# 闪烁体与光子人工微结构\*

刘 波<sup>1,†</sup> 陈 鸿<sup>1</sup> 顾 牡<sup>1</sup> 易亚沙<sup>2</sup> (1 同济大学 上海市特殊人工微结构材料与技术重点实验室 物理科学与工程学院 上海 200092) (2 纽约大学 美国 纽约 10314)

## Scintillators boosted by nanophotonics

LIU Bo<sup>1,†</sup> CHEN Hong<sup>1</sup> GU Mu<sup>1</sup> YI Ya-Sha<sup>2</sup> (1 Shanghai Key Laboratory of Special Artificial Microstructure Materials and Technology, School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China) (2 New York University, New York 10314, USA)

**摘 要** 在核医学成像、高能物理实验和核武器研究的推动下,人们对辐射探测系统中的闪烁体提出了越来越高的要求。把传统闪烁体与先进微纳光子学技术相结合,利用 光子人工微结构对电磁波的调控作用,为实现闪烁体更高的性能提供新方法和新途径。文章介绍了近期国内外利用光子人工微结构提高闪烁体性能的研究进展,也对一些可能采用 的方法进行了展望与分析,该研究目前处于起步阶段,然而初步研究结果已经显示出了诱 人的发展前景。

关键词 闪烁

闪烁体,光子人工微结构,自发辐射调控

**Abstract** With the rapid development of nuclear medical imaging, high-energy physics experiments and nuclear weapons, the requirements for scintillators become more and more severe. However, there are less and less potential new materials, while currently available materials are close to their theoretical limits. In this review, we present recent developments in the combination of scintillators with engineered photonic structures. Although we are just beginning, we can expect tremendous progress in the near future.

Keywords scintillator, photonic structures, controlling of spontaneous radiation

## 1 闪烁体的发现和发展历史

1895年,伦琴发现了X射线,第二年即诞生 了世界上首个闪烁体 CaWO4。随后,Crookes发 现的ZnS闪烁体在卢瑟福研究α粒子散射实验和贝 克勒尔发现放射性实验中发挥了重要作用。这些 早期的闪烁体发光被人们用裸眼观察,直到19世 纪40年代,光电倍增管的发明才使得闪烁体与光 2013-06-17收到

email:lbo@tongji.edu.cn DOI:10.7693/wl20140405

約理・43卷 (2014年)4期

电倍增管的组合成为现代闪烁探测系统,此时, Hofstadter发现的Nal:Tl闪烁体已成为闪烁探测

系统中应用最广泛的经典闪烁体。之后,为了满 足某些特殊需求,陆续发现了探测中子的Li掺杂

闪烁体,Ce掺杂的玻璃闪烁体和具有超快发光衰

减的BaF2闪烁体。闪烁体真正的高速发展是在过

去的30年里,推动闪烁体发展的动力是高能物理

实验中的精确电磁量能器,高光输出的医学成像

系统,地球物理勘探以及其他的科学与工业应 用。这期间发现了一系列典型闪烁体,如本征发

光闪烁体CsI, Bi<sub>4</sub>Ge<sub>3</sub>O<sub>12</sub>, CuI, 掺杂剂激活的闪

<sup>\*</sup>国家自然科学基金(批准号: 11179019, 11374229, 11234010)资助项目

烁体CsI:Tl, Lu<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce和LaCl<sub>3</sub>:Ce。

闪烁体在辐射探测的应用中得到不断发展。 闪烁探测系统具有很高的辐射阻止能力,在高能 物理实验、核物理实验和核医学成像等领域具有 重要地位<sup>[1]</sup>。闪烁探测系统中闪烁体是核心的功 能材料,其作用是吸收高能粒子或射线后发出闪 烁脉冲光,这种闪烁光属于自发辐射,在光谱上 一般位于可见区或近紫外区,闪烁光被其后的光 电探测元件(如光电倍增管和雪崩光电二极管等) 接收后转换成电信号,从而实现对高能粒子或射 线的探测。闪烁探测系统对辐射的测量通常需要 实现能量分辨、时间分辨和位置分辨,同时需要 探测系统具备足够高的灵敏度和信噪比,因此闪 烁体需要满足特定的要求。一个理想的闪烁体应 当具有以下特征: 高光产额、快衰减时间、高密 度、发射光谱与光电探测器响应匹配、稳定的物 理化学性质、高辐照硬度和低成本<sup>[2]</sup>。

