Радиолюминесцентные свойства крупноразмерных, волоконных и наноразмерных кристаллов NaF–U

© Т.С. Королева, М.М. Кидибаев^{*}, Б.К. Джолдошов^{*}, Ch. Pédrini^{**}, B. Hautefeuille^{**}, K. Lebbou^{**}, O. Tillement^{**}, J.-M. Fourmigue^{***}, Б.В. Шульгин^{****}, А.Н. Черепанов^{****}, В.И. Соломонов^{*****}, М.Г. Иванов^{*****}

Институт физики национальной академии наук Киргизии, 720071 Бишкек, Киргизия * Иссык-Кульский государственный университет, 722360 Каракол, Киргизия ** Université Lyon 1 Campus de la Doua, 69622 Villeurbanne, Lyon, France **** Fibercryst S.A.S., 69001 Lyon, France **** Уральский государственный технический университет (УПИ), 620002 Екатеринбург, Россия ***** Институт электрофизики Российской академии наук, 620016 Екатеринбург, Россия

E-mail: tch@dpt.ustu.ru

Представлены результаты сравнительных исследований сцинтилляционно-оптических крупноразмерных, волоконных и наноразмерных кристаллов NaF–U. Волоконные и наноразмерные образцы NaF–U получены впервые в мире и оказались перспективными в плане практического применения в радиационной технике.

Работа выполнена в рамках программы "Университеты России" (грант УР.02.01.023) при поддержке Уральского научно-образовательного центра "Перспективные материалы" REC-005 (грант EK-005-X1), гранта НАТО (N PST.EAP.CLG 980674) и Центра детекторных технологий (г. Екатеринбург).

1. Введение

Монокристаллы фторида натрия, активированные d-и f-элементами, известны как перспективные оптические материалы для практического использования. Наибольшее внимание в этом плане уделяется кристаллам фторида натрия с примесью урана. Начало их активного исследования в России было положено работами П.П. Феофилова [1]. Характерной чертой составов NaF-U является высокий световыход сцинтилляций, что позволяет применять их для эффективной регистрации ионизирующих излучений. Однако реализация некоторых практических задач с использованием составов NaF-U сопряжена с определенными трудностями, обусловленными геометрической формой и размерами используемых кристаллов. Одним из путей решения проблемы является использование известных составов в новой геометрической конфигурации, например, в виде волокон или наноразмерных объектов. Отличительной особенностью последних является повышенное отношение величины площади поверхности к величине объема кристалла. Учитывая, что поверхность кристаллической структуры является дефектом, следует ожидать изменения целого ряда физических свойств волоконных и наноразмерных кристаллов в сравнении с таковыми для крупноразмерных образцов.

Настоящая работа посвящена сравнению основных оптических и сцинтилляционных свойств крупноразмерных, волоконных и наноразмерных кристаллов NaF–U.

2. Объекты и методы исследования

Объекты исследования — крупноразмерные, волоконные и наноразмерные кристаллы фторида натрия, активированные ураном.

Крупноразмерные монокристаллы NaF–U были выращены в Институте физики Национальной академии наук Кыргызстана из расплава марки "осч" модифицированным методом Киропулоса (методом ступенчатого роста [2]) в платиновом тигле на воздухе.

Волоконные монокристаллы NaF-U были выращены в Физико-химической лаборатории люминесцентных материалов Лионского университета методами Місго Pulling Down (MPD) и Laser Heated Pedestal Growth (LHPG) впервые в мире. В качестве материала для роста волокон использовались полученные ранее крупноразмерные образцы NaF-U. Суть MPD-метода заключается в вытягивании расплавленной шихты через микроотверстие с помощью затравки. Скорость движения затравки и температура расплава определяют толщину получаемого волокна. Суть LHPG-метода заключается в том, что предварительно заготовленный тонкий монокристалл подвергается локальному разогреву лазерным лучом при одновременном растягивающем воздействии. В области лазерного разогрева происходит формирование новой кристаллической структуры, удлинение и утончение образца.

Наноразмерные кристаллы NaF-U были получены методом лазерного распыления в Институте электрофизики УрО РАН из выращенных ранее крупноразмерных

монокристаллов NaF–U. Нанокристаллы напылялись на молибденовую подложку в виде тонкого слоя. Размер отдельных нанокристаллов составлял 20–30 nm (оценка).

