



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 102690113 A

(43) 申请公布日 2012. 09. 26

(21) 申请号 201210182586. 9

(22) 申请日 2012. 06. 06

(71) 申请人 上海大学

地址 200444 上海市宝山区上大路 99 号

(72) 发明人 施鹰 许健 谢建军 雷芳

马飞中 范灵聪

(74) 专利代理机构 上海上大专利事务所(普通合伙) 31205

代理人 顾勇华

(51) Int. Cl.

C04B 35/44 (2006. 01)

C04B 35/622 (2006. 01)

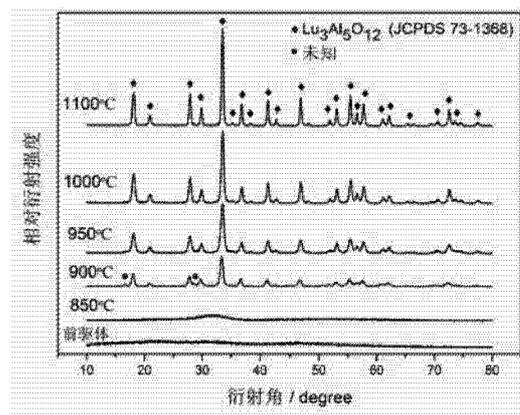
权利要求书 1 页 说明书 5 页 附图 7 页

(54) 发明名称

镧铝石榴石透明闪烁陶瓷的低温真空烧结制备方法

(57) 摘要

本发明涉及一种 Ce<sup>3+</sup> 掺杂镧铝石榴石 (Ce:Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>) 透明闪烁陶瓷的低温真空烧结制备方法。本发明方法的特点是以碳酸氢铵作为沉淀剂, 以高纯度 Lu(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>, Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>, Ce(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> 的混合溶液为起始反应溶液, 采用反滴定工艺, 通过加入少量 HPC 作为分散剂同时对煅烧后的粉体采用球磨方法进一步减少粉体间的团聚从而获得了高烧结活性, 分散性好、团聚少、粒径小的多晶纳米粉体, 再利用上述粉体在真空条件下成功制备出了高质量的透明闪烁陶瓷。制备出的透明陶瓷透明性好, 衰减时间达到纳秒级 (30ns), 闪烁性能优异, 是一种很有前途的可应用于医学、高能物理、地质勘探等领域的闪烁材料。



1. 镨铝石榴石透明闪烁陶瓷的低温真空烧结制备方法,其特征在于该制备方法具有以下工艺步骤:

A. 制备的材料组分具有以下的化学计量比  $(\text{Lu}_{1-x}\text{Ce}_x)_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  其中  $x=0.001-0.02$ ;

B. 前驱体的制备:将浓度为 0.7400M 的  $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3$ ,浓度为 0.9867M 的  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ ,浓度为 0.5220M 的  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$  的混合溶液采用反滴定工艺以 1-5ml/min 的速度滴加至室温下磁力搅拌的浓度为 2M 的  $\text{NH}_4\text{HCO}_3$  溶液中,加入 0.1-1.0wt% 羟丙基纤维素作为分散剂以减少在滴定过程中的前驱体团聚现象,滴定终点 pH 控制在 7-9 范围内,陈化 24 小时后,将沉淀过滤、用去离子水和无水乙醇洗涤多次后于 80°C 烘箱中干燥 36h,烘干的饼块在高纯度  $\text{Al}_2\text{O}_3$  研钵中研磨后过 200 目筛;

C. 粉体的制备:将上述前驱体放入高纯度  $\text{Al}_2\text{O}_3$  坩埚中在马弗炉中空气气氛下 850-1300°C 煅烧 2h,降温为自然降温,然后将煅烧后的粉体按粉:乙醇:球磨子的质量比为 1:0.6-1.2:3.5-5.5 的比例按两种不同尺寸高纯度  $\text{ZrO}_2$  球磨子配合的方式采用行星球磨法球磨 4-24h,随后于 80°C 烘箱中干燥 12h,过 200 目筛,将过筛后的粉体放入  $\text{Al}_2\text{O}_3$  坩埚中空气气氛下 700°C 煅烧 4-20h,排除在球磨过程中可能引入的有机物杂质;

D. 陶瓷的制备:将上述粉体经 2-6MPa 干压压制成直径 20mm 的圆片,之后经 150-250MPa 等静压进一步压制;素坯置于真空度  $5 \times 10^{-3}\text{Pa}-0.5 \times 10^{-3}\text{Pa}$  下烧结,烧结温度为 1550-1850°C,保温时间 4-40h;随后将烧结后的陶瓷在空气气氛中长时间退火,退火温度为 1050-1550°C,保温时间 5-100h,将退火处理后的陶瓷进行机械研磨加工和光学抛光。

## 镱铝石榴石透明闪烁陶瓷的低温真空烧结制备方法

### 技术领域

[0001] 本发明涉及一种  $\text{Ce}^{3+}$  掺杂镱铝石榴石 ( $\text{Ce}:\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ) 透明闪烁陶瓷的低温真空烧结制备方法,属光学功能陶瓷制备技术领域。

### 背景技术

[0002] 近年来,随着 X-CT、PET 和心血管造影术 (DSA) 等医用成像技术的发展与普及对新型高密度、高光输出、快衰减无机闪烁体提出了日益迫切的需求。 $\text{Ce}$  掺杂的闪烁体材料集众多优点(如阻止本领大、衰减速度快、光产额高)于一身,其中  $\text{Ce}$  掺杂的镱基闪烁体如  $\text{LuAlO}_3$  (LuAP)、 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (LuAG)、 $\text{Lu}_2\text{SiO}_5$  (LSO) 都属于极有前途的快发光闪烁晶体。由于在镱系元素离子中  $\text{Ce}^{3+}$  具有  $4f^1$  电子组态,它的发光性质不同于其他的三价稀土离子,属于  $4f-5d$  电偶极跃迁,其荧光寿命非常短,因此可以满足目前新型成像探测技术对新型无机闪烁材料的性能要求。

