光产额的实验结果如表 1.

表 1

| 样 品 | NaI(Tl) | NE111 | BGO | BaF_2 | |
|-------|---------|-------|------|---------|------|
| | | | | 快 | 慢 |
| 相对光产额 | 100 | 24 | 10.4 | 5.1 | 19.5 |

所得结果与文献[3]给出的光产额符合得较好(见附录).

此外, 还测量了同一块 BaF_2 样品荧光成分在 RCAC 31000 M 光阴极上产生的光电子数. 测试线路如图 3.

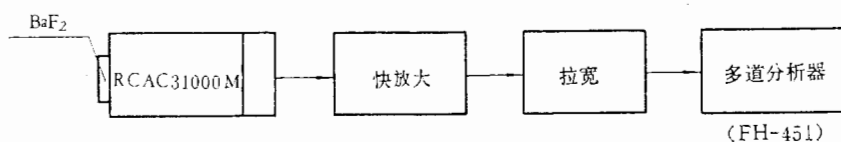


图 3 光电子数测试线路

首先从 RCAC 31000 M 的噪音幅度谱中确定单光电子峰. 当高压为 1900V, 放大器增益为 120 倍时, 其单光电子峰值为 63 道. 然后, 将 BaF_2 置于光电倍增管的中心, 用 Cs^{137} 源照射, 高压仍为 1900V, 输出不接放大器而直接联拉宽器、多道分析器, 此时光电峰峰值为 112 道. 多道分析器的台阶为 21 道, 因此可以得到每 MeV 产生的光电子数:

$$n_e = \frac{112 - 21}{63 - 21} \times 120 \div 0.662 = 393$$

M. Laval 等人^[4]得到 BaF_2 与 XP 2020 Q 耦合时, 荧光成分每 MeV 产生 400 个左右的光电子, 与我们的数据符合较好.

3. 时间分辨率

闪烁计数器的时间分辨率 σ_T 主要来自以下四个方面的贡献: 时间的统计涨落(jitter) σ_1 ; 不同幅度引起的时间移动 (Walk) σ_2 ; 光在闪烁体中传播的时间差 σ_3 以及电子学漂移 σ_4 .

$$\sigma_T = \sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2 + \sigma_3^2 + \sigma_4^2}$$

σ_1 与闪烁体、光电倍增管的特性有关:

$$\sigma_1 = \sqrt{\frac{A \Delta\tau_1 \Delta\tau_2}{n_e}}$$

其中 $\Delta\tau_1$ 为闪烁体的光衰减时间

$\Delta\tau_2$ 为光电倍增管传输时间涨落

n_e 为光阴极上打出的光电子数

A 为近于一的常数

因此, 为了获得好的时间分辨, 闪烁体的光衰减时间要小, 光产额要高; 光电倍增管的时间特性好, 量子效率高.

我们采用了恒比定时甄别器(高能物理所电子车间生产的 CFDI 型或 ORTEC 583), 以减小 σ_2 . 在小 BaF₂ 晶体情况下, σ_3 贡献很小; 在经过挑选、调试之后, 我们使用的电子学线路的漂移 σ_4 也较小. σ_T 的主要贡献来自于 σ_1 、 σ_2 .

为了测出 BaF₂ 样品的时间分辨特性, 我们采用了两种方法:

1) Co⁶⁰ 源方法, 利用它的两个级联的 γ (可以近似看成是同时的), 一个为起始信号, 另一个为终止信号, 测试装置如图 4. 这样测量的结果与正电子断层照相、正电子湮灭寿命测量等实际情况相近.

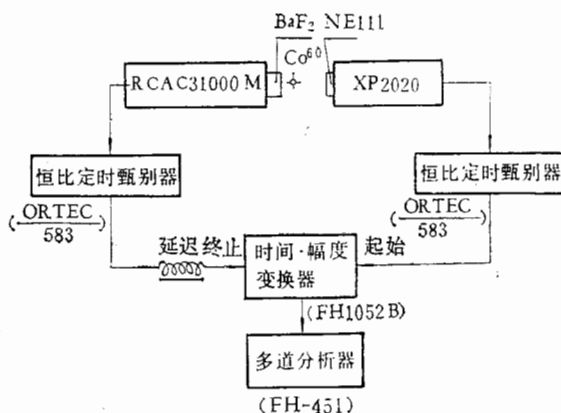


图 4 Co⁶⁰ 源测时间分辨装置

NE 111 与 XP 2020 耦合; BaF₂ (或 NE111) 与 RCAC 31000 M 耦合. 两端输出信号皆为 1.4v, 恒比定时甄别阈皆为 0.8v. 延迟时间固定在时间-幅度变换器的线性范围 (~15ns). 从多道分析器可得到时间谱, 则从时间谱的半高宽 (FWHM) 或标准偏差 (σ)

