

基于载流子猝灭模型的闪烁体发光非线性效应理论分析及实验验证

魏坤 黑东炜 刘军 徐青 翁秀峰 谭新建

Theoretical analysis and experimental verification of scintillator luminescence nonlinearity based on carrier quenching model

Wei Kun Hei Dong-Wei Liu Jun Xu Qing Weng Xiu-Feng Tan Xin-Jian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 242901 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210820

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210820>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于载流子猝灭模型的闪烁体发光非线性效应理论分析及实验验证*

魏坤¹⁾²⁾ 黑东炜^{1)†} 刘军¹⁾ 徐青¹⁾ 翁秀峰¹⁾ 谭新建¹⁾

1) (西北核技术研究所, 强脉冲辐射环境模拟与效应国家重点实验室, 西安 710024)

2) (清华大学工程物理系, 北京 100084)

(2021年4月28日收到; 2021年8月12日收到修改稿)

闪烁体探测器是辐射物理领域重要的探测器件, 闪烁体作为其中的核心部分, 其特性受到广泛研究, 特别是闪烁体在高激发密度下的非线性效应由于其对测量结果的直接影响而得到格外关注. 本文结合目前国内外闪烁体发光的相关理论, 以载流子方程为基础, 量化分析了激子的二阶猝灭效应对载流子动力学过程的影响, 着重计算分析了脉冲测量场景下不同激发密度产生的不同初始载流子浓度对于闪烁体光衰减曲线、光产额以及效率的影响. 接着利用光致激发实验, 研究了 CeF_3 闪烁体光产额与激发密度的关系, 并利用载流子猝灭模型对实验数据进行了拟合, 拟合曲线与实验数据一致性较高, 并得到了 CeF_3 闪烁体 10% 非线性效应对应的能量密度阈值. 通过本文研究工作建立的物理模型, 结合不同的模型参数, 可以实现多种闪烁材料发光非线性特性的预测和解释, 对于理解及解决实验中遇到的闪烁体在高激发密度下产生的非线性效应问题具有重要作用.

关键词: 闪烁体非线性效应, 载流子猝灭, 光致激发

PACS: 29.40.-n, 71.35.Pq, 78.55.-m

DOI: 10.7498/aps.70.20210820

1 引言

闪烁体探测器被广泛用来测量诸如 γ /X 射线、中子以及带电粒子等, 是辐射物理领域最重要的探测器件之一, 作为其核心部分, 闪烁体的特性和参数直接影响到测量结果. 特别是 1948 年 NaI: Tl 诞生以来, 闪烁体研究进入了高速发展的时期, 随着高能物理、核医学成像、核电站等应用需求的牵引, 闪烁材料的类型及性能研究得到了极大的丰富和拓展. 相关研究表明闪烁体被 γ , X 射线以及带电粒子等激发发出的光并不总是正比于所吸收的能量, 发光产额与吸收能量间线性关系的偏差被称为非线性.

闪烁体发光的非线性效应一般来说有两种常见表征形式, 对应不同的应用场景和研究方法. 一种是闪烁体对单粒子的能量响应非线性^[1-7], 即不同能量、不同类型粒子单位能量沉积下闪烁体光产额存在差异, 这类非线性现象是辐射探测领域的常见形式, 其存在会影响到探测器的能量分辨率, 所以相关研究常与探测器能量分辨率研究相结合, 其研究方法是采用不同能量或类型粒子激发闪烁体, 观察闪烁体发光的变化, 其中最多的是研究闪烁体对于电子的能量响应变化, 常采用康普顿符合技术实现宽能区连续谱电子能量响应的研究. 第二种是闪烁体应用于强脉冲测量场景下的非线性效应^[8-13], 即闪烁体光产额在强脉冲辐射场下的饱和现象, 如常见高强度脉冲辐射场(核反应堆、核爆

* 国家自然科学基金(批准号: 11905173)和西北核技术研究所预先研究课题(批准号: 13021901)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: heidw@nint.ac.cn

炸、高剂量脉冲伽马装置、同步辐射装置等), 相关研究常采用强脉冲源激发并测量闪烁体光产额, 以得到其非线性阈值. 近年来, 随着诸如自由电子激光、激光康普顿散射源、散裂中子源等各类新型辐射源的发展和运用, 闪烁体探测器仍然是重要的束测设备^[14,15], 同时闪烁体在高激发密度下的非线性效应这一问题受到了更多的关注^[16-19], 对该问题的相关研究, 有利于精确诊断源参数, 并为相关应用研究提供基础.