## 2 闪烁体发展遇到的挑战

然而实际上没有哪种材料可以在上述各项性 能上达到最佳值,对于不同的探测用途,我们需 要权衡利弊,考虑最主要的要求,适当忽略次要 要求。例如,核医学成像用闪烁体对光产额的要 求很高,目的是为了最大限度地提高探测器灵敏 度,以降低病人受到的辐射剂量<sup>[3]</sup>。而在高能物 理实验或高计数率的辐射环境中,往往对时间 分辨率的要求很高,希望具有更快的发光衰减时 间<sup>[4]</sup>。目前制约闪烁探测系统性能进一步提高的 瓶颈出现在闪烁体上。

## 2.1 闪烁体光产额

近30年来,闪烁体在高能物理实验和核医学成像需求的推动下迅速发展,很多新型闪烁体被发现和使用<sup>[5]</sup>,例如,用于医学成像正电子发射层析扫描系统(PET)的闪烁体Lu<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Ce<sup>[6]</sup>,西欧核子中心大型强子对撞机中电磁量能器用闪烁体PbWO4<sup>[7]</sup>。这些新型闪烁体的使用打破了NaI:Tl

晶体统治闪烁探测领域50多年的历史。近年来人 们又发现了高光产额闪烁体Lul<sub>3</sub>:Ce<sup>[8]</sup>,其实验光 产额达到76000 phe/MeV,是目前实验中光产额 最高的无机材料,也已接近其理论光产额 (110000 phe/MeV)。原则上讲,对于一个给定晶 体结构和成分的材料,其最大的理论光产额即已 确定<sup>[9]</sup>,很多制备技术成熟的闪烁体的实际光产 额已经非常接近其理论值。可以采用下面的公式 来估算闪烁体的光产额*LY*<sup>[10]</sup>:

 $LY(\text{phe} / \text{MeV}) = (10^6 / \beta E_{\varepsilon})SQ$ , (1) 其中 $E_{\varepsilon}(\text{eV})$ 是材料的带隙,  $\beta$ 是主要与声子能量和 介电常数相关的参数(典型大小为2—3), S是激发 能向发光中心传递的效率, Q是发光中心的量子 效率。

从上式可以看出,如果忽略传递效率和发光 量子效率的损失,即设*S*和*Q*均为1,那么光产额 的最大值主要受材料带隙*E*<sub>2</sub>的限制,即使采用宽 禁带半导体(带隙2.5—3.0 eV),其理论光产额最 高只能达15—20万phe/MeV。然而落实到具体材 料,并考虑其他性能要求,可供选择的材料非常 有限。近年来,虽然寻找新闪烁体的工作仍在开 展,并且人们还从晶体结构和组分的角度进行了 大量的实验和表征,然而发现潜在性能优异的闪 烁体并不多。

## 2.2 闪烁体光提取

通常无机闪烁体具有较高的折射率(n=1.8— 2.5),当闪烁体内部发射的光子以超过临界角的 入射角到达晶体界面时,会产生全内反射,导致 闪烁光子不能顺利射出晶体,无法达到光电探测 器。实际使用时,只有那些能够进入光电探测器 的闪烁光子才是有用的光子,因此有必要定义有 效光产额(*LY*<sub>ef</sub>):

$$LY_{\rm eff} = \eta_{\rm ex} \cdot LY_{\rm abs}$$
 , (2)

其中*LY*<sub>abs</sub>是绝对光产额,表示单位辐照能量在闪 烁体内部产生的所有光子数,*LY*<sub>eff</sub>是有效光产 额,表示从闪烁体发出的光子数,η<sub>ex</sub>是光子提取 效率,表示闪烁体内部产生的光子能够离开闪烁 体的比例。