可求出时间分辨率。

当两端皆为 NE 111 时, 时间谱的半高宽为 5 道 (39.2ps/道), 即 $\text{FWHM} = 196\text{ps}$, 对每一个 NE111, $\sigma = \frac{196}{2.35} \div \sqrt{2} = 59\text{ps}$. 当左端为 BaF_2 ($\phi 2\text{cm} \times 0.5\text{cm}$), 右端为

NE 111 ($2 \times 2 \times 0.5\text{cm}^3$), 时间谱的半高宽也为 5 道, $\text{FWHM} = 196\text{ps}$, 扣除 NE 111 的贡献, 对 BaF_2 , $\sigma = 59\text{ps}$. 在测量误差范围内, BaF_2 的时间分辨率与 NE 111 的相同. $\text{BaF}_2 + \text{NE111}$ 的时间谱如图 5.

上述结果是在两端使用恒比定时甄别器 ORTEC 583 时得到的. 若换成 CFDI 型, 时间谱半高宽增至 6 道, 即 $\text{FWHM} = 235\text{ps}$.

若左端光电倍增管换为 GDB 48 Q, 其余条件不变, 则时间谱的 $\text{FWHM} = 353\text{ps}$, 相应于 BaF_2 的 $\sigma = 138\text{ps}$. 时间分辨率变坏的主要原因是该光电倍增管对紫外的光量子效率较低, n_e 减少了.

2) 宇宙线方法, 利用宇宙线带电粒子(主要是 μ) 测量时间谱. 其装置如图 6(a). 线路与图 4 相似. 宇宙线同时穿过 NE111 ($\phi 1.5\text{cm} \times 0.5\text{cm}$) 和 BaF_2 . BaF_2 用了 $\phi 2\text{cm}$, 厚分别为 0.5、2、4cm 的三种样品. 恒比定时甄别器的阈为 0.8 v, 宇宙线穿透 0.5 cm 的 BaF_2 , RCAC 31000 M (1900v) 输出为 2.5v 左右. 积累一个时间谱约需 10 小时. 对 0.5 cm 厚的 BaF_2 样品, 时间谱的半高宽为 7 道, 即 $\text{FWHM} = 274\text{ps}$, 相应于 BaF_2 的 $\sigma = 101\text{ps}$ (见图 6(b)), 对 2.4cm 厚的 BaF_2 样品, $\text{FWHM} = 353\text{ps}$, $\sigma = 138\text{ps}$.

由于宇宙线从不同的方向入射, 穿透 BaF_2 电离的距离不同, 因此输出幅度不同, 增加了恒比定时甄别器的动态范围, 从而增大了时间移动, 而且 BaF_2 的厚度越大, 这种效应越甚. 如果用垂直入射的带电粒子束流测试, 时间分辨率将会提高, 厚度效应也将改善.

4. 能量分辨率

对闪烁计数器, 能量分辨率与闪烁体、光电倍增管特性有关:

$$\frac{\Delta E}{E} = 2.35 \sqrt{\frac{F}{n_e} \left[1 + \frac{\delta}{\delta_1(\delta - 1)} \right]}$$

其中 F 为法诺因子;

δ_1 为光电倍增管第一个打拿极的增益;

