

钨酸铅晶体的性能测试*

吴冲 李澄 汪兆民 官竹芳 陈宏芳 许咨宗

(中国科学技术大学近代物理系 合肥 230026)

廖晶莹 袁晖

(上海硅酸盐研究所 上海 200050)

摘要 通过实验给出了不同生长条件下的钨酸铅(PbWO_4 或PWO)晶体的多项性能指标,包括激发发射谱、透射谱、荧光衰减时间、光产额、辐照损伤等实验结果,并对结果进行了讨论.

关键词 钨酸铅晶体 激发发射谱 透射谱 光产额 辐照损伤

1 PWO晶体的研究意义

CeF_3 ^[1]、重闪烁玻璃 HfF_4 ^[2]以及 PWO ^[3,4]曾被列入作为 LHC 的 CMS 电磁量能器的闪烁材料,表 1 列出了这 3 种闪烁体的性能. 从表中可见 PWO 晶体存在着其它闪烁晶体所无法替代的优越性,使其成为电磁量能器的最佳候选. 其优越性表现在:

(1) 辐射长度短. 这使电磁量能器体积减小,从而显著降低磁谱仪的成本;

(2) 莫里哀半径小. 高能电子或光子垂直入射在 $2 \times 2 \times 23\text{cm}^3$ 的 PWO 晶体的 $2 \times 2\text{cm}^2$ 面的中心时,将在晶体内沉积 80% 的电磁簇射能量;

表1 用于CMS的3种闪烁体候选材料的性能比较

闪烁体	密度(g/cm^3)	辐射长度(cm)	莫里哀半径(cm)	小晶体光产额(γ/MeV)	衰减时间(ns)	发射峰(nm)	折射率
PWO	8.28	0.89	2.0	140	<10ns, 36ns	450—500	2.2
CeF_3	6.16	1.68	2.6	2000	9, 30	300, 400	1.62
HfF_4	6.0	1.6	2.8	165	8, 25	325	1.5

(3) 荧光衰减时间快;

(4) 有较强的抗辐照性能;

(5) 原材料价格便宜.

尽管 PWO 有其独特的优越性,但仍然还有缺陷,比如光产额低,荧光中还有慢成分,

1998-10-26收稿

* 中国科学院和国家自然科学基金资助项目

抗辐照性能还需改善等. 这促使人们更深入研究 PWO 晶体.

2 PWO 样品性能实验

2.1 实验中的样品

实验中的 5 块 PWO 样品均来自上海硅酸盐研究所, 它们是用 Bridgman 方法生长的, 5 块样品出厂前都已经过抛光, 实验中除了用酒精擦拭外, 未做任何处理. 所有样品未做任何掺杂. 5 块样品的生长条件和尺寸如表 2 所示.

表2 实验的5块样品

样品号	退火方式	体积 (mm ³)	收到时间
46	氧气退火	45×23×23	1995年10月
47	真空退火	45×23×19	1995年10月
961	空气退火	20×20×20	1996年5月
962	氧气退火	20×20×20	1996年5月
963	没退火	83×23×25	1996年10月