上述对于闪烁体非线性问题的相关研究, 往往基于特定的应用场景, 对两种场景下非线性效应的物理过程和机理研究方面缺乏统一的分析和讨论. 结合闪烁体发光原理的相关理论, 无论是单粒子测量场景还是脉冲测量场景, 均存在闪烁体受激产生载流子以及载流子复合发光的过程, 据此本文以载流子方程为基础, 分析了高激发密度下产生的高浓度载流子的猝灭过程及其对闪烁体发光的影响, 并利用光致激发实验对该物理模型进行了验证. 本工作可加深对闪烁材料发光机理特别是载流子产生、复合、猝灭等物理过程的认识, 为预测材料非线性响应特性以及探寻开发新型闪烁材料以满足不同的辐射诊断应用需求提供依据.

2 物理模型

闪烁体种类很多, 按状态分为固体闪烁体、液体闪烁体、气体闪烁体等, 其中固体闪烁体应用最为广泛; 按照化学成分可分为有机闪烁体和无机闪烁体; 按照存在形态可分为单晶闪烁体、玻璃闪烁体和陶瓷闪烁体. 闪烁晶体即单晶态的闪烁体, 其中又以无机闪烁晶体应用最为广泛, 无机闪烁晶体主要分为氧化物和卤化物两大类, 在卤化物类中稀土卤化物占有很大的比重. 本文以无机闪烁晶体作为研究对象, 闪烁晶体属于绝缘体, 禁带宽度较大, 被激发后产生的载流子以束缚载流子为主, 大部分以激子形式存在. 激子是 1 个由于库仑作用而束缚在一起的电子空穴对, 电子与空穴结合在一起形成激子有一个结合能, 同样的激子也可以吸收外界能量离解为自由电子和空穴. 无机闪烁晶体中的激子以束缚激子形式存在, 根据不同类型的闪烁体, 又分为弗兰克尔激子和自限态激子.

激子可以近似看做 1 个偶极子, 激子间的相互作用可以用福斯特共振能量转移理论来解释^[20-22],

其又称为荧光共振能量转移, 最早是在研究荧光分子间相互作用发现的, 指在两个不同的荧光基团中, 如果 1 个荧光基团 (供体) 的发射光谱与另一个基团 (受体) 的吸收光谱有一定的重叠, 当这两个荧光基团间的距离合适时, 就可以观察到荧光能量由供体向受体转移的现象, 此过程没有光子参与, 其本质可以通过量子力学的非辐射相互作用解释. 如果受体荧光量子产率为 0, 则发生能量转移荧光熄灭; 如果受体也是一种荧光发射体, 则呈现出受体的荧光, 并造成次级荧光光谱的红移. 通常来说 1 个激子将能量传递给另一个激子, 接收能量的激子跃迁到更高的能级, 之后其通过一系列非辐射复合或辐射复合回到初态, 最终两个激子的激发能均未能转换为光子或者仅仅转换成 1 个光子, 故该过程是 1 种猝灭过程, 与激子浓度的平方成正比, 属于二阶猝灭.