[0003] 镱铝石榴石 ( $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ , LuAG) 属立方晶系,空间群为  $O_h^{10}-\text{Ia}3d$ ,每个晶胞中含 8 个化学式量,因此其结构是由一些相互连结着的正四面体和正八面体组成的。这些正四面体和正八面体的角上都是  $\text{O}^{2-}$  离子,而其中心都是  $\text{Al}^{3+}$ ,这些正四面体和正八面体连结起来构成较大的空隙,这些空隙呈畸变立方体,其中心由  $\text{Lu}^{3+}$  占据着。稳定的立方晶格结构和优良的物理化学性质使 LuAG 成为一种性能优异的发光基体材料,如高密度,  $\rho = 6.73\text{g}/\text{cm}^3$ ,快速闪烁响应,荧光寿命主成分为 60-80ns ( $\text{Ce}^{3+}$  的  $5d-4f$  辐射跃迁发射波长位于 500-550nm),另外光输出也达到 12-14,000 phot/MeV (BGO 单晶闪烁体的 150%) 绝大多数 LuAG 闪烁体都是通过单晶生长的方式获得的,2003 年 Yoshikawa 等人以高纯的 (99.99%)  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  和  $\text{Y}_2\text{O}_3$  为原料,用 u-PD 法生长出了  $\text{Yb}^{3+}$  掺杂的 LuAG 单晶,并研究得出当  $T=80\text{K}$  时,在 340nm 发射波长处的快速发光衰减时间为 24ns。随着温度的升高,  $\text{Yb}^{3+}$  的电荷迁移 (CT) 发光强度和衰减发生严重猝灭。然而 LuAG 单晶几乎全部通过直拉法在 Ir 坩埚中慢速生长得到,很难有效地控制  $\text{Ce}^{3+}$  在基质中的均匀有效掺杂、成本高、周期长。2006 年上海硅酸盐研究所的李会利采用尿素作为沉淀剂的均相沉淀方法成功制备出了性能与单晶相当的  $\text{Ce}:\text{LuAG}$  多晶闪烁透明陶瓷,从而为 LuAG 闪烁体开辟了新的材料形态和制备途径。为了获得高透明性的 LuAG 多晶陶瓷来取代单晶,需要首先制备无团聚或极少团聚的超细粉体,目前常用的制备 LuAG 粉体的方法主要是采用直接混合  $\text{Al}_2\text{O}_3$  和  $\text{Lu}_2\text{O}_3$  的固相反应合成法,这种方法需要高于  $1600^\circ\text{C}$  的反应温度而且需要较长的反应时间。而共沉淀法作为一种湿化学法可以很方便地合成高烧结活性的陶瓷粉体。

[0004] 利用制备出的高烧结活性的陶瓷粉体通过冷等静压和真空烧结技术以及合理的退火制度就可以制备出高光学质量的 LuAG 透明陶瓷,目前国际上采用真空烧结技术无烧结助剂的情况下制备稀土掺杂 LuAG 透明陶瓷的烧结温度一般在  $1800-1900^\circ\text{C}$ 。

[0005] 发明内容:

本发明的目的在于提供一种改进后的共沉淀方法结合真空烧结工艺在较低的烧结温度下 ( $1750^\circ\text{C}$ ) 制备  $\text{Ce}^{3+}$  离子掺杂的镱铝石榴石 ( $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ) 多晶透明闪烁陶瓷。

[0006] 本发明主要以硝酸镧、硝酸铝、硝酸铈为原料,以碳酸氢铵为沉淀剂、以羟丙基纤维素(HPC)为分散剂,采用反滴定共沉淀方法结合真空烧结工艺制备高光学质量、闪烁性能优异的  $Ce^{3+}$  离子掺杂的镧铝石榴石( $Ce:Lu_3Al_5O_{12}$ )多晶透明闪烁陶瓷。

[0007] 本发明是一种  $Ce^{3+}$  掺杂镧铝石榴石( $Ce:Lu_3Al_5O_{12}$ )透明闪烁陶瓷的制备方法,其特征在于

于该制备方法具有以下的制备过程和步骤:

A. 制备的材料组分具有以下的化学计量比  $(Lu_{1-x}Ce_x)_3Al_5O_{12}$  其中  $x = (0.001-0.02)$

B. 前驱体的制备:将  $Lu(NO_3)_3$ ,  $Al(NO_3)_3$ ,  $Ce(NO_3)_3$  的混合溶液采用反滴定工艺(即阳离子的母盐溶液滴加至沉淀剂溶液中)以 1-5ml/min 的速度滴加至室温下磁力搅拌的浓度为 2M 的  $NH_4HCO_3$  溶液中,加入 0.1-1.0 wt% 羟丙基纤维素(HPC)作为分散剂以减少在滴定过程中的前驱体团聚现象,滴定终点 pH 控制在 7-9 范围内,陈化 24 小时后,将沉淀过滤、用去离子水和无水乙醇洗涤多次后于 80°C 烘箱中干燥 36h,烘干的饼块在高纯度  $Al_2O_3$  研钵中研磨后过 200 目筛。

[0008] C. 粉体的制备:将上述前驱体放入高纯度  $Al_2O_3$  坩埚中在马弗炉中空气气氛下 850-1300°C 煅烧 2h,降温为自然降温,然后将煅烧后的粉体按粉:乙醇:球磨子(质量比) 1:(0.6-1.2):(3.5-5.5)的比例按两种不同尺寸高纯度  $ZrO_2$  球磨子配合的方式采用行星球磨法球磨 4-24h,随后于 80°C 烘箱中干燥 12h,过 200 目筛,将过筛后的粉体放入  $Al_2O_3$  坩埚中空气气氛下 700°C 煅烧 4-20h,排除在球磨过程中可能引入的有机物杂质。

[0009] D. 陶瓷的制备:将上述粉体经 2-6MPa 干压压制直径 20mm 的圆片,此过程无需添加任何粘结剂,之后经 150-250MPa 等静压进一步压制。素坯置于真空条件(真空度  $(5-0.5) \times 10^{-3} Pa$ )常压烧结,烧结温度为 1550°C-1850°C,保温时间 4-40h。随后将烧结后的陶瓷在空气气氛中长时间退火,退火温度为 1050-1550°C,保温时间 5-100h 以上,将退火处理后的陶瓷进行机械研磨加工和光学抛光。

[0010] 附图说明:

图 1 为粉末前驱体以及前驱体在不同温度下煅烧 2h 后的粉末样品的 XRD 图及与标准镧铝石榴石( $Lu_3Al_5O_{12}$ )PDF 卡片(JCPDS 73-1368)的对比。

[0011] 图 2 为 1000°C 温度下煅烧 2h 后的粉体经过球磨处理前后的 SEM 和 TEM 图。

[0012] 图 3 为不同温度下煅烧 2h 后粉体的比表面积和对应的颗粒尺寸图。

[0013] 图 4 为抛光后的的两类陶瓷样品的实物照片( $\Phi 14 mm \times 0.7mm$ )其中 A 样品没有经过空

气中长时间高温退火处理, B 样品经过了空气中长时间高温退火处理(1450°C × 20h)。

[0014] 图 5 为 1750°C 温度下保温 10h 烧结成型的 Ce:LuAG 陶瓷的 XRD 图。

[0015] 图 6 为样品 A 和样品 B 的透过率曲线对比。

[0016] 图 7 为抛光后的 Ce:LuAG 陶瓷的热腐蚀表面以及断口的 SEM 形貌。

[0017] 图 8 为样品 A 和样品 B 的 X 射线激发下的发射光谱图对比。

[0018] 图 9 为 0.5at%Ce:LuAG 陶瓷的发光衰减与指数拟合曲线图。

[0019] 具体实施方式:

现将本发明的具体实施例详述于后:

实施例 1. ①(制备 0.5at%Ce:LuAG 粉末前驱体)

将  $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3$ ,  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ ,  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$  的混合溶液按化学计量  $\text{Lu}_{2.985}\text{Ce}_{0.015}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  进行配比,其中用量筒和滴定管量取  $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3 = 201.69\text{ml}$ ,  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 = 253.37\text{ml}$ ,  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 = 1.44\text{ml}$ ,其中  $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3$  溶液的浓度为  $0.7400\text{M}$ 、 $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$  浓度为  $0.9867\text{M}$ 、 $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$  为  $0.5220\text{M}$ ,随后加入去离子水  $1200\text{ml}$  保证  $\text{Al}^{3+}$  的浓度为  $0.15\text{M}$ ,再加入  $0.342\text{g}$  HPC 作为分散剂,将混合溶液在烧杯中搅拌 30 分钟直至混合均匀,然后在室温下将混合溶液以  $2\text{ml}/\text{min}$  的速度滴加至预先配制好的浓度为  $2\text{M}$  的碳酸氢铵溶液中,整个滴定过程都使用磁力搅拌器不间断搅拌,滴定终点 PH 控制在 8 左右,陈化 24 小时后过滤、水洗四次醇洗三次后于  $80^\circ\text{C}$  烘箱中干燥 36h,烘干的饼块在高纯度  $\text{Al}_2\text{O}_3$  研钵中研磨后过 200 目筛。

#### [0020] ②(制备 0.5at%Ce:LuAG 多晶粉体)

将上述前驱体放入高纯度  $\text{Al}_2\text{O}_3$  坩埚中在马弗炉中空气气氛下  $1000^\circ\text{C}$  煅烧 2h,降温为自然降温,然后将煅烧后的粉体按粉:乙醇:球磨子(质量比) 1:1:5 的比例按 3mm 和 5mm 两种尺寸高纯度  $\text{ZrO}_2$  球磨子配合的方式采用行星球磨法球磨 4h,其中粉体质量  $42.8\text{g}$ ,酒精  $53.5\text{ml}$ ,3mm 球磨子  $142.67\text{g}$ ,5mm 球磨子  $71.33\text{g}$ ,球磨后的粉体于  $80^\circ\text{C}$  烘箱中干燥 12h,过 200 目筛,将过筛后的粉体放入  $\text{Al}_2\text{O}_3$  坩埚中空气气氛下  $700^\circ\text{C}$  煅烧 6h,排除在球磨过程中可能引入的有机物杂质

#### ③(制备 0.5at%Ce:LuAG 多晶透明陶瓷)

将上述粉体经  $5\text{MPa}$  干压压制成直径  $20\text{mm}$  的圆片,此过程无需添加任何粘结剂,之后经  $200\text{MPa}$  等静压进一步压制。素坯置于真空条件(真空度  $< 10^{-3}\text{Pa}$ )常压烧结,烧结温度为  $1750^\circ\text{C}$ ,保温时间 10h。随后将烧结后的陶瓷在空气气氛中长时间退火,退火温度为  $1450^\circ\text{C}$ ,保温时间 20h,将退火处理后的陶瓷进行精密机械加工和光学抛光,最终获得高光学质量的 Ce:LuAG 透明闪烁陶瓷。

#### [0021] 实施例 2. ①(制备 1.0at%Ce:LuAG 粉末前驱体)

将  $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3$ ,  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ ,  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$  的混合溶液按化学计量  $\text{Lu}_{2.97}\text{Ce}_{0.03}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  进行配比,其中用量筒和滴定管量取  $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3 = 200.68\text{ml}$ ,  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 = 253.37\text{ml}$ ,  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 = 2.88\text{ml}$ ,其中  $\text{Lu}(\text{NO}_3)_3$  溶液的浓度为  $0.7400\text{M}$ 、 $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$  浓度为  $0.9867\text{M}$ 、 $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$  为  $0.5220\text{M}$ ,随后加入去离子水  $1200\text{ml}$  保证  $\text{Al}^{3+}$  的浓度为  $0.15\text{M}$ ,再加入  $0.342\text{g}$  HPC 作为分散剂,将混合溶液在烧杯中搅拌 30 分钟直至混合均匀,然后在室温下将混合溶液以  $2\text{ml}/\text{min}$  的速度滴加至预先配制好的浓度为  $2\text{M}$  的碳酸氢铵溶液中,整个滴定过程都使用磁力搅拌器不间断搅拌,滴定终点 PH 控制在 8 左右,陈化 24 小时后过滤、水洗四次醇洗三次后于  $80^\circ\text{C}$  烘箱中干燥 36h,烘干的饼块在高纯度  $\text{Al}_2\text{O}_3$  研钵中研磨后过 200 目筛。

#### [0022] ②(制备 1.0at%Ce:LuAG 多晶粉体)

将上述前驱体放入高纯度  $\text{Al}_2\text{O}_3$  坩埚中在马弗炉中空气气氛下  $1000^\circ\text{C}$  煅烧 2h,降温为自然降温,然后将煅烧后的粉体按粉:乙醇:球磨子(质量比) 1:1:5 的比例按 3mm 和 5mm 两种尺寸高纯度  $\text{ZrO}_2$  球磨子配合的方式采用行星球磨法球磨 4h,其中粉体质量  $42.8\text{g}$ ,酒精  $53.5\text{ml}$ ,3mm 球磨子  $142.67\text{g}$ ,5mm 球磨子  $71.33\text{g}$ ,球磨后的粉体于  $80^\circ\text{C}$  烘箱中干燥 12h,过 200 目筛,将过筛后的粉体放入  $\text{Al}_2\text{O}_3$  坩埚中空气气氛下  $700^\circ\text{C}$  煅烧 6h,排除在球磨过程中可能引入的有机物杂质

#### ③(制备 1.0at%Ce:LuAG 多晶透明陶瓷)

将上述粉体经  $5\text{MPa}$  干压压制成直径  $20\text{mm}$  的圆片,此过程无需添加任何粘结剂,之后

经 200MPa 等静压进一步压制。素坯置于真空条件(真空度 $< 10^{-3}$ Pa)常压烧结,烧结温度为 1750°C,保温时间 10h。随后将烧结后的陶瓷在空气气氛中长时间退火,退火温度为 1450°C,保温时间 20h,将退火处理后的陶瓷进行精密机械加工和光学抛光,最终获得高光学质量的 Ce:LuAG 透明闪烁陶瓷。

