

F, Y 双掺钨酸铅晶体的发光性能和微观缺陷^{*}

叶崇志¹⁾ 廖晶莹^{1)†} 杨培志¹⁾ 谢建军¹⁾ 罗 澜¹⁾ 曹顿华²⁾

1) 中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 200050)

2) 同济大学波耳固体物理研究所, 上海 200092)

(2004 年 11 月 26 日收到; 2005 年 12 月 12 日收到修改稿)

通过透射光谱、光产额(LY)和光致发光等发光性能测试,研究了 F, Y 双掺钨酸铅(PbWO_4 , 简称 PWO)晶体的发光性能,并利用热释光曲线和正电子湮没寿命谱对 F, Y 双掺 PWO 晶体中的缺陷种类和变化进行了分析.结果表明:与未掺杂晶体相比,双掺样品在 350 nm 附近的透过率大大提高,吸收边向短波方向移动约 30 nm,光致发光谱中出现位于 350 nm 的发光峰,双掺样品的 LY(100 ns 内)为未掺杂 PWO 的 2.7 倍左右.晶体中主要存在的缺陷为 $(\text{WO}_3)^-$ 和 $(\text{WO}_4)^-$,对双掺晶体进行 600 °C 真空气氛下退火发现:晶体中 $(\text{WO}_3)^-$ 和 $(\text{WO}_4)^-$ 缺陷浓度增加;而 600 °C 空气气氛下退火则有利于填补氧空位,并将 $(\text{WO}_3)^-$ 和 $(\text{WO}_4)^-$ 氧化为正常的钨酸根阴离子基团,从而改善晶体的发光性能.这一实验结果对提高 PWO 晶体的 LY 提供了新的思路.

关键词: F, Y 双掺钨酸铅闪烁晶体, 高光产额, 热释光, 正电子湮没寿命谱

PACC: 6170, 7870B

1. 引 言

钨酸铅(PbWO_4 , 简称 PWO)晶体由于具有高密度(8.28 g/cm³)、短辐照长度(0.89 cm)、快衰减时间(90%的发光衰减时间小于 20 ns)和低成本等特点被认为是最具发展潜力的闪烁晶体之一^[1].但由于其发光效率较低(室温下光产额(LY)为 $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO)的 3.6%^[2]),使得 PWO 晶体的应用主要局限于高能物理研究领域.如何提高 PWO 晶体的 LY 以拓宽其应用领域,尤其是在正电子发射断层扫描^[3] (PET)等医学成像方面的应用已成为近来 PWO 晶体研究的热点.

目前常用于提高 PWO 晶体 LY 的方法是在 PWO 基质中引入掺杂离子形成新的发光中心^[4].这种发光中心的第一激发态辐射跃迁态能量稍低于 WO_4^{2-} 的零声子转变能(约为 3.35 eV),使得与掺杂离子有关的发光位于蓝光波段,而通常掺杂离子在 PWO 晶体中的浓度很低,这使得与掺杂离子相关的发光中心直接受到激发的概率很小,因此掺杂 PWO

的发光效率取决于 WO_4^{2-} 第一激发态无辐射损耗的再次分配.若能将这种无辐射损耗部分全部转移到与掺杂剂有关的发光中心使之发光,则可以提高 PWO 晶体的 LY.早期的掺杂集中于 PWO 的 Pb 位、W 位或两种位置的阳离子掺杂,其中 Mo 离子是研究最多的掺杂离子之一.研究表明:单掺 Mo 离子^[5,6]对 PWO 晶体 LY 的增强是由于 MoO_4^{2-} 对绿发光的贡献,它可以提高 PWO 的绿发光成分,但使得 PWO 发光主峰红移至 500 nm 附近,同时抑制了 PWO 发光中的快成分,产生非常慢的衰减成分(几十毫秒或更长)和余辉,这对其应用是十分不利的.为了抑制慢成分并同时提高 PWO 晶体的 LY,人们又对 PWO 晶体进行了 Mo 离子与其他阳离子共掺杂的研究,发现 Mo 离子分别与 La^[6], Y^[7,8], Nb^[9]等离子共掺杂能提高 PWO 晶体的 LY,但 LY 增加大多为慢分量为主的绿发光成分,发光峰也出现红移现象.而 Mo, Cd, Sb 三掺杂 PWO^[3](发光峰位于 500 nm 附近,时间门宽为 1000 ns,晶体厚度为 2 cm)的 LY 则达到 BGO 晶体的 9%(光电子数为 77/MeV)左右,但可惜的是其发光衰减快分量(100 ns 内)大约

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 50572111)资助的课题.