对于激子型闪烁体, 载流子主要以激子形式存在, 利用激子浓度微分方程将激子浓度随时间的变化表示如下:

$$\frac{\partial n(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -\frac{n(\mathbf{r}, t)}{\tau_r} - \gamma(\mathbf{r}, t)n^2(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

式中第 1 项为激子辐射复合过程, 为荧光产生过程, 第 2 项为福斯特作用, 即为激子猝灭过程. 其中 $\gamma(t, \mathbf{r}) = \gamma(t) = (2\pi^{3/2}/3) R_{d-d}^3 (t\tau_r)^{-1/2}$ 代表两个激子间猝灭作用概率, R_{d-d} 为激子猝灭特征半径, τ_r 为辐射复合时间常数. 解上述微分方程得

$$n(\mathbf{r}, t) = n(\mathbf{r}, 0)e^{-t/\tau_r} \times \left[1 + \frac{2\pi^2}{3} n(\mathbf{r}, 0) R_{d-d}^3 \operatorname{erf}\left(\sqrt{\frac{t}{\tau_r}}\right) \right]^{-1}, \quad (2)$$

其中, $\operatorname{erf}(x)$ 为误差函数, $\operatorname{erf}(x) = 2/\sqrt{\pi} \int_0^x e^{-t^2} dt$. 上述计算得到了载流子浓度的衰减曲线, 由于激子猝灭效应的存在, 使得载流子衰减在通常指数形式上增加了调制因子

$$\eta = \left[1 + \frac{2\pi^2}{3} n(\mathbf{r}, 0) R_{d-d}^3 \operatorname{erf}\left(\sqrt{t/\tau_r}\right) \right]^{-1}.$$

上述计算结果为每一个微分位置处, 载流子浓度的时间衰减关系, 对整个闪烁体进行空间积分, 得到闪烁体的荧光衰减曲线. 积分前就需要知道闪烁体中初始载流子的空间分布, 因为闪烁体中初始载流子的空间分布受到激发源的影响, 故具体问题需要根据实际进行分析. 对于激光脉冲激发情形,

此时初始载流子横向高斯分布, 纵向指数分布, 其分布函数可表示为

$$n(\mathbf{r}, 0) = n(\rho, z, 0) = n_0 e^{-\rho^2/a^2 - \alpha z}, \quad (3)$$

其中, a 为高斯半径, α 为吸收系数. 将 (3) 式代入 (2) 式, 并对其进行空间积分, R 和 d 分别为闪烁晶体半径和厚度, 通常情况下 $d \gg 1/\alpha$, $R \gg a$, 故此时积分上限近似为 ∞ , 积分得到光强随时间的关系如下:

$$I(t) = \int_0^\infty \int_0^\infty \frac{n(\rho, z, t)}{\tau_r} 2\pi \rho d\rho dz$$

$$= \frac{N_0}{\tau_r} e^{-t/\tau_r} \frac{-\text{Li}_2 \left[-\frac{2}{3} \pi^2 n_0 R_{d-d}^3 \text{erf} \left(\sqrt{t/\tau_r} \right) \right]}{\frac{2}{3} \pi^2 n_0 R_{d-d}^3 \text{erf} \left(\sqrt{t/\tau_r} \right)}, \quad (4)$$

其中,

$$\text{Li}_2(x) = - \int_0^x u^{-1} \ln(1-u) du = \sum_{k=1}^{\infty} \frac{x^k}{k^2}. \quad (5)$$

根据相关研究^[12], 不同闪烁体对应 R_{d-d} 值存在差异, 为了定量分析载流子浓度对光衰减曲线的影响, 这里选取参数 $R_{d-d} = 2 \text{ nm}$, 根据 (4) 式作出不同初始载流子密度下闪烁体光强 $I(t)$ 衰减归一化曲线, 如图 1 所示, 图中横坐标单位为 τ_r , 即闪烁晶体的辐射复合时间, 时间范围选取 5 倍辐射复合时间, 5 条曲线分别代表初始载流子浓度为 10^{18} — 10^{22} cm^{-3} 的情形, 其中 Ref 为参考曲线, 表示不存在激子猝灭效应时的荧光衰减曲线.

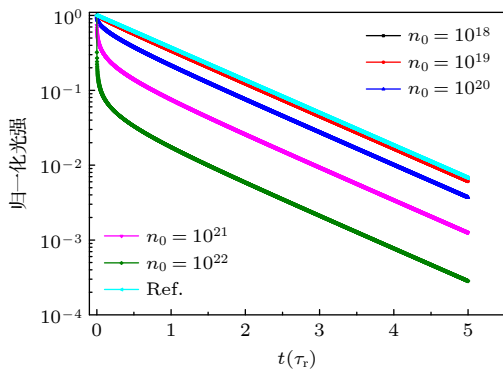


图 1 不同初始载流子浓度下的归一化荧光衰减曲线
Fig. 1. Normalized luminescence attenuation curves at different initial carrier concentrations.