[0023] 有关本发明中所作的各种仪器检测结果列出于附图中。

[0024] 图 1 为粉末前驱体以及前驱体在不同温度下煅烧 2h 后的粉末样品的 XRD 图,可以看出前驱体为无定形态,没有结晶相存在,经过 850°C 煅烧之后,开始有微弱的结晶峰出现,但主要仍为无定形态。在经过 900°C 煅烧后,出现明显的 LuAG 特征衍射峰,同时还存在极少量的未知峰,当温度升高至 1000°C 时,未知峰消失,粉体为纯的 LuAG 相,与标准卡片(JCPDS 73-1368)上衍射峰的位置一一对应。继续升高煅烧温度至 1100°C,衍射峰位置保持不变,但衍射强度有所增加,这是由于随着温度的升高,晶粒逐渐长大,LuAG 粉末具有了更好的结晶性。

[0025] 图 2 为 1000°C 温度下煅烧 2h 后的粉体经过球磨处理前后的 SEM 和 TEM 图。其中图 A 和 B 为粉体球磨前的形貌,可以看出在经过 1000°C 高温煅烧 2h 后,粉体之间出现比较明显的粘连,影响了粉体的分散性和均匀性,图 C 和 D 表明在经过球磨处理之后(行星式球磨 4h),粉体与粉体之间的粘连情况得到了非常大的改善,粉体呈球型,粒径为 20nm 左右,分散性和均匀性比球磨之前有很大的提高。

[0026] 图 3 为不同温度下煅烧 2h 后粉体的比表面积和对应的颗粒尺寸图,可以看出随着粉体煅烧温度的提高,晶粒逐渐长大,粉体的比表面积逐渐减小,对应的颗粒尺寸逐渐增大,粉体团聚情况加重。

[0027] 图 4 为抛光后的的两类陶瓷样品的实物照片( $\Phi 14 \text{ mm} \times 0.7 \text{ mm}$ )其中 A 样品没有经过空气中长时间高温退火处理,B 样品经过了空气中长时间高温退火处理

(1450×20h)。可以看出两类样品都拥有比较优异的光学透过率,透过陶瓷样品可以很清晰的看到背面的字体。

[0028] 图 5 为 1750°C 温度下保温 10h 烧结成型的 Ce:LuAG 陶瓷的 XRD 图,可以看出制备出的陶瓷样品为纯的 LuAG 相,与标准卡片(JCPDS 73-1368)上  $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  衍射峰的位置一一对应,说明作为掺杂离子的  $\text{Ce}^{3+}$  离子很好的固溶在晶格当中。

[0029] 图 6 为样品 A (没有经过退火处理)和样品 B (经过退火处理)的透过率曲线对比。发现样品 A 具有较好的透过率,在 550nm 处透过率达到 73.48%,衰减系数为  $0.2084 \text{ mm}^{-1}$ ,具有优异的光学质量,相同条件下的样品在 1450°C 下退火 20h 发现其透过率有一定程度的下降(550nm 处为 68.56%,衰减系数为  $0.324 \text{ mm}^{-1}$ )可以看出长时间的退火可以引入了某些晶格缺陷导致了样品透过率的下降。其中 450nm 和 345nm 位置的吸收对应于  $\text{Ce}^{3+}$  离子的 4f-5d 特征吸收。

[0030] 图 7 抛光后的 Ce:LuAG 陶瓷的热腐蚀表面以及断口的 SEM 形貌,A 为热腐蚀表面形貌图,采用的腐蚀工艺为 1400×2h,从图中可以看出,陶瓷表面的晶界轮廓清晰,晶界与晶粒上并没有任何第二相的出现,同时晶粒尺寸分布均匀,大小约为 10 $\mu\text{m}$  左右,没有异常长大的二次晶粒存在。B 为陶瓷断口形貌,可以看出陶瓷的断口断裂形式主要为沿晶断裂,少量为穿晶断裂,不管何种断裂形式,在图中几乎无法看到微气孔的存在,说明陶瓷烧结过程中致密化程度很高,气孔排除率高,这也直接决定了所制得的样品具有比较好的光学透

过性。

[0031] 图 8 为样品 A 和样品 B 在 X 射线激发下 (75kv 25mA) 的发射光谱对比,可以看出退火之后的样品 B 的发射强度是样品 A 发射强度的 2 倍以上。说明经过空气气氛下长时间高温退火处理之后 (1450×20h), 原来由于真空烧结过程中产生的氧空位和晶体内部应力缺陷得到了很好的弥补和改善, 陶瓷组分更接近于理论的 Lu:Al=3:5 的化学式比例, 主发射峰为 460-700 的一个宽发射带, 通过高斯拟合发现其由两个发射带组成, 中心位置分别为 516 和 555nm, 对应于 Ce<sup>3+</sup> 最低的晶体场分裂成分 5d<sub>1</sub> 向 4f 基态 (<sup>2</sup>F<sub>5/2</sub> 和 <sup>2</sup>F<sub>7/2</sub>) 的发射跃迁所引起的。

[0032] 图 9 为 0.5at% Ce:LuAG 透明闪烁陶瓷的发光衰减与指数拟合曲线图, 由图可以看出, 其衰减曲线可以拟合成二指数项函数:

$$I = I_1 \exp(-t_1/\tau_1) + I_2 \exp(-t_2/\tau_2) + C \quad (1)$$

其衰减时间可以拟合成  $I=66.4\exp[-t/2.35\text{ns}]+595\exp[-t/36.1]+21.2$ , 其由两部分组成, 一部分为 2.35ns 的快分量, 约占总衰减的 10% 左右, 另一部分为 36.1ns 的分量, 约占总衰减的 90% 左右, 这与 Ce:LuAG 单晶 (63ns) 几乎相当。这么短的衰减时间满足快衰减闪烁体的要求, 说明所制备的 Ce 掺杂 LuAG 透明闪烁陶瓷是一种很有前途的闪烁材料。