界面处的全内反射是导致η<sub>ex</sub>低下的最主要因 素,因此提高光提取效率对于提高有效光产额显 得十分重要。按照 Snell 定律,只有小于临界角 (θ)的光子可以发射出来,其余光子将在晶体表面 发生全内反射,被陷在晶体中的光子经多次反射 被材料自吸收,或在材料边缘发射,折射率越大 则被陷光子比例越高。如果忽略其他次要因素(如 自吸收、费涅尔反射等),则可按照下面给出的公 式(3)进行估算:

 $\eta_{\rm ex} = \frac{1}{2} \int_0^{\theta_{\rm c}} \sin\theta \mathrm{d}\theta \quad (\sharp \oplus \theta_{\rm c} = \sin^{-1}(n_{\rm ext}/n_{\rm part})) \,. (3)$ 

例如,对于外部介质是空气的情况,考虑无限大闪烁体—空气界面,用(3)式进行估算,得到 从界面一侧发射出的光子比例即光子提取效率η<sub>ex</sub> 只有6.7%(假设*n*=2)。

如此低下的光子提取效率使得有效光产额被 大大降低。为提高光提取效率,在实际使用时, 会在晶体的非出射面涂上光学反射层,在出射面 与光探测器窗口之间填充光学耦合剂(如硅油), 以增大临界角,或采用光导器件进行闪烁体与光 探测器之间的耦合。采用这些措施后,可以提高 光子的提取效率,但仍然有大量的光子最终没能 出射,根本原因在于无法消除闪烁体与光探测器 窗口之间的折射率差。

对于平坦界面,在出射空间,光发射的角度 满足具有余弦函数特征的Lambertian型分布<sup>[11]</sup>, 该类型的分布具有大的发射立体角。然而对于有 些探测装置,如X射线成像装置,在装置布局 时,为了提高成像的空间分辨率,希望闪烁光尽 可能沿着某个特定的方向发射,以便更好地被探 测器的光阴极收集,并抑制其他方向的发射,实 现闪烁光子的高效率利用。因此,在提高光提取 效率的同时,若能按照期望控制其发射的方向 性,或者更加关注在期望的发射立体角内提取出 更多的闪烁光子,则会有更加重要的意义。

## 2.3 闪烁体衰减时间

目前对于快发光衰减闪烁体的需求越来越强

烈,如高计数率的高能物理实验和采用飞行时间 测量方式的医用PET系统<sup>[12]</sup>。闪烁发光衰减时间 是决定探测系统时间分辨率的决定性因素(核电子 学的时间分辨率可以达到几个ps)。为了获得快衰 减,人们经常利用猝灭的方法,即增加无辐射跃 迁几率来达到快衰减的目的,例如PbWO4。还有 一类宽禁带半导体,如ZnO,CuI等,可以产生 快的近带边发射(最小可以达几十ps),但只有在 低温下才可以获得足够的光产额,室温时发光猝 灭严重。长期以来,在闪烁体的研究中,高光产 额和快发光衰减似乎总是一对矛盾,如何在获得 快衰减的同时获得高的光产额是闪烁体研制的一 个重要课题。

## 3 光子人工微结构在闪烁体中的应用

光子人工微结构的发展使人们有能力调控光 波的产生与传输过程,许多重要的现象和原理促 进了应用研究的发展,其中包括光伏器件、光发 射二极管、生物传感器、量子信息等。光子人工 微结构主要包括光子晶体<sup>[13]</sup>、表面等离激元<sup>[14]</sup>、 光学微腔<sup>[15]</sup>等。

光子晶体是由不同折射率的介质材料在空间 周期性排列而成的人工微结构,类似于由原子按 照空间点阵结构组成的普通晶体,不同的是,光 子晶体中每个组成单元是由特定折射率的材料替 代了原子。普通晶体表现出原子中的电子受到周 期性晶格场的调制而产生电子的能带结构,而光 子晶体则表现出周期性变化的折射率对光子的传 播模式的调控,从而形成光子能结构。表面等离 激元是金属与介质表面由于金属自由电子振荡而 形成的一种电磁模式。对于金属薄膜表面,这种 模式具备传播特性,对于金属纳米颗粒,其电磁 模式形成局域的表面等离激元,表面等离激元可 与发光中心产生耦合,从而调控辐射跃迁几率。 光学微腔是一种波长尺度的光学谐振腔,在共振 能量处,可以强烈地束缚电磁波,产生极高的光 学模式密度和品质因子,对电磁辐射的跃迁几率 具有很强的调控能力。