从图 1 可以看到, 光衰减曲线的初始段受初始载流子浓度的影响较大, 而随着时间延长, 衰减曲线为直线, 因为采用的是对数坐标, 衰减曲线为直

线即表明荧光衰减成指数衰减的形式. 另外, 从图 1 还看到随着载流子浓度的增大, 早期猝灭效应更加显著, 且在当前参数条件下载流子浓度为 10^{18} cm^{-3} 时, 曲线形状与参考曲线基本重合, 表明当载流子浓度低于 10^{18} cm^{-3} 时, 载流子猝灭效应很弱.

对 (4) 式进行近似处理, 当 t 较小时, 取 Li_2 函数前两项近似, 得到光强与时间的关系:

$$I(t) \propto 1 - (\pi^2/6) n_0 R_{d-d}^3 \text{erf} \left(\sqrt{t/\tau_r} \right). \quad (6)$$

对于误差函数进行级数展开且只取第 1 项得到光强与时间成平方根关系:

$$I(t) \propto 1 - (\pi^{3/2}/3) n_0 R_{d-d}^3 \sqrt{t/\tau_r}. \quad (7)$$

当 t 较大时 ($t > 4\tau_r$), 误差函数近似为常数, 此时衰减曲线近似为单指数形式:

$$I(t) \propto e^{-t/\tau_r}. \quad (8)$$

可以看到, 对于 $I(t)$ 在 t 较小和 t 较大时的数学近似处理得到的结果与图 1 的结果一致.

对上述得到的 $I(t)$ 做时间积分即得到总的光产额:

$$I_{\text{tot}} = \int_0^\infty I(t) dt, \quad (9)$$

该积分无法解析求解, 利用 Matlab 软件进行该积分的数值求解, 改变初始载流子浓度求得不同初始载流子浓度下的光产额, 得到光产额与初始载流子浓度的关系, 如图 2 所示, 假设载流子分布区域体积不变, 故载流子浓度与载流子总数成正比. 从图 2 可以看到, 随着载流子浓度的增大, 光产额的增加是非线性的, 当载流子浓度较高时, 光产额趋向于饱和, 即光产额对于载流子浓度的响应曲线的斜率越来越平缓, 表明载流子数量增加但是光产额却不再明显增加.

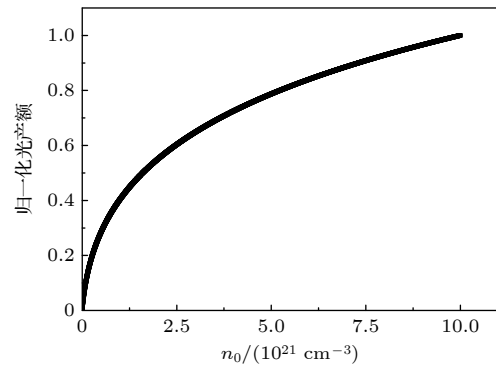


图 2 光产额与初始载流子浓度的关系
Fig. 2. Relationship between luminescence yield and initial carrier concentration.

为更直观说明上述问题, 定义单位载流子浓度下的光产额为光效率, 归一化光效率与初始载流子浓度的关系如图 3 所示, 可以看到当载流子浓度较低时, 光效率曲线有一段平坦区, 随载流子浓度增大下降不明显, 该区域为闪烁体发光的线性区, 即闪烁探测器应用于辐射探测时应该工作的区域. 之后随着载流子浓度的增大, 光效率值快速下降, 到最后接近于 0, 表明闪烁体发光出现了非线性现象, 也就是意味着此时光产额出现饱和, 载流子浓度的增大不会导致光产额的成比例增大.