[†] E-mail: jyliao@mail.sic.ac.cn

只占发光总量的 60% ,还不能用于 PET.

对 PWO 晶体进行阴离子掺杂的研究表明 :F 离子单掺^[10]可以将 PWO 晶体的 LY(1000 ns 内)提高到未掺杂 PWO 晶体的 2.6 倍左右 ,但遗憾的是发光主峰红移至 480 nm 附近 ,100 ns 内的快分量仅占发光总量(1000 ns 内)的 44% ,而且晶体的均匀性较差 .而研究发现 Mo 离子与 Y 离子共掺杂能明显抑制 PWO 晶体发光中的慢分量^[7] ,这是一个十分重要的信息 ,它为我们提高 PWO 晶体 LY 的同时增加快分量比例提供了实验基础 .本文报道了 F ,Y 双掺 PWO 晶体的发光性能和 LY 测量结果 ,分析了晶体在紫外光激发下产生新发光峰的起源 ,并结合热释光曲线和正电子湮没寿命谱对晶体中的微观缺陷进行了讨论 .

2. 实 验

实验中所用 PWO 晶体样品是由纯度为 99.99% 的 PbO 与 WO₃ 按 1:1 化学计量比均匀混合后采用改进的坩埚下降法生长^[11] ,掺杂离子以 Y₂O₃ 和 PbF₂ 形式掺入 ,掺杂剂摩尔浓度分别为 1.0 × 10⁻⁴ 和 5.0 × 10⁻⁴ ,晶体结晶良好 ,经 200 °C 空气退火 10 h 以消除内应力 .

用于透射光谱、LY、紫外激发发射光谱和正电子湮没寿命谱测试的样品尺寸为 24 mm × 24 mm × 20 mm ,六面抛光 .用于热释光实验的样品加工成 10 mm × 10 mm × 1 mm 的薄片 ,两面抛光 ,先后经 600 °C 真空和空气条件下退火处理 ,退火前后测试其热释光曲线 .

透射光谱是在岛津 Shimadzu UVPC-2501 型分光光度计^[11]上测量 ,精度为 ± 0.002 ,狭缝的光谱宽度为 5 nm .利用 QVT 模式多道分析谱仪测量 LY^[12] ,激发源为¹³⁷Cs ,将晶体一端与 Philip2262 型光电倍增管耦合 ,其余部分用 Tyvek 纸包裹 ,测试环境温度为 20 °C .紫外激发发射谱利用 Perkin-Elmer LS-55 型荧光光谱仪测试 ,Xe 灯作为激发源 .样品热释光曲线是由样品经紫外线高压汞灯辐照 15 min 后 ,于 FJ-427A 型热释光仪上测得 ,测试升温速率为 2 °C/s ,线性升温区间为 20—300 °C .正电子湮没寿命谱^[13]测定采用脉冲 X 射线激发产生荧光的相关单光子计数法测定 ,光电倍增管型号为 R6331 ,环境温度为 20 °C .

3. 实验结果

3.1. 透射光谱测量

由透射光谱(图 1)可以看出 ,F⁻ ,Y³⁺ 双掺 PWO 样品的透过率明显优于未掺杂 PWO 晶体 ,晶体短波范围内的透过率显著提高 ,透过曲线的截止波长向短波方向移动约 30 nm ,而且形状更为陡峭 .