2.2 样品性能测试

2.2.1 样品的激发发射谱

46, 47, 961, 962 的激发发射谱见图 1. 从激发谱来看, 46 和 47 号样品都表现为双峰,

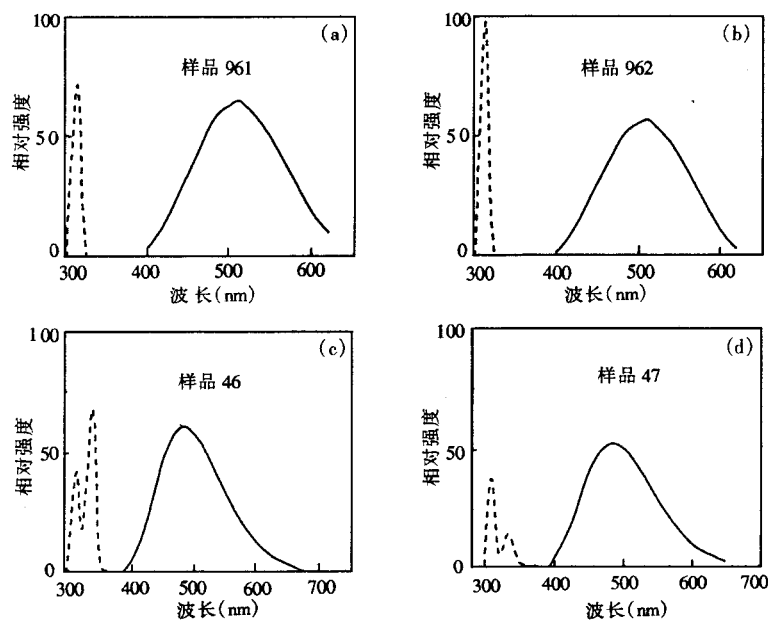


图1 PWO的激发发射谱

(a), (b) ----- $em=510nm$, —— $ex=312nm$;

(c) ----- $em=480nm$, —— $ex=333nm$; (d) ----- $em=480nm$, —— $ex=307nm$.

两个峰的峰位分别在 311, 330nm 附近. 而 961, 962 只有一个峰, 峰位在 311nm 附近. 46 和 47 号样品的发射峰在大约 480nm 处, 而 961, 962 的发射峰在 510nm 处.

由于这 4 块样品未做任何掺杂, 而 46 和 962 又都是氧退火, 因此, 激发发射谱的差别可能与样品的纯度、样品的生长条件如退火时间的不同有关.

2.2.2 样品的荧光衰减时间

用加门的延迟符合法^[5]分别测量 961, 962, 963 3 块样品的全量程为 360ns 的时间谱. 测量的荧光衰减时间谱如图 2 所示. 对 3 种样品的荧光衰减时间按指数拟合的结果如表 3. 从表中可见样品 963 慢成分非常少, 没有退火说明晶体中的缺陷的含量较多, 如位错、氧空位等. 我们知道, 在 PWO 中, Pb^{2+} 和 W^{6+} 都是重元素离子, 它们成键较多, 是不易形成空位, 而 O^{2-} 较轻, 比较容易挣脱价键的束缚, 形成氧空位. 可见这类缺陷对慢成份(主要是绿带^[6])有强烈猝灭作用. 导致 963 样品无慢成分.

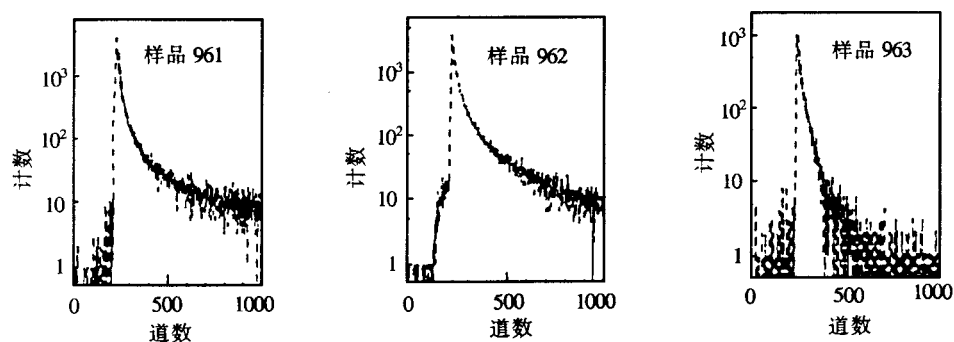


图2 PWO的荧光衰减时间谱

表3 样品的荧光衰减时间及所占的比重

样品	τ_1 /ns	I_1 (%)	τ_2 /ns	I_2 (%)	τ_3 /ns	I_3 (%)
961	3.46	25.0	14.9	48.3	131	26.7
962	4.49	11.2	19.9	82.1	105	6.8
963			12.8	100		

