

退火温度对 CsI 薄膜闪烁特性的影响

程 峰^{1,2} 钟玉荣² 王宝义² 王天民³ 魏 龙²

1 (兰州大学物理科学与技术学院 兰州 730000)

2 (中国科学院高能物理研究所 北京 100049)

3 (北京航空航天大学理学院 北京 100083)

摘要 采用热蒸发法在玻璃衬底上沉积 CsI 薄膜, 然后进行不同温度的真空热处理。用 X 射线衍射仪、扫描电子显微镜对 CsI 薄膜样品进行分析, 测得 ²⁴¹Am 的脉冲高度谱, 通过单光子法测量样品的光产额。结果表明, 该 CsI 薄膜沿(200)晶面择优取向生长。退火温度对 CsI 薄膜的晶体结构和闪烁性能有很大的影响。CsI 薄膜经过 250℃退火后, (200)晶面衍射峰明显增强, 结晶状态最佳, 光产额最高, 而退火温度达 400℃时, 薄膜结构发生显著变化, 闪烁性能急剧下降。

关键词 CsI 薄膜, 热蒸发, 闪烁性能

中图分类号 O484.4, TL812+.1

CsI 是优良的闪烁晶体材料, 具有均匀性好、耐辐射、余辉小、自身放射性本底低等特点, 非常适用于高能物理实验、射线安全检查设备及中微子探测等低本底试验。CsI 能与硅光电二极管很好匹配, 具有体积小、电压低及抗磁场干扰的优点。因此, CsI 晶体及薄膜广泛应用于 X 射线成像、正电子发射断层成像、无损探伤、核物理和高能物理等领域^[1-5]。目前, CsI 薄膜的制备主要采用真空热蒸发^[6]、离子束溅射^[7]等。

尽管 CsI 薄膜应用较早, 但热处理对 CsI 薄膜闪烁性能的影响却鲜有研究。材料的结构性质取决于其制备方法和工艺条件, 因而我们将热蒸发沉积的 CsI 薄膜在不同条件下进行热处理, 以研究退火温度对 CsI 薄膜结构及性能的影响。

1 实验

采用北京仪器厂产 DMD-450 型镀膜机在玻璃衬底上热蒸发沉积 CsI 薄膜。用 CsI 粉末蒸发镀膜, 沉积前真空度为 9×10^{-4} Pa。将 CsI 薄膜样品分别在 200℃、250℃、300℃以及 400℃热处理 30 min, 真空度高于 5×10^{-5} Pa, 升温速度 3℃/min, 自然降温。

采用理学 D/max-2400 型 X 射线衍射仪(XRD)测试样品, X 射线源为 Cu K α 。采用飞利浦 FEI XL30 型扫描电子显微镜(SEM)观察样品形貌。用 CsI 薄膜样品和滨松 R3377 光电倍增管、ORTEC 572 放大器、ORTEC 921 多道分析器测量 ²⁴¹Am 的 γ 能谱,

并计算样品的光产额。

2 结果与讨论

图 1 是不同温度下热处理 CsI 薄膜样品的 XRD 谱。未退火 CsI 样品出现一个很强的(200)衍射峰, 表明该薄膜沿(200)晶面择优取向生长。由 XRD 数据计算可知, 退火温度低于 250℃时, CsI 薄膜的晶粒尺寸无变化, 高于 300℃, 薄膜中晶粒有所长大。经不同温度退火, CsI 薄膜的(200)衍射峰的强度发生明显变化。200℃热处理 CsI 薄膜的(200)衍射峰强度变小, 可能是较低温度退火使 CsI 薄膜中的缺陷聚集, 结晶状态变差, 导致(200)衍射峰强度变小。250℃退火样品的(200)衍射峰强度非常强, 显示了