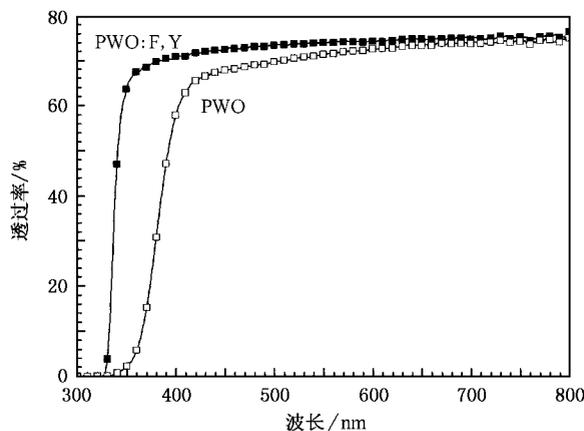


图 1 F ,Y 双掺 PWO 晶体的透射光谱

3.2. LY 测量

对样品在不同时间门宽内进行 LY 的测试 ,结果如表 1 所列 .纯 PWO 在 100 ns 内 LY 的光电子数为 19.1/MeV ,占发光总量(1000 ns 内)的 84.9% ,而 F ,Y 双掺晶体的 LY 的光电子数为 50.8/MeV ,占总 LY(1000 ns 内)的 80.4% .结果表明 :F ,Y 双掺样品比未掺杂样品具有高的 LY(100 ns 内约为 2.7 倍) ,虽然发光快分量比例略有降低 ,但增加的 LY 仍在可用的快分量范围内 .

表 1 不同时间门宽内 F ,Y 双掺 PWO 晶体的 LY 结果(单位 :MeV⁻¹)

样品	50 ns	100 ns	200 ns	500 ns	1000 ns
PWO	18.9	19.1	20.8	21.2	22.5
PWO F ,Y	45.0	50.8	52.8	62.0	63.2

3.3. 光致发光谱测试

利用波长为 275 nm 的紫外光对样品激发 ,所测量到的发射光谱如图 2 所示 .由图 2 可见 ,未掺杂 PWO 样品发射谱主峰为 420 nm ,次主峰为 405 nm ,另外存在 490 nm 附近的绿光发光峰 .从图 2 还可看

出 F,Y 双掺样品的蓝光发射强度明显高于未掺杂 PWO 样品,发射光谱包含峰值分别位于 350,390 和 420 nm 附近的发光峰,使得发射光谱极不对称,其中位于 350 nm 附近新发光主峰对应的激发谱峰值位于 205 nm 附近.

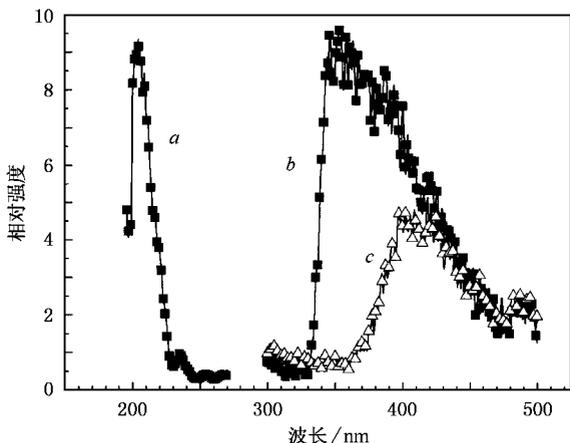


图2 纯PWO和F,Y双掺PWO晶体的光致发光谱.曲线a为双掺PWO晶体的激发谱,对应发射波长为350nm;曲线b和曲线c分别为双掺PWO和纯PWO晶体的发射谱,对应激发波长为275 nm

3.4. 热释光测试

未掺杂 PWO 晶体经紫外光辐照后,在升温过程中出现三个发光峰(图3),发光峰位置大致为 $T_1 = 80\text{ }^\circ\text{C}$, $T_2 = 160\text{ }^\circ\text{C}$, $T_3 > 300\text{ }^\circ\text{C}$,与 Nikl 等^[14]的报道相符,但未见 50 $^\circ\text{C}$ 附近的发光峰.该现象在坩埚下降法生长的纯 PWO 晶体也曾出现过^[15],可能是由于生长方法不同而引起.而 PWO:F,Y 样品仅出现 80 和 160 $^\circ\text{C}$ 附近的发光峰,并且 160 $^\circ\text{C}$ 附近发光峰较弱.当 PWO:F,Y 样品经 600 $^\circ\text{C}$ 真空退火,80 $^\circ\text{C}$ 附近的发光峰消失,而 160 $^\circ\text{C}$ 附近的发光显著增强,并且出现新的位于 260 $^\circ\text{C}$ 附近的发光峰.当样品再经 600 $^\circ\text{C}$ 空气退火后,80 $^\circ\text{C}$ 附近的热释光峰重新出现,而 160 $^\circ\text{C}$ 附近的热释光峰消失.