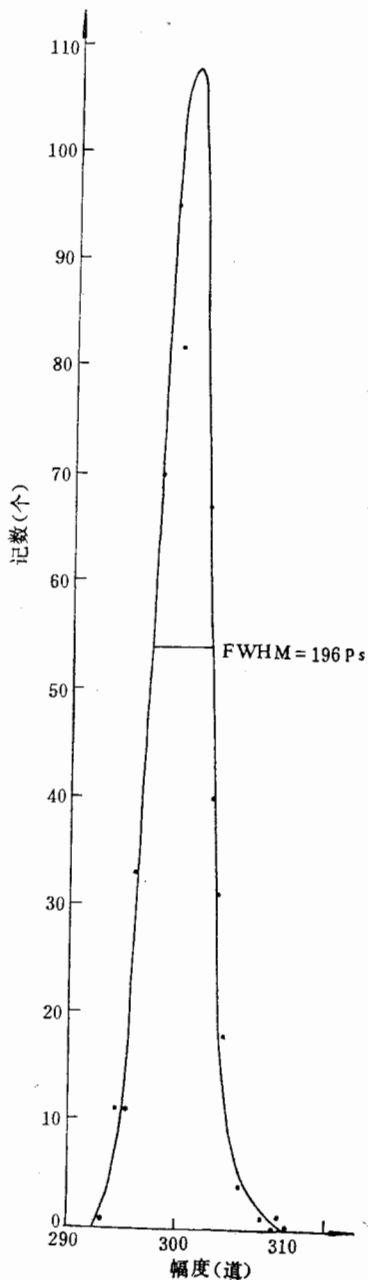


图5 Co^{60} γ 源测量的时间谱
($\text{BaF}_2 + \text{NE111}$)

δ 为其余打拿极的平均增益；

n_c 为光电子数；

提高能量分辨率需光产额高的闪烁体，还需量子效率高、打拿极（特别是第一打拿极）增益高的光电倍增管。RCAC 31000 M 是比较理想的光电倍增管。

对 $\phi 2\text{cm}$ ，厚分别为 2、4cm 的两块 BaF₂ 及 NaI(Tl)、BGO（尺寸如前）的能量分辨率进行测试。放射源为 Cs¹³⁷（能量 662 keV），RCAC 31000 M 高压为 1900 v，输出接阴极跟随器再到主放大器，多道分析器。从能谱半高宽 ΔE 及峰值道数 E 可求出能量分辨率。图 7 给出 BaF₂（2cm 厚）的能谱，其能量分辨率为 12.1%。

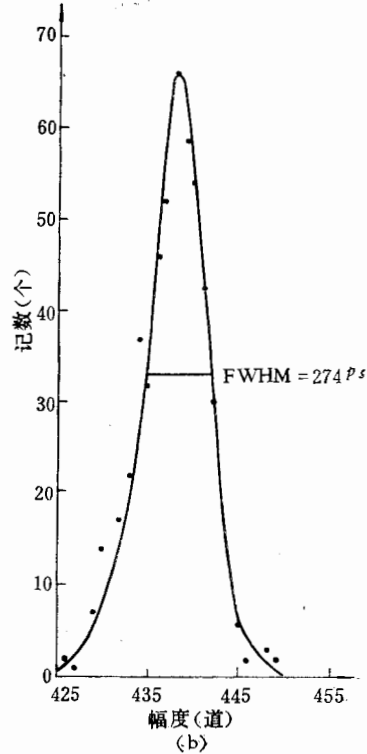
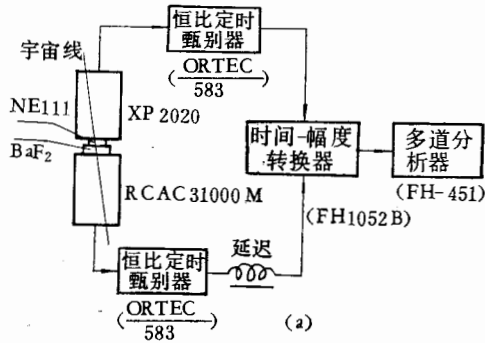


图 6 (a) 宇宙线测时间装置 (b) 宇宙线测的时间谱

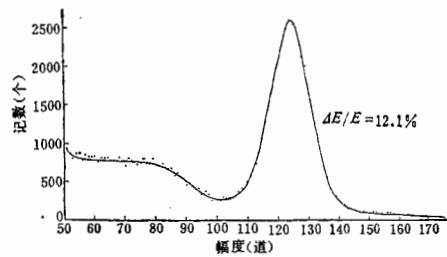


图 7 BaF₂ 的能量谱， $\frac{\Delta E}{E} = 12.1\%$ (Cs¹³⁷)

表 2 给出所测样品的能量分辨率值

| 样品 | BaF ₂ ($\phi 2\text{cm} \times 2\text{cm}$) | BaF ₂ ($\phi 2\text{cm} \times 4\text{cm}$) | BGO | NaI(Tl) |
|----------|---|---|------|---------|
| 能量分辨率(%) | 12.1 | 12.1 | 17.4 | 7.0 |

对 BaF_2 (2cm 厚) 配合 GDB48Q, $\frac{\Delta E}{E} = 16.7\%$; 配合 XP2020, $\frac{\Delta E}{E} = 15.8\%$.