2.2.3 样品的光产额

测量光产额的装置如图 3. 放射源是 ^{137}Cs

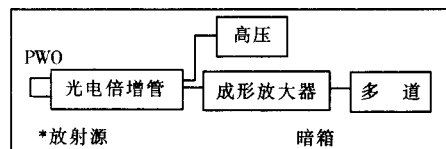


图3 测量光产额装置的方块图

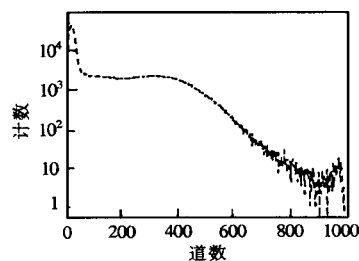


图4 典型的光产额谱

待测量的 PWO 晶体的 5 个面用三到四层 teflon 带包裹, 只留 1 个面用于和光电倍增管 (XP2262) 耦合, 耦合剂为硅油. 典型的光产额谱如图 4.

对 PWO 的光产额的拟合过程是:先以高斯分布拟合热噪声谱,这个热噪声谱可认为就是单光电子谱,定出单光电子的峰位 P_{SPE} ,再以高斯分布拟合全能峰,定出全能峰的峰位 P_p . 由于康普顿散射以及 KX 射线的逃逸峰的影响,特别是光产额低时康普顿平台对全能峰影响更大,导致全能峰不对称,因此,在拟合全能峰时我们注意到这种不对称性,并且兼顾拟合的效果,即 χ^2/ndf 尽可能小,以减小影响. 光产额的最终表达式可写为: $LY = P_p / (P_{\text{SPE}} \times E_\gamma) / (\text{MeV})$. 其中, E_γ 是激发源的能量.

表 4 列出了用 XP2262 光电倍增管测量 PWO 的光产额. 从表中可以看出同样在氧气中退火的 46 和 962 样品的的光产额相差很大,这一方面与晶体的长短有关:晶体长,光在其中走过的路程长(包括反射光),被自吸收的几率大,光产额小,另一方面还可能与不同晶体的生长条件(如退火时间的长短等)有关. 从同样大小的 961 和 962 样品看,氧空位的确可能是猝灭中心.

表4 用XP2262光电倍增管测量PWO的光产额(括号内是温度)

样品号	46(25°)	47(25°)	961(15°)	962(15°)	963(15°)
光产额(光电子数/MeV)	20	17	40	50	13

2.2.4 样品的抗辐照性能

PWO 晶体要能作为电磁量能器应用在 CMS 上,它就必须具有一定的抗辐照能力. 据估计,当 LHC 运行的亮度为 $10^{34} \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时, ECAL 的最大剂量率为端盖 15Gy/h, 桶部 0.28Gy/h^[7], 要求晶体在受到辐照时不能有快的恢复,并且受辐照前后的光产额变化小于 5%.

一般可通过测量辐照前后晶体的光产额和吸收系数的变化来检测晶体的抗辐照能力.

表 5 列出了 4 块 PWO 受辐照的剂量,所用放射源是 ^{60}Co , 源强为 50KCi.

表5 样品的辐照剂量

样品	辐照时间1 (min)	剂量率1 (Gy/min)	辐照时间2 (min)	剂量率2 (Gy/min)	辐照时间3 (min)	剂量率3 (Gy/min)	总剂量 (Gy)
961	20	31.70	25	31.70	15	31.70	1902
962	20	31.70	25	31.70	15	31.70	1902
46	10	0.74	17	2.54	20	22.08	492
47	10	0.74	17	2.54	20	22.08	492

2.2.4.1 辐照对透射谱的影响

从 961, 962 晶体辐照后的透射谱来看(图 5), 透过率曲线的短波限没有移动. 其它波段的透过率略有下降.

图 6 表示 961, 962 样品受辐照后吸收系数的变化, 辐照后的吸收系数 $\mu(\lambda)$ 定义为:

$$\mu(\lambda) = \frac{1}{d} \ln \left(\frac{T_0(\lambda)}{T(\lambda)} \right).$$

其中, T_0 和 T 分别是辐照前后晶体的透射率, d 是样品的长度.