3.5. 正电子湮没寿命测量

正电子湮没寿命谱能够提供有关物质结构的重要信息,是研究材料中缺陷变化的有效手段之一.图4给出了 PWO 晶体的正电子寿命谱,由图谱可以看出,双掺样品的主要发光成分的荧光寿命仍在实用要求的快衰减时间范围内,但荧光寿命比未掺杂样品稍长.对图4所得谱线拟合,解谱得到的寿命

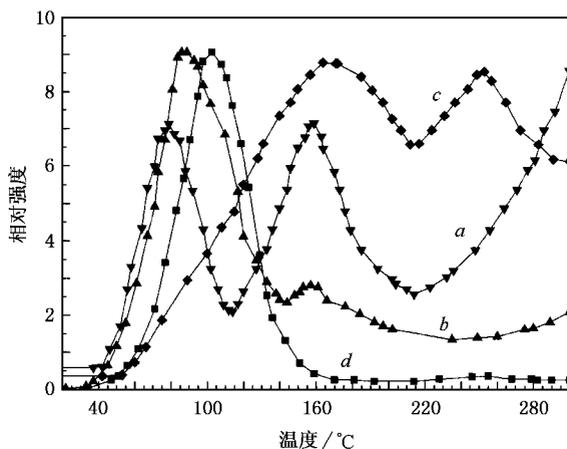


图3 纯PWO和F,Y双掺PWO晶体的热释光曲线.曲线a为纯PWO晶体,曲线b为F,Y掺杂PWO晶体,曲线c为600 $^\circ\text{C}$ 真空退火后的F,Y双掺晶体,曲线d为600 $^\circ\text{C}$ 空气退火后的F,Y双掺晶体

成分与其相对强度的结果如表2所列,其中 τ_1 表示晶体中自由正电子的寿命, τ_2 表示正电子在 PWO 晶体缺陷中的湮没寿命, I_1 , I_2 分别表示 τ_1 , τ_2 所占比率.由表2可以看出,与未掺杂 PWO 样品比较,双掺样品 τ_2 增大、 I_2 变小,说明缺陷对正电子的俘获能力减弱、缺陷态寿命变长,表明双掺样品中负电中心浓度减小.

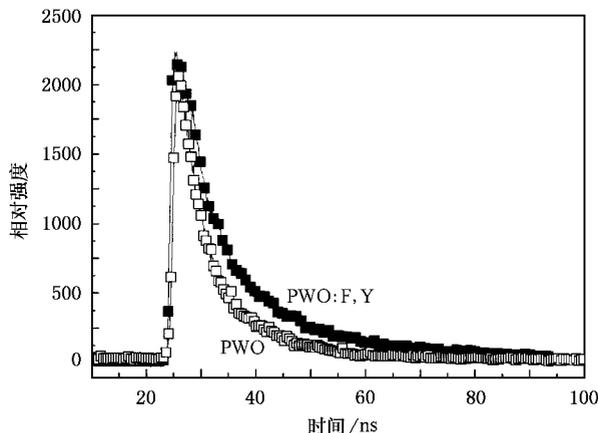


图4 纯PWO和F,Y双掺PWO晶体的荧光寿命谱

表2 正电子湮没寿命谱解谱结果

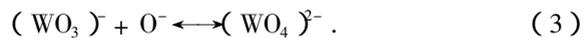
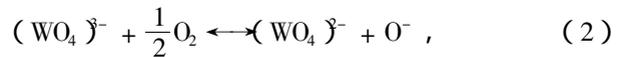
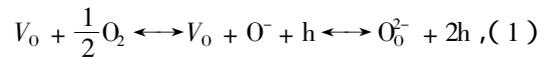
样品	τ_1/ns	τ_2/ns	$I_1/\%$	$I_2/\%$
PWO	4.21	12.2	50.5	49.5
PWO:F,Y	7.58	37.4	60.0	40.0