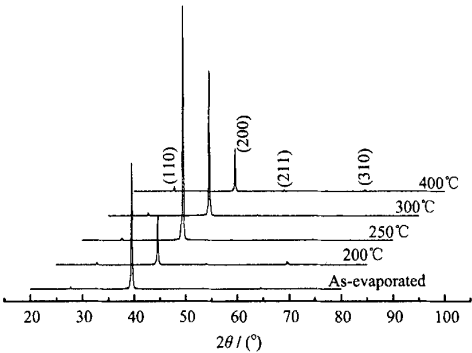


图 1 在不同温度下退火的 CsI 薄膜的 XRD 谱
Fig.1 XRD patterns of CsI films annealed at various temperatures

第一作者: 程峰, 男, 1974 年出生, 2004 年于兰州大学获硕士学位, 现为在读博士研究生
收稿日期: 2007-05-16, 修回日期: 2007-07-05

(200)晶面的择优取向进一步增强，同时 CsI 薄膜的结晶状态得到改善。300℃热处理样品的(200)衍射峰强度变小，可能是薄膜的晶粒长大、团聚等引起。400℃处理样品的(200)衍射峰强度更小，而其它衍射峰相对增强，可能是晶粒进一步长大、团聚的结果。

图 2 是 CsI 薄膜样品在真空退火前后的 SEM 照

片。CsI 薄膜呈柱状生长，垂直于衬底，表明热蒸发制备的 CsI 薄膜具有很强的择优生长取向。与未退火相比，250℃退火 CsI 薄膜晶粒尺寸并无太大变化，但 CsI 薄膜的结晶状态得到改善，这跟 XRD 结果比较符合。此外，400℃退火样品的 CsI 薄膜晶粒有明显的长大、团聚现象，并不再是柱状结构，且由于应力原因，导致薄膜内部出现微裂纹。