闪烁发光本质上属于自发辐射过程,微结构 对于自发辐射的调控作用主要是通过自发辐射与 微结构的相互作用实现。下面介绍微结构对于闪 烁发光过程能够起到调控作用的几个方面。

#### 3.1 微结构与光提取

对于一定厚度的闪烁体,上下界面处的全内 反射形成导波模式,大于全内反射角的闪烁光 子,以导波模式陷在薄膜内无法从发射界面出 射,如图1(a)中的红线示意了两种导波模式。

作为人工微结构中常见形式的光子晶体是采 用折射率不同的介质材料在空间周期性排列而 成,其周期的尺度与发射光波长同量级。利用光 子晶体实现光提取的基本原理有两种:一种是利 用光子带隙方法<sup>[16]</sup>,把发光层制作成具有特定结 构的二维平板光子晶体结构,禁止自发辐射光子 进入导波模式,光子只能进入辐射模式,从而实 现发光的提取。这种方法理论上可以实现发射光 子的完全提取,但在样品制备中必须直接刻蚀并 贯穿发光层,最终会降低有效发光成分并增加无 辐射跃迁几率,导致内量子效率的显著降低。另 一种方法,把光子晶体制作在发光层表面(如 图 1(a))<sup>[17,18]</sup>,其优势在于不破坏发光层,因而不 会降低内量子效率。该方案允许自发辐射进入导 波模式,当光以导波模式传播时,在空气一侧垂 直于界面方向上会形成衰逝波,衰逝波不具有传播特性,但具有电磁场能量,当衰逝波与光子晶体接触并满足一定条件时会发生耦合,以泄漏模式的形式发射光子,从而实现光提取,图1(a)中的两条蓝线分别表示两种导波模式的光被光子晶体耦合出去。

我们可以利用色散关系解释其提取过程(见 图1(b))。当入射角大于临界角时,由于全反射会 形成导波模式,其传播波矢 $k_{i}>k$ ( $k=n_{0}\omega/c$ ,表示 空气中的波矢。其中 $n_{0}$ 代表空气的折射率, $\omega$ 代 表角频率,c为真空中的光速),只有降低其传播 波矢才可能实现光波的提取。在闪烁体表面制作 光子晶体,其作用是提供倒格矢形成的附加动 量,当满足 $|k_{i}+pG_{0}|<k$ 时(p取正负整数, $G_{0}$ 是倒 格矢基矢),实现光提取,即进入图1(b)中的蓝色 区域(光锥)。从图1(a),(b)还可以看出,出射光 的方向受到导波模式级次和光子晶体倒格矢影 响,其发射角度分布与平坦界面发射的Lambertian型不同,这为利用光子晶体调控发光的方向 性提供了可能<sup>[19]</sup>。

西欧核子中心采用电子束光刻技术在LSO闪 烁体晶体上制作二维光子晶体平板,通过优化晶 格常数、占空比等参数可以提高光提取效率 30%—60%,但目前电子束光刻技术代价昂贵, 制作的面积有限(毫米尺寸)<sup>[20]</sup>。