XP2020 是不透紫的, 紫或紫外光被玻璃窗吸收, 致使能量分辨率变坏.

BaF_2 配合 RCAC 31000 M, 对 Co^{60} 能量为 1.17 及 1.33 Mev 的两个峰能清楚分开, 而 BGO 则无法分辨.

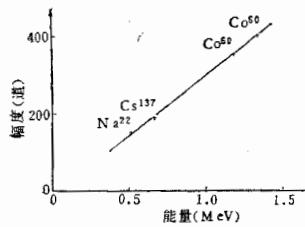


图8 幅度-能量曲线

在能量更高的情况下, $\frac{\Delta E}{E}$ 将按 $\frac{1}{\sqrt{E}}$ 的关系改善.

以上测量是对 BaF_2 发光的全成分(慢成分主要的)收集而得到的. 此外还测量了快成分的贡献. 将光电倍增管 (RCAC31000M) 接拉宽器再连多道分析器, 则可直接分析其快成分能谱. 得到快成分的能量分辨率为 30%, 这是因为快成分产额小的原因.

5. 能量线性

测量了 Na^{22} (511keV), Cs^{137} (662keV), Co^{60} (1.17MeV, 1.33Mev) 等 γ 源照射 BaF_2 样品 ($\phi 2\text{cm} \times 2\text{cm}$) 时, 输出幅度(光电峰值)与能量的关系, 有很好的线性, 如图 8.

6. 光衰减特性

测试了 BaF_2 快成分的技术衰减长度. $\phi 2\text{cm} \times 4\text{cm}$ 的一块 BaF_2 样品置于 RCAC 31000M 的正中央, 将一准直后的 Ru^{106} 源放在 BaF_2 不同位置上, 输出信号经拉宽器进入多道分析器. 绘出幅度-距离(源至光电倍增管窗距离)曲线, 如图 9.

从衰减曲线的斜率可得出衰减长度:

$$\lambda = \frac{x_2 - x_1}{\ln A_1 - \ln A_2} = 20\text{cm}$$

此外, 还测试了 Cs^{137} 源对不同厚度的 BaF_2 输出幅度的变化(图 10).

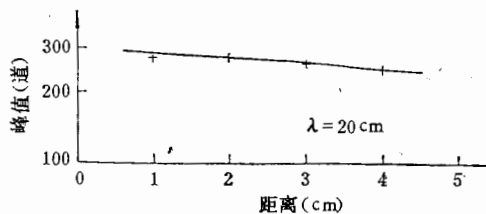


图9 快成分衰减曲线

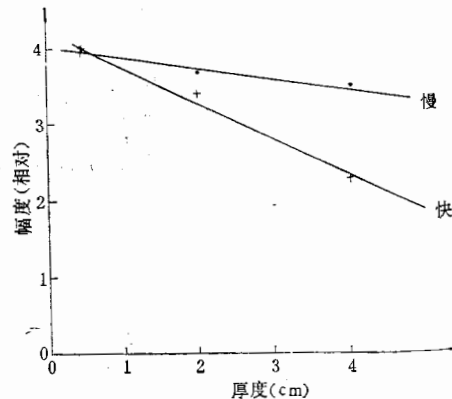


图10 相应于不同厚度 BaF_2 的输出幅度 (Cs^{137})

从图 10 可看出快成分比慢成分衰减得快. 这与人工晶体所测得 BaF_2 透过率曲线

结果是一致的: 透过率随波长增长而增加(波长 200nm, 透过率为 80%, 300nm 后增至 90%)。

BaF₂ 与光电倍增管之间耦合的硅油对快成分的影响很大。在其它条件相同, 替换不同型号的硅油, 快成分输出幅度分别列于表 3 中:

表 3

| 硅油型号 | DC200 | SL200 | DC20—057 |
|-----------|-------|-------|----------|
| 输出幅度 (mv) | 480 | 380 | 70 |

三、讨 论

1. 根据上述测试的 BaF₂ 样品的光产额、时间分辨率、能量分辨率等参数并与国际上发表的数据^[1,2]相比(参考附录)可以得出结论: 我国建材局人工晶体所生长的 BaF₂ 晶体, 作为闪烁体其主要指标已接近国际先进水平。