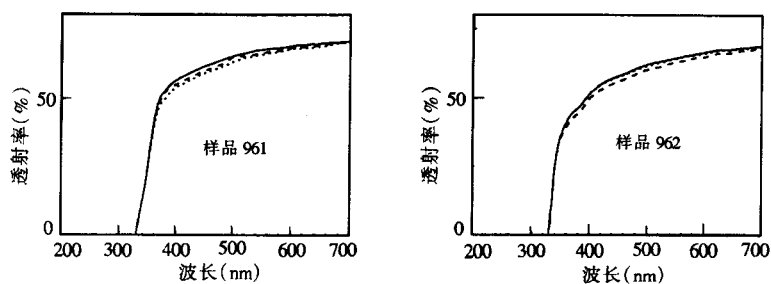


图5 961,962样品辐照前后的透射谱

— 辐照前, 辐照635Gy, - - - - - 辐照1429Gy.

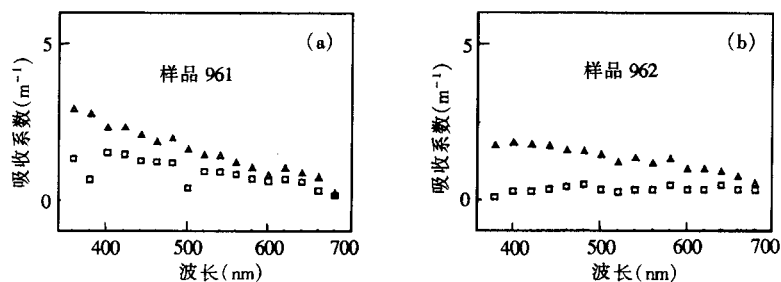


图6 辐照前后吸收系数的变化

□ 表示辐照635Gy, △ 表示辐照1429Gy.

从图中可以看到的吸收系数比文献 [8] 的要小很多, 说明这种样品的抗辐照能力较强.

另外, 上述样品的透射谱的吸收边都在大约 310nm 处, 由于它们的发射峰在 500nm 处, 因而自吸收较小.

2.2.4.2 辐照对光产额的影响

图 7 示意出 46, 47 号样品辐照前后 (辐照积分剂量 498Gy) 光产额的恢复情况. 从图中可见真空退火的 47 号样品抗辐照能力差, 辐照后呈淡黄色, 而且基本上看不到全能峰.

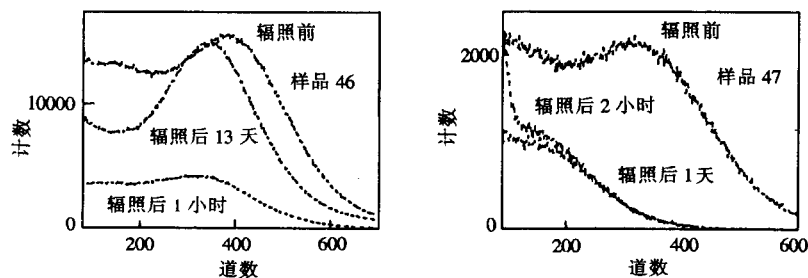


图7 46,47样品辐照后光产额的恢复

图 8 是 961 样品在积分剂量 1902Gy 照射下的恢复.

从图中 7, 8 可见, PWO 晶体抗辐照性能的好坏和氧空位的含量有关, 氧空位含量少

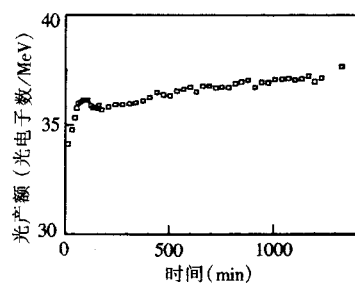


图8 961样品在积分剂量
1902Gy下的恢复

(如空气和氧退火)的晶体抗辐照能力就高。

辐照产生缺陷,如果照射时间足够长,这些缺陷会处于动态平衡.当辐照结束后,这些缺陷会逐渐减少.如果它们是猝灭中心,那么,晶体刚辐照完时,其光产额是低的,以后光产额会随时间逐渐恢复,如图8所示.对图8的光产额采用 $LY = LY_0(1 - Ae^{-t/\tau})$ 拟合,得出 τ 约为 3000min.