**图2** LYSO 闪烁晶体上制备的聚苯乙烯微球单层六角结构的发光光 谱<sup>[22]</sup>(图中显示了不同微球直径(*d*)的增强效果,右下图是微球结构的电镜 照片)



**图3** 闪烁玻璃上制备单层六角密堆积微球结构后的光发射的角度依赖 模拟(右上角标注的是微球的直径)<sup>[21]</sup>

我们在闪烁玻璃<sup>[21]</sup>和LYSO闪烁晶体<sup>[22]</sup>表面, 利用自组装方法制作单层六角结构聚苯乙烯微球 二维光子晶体,这是一种特殊的光子晶体结构<sup>[23]</sup>, 除了具有一般光子晶体折射率周期变化的特征 外,单个小球还具有回音廊的光学共振模式。该 模式表现为光波沿着微球内壁以行波的形式往复 传播,类似声波在回音廊中的传播,其模式数量 决定于微球的折射率和直径,相邻的微球还可以 相互耦合,形成传播模式。优化结构分别获得了 25%和38%的光提取效率增加。图2显示了单层 微球结构对发光提取效率的增强效果。 采用光子晶体可以实现光提取率的提高具有方向性的特征,图3展示 了这种单层微球形成的光子晶体导致 的光提取效率的增加是与光发射的角 度有关,这种偏离Lambertian型发射 的结构为光子晶体控制发光的方向性 提供了重要的方法。

采用自组装的方法可以方便地制 备大面积的光子晶体(厘米尺寸),这 对于实际使用具有重要意义,还可以 利用聚苯乙烯微球做为模板,制作其 他形式的微结构。我们在LSO闪烁 体薄膜表面,结合自组装微球模板和 反应离子束刻蚀方法,制备了具备蛾 眼仿生结构的光子晶体<sup>[24]</sup>,该结构兼 具渐变折射率和周期结构的光子晶体 特征,可以实现光提取效率的大幅度 提高,如图4所示。

#### 3.2 表面等离激元与闪烁发光

电磁波入射到金属与介质界面 时,金属中的自由电子发生集体振 荡,会产生一种叫做表面等离激元 (SPP)的激发,SPP局域在界面附 近,在金属与介质两侧形成衰逝波, 如图5所示。衰逝波在垂直方向上深 入的范围可以按照下式计算:

$$Z = \frac{\lambda}{2\pi} \sqrt{\frac{(\varepsilon_{\rm die} - \varepsilon'_{\rm met})}{\varepsilon_{\rm met}^{\prime 2}}} \quad , \tag{4}$$

其中 λ 是波长, ε<sub>die</sub> 是介质层介电常数, ε'<sub>met</sub> 是金 属层的介电常数的实部,对于光频段, Z值的大 小通常为几十纳米。

SPP的共振频率与体等离子频率不同,受到 介质层折射率的影响,可以表示为

$$\omega_{\rm spp} = \frac{\omega_{\rm p}}{\sqrt{1 + \varepsilon_{\rm die}}} \quad , \tag{5}$$

其中 ω<sub>p</sub>是体等离子频率。从图5的色散关系可以 看出,当接近共振频率时,色散曲线随波矢的增



图 4 在 LSO 闪烁体薄膜 上制备蛾眼仿生结构实现光 提取效率的提高<sup>[24]</sup> (a)蛾 眼; (b)蛾眼微结构; (c)样 品电镜图像; (d)光输出增 强效果

加呈现出渐近线的趋势,表明共振频率处的光学 态密度大大增强。

SPP具有的显著特征包括场强的局域增强和 共振频率处的态密度增加。由平面金属一介质形 成的SPP具有在界面处传播的特性。早期,人们 在研究光发射二极管(LED)时就观察到了金属电 极处的SPP现象,它降低了LED的量子效率,被 认为是个严重的问题。然而随着人们对SPP认识 的深入,人们意识到,如果能够把SPP中的电磁 能量有效地提取出来,产生能够远场发射的光 子,那么我们就能降低SPP带来的效率降低,甚 至有可能利用SPP来提高发光效率<sup>[25]</sup>。平面结构 中的SPP由于具有大的动量,不能形成远场发射 的光子,可以采用具有一定粗糙度的表面进行散 射<sup>[26, 27]</sup>,或是采用光栅结构实现衍射<sup>[28]</sup>。

除了平面结构,纳米尺度的金属颗粒可以产 生局域表面等离激元(LSP),这类电磁激发模式局 域在金属颗粒周围,不具有传播特性,在其衰逝



场范围内,具有场强增强和态密度增加的效应。 LSP被用来增强LED发光的文献报道很多<sup>[29–31]</sup>。

很显然,可以利用 SPP 或 LSP 来调控闪烁体的发光,但首先必须搞清楚其机制。实际上,对 于采用 SPP 或 LSP 增强的 LED 发光机理还存在疑问,特别是很多显著增强的实验结果只出现在光 致发光时,而电致发光则没有太多的增强。光致 发光中激发光通常是近紫外或可见光,其波长与 发射波长较为接近,微结构对于激发光的增强吸 收也可能扮演重要角色<sup>[32]</sup>。因此研究 SPP 或 LSP 增强作用时,有必要区分激发增强和发射增强。