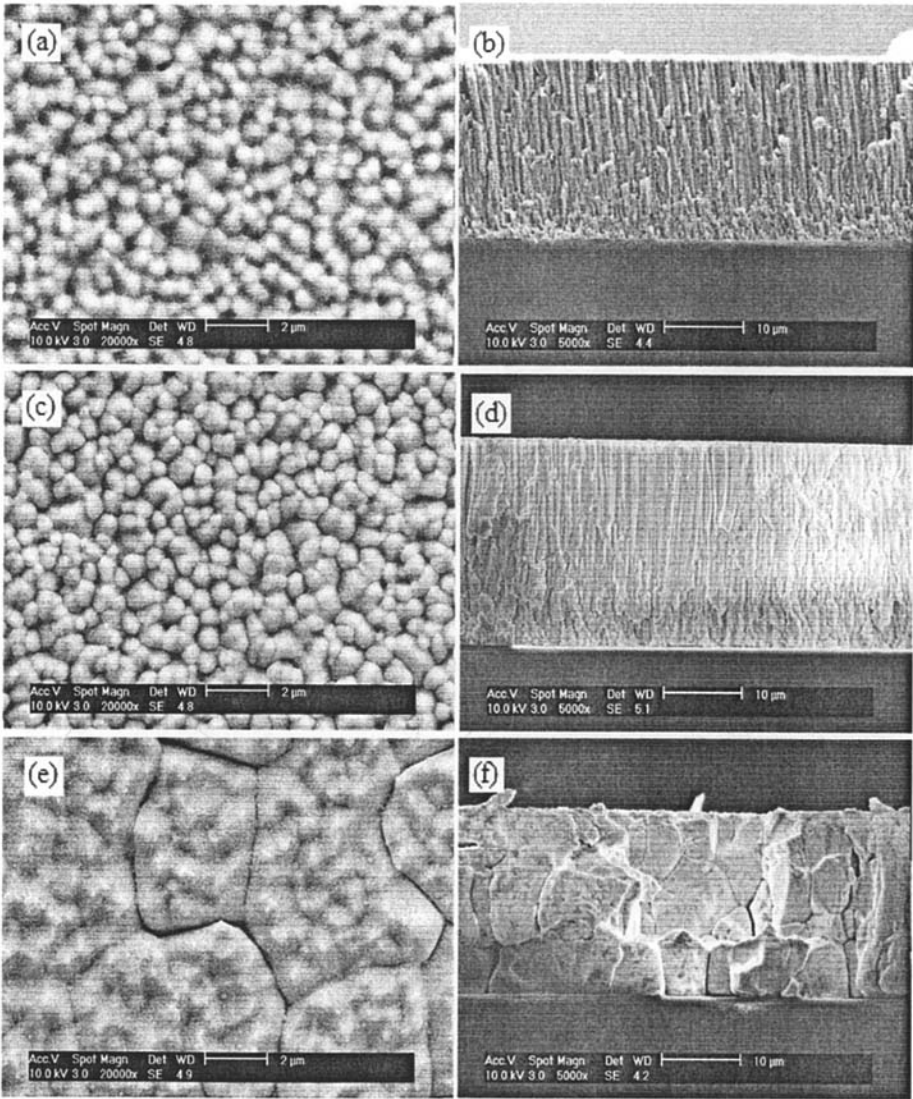


图 2 CsI 薄膜退火前后的 SEM 照片。(a)和(b): 未退火, (c)和(d): 250℃退火, (e)和(f): 400℃退火, 其中(b)、(d)、(f)为断面照片

Fig.2 SEM images of CsI films for the as-evaporated (a, b) and those annealed at 250℃ (c, d) and 400℃ (e, f). (b), (d) and (f) stand for the cross-sectional views

图 3 是用上述 CsI 薄膜样品和 CsI 晶体测得的 ^{241}Am γ 能谱(其 0.2 mm 厚的有机玻璃封装足以吸收其 α 粒子)。CsI 晶体的 γ 能谱的峰 1 由 ^{241}Am 的 $L_{\alpha 1}$ 、 $L_{\alpha 2}$ 、 $L_{\beta 1}$ 、 $L_{\beta 2}$ 、 $L_{\gamma 1}$ 能量叠加形成, 峰 2 为 26.4 keV, 峰 3 为 59.6 keV。CsI 薄膜的 γ 能谱的峰 3 很不明显, 这是因为, CsI 晶体厚, 对 59.6 keV 能量射线吸收多; CsI 薄膜吸收的高能射线少, 激发出的光子少。随着退火温度的上升, CsI 薄膜样品峰 1 的峰位先增大, 后缩小, 250℃退火样品具有最大值, 且半高宽最小, 也即能量分辨率最好。400℃退火样品的峰位急剧下降, 已不见峰 2 及峰 3。由图 2(e), 2(f), CsI 薄膜已不再是柱状结构晶粒, 薄膜中也存在较多缺陷, 使 ^{241}Am 的 γ 光子在薄膜中发生严重的散射和反射, 探测到的光子数目下降。

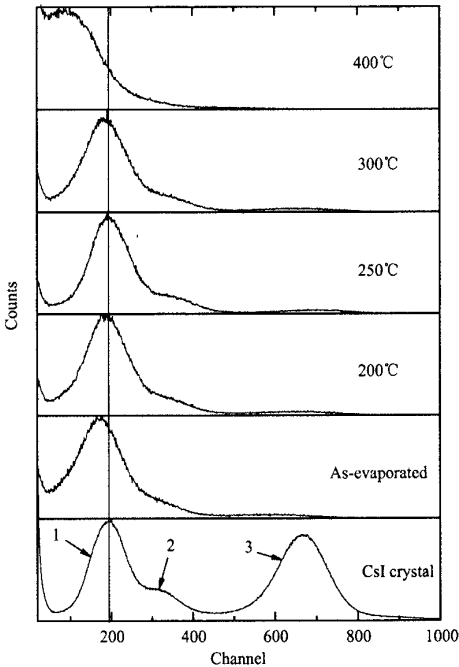


图 3 CsI 薄膜样品与晶体测得的 ^{241}Am γ 能谱
Fig.3 Energy spectra of ^{241}Am γ -rays detected by the CsI films and a CsI crystal