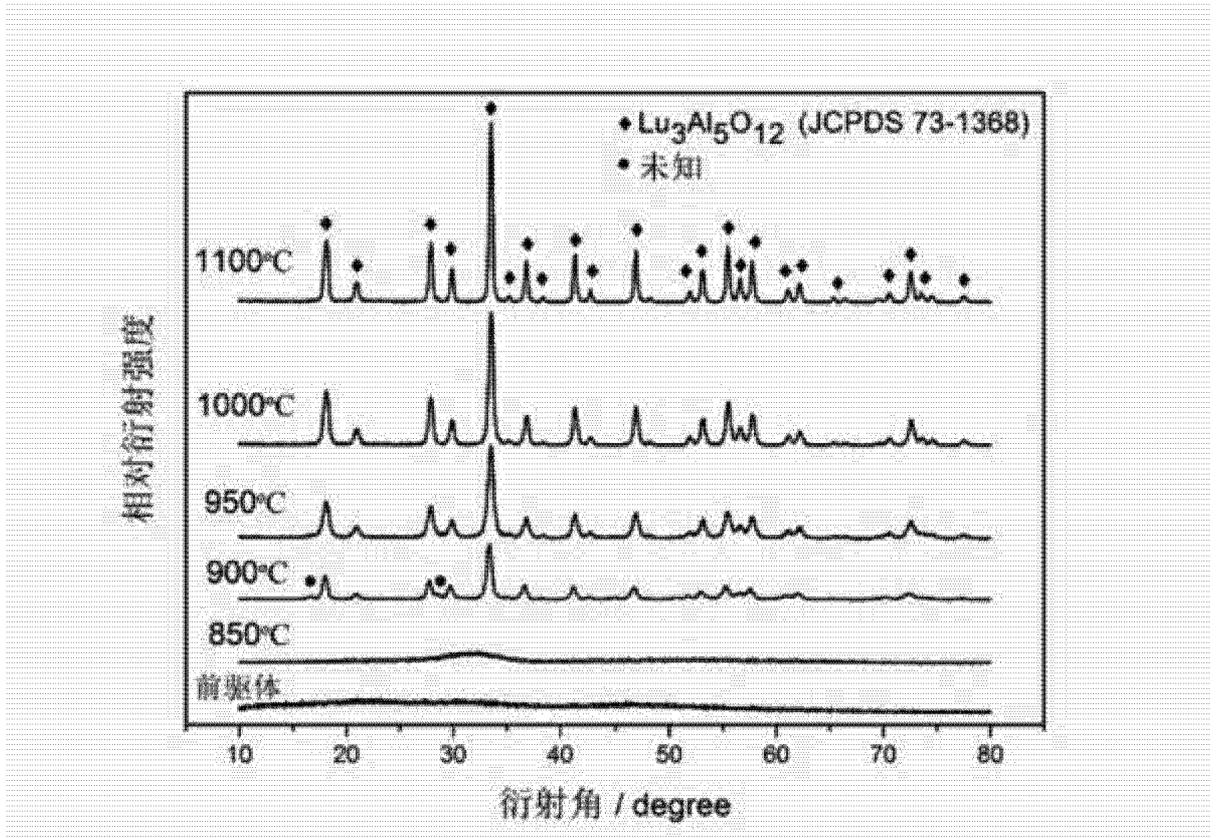


图 1

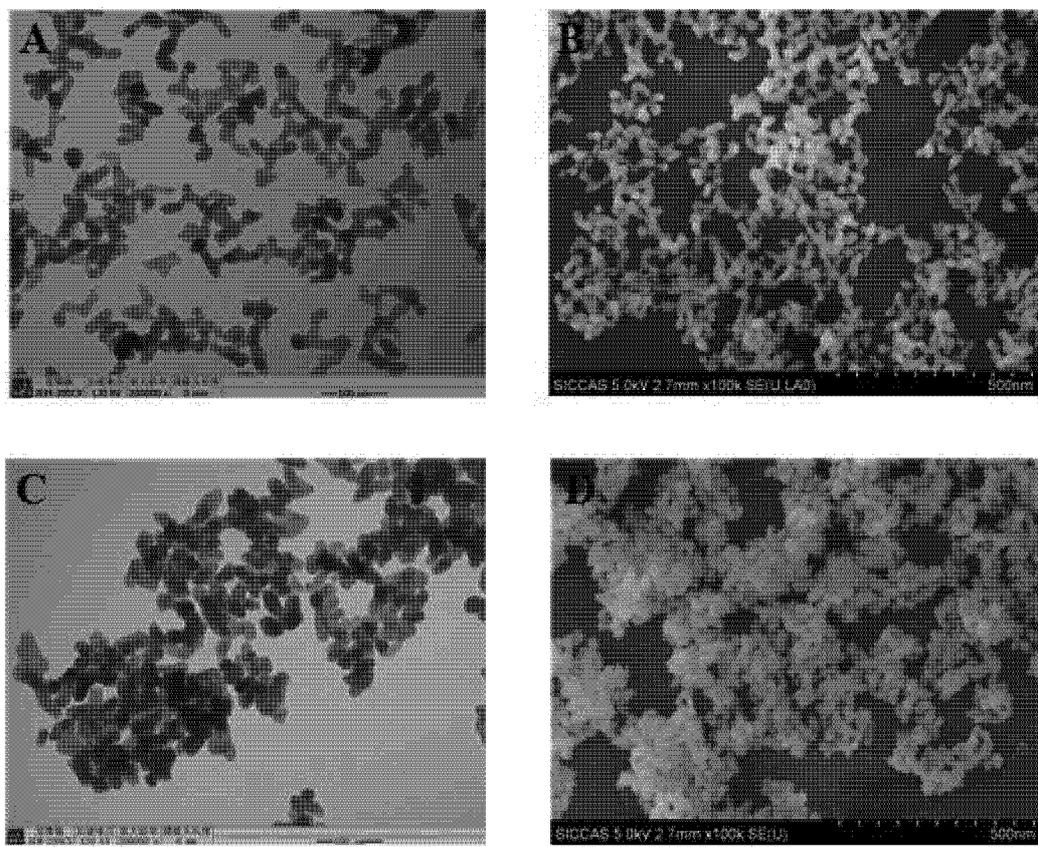


图 2