考虑图6所示的处于激发态的发光中心的退 激发过程。在没有金属结构的条件下,自发辐射 过程包含了辐射跃迁和无辐射跃迁,前者发射光 子,后者发射声子变为热,两者都具有一定的发射 几率,处于竞争关系。我们可以定义发光效率为

$$\eta = \frac{\gamma_{\rm rad}}{\gamma_{\rm rad} + \gamma_{\rm nonrad}} \quad , \tag{6}$$

式中 $\gamma_{rad}$ 是辐射跃迁几率, $\gamma_{nonrad}$ 是无辐射跃迁 几率。

当存在 SPP 或 LPS 激发时,处于激发态的发 光中心可以通过无辐射共振激发 SPP 或 LPS。新 的发光效率可以表达为

$$\eta^* = \frac{\gamma_{\rm rad} + \eta_{\rm sp \to photon} \cdot \gamma_{\rm sp}}{\gamma_{\rm rad} + \gamma_{\rm nonrad} + \gamma_{\rm sp}} , \qquad (7)$$

式中 $\gamma_{sp}$ 是通过无辐射共振激发 SPP或 LPS 的几 率。 $\eta_{sp \rightarrow photon} = C_{sca}/C_{ext}$ 是 SPP或 LSP 经过散射或衍 射(不改变能量,但降低动量)发出光子的效率,  $C_{sca} 和 C_{ext}$ 分别是散射截面和消光截面。

共振能量处表面等离激元的模式密度很大, 激发 SPP或 LSP 的几率与其模式密度成正比,跃 迁几率显著增加。当光子发射比率 η<sub>sp→photon</sub> 足够 高时,将获得光子的有效提取。针对闪烁体应 用,可以分为以下两种情况加以讨论。



(1)对于低量子效率闪烁体,即 $\gamma_{rad} \ll \gamma_{nonrad}$ ,如果存在发光中心与SPP或LSP的耦合,同时提取效率 $\eta_{sp \to photon}$ 又足够大,那么将有可能获得发光的增强。发光中心通过与SPP或LSP的耦合,导致无辐射跃迁几率的相对降低。利用这种方法甚至可以让传统认为不发光的金属的发光效率大大提高<sup>[33]</sup>。(7)式的倒数即是衰减时间,有实验表明,利用该方法,在提高发光效率的同时,获得了更快的衰减时间<sup>[34]</sup>。这与传统闪烁体(如PbWO<sub>4</sub>)利用猝灭方式(牺牲发光效率)获得快衰减的原理截然不同,如果能够把该原理应用于闪烁体,那么原本高效率与快衰减的矛盾有望变成一致。

(2)对于高量子效率闪烁体,即 $\gamma_{rad} >> \gamma_{nonrad}$ , 由于 $\eta_{sp \rightarrow photon}$ 小于1,此时发光不会增强只会减弱,这就是为什么有文献报道,对于高量子效率 发光材料,金属微结构并不能提高发光效率,但 会缩短衰减时间,这在闪烁体中有重要应用。变 快的衰减时间可以表示为跃迁几率的倒数,即

$$\tau = \frac{1}{\gamma_{\rm rad} + \gamma_{\rm nonrad} + \gamma_{\rm sp}} \quad . \tag{8}$$

无论是发射增强还是衰减时间的改善,本 质上都是利用金属结构的 SPP 和LSP 调控发光动 力学过程<sup>[34]</sup>,因此必须仔细设计结构。 SPP 或 LSP 的作用范围通常是几十纳米,距离更大则没 有效果,如果距离太小(几纳米),也会产生发光 猝灭,这是由于隧穿电流导致的无辐射跃迁显著 增强<sup>[35,36]</sup>。共振波长的选择可以通过调节金属颗