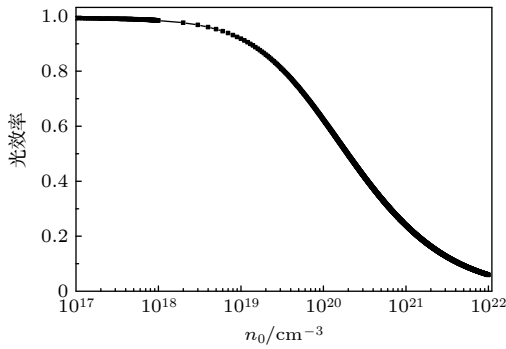


图 3 光效率与初始载流子浓度的关系

Fig. 3. Relationship between luminescence efficiency and initial carrier concentration.

3 结果与讨论

为验证上述模型在解释闪烁晶体发光非线性方面的准确性, 采用光致激发的方式进行相关实验. 飞秒紫外激光光致激发作为一种理想的手段, 可以用来定量研究晶体在高激发密度下的非线性效应. 选择研究的闪烁晶体为 CeF_3 晶体, 其发光中心为 Ce 离子, 载流子以 Ce 离子束缚形成的弗兰克尔激子为主 [23]. CeF_3 晶体时间响应快, 光产额较高, 不潮解, 广泛应用于高能物理、核医学成像以及脉冲辐射测量领域, 曾是欧洲核子中心 (CERN) 的大型强子对撞机 (LHC) 的首选探测材料 [24].

实验中所用的激光为 800 nm 的钛蓝宝石激光, 通过 3 倍频及纵向整形后得到脉宽约 10 ps 的 266 nm 激光作为激发光, 实验中采用 Z 扫描实验技术, 这一实验技术常常用来测量晶体的光学非线性特性. 利用透镜将激光束聚焦, 通过改变样品位置与激光束焦点的距离, 使得晶体接受的光子数一样多, 但由于焦点位置的不同晶体上激光焦斑大小不一样, 故单位面积的光子数不一样即激发密度不一样, 通过比较不同激发密度下闪烁体发光特性来

定量化研究其非线性效应.

实验设置如图 4 所示, 聚焦透镜放置在 1 个电动平移台上, 闪烁晶体固定在激光束方向上, 闪烁体发光利用光电管探测, 并利用数字示波器记录发光波形, 光电倍增管前端放置了 325 nm 高通的滤光片, 以滤掉散射的激光. 同时实验中利用激光能量计和光束质量分析仪分别得到激光脉冲能量值和 M^2 因子大小, 从而可以精确计算不同 Z 位置处激光激发的能量密度及相应载流子浓度. 当前实验条件下激光能量约 38 μJ , 在焦点位置焦斑直径约 80 μm , M^2 因子 4.24, 实验中选用的 CeF_3 晶体样品直径 5 cm, 厚 1 mm.

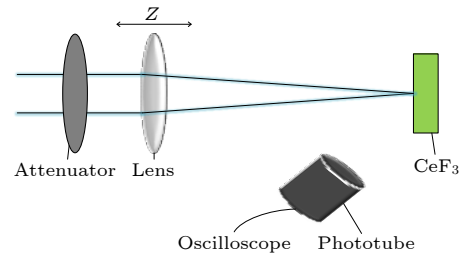


图 4 Z 扫描实验设置示意图

Fig. 4. Schematic diagram of Z scan experiment settings.

实验得到了距离激光焦点不同距离即不同 Z 位置处的波形曲线, 部分荧光波形曲线如图 5 所示 ($Z < 0$), 将波形曲线面积积分作为闪烁体的荧光产额, 作出不同 Z 位置光产额与 Z 的关系如图 6 所示, 图中独立的点代表每个 Z 位置的实验数据. 利用前述物理模型对实验数据进行拟合, 拟合公式为

$$I_{\text{nor}} = \int_0^{\infty} \left[\frac{1}{\tau_r} e^{-t/\tau_r} \frac{-\text{Li}_2(-\xi n_0)}{\xi n_0} \right] dt, \quad (10)$$

$$\xi = \frac{2\pi^2}{3} R_{\text{d-d}}^3 \text{erf} \left(\sqrt{\frac{t}{\tau_r}} \right),$$