按照已测量到的光电子数, 估算一下 BaF₂ 样品的时间分辨率、能量分辨率的极限。

将快成分的 $n_c = 393$, $\Delta\tau_1 = 600\text{ps}$, $\Delta\tau_2 = 350\text{ps}$, $A = 1$ 代入式(1), 则有: 统计涨落引起的时间分辨率 $\sigma = 23\text{ps}$, 而我们测到的 $\sigma = 59\text{ps}$, 其中包括了时间移动等贡献。因此进一步改善恒比定时甄别器的性能, 时间分辨率还可以提高。

将全成分的 $n_c = 1900$, $\delta_1 = 3$, $\delta = 2$, $F \approx 1$ 代入式(2)得: $\frac{\Delta E}{E} = 7\%$ 。因此目前得到 12% 的值还是有潜力的。

2. 通常的无机晶体(如 NaI(Tl), CsI(Tl), ZnS(Ag)) 只发磷光。其发光机制是: 带电粒子打在闪烁体上, 将价带的电子激发到导带, 在退激过程中, 电子直接回到基态的几率极小, 而电子在杂质形成的陷阱中停留一段时间(亚稳态), 然后再跳回基态而释放光子的机率占绝对优势, 因而已知的无机闪烁体中绝大多数只发一种光——磷光(光衰减时间 $0.1\mu\text{s} - 1\mu\text{s}$)。但是属于无机晶体的 BaF₂ 为什么会同时存在两种发光成分? 两种成分的比例是否与 BaF₂ 的纯度有关? 这是今后值得研究的课题。

本工作得到了叶铭汉、严武光、朱善根以及郑林生等同志的热情支持, 得到了周月华、张羽、李金、王曼等同志的积极支援, 张天保同志给予很大帮助, 一并在表示谢意。人工晶体所范纯学、韩凡棣等同志对本工作给予极大的关心和支持, 深表谢意。

附 录^[1,2,3]

| | BaF ₂ | BGO | NaI(Tl) |
|---------------------------------|------------------|-----|---------|
| 密度 (g/cm ³) | 4.9 | 7.1 | 3.7 |
| 辐射长度 (cm) | 2.1 | 1.1 | 2.6 |
| $\frac{dE}{dx}$ (最小电离) (MeV/cm) | ~6 | 8 | 4.8 |

| | | | |
|------------------------------------|--|-------------------|-----------------|
| 发射谱峰值 (nm) | 225(快) 310(慢) | 480 | 410 |
| 光衰减常数 (ns) | 0.6(快) 620(慢) | 300 | 250 |
| 光产额 | 2×10^3 (快) 6.5×10^3 (慢) | 2.8×10^3 | 4×10^4 |
| 折射率 | 1.56 | 2.15 | 1.85 |
| 潮解性 | 无 | 无 | 有 |
| 能量分辨率(%) (对 511keV) | 13 | 20 | 9 |
| 时间分辨率(ps) FWHM(对Co ⁶⁰) | 300 | 2500 | 1000 |

当前能量分辨率最好水平为10% (Cs¹³⁷).

时间分辨率达最好水平为112ps (FWHM, Co⁶⁰)

参 考 文 献

- [1] M. Laval, et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, 206 (1983), 169.
 [2] M. Laval, et al., Workshop on time-of-flight tomography, 1982.
 [3] G. Charpak, et al., *Nucl. Instr. and Meth.*, 217 (1983), 217.

THE TESTS TO THE PROPERTIES OF BaF₂ SCINTILLATOR MADE IN CHINA

ZHENG ZHI-PENG ZHU YU-CAN SHAO YU-YING LUN JUN-GUANG SUN HAN-SHENG
 ZHANG NING-JIE WEI XIN-GUI DU GUAN-OUN ZHANG ZONG-JIN

(Institute of High Energy Physics, Academia Sinica)

JIANG CHONG-YI

(Institute of Artificial Crystal, Construction Material Bureau)

ABSTRACT

Both fast and slow components from a BaF₂ scintillator made in Artificial Crystal Institute of China have been observed. The properties such as light yield, time resolution, energy resolution, energy linearity, technical attenuation length etc have been measured. The time resolution (σ) equal to 59ps for γ -rays from ⁶⁰Co source; The energy resolution equal to 12.1% for γ -rays from ¹³⁷Cs source. These parameters approach advanced level. The properties of BaF₂ crystal show a bright future in the application of BaF₂ to nuclear physics, nuclear medicine and particle physics.