> 粒的形貌实现,对于采用周期结构的金 属颗粒阵列,共振谱型与颗粒形貌和周 期结构相关<sup>[37]</sup>。

> 从(7)式可以看到,从SPP或LSP中 有效地提取出光子非常关键,金属的吸 收和欧姆损耗制约着它的发展。光学纳 米天线的提出,为人们提供了可能的方 法,以实现对SPP或LSP光子的高效提 取和定向发射<sup>[33, 39]</sup>。但是纳米天线的制 备给人们提出了挑战。随着大面积纳米 天线阵列制备技术的突破,表面等离激

元与纳米天线概念的结合,将会在光发射、光吸 收领域起到重要的作用。

## 3.3 光学微腔与闪烁体

光学微腔通过共振循环使光限制在一个非常 小的体积内,因此,光学微腔可以大大增加光学 态密度。当共振波长与发光波长匹配时,跃迁几 率将大大增强。光学微腔对于发光动力学过程的 调控可以通过费米黄金定则来理解,跃迁几率可 以表示为<sup>[40]</sup>

$$T_{i \to f} = \frac{2\pi}{\eta} |\langle f| H |i \rangle|^2 \rho \quad , \tag{9}$$

其中 |<f|H|i>| 是跃迁矩阵元, ρ 是光学态密度。

在共振波长处,ρ显著增加,因此增加了辐 射跃迁几率,发光衰减时间也会显著变短。微腔 的种类包括微柱、微盘、光子晶体微腔、法布 里一珀罗平面微腔<sup>115]</sup>。利用微腔调控跃迁几率, 需要仔细设计微腔的共振波长和品质因子,同 时需要把发光中心安排在特定位置。虽然很多 三维微腔显示出了极强的跃迁调控能力,但它 们的体积很小,对于微腔形貌的要求很高,制 备困难。

法布里一珀罗平面微腔是由上下两面镜子构 成的谐振腔,如果在其中间放置一层特定厚度的 闪烁体,则可能形成平面微腔闪烁体。这种微腔 虽然只在垂直方向上对光实现了限制,因此品质 因子通常较低,但它可以在光发射的方向性上实 现很好的调控,例如在垂直方向上可以实现光强 几十倍的增强<sup>[41]</sup>。这可能会给闪烁探测系统带来 好处。发射的方向性对于探测系统非常重要,这 是因为只有那些能够进入到探测器光阴极的光子 才是有用的。平面微腔结构可以采用成熟的薄膜 制备工艺制备大面积的样品,这是闪烁体应用所 必须的。

## 4 结束语

闪烁体是个传统的研究方向,然而其涉及的 应用领域却十分广泛,无论是关系到人体健康的 医学成像领域和涉及科学前沿的高能物理实验领 域,还是关系到国家安全的核武器研究领域,都 离不开辐射探测。作为辐射探测系统中的关键功 能材料闪烁体研究所涉及的物理、化学和材料方 面的理论与方法较为传统,近几十年来在理论上 并没有大的突破,探寻新材料的方法更多是借鉴 经验,依赖传统的制备方法,大规模地合成、表 征与筛选材料,时至今日,继续采用该方法来探 寻性能指标更加优异的材料的难度越来越大。幸 运的是,近20年来,微纳光子学领域的发展突飞 猛进,光子人工微结构展现出了大量的奇异现 象,新现象、新原理、新方法层出不穷,更新了 人们对于电磁波产生、传播的传统认识,在许多 领域已经展现出了重要的应用价值。闪烁体发光 属于自发辐射,光子人工微结构可以对自发辐射 进行调控,两者的结合必将促进闪烁探测领域的 进一步发展。利用光子人工微结构提高闪烁体性 能的研究还刚刚起步,公开发表的文献数量很 少,但已有的研究结果表明,这是一个重要而可 行的方法。利用光子人工微结构将使我们在很大 程度上不再依赖材料本身的分子结构与成分,而 更加关注微结构对于电磁波辐射的调控作用,设 计出能更好满足辐射探测要求的结构性功能材 料。可以预料,光子人工微结构闪烁体将在辐射 探测领域大有作为。