4. 讨 论

从 PWO 样品的透过率曲线、LY 数据和紫外激发发射谱来看,相对于未掺杂样品, F, Y 双掺杂在 PWO 晶体中引入了掺杂离子形成新的发光中心,该发光中心发光峰位于 350 nm 附近. 由于该发光峰在以往文献中未曾见过报道,而且 Y 离子对 PWO 晶格的贡献也限于影响其吸收、辐照硬度和 LY 快慢成分的比例,不能在 PWO 晶体中形成新的发光中心,因此我们将该发光峰归因于 F 离子对晶格的贡献. 而对 PWO 晶体的电子结构计算^[16,17]也表明, O 在 PWO 晶体的发光中扮演极其重要的角色, $(\text{WO}_4)^{-}$ 基团的最高占据态由 O 轨道的 $2p(\pi)$ 组成, 这样当 F^{-} 掺入后, 由于 F^{-} 和 O^{2-} 具有相近的电子构型和几乎相同的离子半径 (F^{-} 半径为 1.36 nm, O^{2-} 半径为 1.44 nm^[10]), F^{-} 可以进入 O 格位替代 O^{2-} , 使得 F^{-} 的 $2p$ 轨道和 O^{2-} 的 $2p$ 轨道强烈杂化, 形成新的缺陷中心 $(\text{WO}_3\text{F})^{-}$, 该缺陷中心的结构可看作 $(\text{WO}_4)^{-}$ 的微小畸变, 由此产生 350 nm 附近的发光峰. Liu 等^[10]报道过 PWO:F 晶体的 X 射线激发发射谱, 其发光主峰位于 480 nm 附近, 但存在 386 nm 附近新的发光峰, 这一峰位与 350 nm 附近的发光峰相近, 造成的差异可能是激发能量和生长工艺的差异引起的. 对比单掺 F 的 PWO 晶体发光的快慢成分比例, F, Y 双掺的 PWO 快分量所占发光总量的比例比报道的单掺 F 的快分量所占比例高出近一倍, 这可能与 Y 离子的引入有关. 三价离子 Y^{3+} 可进入 Pb 空位 V''_{Pb} , 抑制由 V''_{Pb} 诱导产生的 Pb^{3+} 引起的慢发光成分 (主要为红光), 使得发光快分量比例相应增加^[18]. 而 Nikl 等^[7]在研究 Mo_0Y 双掺 PWO 晶体时也发现 Y 离子能有效地抑制 Mo 离子引起的发光慢衰成分, 加速发光衰减过程. 因此, 对于 F, Y 双掺 PWO 晶体, Y 离子的主要贡献在于抑制 F 离子引起的发光慢衰成分, 从而加快了 PWO 晶体的发光衰减.

从 PWO 样品的热释光实验结果可以看出, PWO 晶体热释光曲线中 160 °C 附近的热释光峰在晶体的发光和缺陷方面起着很重要的作用. F, Y 双掺使得这一峰强度大大减弱, 真空退火使该峰显著加强, 而经 600 °C 空气退火后该峰消失. 我们将这一结果与 Laguta 等^[19]对 PWO 晶体的电子自旋共振分析结果比较发现, 160 °C 附近的发光峰对应于晶体中与

W^{5+} 相关联的缺陷, 其主要的存在形式为 $(\text{WO}_3)^{-}$, $(\text{WO}_4)^{-}$ 或其他缺陷与它们结合成的缺陷簇. 这种缺陷大多存在于坩埚下降法生长的 PWO 晶体中. 在提拉法生长 PWO 晶体的过程中, 由于高温下 PbO 和 WO_3 挥发速率的差异, 使得以化学计量比生长的 PWO 晶体缺 Pb , 考虑到生长气氛大多为空气气氛^[20,21], 晶体在提拉过程中实际上是晶体在空气中进行高温自退火的过程, 即为空气中的 O 补充晶体中 O 空位 V_{O} 并对 W 离子进行氧化, 因此提拉法生长的 PWO 晶体中 V_{O} 的浓度很小, 缺陷主要为 V''_{Pb} . 而下降法生长 PWO 晶体, 由于原料密闭于铂金坩埚内, 晶体生长处于一个低氧浓度的气氛, 而且熔体位于晶体的上方, 使得晶体生长处于一个相对还原缺氧的环境. 因此坩埚下降法生长的 PWO 晶体中缺陷以 V_{O} 为主, V''_{Pb} 浓度很小, W 离子易被还原至低价态 $(\text{WO}_3)^{-}$ $(\text{WO}_4)^{-}$ 正是 PWO 晶体在缺氧状态下形成 V_{O} 和 W 离子被还原的产物. 因此可以认为这两类缺陷在退火中发生的变化过程, 实际上是环境中的 O 与晶格 O 之间相互交换并对 W 离子氧化和还原的过程. 当样品在真空中退火, 晶格 O 逸出, W^{6+} 被还原, 而在空气中退火, 空气中的 O 填补 V_{O} , W^{5+} 被氧化, 其作用机理可以表示为