2.2.4.3 辐照损伤对衰减时间无影响

我们做了 962 样品在 1902Gy 剂量照射后的荧光衰减时间谱,如图 9 (a、b) 分别是辐照前后的荧光衰减时间谱,对辐照前后的时间谱的拟合结果见表 6,从表中可知,辐照基本没有影响 962 样品的衰减时间,说明,辐照并没有明显改变发光机制.这一点与文献 [9] 的结论是一致的.

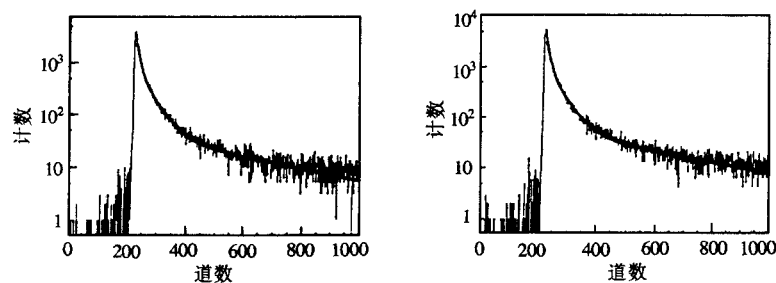


图9 962样品辐照前后荧光衰减时间的变化

表6 辐照前后荧光衰减时间的变化

	τ_1/ns	$I_1(\%)$	τ_2/ns	$I_2(\%)$	τ_3/ns	$I_3(\%)$
辐照前	3.46	25.0	14.9	48.3	131	26.7
辐照后	3.46	26.0	15.2	47.7	137	26.3

3 结论

- 1) 光产额按没有退火、空气退火、氧气退火顺序逐渐增大;
- 2) 没有退火样品的荧光衰减时间中没有观察到大于 100ns 的慢成份;
- 3) 真空退火抗辐照能力很差,氧气退火和空气退火样品的抗辐照能力较强;
- 4) 辐照前后荧光衰减时间基本相同,说明辐照没有改变发光机制;
- 5) 辐照后所有样品均产生磷光,说明辐照产生电子陷阱.

参 考 文 献

- 1 Status Report of RD18, CERN/DRDC/94-53, Jan. 1995
- 2 Hobson P R et al. RAL preprint RAL-P-95-003, 1995
- 3 Kobayashi M et al. Nucl. Instr. Methods, 1993, A333:429
- 4 Moses W, Derenzo S E. IEEE Trans, Nucl. Sci., 1989, NS-36:173
- 5 Wang Zhaomin, Xu Zizong, Wu Chong. High Energy Physics and Nuclear Physics (in Chinese), 1998, 22(6): 486—491
(汪兆民, 许咨宗, 吴冲. 高能物理与核物理, 1998, 22(6): 486—491)
- 6 Belsky A N et al. CMS TN/95-073
- 7 CMS, The Electromagnetic Calorimeter Technical Design Report, 1997, 97-38:38
- 8 CMS ECAL MEETING, December 2, 1994
- 9 Zhu R Y et al. Nucl. Instr. Methods, 1996, A376:319

Measurement of Properties of Lead Tungstates *

Wu Chong Li Cheng Wang Zhaomin Gong Zhufang Chen Hongfang Xu Zizong

(Department of Modern Physics, University of Science & Technology of China, Hefei 230026)

Liao Jingying Yuan Hui

(Shanghai Institute of Ceramics, Shanghai 200050)

Abstract This paper, by experiments, describes the properties of lead tungstates (PbWO_4 or PWO) which are in different post procession conditions, such as excitation and emission spectra, transmission spectra, fluorescence decay time, light yield, and irradiation damage. At the same time the results are discussed.

Key words lead tungstate crystals, excitation and emission spectra, transmission spectra, light yield, irradiation damage

Received 26 October 1998

* Project Supported by National Natural Science Foundation of China and Science Foundation of Chinese Academy of Science