#### 参考文献

- Bailey D L, Karp J S, Surti S. Positron Emission Tomography. Springer-Verlag London, 2005.29
- [2] Derenzo S E, Weber M J, Bourret-Courchesne E et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2003, 505:111
- [3] 刘波,施朝淑. 科学通报, 2002, 47:1

- [4] Weber M J. Journal of Luminescence, 2002, 100:35
- [5] Moses W W. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 2002, 487:123
- [6] Liu B, Qi Z, Gu M et al. J. Phys.: Condens. Matter, 2007, 19: 436215



- [7] Liu B, Shi C, Wei Y *et al.* Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 2003, 201: 520
- [8] Birowosuto M D, Dorenbos P, de Haas J T M *et al.* Journal of Luminescence, 2006, 118:308
- [9] Liu B, Gu M, Qi Z et al. Physical Review B,2007,76:064307
- [10] Weber M J. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A,2004,527:9
- [11] Schubert E F. Light-Emitting Diodes (2nd.ed.) Cambridge: Cambridge University Press, 2006.94
- [12] Lecoq P. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2012, 59:2313
- [13] Yablonvitch E. Physical Review Letters, 1987, 58:2059
- [14] Pendry J. Science, 1999, 285: 1687
- [15] Vahala K J. Nature, 2003, 424:839
- [16] Fujita M, Takahashi S, Tanaka Y et al. Science, 2005, 308:1296
- [17] Wierer J J, David A, Megens MM. Nature Photonics, 2009, 3:163
- [18] Ganesh N, Zhang W, Mathias P C et al. Nature Nanotechnology, 2007,2:515
- [19] Fehrembach A, Enoch S, Sentenac A. Applied Physics Letters, 2001,79:4280
- [20] Knapitsch A, Auffray E, Fabjan C W et al. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2012, 59:2334
- [21] Zhu Z, Liu B, Cheng C et al. Optical Materials, 2013 (In Press)
- [22] Zhu Z, Liu B, Cheng C *et al*. Applied Physics Letters, 2013, 102: 071909
- [23] Kurokawa Y, Miyazaki H, JimbaY. Physical Review B, 2002, 65: 201102
- [24] Pignalosa P, Liu B, Chen H *et al.* Optics Letters, 2012, 37:2808

- [25] Barnes W L. Nature Materials, 2004,3:588
- [26] Okamoto K, Niki I, Shvartser A et al. Nature Materials, 2004, 3: 601
- [27] Hobson P A, Wedge S, Wasey J A E et al. Advanced Materials, 2002, 14:1393
- [28] Lu C H, Lan C C, Lai Y L et al. Advanced Functional Materials, 2011,21:4719
- [29] Kwon M K, Kim J Y, Kim B H et al. Advanced Materials, 2008, 20: 1253
- [30] Kim B H, Cho C H, Mun J S et al. Advanced Materials, 2008, 20:3100
- [31] Jang L W, Jeon D W, Kim M et al. Advanced Functional Materials, 2012, 22:2728
- [32] David A, Benisty H, Weisbuch C. Reports on Progress in Physics, 2012, 75:126501
- [33] Dulkeith E, Niedereichholz T, Klar T A *et al.* Physical Review B,2004,70:205424
- [34] Toropov A A, Shubina T V, Jmerik V N et al. Physical Review Letters, 2009, 103:037403
- [35] Dulkeith E, Morteani A C, Niedereichholz T *et al.* Physical Review Letters, 2002, 89:203002
- [36] Anger P, Bharadwaj P, NovotnyL. Physical Review Letters, 2006, 96:113002
- [37] Lamprecht B, Schider G, Lechner R T et al. Physical Review Letters, 2000, 84:4721
- [38] Novotny L, Van Hulst N. Nature Photonics, 2011, 5:83
- [39] Greffet J J. Science, 2005, 308: 1561
- [40] Purcell E M. Physical Review, 1946,69:681
- [41] Schubert E F, Vredenberg A M, Hunt N E J *et al.* Applied Physics Letters, 1992, 61:1381