考虑到 F, Y 离子的作用, F^{-} 可能进入 V_{O} 与 $(\text{WO}_3)^{-}$ 形成 $(\text{WO}_3\text{F})^{-}$ 稳定结构, 但是由于对 F 离子在晶体中含量的检测缺乏有力的工具, 以致 F 离子在晶体中的状态和含量仍不清楚, 只能从电荷补偿的角度推测 F^{-} 在晶体中可能与 $(\text{WO}_3)^{-}$ 相结合. 而 Y^{3+} 则可能与 $(\text{WO}_4)^{-}$ 作用可形成 $[\text{Y}^{3+} - (\text{WO}_4)^{-}]$ 稳定缺陷簇结构, 类似的 $[\text{La}^{3+} - (\text{WO}_4)^{-}]$ 缺陷簇在 La 掺杂 PWO 的研究中曾有报道^[22].

PWO 晶体正电子湮没寿命谱反映的是晶体中负电中心所引起的缺陷的浓度和其对正电子束缚的能力. 而下降法生长的 PWO 晶体中可能存在的负电中心主要有 $(\text{WO}_4)^{-}$ 和 V''_{Pb} 两种. 由以上分析可知, 利用坩埚下降法在低氧浓度下生长的 PWO 晶体中 V''_{Pb} 浓度很低, 负电中心的形成主要是由于晶体生长处于一种相对还原环境而引起的, 因此正电子

湮没寿命谱反映的应该是 $(\text{WO}_4)^{-}$ 的变化信息. 相对于未掺杂 PWO 晶体, 掺杂 PWO 晶体中由于部分 $(\text{WO}_4)^{-}$ 与 Y^{3+} 相互作用形成稳定的缺陷簇结构使得有效 $(\text{WO}_4)^{-}$ 浓度减小, 从而对晶体中正电子的俘获能力减弱, 使得缺陷态寿命变长.

利用热释光和正电子湮没寿命实验对 PWO 晶体内由缺氧引起的与 W^{5+} 有关的缺陷变化研究表明: F, Y 双掺晶体中主要存在 $(\text{WO}_3)^{-}$ 和 $(\text{WO}_4)^{-}$ 缺陷态, 160 °C 附近的热释光峰对应于缺陷态 $(\text{WO}_3)^{-}$, 600 °C 真空退火使得 $(\text{WO}_3)^{-}$ 浓度显著增加, 而 600 °C 空气中退火可以有效补偿 V_{O} , 抑制 $(\text{WO}_3)^{-}$ 的浓度. 晶体中的负电中心主要为 $(\text{WO}_4)^{-}$, Y 离子的引入能与之形成 $[\text{Y}^{3+}(\text{WO}_4)^{-}]$ 稳定的缺陷簇结构而降低其对正电子的束缚能力, 从而改善晶体的发光性能.

5. 结 论

通过研究 F, Y 双掺 PWO 晶体的发光性能和微观缺陷, 发现 F, Y 离子对晶体发光的贡献各不相同. F 离子掺杂在 PWO 晶体中引入了掺杂离子形成新的发光中心, 其发光峰位于 350 nm 附近, 显著地提高了 PWO 晶体的 LY, 并使得 PWO 晶体吸收边向短波方向移动约 30 nm. 而 Y 离子掺入可能有效地束缚了 V_{O} 和 $(\text{WO}_4)^{-}$, 占据了导带底位置, 敏化阴离子基团的蓝发光, 提高了快分量的比例, 使得双掺 PWO 晶体 LY 快分量(100 ns 内)达到未掺杂 PWO 晶体的 2.7 倍. 这一实验结果为提高 PWO 晶体 LY 的研究提供了新的思路.