Исследование люминесцентно-оптических свойств включало измерение спектров оптического поглощения, рентгенолюминесценции, импульсной катодолюминесценции (ИКЛ), а также кривых термостимулированных люминесценции (ТСЛ) и экзоэлектронной эмиссии (ТСЭЭ).

3. Результаты и обсуждение

Спектры оптического поглощения для крупнозразмерных и волоконных кристаллов NaF-U приведены на рис. 1. В спектрах наблюдается три полосы: 200-390, 500-560 и 900-1050 nm. Поглощение в области 200-390 nm может быть обусловлено переносом заряда примесных центров к центрам окраски (F-центрам). Эта тенденция проявляется сильнее у крупноразмерных кристаллов и LHPG-волокон. Для MPD-волокон полосы поглощения F-центров имеют значительно меньшую интенсивность. Полоса 500-560 nm связана с примесью урана и проявляется одинаково для разных типов образцов. В полосе 900-1050 nm МРД-волокна имеют повышенное, а LHPG-волокна, напротив, пониженное поглощение в сравнении с поглощением крупноразмерных кристаллов, что, вероятно, связано с влиянием поверхности.

Спектры рентгенолюминесценции для крупноразмерных и волоконных кристаллов NaF-U приведены на рис. 2. Основными центрами свечения в этих образцах являются ионы урана, обладающие характерным свечением в области 520-600 nm. Из спектров видно, что форма и размер образцов влияют на интенсивность отдельных полос, соответствующих ионам урана. Так, в волоконных кристаллах практически исчезают полосы 538, 541, 549 и 571 nm, что, по-видимому, связано с существенным влиянием поверхности на энергетическое



Рис. 1. Спектры оптического поглощения кристаллов NaF-U: *1* — крупноразмерного, *2* — MPD-волокна, *3* — LHPG-волокна.



Рис. 2. Спектры рентгенолюминесценции кристаллов NaF-U: *1* — крупноразмерного, *2* — MPD-волокна, *3* — LHPG-волокна.



Рис. 3. Спектры ИКЛ кристаллов NaF–U: *1* — крупноразмерного, *2* — MPD-волокна, *3* — LHPG-волокна, *4* — наноразмерного.

и зарядовое состояния ионов урана, а также на условия компенсации избыточного заряда ионов U⁶⁺.

Спектры импульсной катодолюминесценции образцов NaF-U приведены на рис. 3. Плотность энергии при возбуждении спектров ИКЛ значително превосходила таковую при возбуждении спектров рентгенолюминесценции, что позволило возбудить свечение даже у наноразмерных образцов. Более высокая плотность энергии возбуждения, поступающей в кристалл в виде импульсов, способствует проявлению эффектов электрон-фононного взаимодействия: в ИКЛ-спектрах проявляется множество дополнительных узких пиков на фоне широких полос свечения. Интенсивность пиков, связанных с электрон-фононным взаимодействием, в проведенных экспериментах на два-три порядка превосходила уровень шумов аппаратуры. Различие ИКЛ-спектров для крупноразмерных, волоконных и наноразмерных кристаллов, возможно, обусловлено взаимовлиянием радиационно-примесных центров и поверхности образцов.



Рис. 4. Спектры ТСЛ (1) и ТСЭЭ крупноразмерного (2), LHPG-волоконного (3) и наноразмерного (4) кристаллов NaF-U.

Некоторые кривые ТСЭЭ и ТСЛ кристаллов NaF–U показаны на рис. 4. Эти кривые существенно разнятся для крупноразмерных, волоконных и наноразмерных образцов, что может быть объяснено различием структуры приповерхностных ловушек в образцах разной геометрической конфигурации.

Результаты изучения сцинтилляционно-оптических свойств волоконных и наноразмерных кристаллов указывают на возможные пути их использования. Так, на базе волоконных кристаллов NaF–U были предложены сцинтилляционные экраны высокого пространственного разрешения, а на основе наноразмерных кристаллов — зонды для цитологических, микробиологических и медицинских исследований.

Список литературы

- [1] П.П. Феофилов. Оптика и спектроскопия 7, 842 (1959).
- [2] М.М. Кидибаев. Радиационно-стимулированные процессы в кристаллах (Li,Na)F–U,Me. УГТУ, Екатеринбург (1999). 220 с.