即是前述 (4) 式的积分, 但进行了归一化处理, 这里拟合数据为归一化光产额 I_{nor} 和载流子浓度 n_0 , 拟合参数为激子猝灭特征半径 $R_{\text{d-d}}$. 其中采用计算

$$n_0 = \frac{\sigma E \alpha}{h\nu \cdot \pi \omega^2(z)}, \quad (11)$$

式中 E 为激光脉冲能量; $h\nu$ 为激光单光子能量; σ 为每个光子数可以激发产生的载流子个数, 通常对于紫外激光激发情形 $\sigma \approx 1$ [25]; α 为吸收系数; $\omega(z)$ 为不同 Z 处的光斑半径,

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + [M^2 \lambda Z / (\pi \omega_0^2)]^2}.$$

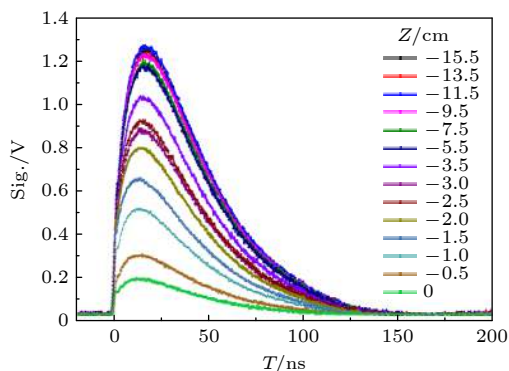


图 5 CeF₃ 晶体不同 Z 处的荧光波形曲线

Fig. 5. Luminescence waveform curves at different Z of CeF₃ crystal.

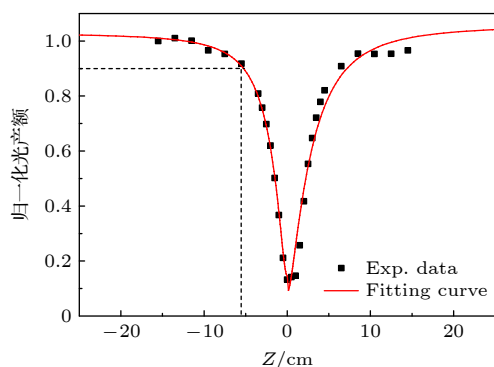


图 6 CeF₃ 的 Z 扫描实验数据及拟合曲线

Fig. 6. Z-scan experimental data and fitting curve of CeF₃.

据此拟合得到的曲线如图 6, 拟合得到 $R_{d-d} = 3.6$ nm, 从图 6 可以看出, 实验数据与拟合曲线的一致性较好, 说明当前物理模型可以较好地解释闪烁材料在高激发密度下的非线性现象.

定义归一化光产额下降 10% 对应的激发能量密度为闪烁体的非线性阈值. 根据实验数据及拟合曲线可以得到归一化光产额下降 10% 时对应的激光的表面能注量, 结合晶体对 266 nm 激光的吸收系数, 可以计算得到 CeF₃ 闪烁体的能量密度阈值为 1.9 J/cm^3 , 激光注量阈值为 1.9 mJ/cm^2 , 吸收系数约为 10^3 cm^{-1} , 载流子浓度为 $2.5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. 该计算结果与前述物理模型分析计算得到的阈值结果存在一定的差异, 原因在于此时实验数据拟合得到的 $R_{d-d} = 3.6$ nm, 而前述数值计算中选择的 $R_{d-d} = 2$ nm.

4 结 论

本文对于辐射探测领域经常遇到的闪烁材料发光非线性物理问题进行了理论计算和实验研究.