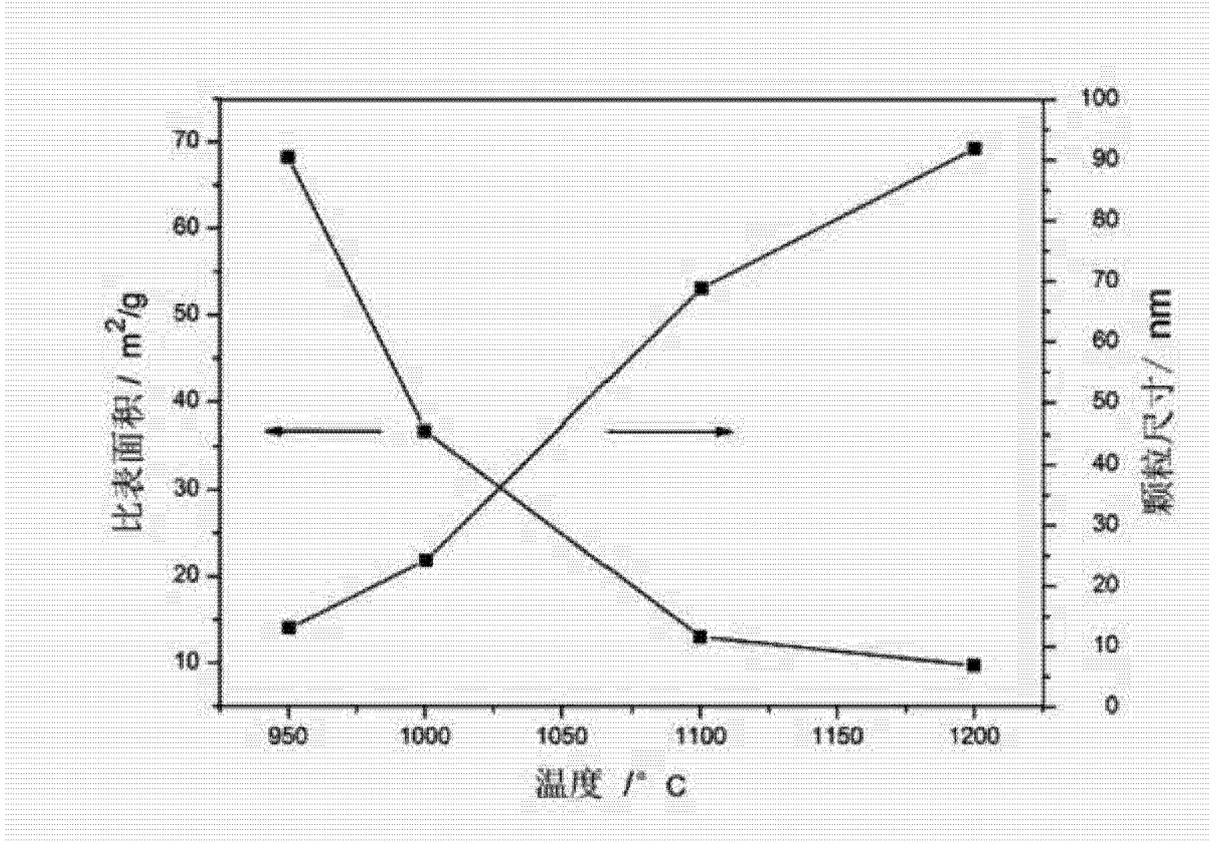


图 3

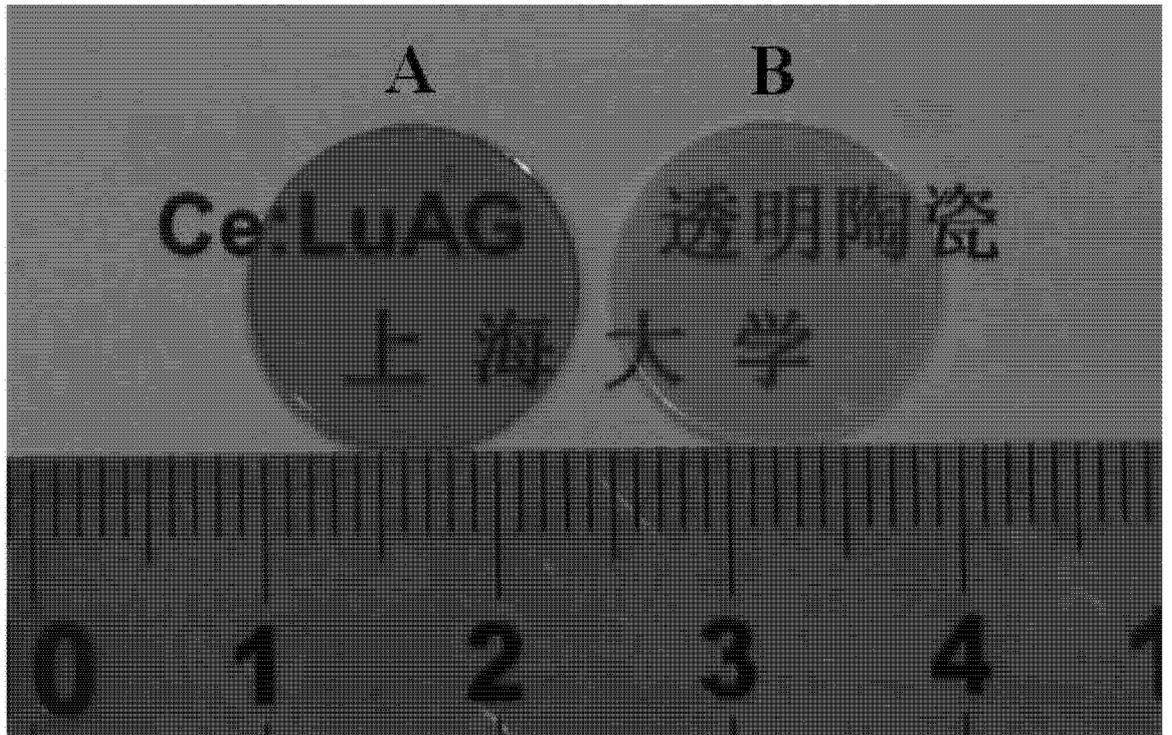


图 4

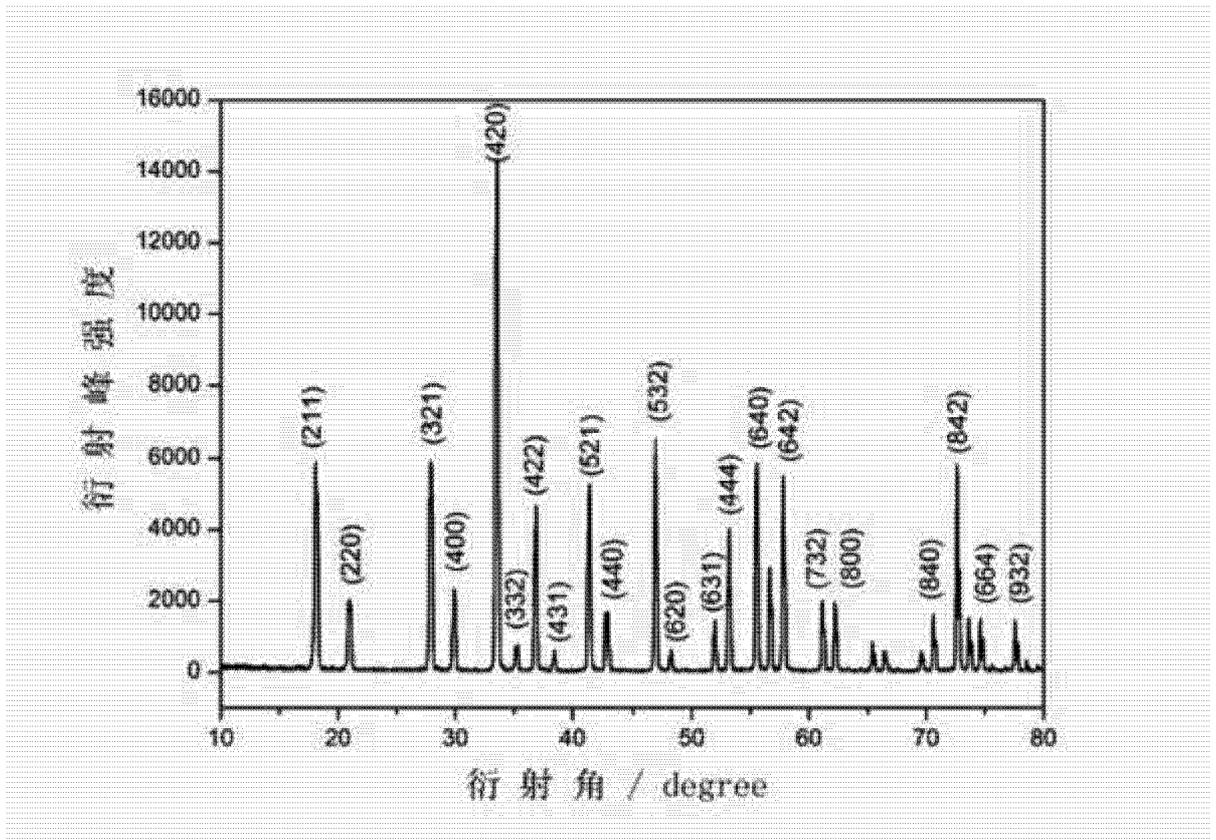