- [1] Lecoq P, Dafinei I, Auffrayet E *et al* 1995 *Nucl. Instr. Meth. A* **365** 291
- [2] Derenzo S E, Moses W W, Cahoon J L *et al* 1990 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **37** 203
- [3] Kobayashi M, Usuki Y, Ishii M *et al* 2002 *Nucl. Instr. Meth. A* **486** 170
- [4] Annenkov A A, Korzhik M V, Lecoq P *et al* 2002 *Nucl. Instr. Meth. A* **490** 30
- [5] Annenkov A N, Fedorov A A, Galez P *et al* 1996 *Phys. Stat. Sol. (a)* **156** 493
- [6] Annenkov A, Borisevitch A, Hofstaetter A *et al* 2000 *Nucl. Instr. Meth. A* **450** 71
- [7] Nikl M, Bohacek P, Vedda A *et al* 2000 *Phys. Stat. Sol. (a)* **182** R3
- [8] Nikl M, Bohacek P, Mihokova E *et al* 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 2791
- [9] Nikl M, Bohacek P, Mihokova E *et al* 2002 *Radiat. Eff. Defect. Sol.* **157** 937
- [10] Liu X C, Hu G Q, Feng X Q *et al* 2002 *Phys. Stat. Sol. (a)* **190** R1
- [11] Yang P Z, Liao J Y, Shen B F *et al* 2002 *J. Cryst. Growth* **236** 589
- [12] Qi L J, Yang P Z, Deng Q *et al* 2001 *J. Inorg. Mater.* **16** 212 (in Chinese)[齐玲均、杨培志、邓 群等 2001 无机材料学报 **16** 212]
- [13] Qi J L, Liao J Y 2000 *Nucl. Tech.* **23** 433 (in Chinese)[祁金林、廖晶莹 2000 核技术 **23** 433]
- [14] Nikl M, Nitsch K, Baccaro S *et al* 1997 *J. Appl. Phys.* **82** 5758
- [15] Liu B, Shi C S, Zhou D F *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2078 (in Chinese)[刘 波、施朝淑、周东方等 2000 物理学报 **49** 2078]
- [16] Zhang Y, Holzwarth N A W, Williams R T 1998 *Phys. Rev. B* **57** 12738
- [17] Tong H Y, Gu M, Tang X F *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1545 (in Chinese)[童宏勇、顾 牡、汤学峰等 2000 物理学报 **49** 1545]
- [18] Liu B, Shi C S, Wei Y G *et al* 2003 *Nucl. Instr. Meth. B* **201** 520
- [19] Laguta V V, Martini M, Vedda A *et al* 2002 *Radiat. Eff. Defect. Sol.* **157** 1025
- [20] Moreau J M, Gladyshevskii R E, Galez P *et al* 1999 *J. Alloys Compd.* **284** 104
- [21] Annenkov A, Auffray E, Drobychev G *et al* 2005 *Nucl. Instr. Meth. A* **537** 173
- [22] Laguta V V, Martini M, Meinardi F *et al* 2000 *Phys. Rev. B* **62** 10109

The luminescence and defects of F ,Y co-doped PbWO₄ crystals^{*}

Ye Chong-Zhi¹⁾ Liao Jing-Ying^{1)†} Yang Pei-Zhi¹⁾ Xie Jian-Jun¹⁾ Luo Lan¹⁾ Cao Dun-Hua²⁾

¹⁾ *Shanghai Institute of Ceramics , Chinese Academy of Sciences , Shanghai 200050 , China)*

²⁾ *Pohl Institute of Solid State Physics ,Tongji University ,Shanghai 200092 ,China)*

(Received 26 November 2004 ;revised manuscript received 12 December 2005)

Abstract

The influence of F ,Y co-doping on the luminescence properties and defects of PbWO₄(PWO) have been investigated by correlated measurements of transmission spectra , light yield , photoluminescence spectra , thermoluminescence and positron annihilation lifetime. F doping results in a new luminescence band peaked around 350 nm , which gives a significant improvement in luminescence properties of PWO. Meanwhile , Y-dopant efficiently reduces trapping state and accelerates the scintillation decay process. Compared with the undoped PWO samples , the light yield(100 ns) of F ,Y co-doped PWO crystal was increased by a factor of 2.7. The main defects (WO₃)⁻ and (WO₄)³⁻ in PWO crystals for lack of oxygen during growth were investigated. Thermoluminescence results show that the defects in PWO crystals increase when annealed in vacuum and these defects can be also suppressed by annealing in air at 600 °C .

Keywords : F ,Y co-doped PbWO₄ scintillators , high light yield , thermoluminescence , positron annihilation lifetime

PACC : 6170 , 7870B

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China(Grant No. 50572111).

[†] E-mail : jyliao@mail.sic.ac.cn