理论方面, 结合目前国内外闪烁体发光的相关理论, 以载流子方程为基础, 量化分析了激子的二阶猝灭效应对载流子动力学过程及闪烁体发光过程的影响. 通过数值计算的方法着重计算分析了脉冲测量场景下不同激发密度产生的不同初始载流子浓度对于闪烁体光衰减曲线、光产额及光效率的影响. 实验方面, 基于紫外激光光致激发实验, 利用 Z 扫描实验技术研究了 CeF₃ 闪烁体光产额与激发密度的关系, 并利用前述模型对实验数据进行了拟合, 得到了激子猝灭特征半径 R_{d-d} 的数值, 实验数据与拟合曲线一致性较好, 说明该模型在解释诸如 CeF₃ 等类似激子型无机闪烁晶体发光非线性现象的可行性. 同时实验得到了 CeF₃ 闪烁体 10% 非线性效应对应的能量密度阈值.

通过本文研究工作建立的物理模型, 在辐射探测实际应用中, 根据不同晶体材料选择不同的模型参数, 可以实现多种闪烁材料发光非线性特性的预测和解释, 对于理解及解决实验中遇到的闪烁体在高激发密度下产生的非线性效应问题具有重要作用. 同时本文采用光致激发实验对于模型进行了初步验证, 但是当前实验缺乏对于载流子的直接表征, 后续会考虑利用更多的实验手段和方法, 对于载流子动力学过程进行更加深入的研究, 为闪烁材料发光机理以及闪烁体探测器性能改进提供更多的实验数据支持.

参考文献

- [1] Moses W W, Bizarri G A, Williams R T, Payne S A, Vasil'ev A N, Singh J, Li Q, Grim J Q, Choong W S 2012 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **59** 2038
- [2] Khodyuk I V, Dorenbos P 2012 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **59** 3320
- [3] Moses W W, Payne S A, Choong W S, Hull G, Reutter B W 2008 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **55** 1049
- [4] Siengsanoh K, Limkitjaroenporn P, Sustini E, Kaewkhao J 2018 *Mater. Today Proc.* **5** 15024
- [5] Limkitjaroenporn P, Hongtong W, Chaiphaksa W, Kang S J, Kaewkhao J, Siengsanoh K 2018 *Mater. Today Proc.* **5** 15110
- [6] Klamra W, Balcerzyk M, Czarnacki W, Kozlov V, Mosynski M, Syntfeld-Kazuch A, Szczesniak T 2009 *J. Instrum.* **4** 05006
- [7] Swiderski L, Marcinkowski R, Szawłowski M, Mosynski M, Czarnacki W, Syntfeld-Kazuch A, Szczesniak T, Pausch G, Plettner C, Roemer K 2012 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **59** 222
- [8] Chen X, Han H T, Li G 2017 *Radiat. Meas.* **97** 42
- [9] Guan X Y, Zhang Z C, Zhang W Y 2009 *Atomic Energy Sci. Tech* **43** 942 (in Chinese) [管兴胤, 张子川, 张文钰 2009 *原子能科学与技术* **43** 942]
- [10] Song Z H, Li G, Wang K L, Hu H S, Dai Q S 2004 *Nuclear Electron. Detection Tech.* **24** 461 (in Chinese) [宋朝晖, 李刚,