图 5

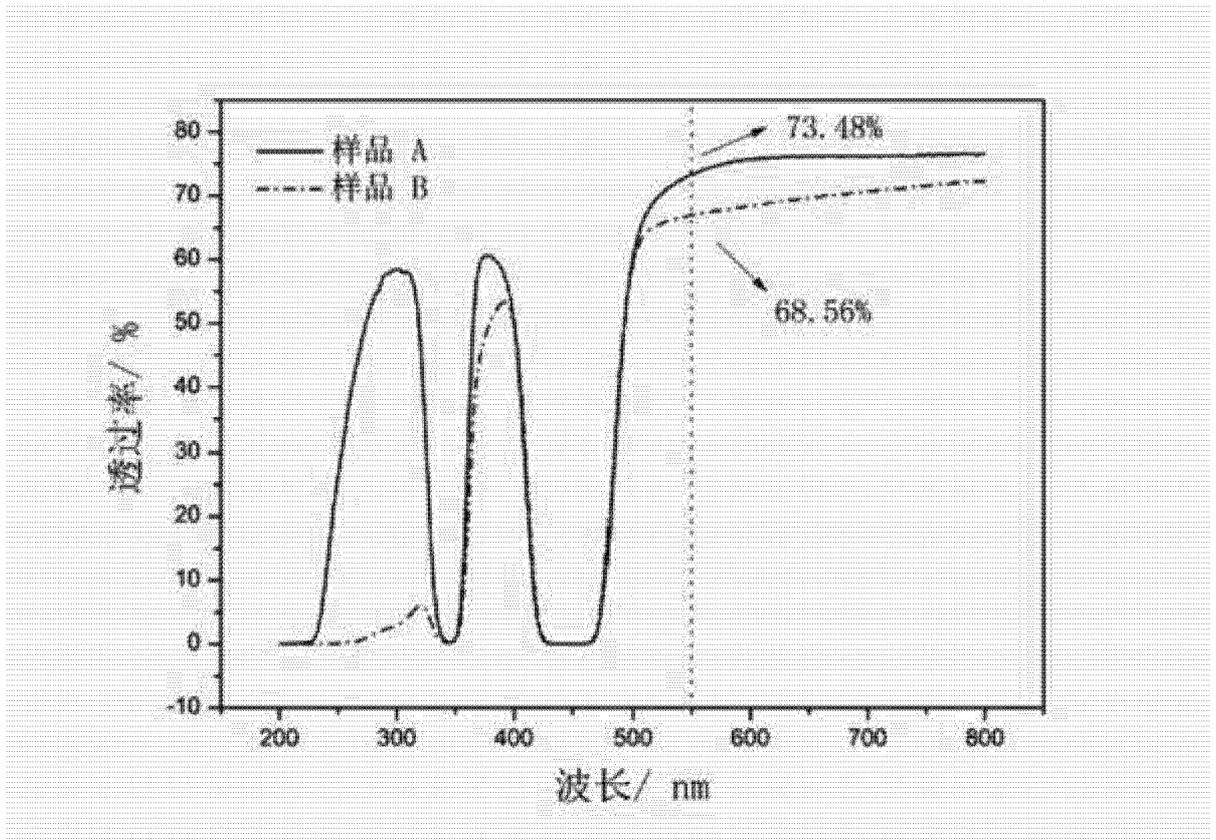


图 6

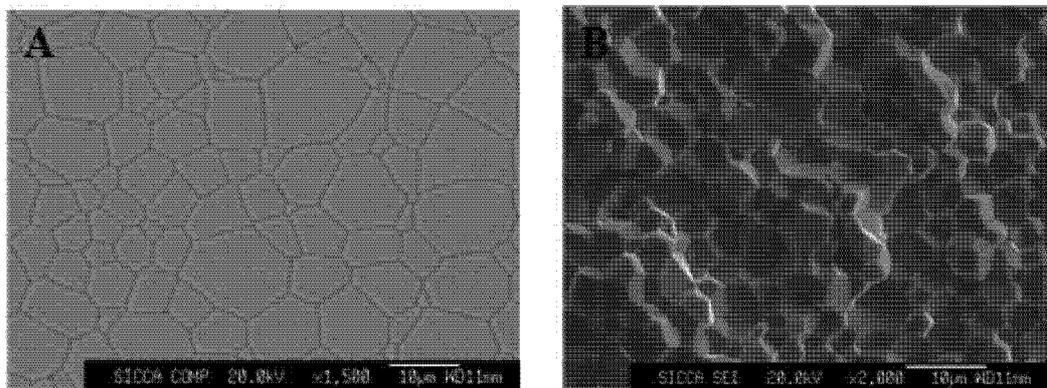