用单光子测量光产额的方法测得不同温度退火 CsI 的光电子产额(图 4)。随着退火温度上升, CsI 薄膜的光产额先增大后减小, 250℃退火 CsI 薄膜具有最大值, 400℃退火样品的光产额急剧下降。当 CsI 薄膜晶粒为柱状结构时, 其被射线激发产生的光子可在柱状晶中传播, 光电倍增管探测到较多光子。由图 1、图 2, 退火温度低于 300℃的 CsI 薄膜为柱状晶体结构, 250℃退火的 CsI 薄膜具有最好的

结晶状态, 故光产额最大(3000 光电子/MeV)。400℃退火样品的晶粒不再是柱状晶体结构, 存在微裂纹等缺陷, 光产额急剧下降。

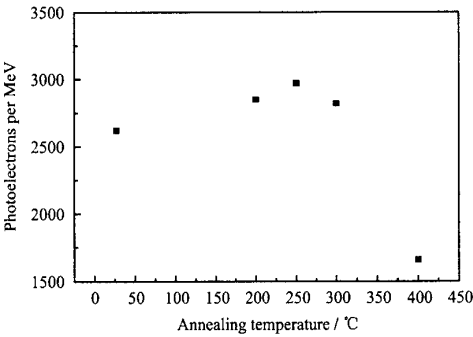


图 4 不同退火温度下的光电子产额
Fig.4 Light yield vs annealing temperature

3 结论

采用热蒸发法制备 CsI 薄膜, 研究退火条件对薄膜结构和闪烁性能的影响。结果表明, 所制备的 CsI 薄膜为柱状晶体结构, 沿(200)晶面择优取向生长。当退火温度为 250℃时, 样品的结晶状态最好, 闪烁性能最佳, 具有较好的能量分辨, 光电子产额达 3000 光电子/MeV; 当退火温度高于 250℃时, 择优取向的 CsI 薄膜发生晶粒长大、团聚等现象, 出现微裂纹等缺陷, 闪烁性能变差, 光产额降低, 能量分辨变差。

参考文献

- 1 Nagarkar V V, Gordon J S, Vasile S, *et al.* IEEE Trans on Nucl Sci, 1996, **43**(3): 1559 – 1563
- 2 Nagarkar V V, Gupta T K, Miller S R, *et al.* IEEE Trans on Nucl Sci, 1998, **45**(3): 492 – 496
- 3 Fioretto E, Innocenti F, Viesti G, *et al.* IEEE Trans on Nucl Sci, 2000, **47**(4): 1315 – 1318
- 4 Garibaldia F, Cisbania E, Cusanno F, *et al.* Nucl Instrum Methods A, 2004, **525**(1-2): 263 – 267
- 5 孙长春, 李家才, 姚淑德, 等. 核电子学与探测技术, 2004, **24**(4): 376 – 378
SUN Changchun, LI Jiakai, YAO Shude, *et al.* Nucl Electron Detect Technol, 2004, **24**(4): 376 – 378
- 6 Fedorov A, Lebedinsky A, Zelenskya O. Nucl Instrum Methods A, 2006, **564**(1): 328 – 331
- 7 Nitti M A, Valentini A, Senesi G S, *et al.* Appl Phys A-Mater Sci Process, 2005, **80**(8): 1789 – 1791

Effects of annealing temperature on scintillation properties of thermally evaporated CsI films

CHENG Feng^{1,2} ZHONG Yurong² WANG Baoyi² WANG Tianmin³ WEI Long²

1 (School of Physical Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China)

2 (Institute of High Energy physics, Chinese Academy of Science, Beijing 100049, China)

3 (School of Science, Beijing University of Aeronautics and Astronautics, Beijing 100083, China)

Abstract CsI films were prepared on glass substrates by thermal evaporation and annealed under various temperature. Structure and scintillation properties of films were examined using X-ray diffraction, scanning electron microscope and scintillation pulse height spectrometry. The results show that the crystalline structure and scintillation properties of the CsI films depend on the annealing temperature. The samples annealed at 250°C have a good crystalline state and scintillation properties. As the annealing temperature goes up to 400°C, the light output of samples decreases seriously.

Key words CsI films, Thermal evaporation, Scintillation properties

CLC O484.4, TL812⁺.1