- 王奎禄, 胡华四, 代秋声 2004 *核电子学与探测技术* **24** 461]
- [11] Spassky D, Vasil'ev A, Belsky A, Fedorov N, Martin P, Markov S, Buzanov O, Kozlova N, Shlegel V 2019 *Opt. Mater.* **90** 7
- [12] Grim J Q, Ucer K B, Burger A, Bhattacharya P, Tupitsyn E, Rowe E, Buliga V M, Trefilova L, Gektin A, Bizarri G A, Moses W W, Williams R T 2013 *Phys. Rev. B* **87** 125117
- [13] Williams R T, Grim J Q, Li Q, Ucer K B, Bizarri G A, Kerisit S, Gao F, Bhattacharya P, Tupitsyn E, Rowe E, Buliga V M, Burger A 2013 *Proc. SPIE* **8852** 88520J
- [14] Bao J, Chen Y H, Zhang X P, et al. 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 080101 (in Chinese) [鲍杰, 陈永浩, 张显鹏, 等 2019 *物理学报* **68** 080101]
- [15] Ren J, Ruan X C, Chen Y H, et al. 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 172901 (in Chinese) [任杰, 阮锡超, 陈永浩, 等 2020 *物理学报* **69** 172901]
- [16] Krzywinski J, Andrejczuk A, Bionta R M, Burian T, Chalupsky J, Jurek M, Krim M, Nagirnyi V, Sobierajski R, Tiedtke K, Vielhauer S, Juha L 2017 *Opt. Mater. Express* **7** 665
- [17] Vielhauer S, Babina V, De Graziab M, Feldach E, Kirm M, Nagirnyi V, Vasil'ev A 2009 *Proc. SPIE* **7361** 73610R
- [18] Vielhauer S, Babin V, De Grazia M, Feldbach E, Kirm M, Nagirnyi V, Vasil'ev A 2008 *Phys. Solid State* **50** 1789
- [19] Kirm M, Andrejczuk A, Krzywinski J, Sobierajski R 2005 *Phys. Stat. Sol.(c)* **2** 649
- [20] Förster T H 1948 *Ann. Phys.* **55** 437
- [21] Clegg R M, Herman B 1995 *Methods Enzymol.* **6** 1
- [22] Wu P G, Brand L 1994 *Anal. Biochem.* **218** 1
- [23] Belsky A N, Kamenskikh I A, Mikhailin V V, Pedrini C, Vasil'ev A N 1998 *Radiat. Eff. Defect. S.* **150** 1
- [24] Shi C S, Chen Y H, Zhang G B, Xu X L, Tang H G 2002 *Chin. J. Lumin.* **23** 217 (in Chinese) [施朝淑, 陈永虎, 张国斌, 许小亮, 汤洪高 2002 *发光学报* **23** 217]
- [25] Nagirnyi V, Dolgov S, Grigonis R, Kirm M, Nagornaya L L, Savikhin F, Sirutkaitis V, Vielhauer S, A. Vasil'ev A 2010 *IEEE Trans Nucl. Sci.* **57** 1182

Theoretical analysis and experimental verification of scintillator luminescence nonlinearity based on carrier quenching model*

Wei Kun¹⁾²⁾ Hei Dong-Wei^{1)†} Liu Jun¹⁾ Xu Qing¹⁾

Weng Xiu-Feng¹⁾ Tan Xin-Jian¹⁾

1) (*State Key Laboratory of Intense Pulsed Radiation Simulation and Effect, Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China*)

2) (*Department of Engineering Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China*)

(Received 28 April 2021; revised manuscript received 12 August 2021)

Abstract

The scintillator detector is one of the most important detectors in the field of radiation detection and radiation physics. The characteristics and performance of scintillator that is a core part of the measurement system, are widely studied. Especially, the nonlinearity of scintillators under high excitation density has received more attention because of its direct influence on the measurement results. In this paper, physical modeling and experimental research on this problem are carried out in-depth.

First, the second-order quenching effect of excitons on the scintillator luminescence process is quantitatively analyzed based on the carrier dynamic equation. The luminescence attenuation curves of scintillator under different initial carrier concentrations generated by different excitation densities are obtained. The relationship of the light yield and the efficiency of scintillator with the initial carrier concentration is analyzed, and the results show that with the increase of the initial carrier concentration, the light yield tends to be saturated and the light efficiency decreases. Then CeF₃ scintillator is studied in the Z-scan photoluminescence experiment. The relationship between the light yield and the excitation density is obtained, and the experimental data can be fitted by the carrier quenching model well, which verifies the physical model. At the same time, the energy density threshold corresponding to the 10% nonlinearity of CeF₃ scintillator is obtained.

The physical model established in this paper can be used to predict and explain the nonlinear luminescence of various scintillation materials according to different parameters of crystal materials, which is important to understand and solve the nonlinearity problem of scintillators under high excitation density in practical application of radiation detection.

Keywords: scintillator nonlinearity, carrier quenching, photoluminescence

PACS: 29.40.-n, 71.35.Pq, 78.55.-m

DOI: 10.7498/aps.70.20210820

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11905173) and the Northwest Institute of Nuclear Technology Pre-research Project, China (Grant No. 13021901).

† Corresponding author. E-mail: heidw@nint.ac.cn