图 7

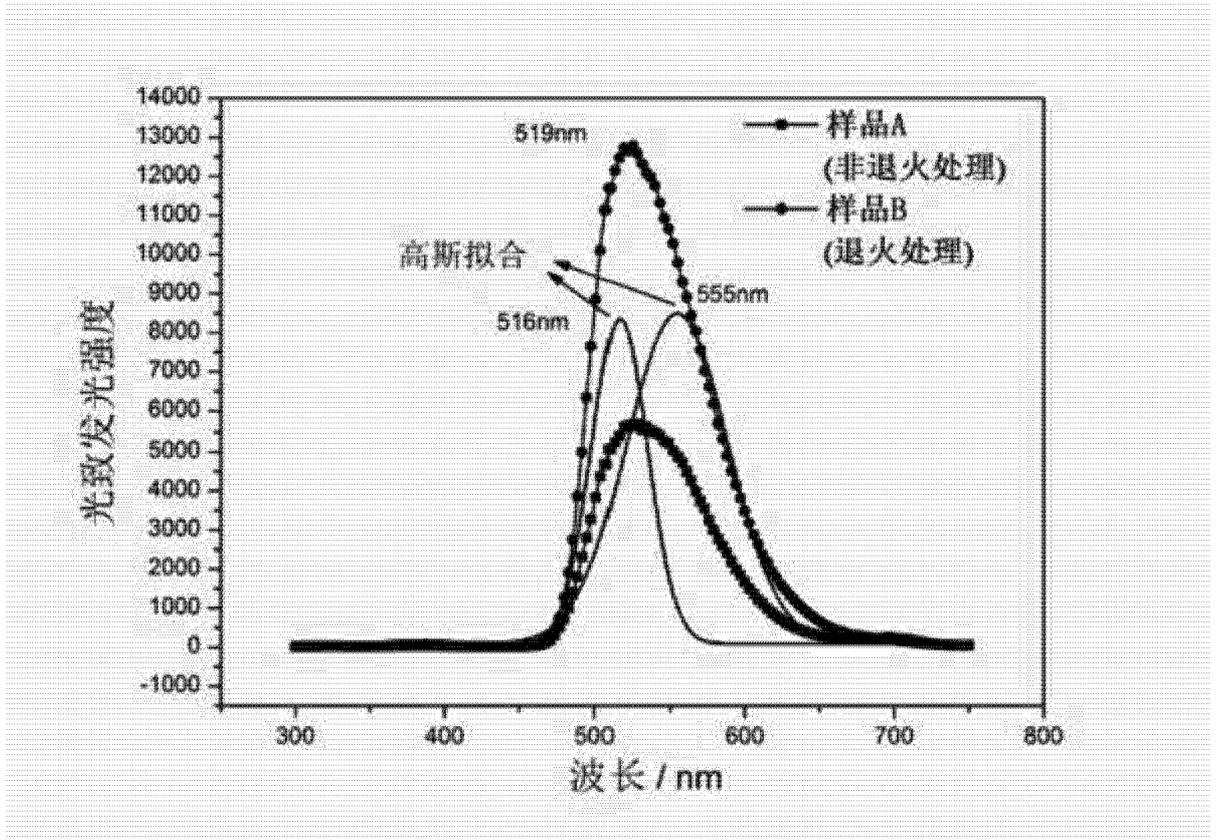


图 8

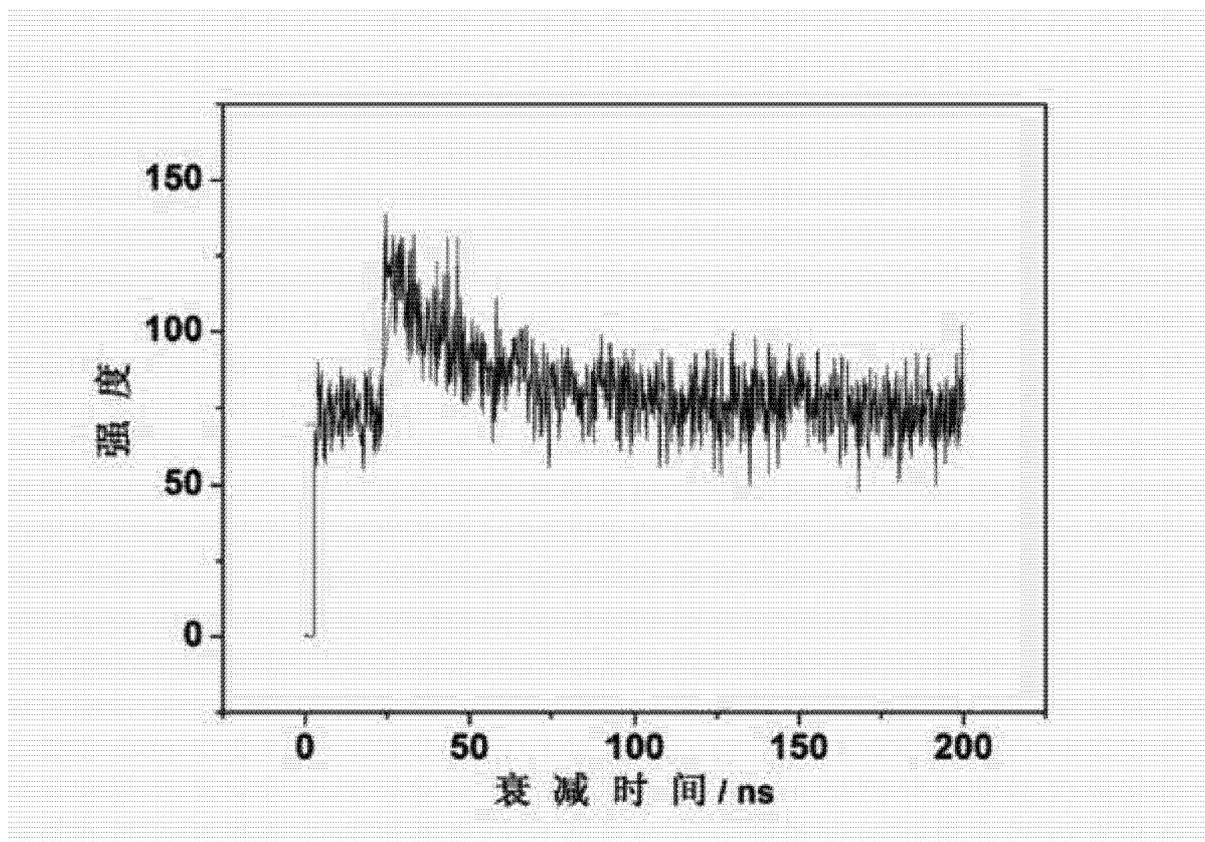


图 9