

Сцинтилляционные детекторы нейтронов на базе ${}^6\text{Li}$ -силикатного стекла, активированного церием

© Б.В. Шульгин, В.Л. Петров, В.А. Пустоваров, В.И. Арбузов*, Д.В. Райков, К.В. Ивановских, А.В. Ищенко

Уральский государственный технический университет (УПИ),
620002 Екатеринбург, Россия

* Государственный оптический институт им. С.И. Вавилова,
193171 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: rdv@dpt.ustu.ru

Методом время-разрешенной вакуумной ультрафиолетовой спектроскопии проведены исследования спектров возбуждения, фотолюминесценции, а также кинетики затухания фотолюминесценции стекол, имеющих состав ${}^6\text{Li}_2\text{O}-\text{MgO}-\text{SiO}_2-\text{Ce}$. В спектре возбуждения ионов Ce^{3+} наблюдается известная группа структурных полос при 4.4–5.2 eV, обусловленная переходами $4f \rightarrow 5d$, кроме того, обнаружены особенности при 6.4–7.7 eV и обсуждается их природа. При энергии возбуждающих фотонов $E_{\text{exc}} > 25$ eV проявляется эффект фотонного умножения. На базе ${}^6\text{Li}$ -силикатных стекол разработан и изготовлен сцинтилляционный детектор нейтронов с повышенными техническими характеристиками.

Работа поддержана (грант № 02-02-16322) и Уральским научно-образовательным центром „Перспективные материалы“ REC-005 (грант ЕК-005-X1).

1. Введение

Регистрация нейтронного излучения остается актуальной проблемой радиационного мониторинга. В рамках решения этой проблемы проведен поиск относительно дешевых сцинтилляционных детекторов на основе стекол. Разработанные в УГТУ–УПИ стекла на основе цирконосиликатов и бериллиевых фосфатов [1,2], хотя и отличались повышенной радиационной стойкостью и световыходом, не обладали достаточно высокой технологичностью. Более технологичными оказались стекла, разработанные в НИТИОМ ВНЦ ГОИ им. С.И. Вавилова [3] на базе литиевого силикатного стекла с церием, обладающие повышенной чувствительностью к нейтронам. При содержании Li_2O на уровне 22.5 mol.% стекло имело световыход с максимумом спектра радиолюминесценции 3.2 eV, в 1.8 раза превышающий световыход принятых за эталон стекол NE-905 [3]. Регистрация тепловых нейтронов осуществлялась по реакции ${}^6\text{Li}_3(n, \alpha){}^3\text{H}_1$. Продукты реакции — альфа-частицы — вызывают в стекле сцинтилляцию длительностью 60 ns. Несмотря на то, что некоторые спектральные и кинетические рабочие характеристики литиевых церий-содержащих силикатных стекол как сцинтилляторов были изучены ранее [3], исследованиям их фундаментальных свойств в расширенном спектральном ВУФ диапазоне внимание не уделялось. Представлялось также целесообразным исследовать регистрацию нейтронов этими стеклами и использовать их для создания сцинтилляционных детекторов нейтронов повышенной эффективности.

2. Образцы и техника эксперимента

Стекла НИТИОМ ВНЦ ГОИ состава $\text{Li}_2\text{O}-\text{MgO}-\text{SiO}_2-\text{Ce}$ содержали 0.8 mol.% Ce в расчете на CeO_2 , лития в виде Li_2O от 22.5 до 30 mol.%. Температура

плавления стекол составляла 1500°C, плотность — 2.52 g/cm³, коэффициент преломления — 1.55, концентрация изотопа ${}^6\text{Li}$ достигала $1.15 \cdot 10^{22}$ cm⁻³. Образцы для исследования имели вид пластинок размером 10 × 10 × 1 mm.

Измерения спектров фотолюминесценции (ФЛ) и спектров возбуждения ФЛ при температурах 295 и 9–10 K выполнены на станции SUPERLUMI (лаборатория HASYLAB, DESY, Гамбург) при возбуждении синхротронным излучением (СИ). Для возбуждения в области 3.7–33 eV использовался 2m вакуумный монохроматор со сменными Al- или Pt-решетками. Спектры возбуждения ФЛ нормированы на равное число падающих на образец фотонов. Спектры ФЛ анализировались с помощью 0.3 m монохроматора ARC Spectra Pro-308i и фотоэлектронного умножителя R6358P. Спектры ФЛ и возбуждения ФЛ измерялись для время-интегрированной люминесценции, а также для люминесценции, детектируемой во временных окнах (ширина временного окна Δt), коррелированных относительно возбуждающего импульса СИ (задержка от начала импульса СИ δ_t). Исходя из кинетики затухания, параметры δ_t и Δt были установлены 2.3 и 22 ns для быстрого компонента и 72 и 104 ns для медленного компонента ФЛ соответственно. Эффективность регистрации нейтронов определялась на метрологически аттестованном стенде в УГТУ УПИ с использованием источника нейтронов ${}^{252}\text{Cf}$.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 представлены время-разрешенные спектры ФЛ при энергии возбуждения $E_{\text{exc}} = 4.7$ eV, $T = 9$ K. Спектр быстрого компонента, характеризующий свечение ионов Ce^{3+} , также как и при $T = 295$ K, представляет собой асимметричную полосу с максимумом при $h\nu_{\text{lum}} = 3.2$ eV (FWHM=0.5 eV), обусловленную

межконфигурационными переходами с низшего уровня $5d$ -оболочки на уровни основного состояния конфигурации $4f$. Вид спектров ФЛ не зависит от энергии возбуждающих фотонов в области 3.7–33 eV, а выход ФЛ практически не зависит от температуры. Отметим, что спектры люминесценции этих стекол при возбуждении пучками ионов He^+ с энергией 3 MeV или электронов с энергиями 150 keV идентичны спектрам ФЛ.

На рис. 2 представлены время-разрешенные спектры возбуждения ФЛ 3.2 eV. Быстрый компонент ФЛ эффективно возбуждается в области прозрачности стекла, что представлено в спектре возбуждения ФЛ неэлементарной широкой полосой при 3.7–8.5 eV. В структуре этой полосы проявляется особенность вблизи 6.9 eV, наиболее выраженная при низкой температуре. В области межзонных переходов ($E_{\text{exc}} = 9\text{--}22\text{ eV}$) свечение практически не возбуждается. Причина этого, как и для многих диэлектриков с подвижными электронными возбуждениями, — значительные безызлучательные потери энергии на поверхности образца. Фотонное умножение начинается при энергиях, превышающих 25 eV, и проявляется в росте выхода ФЛ Ce^{3+} -центров.

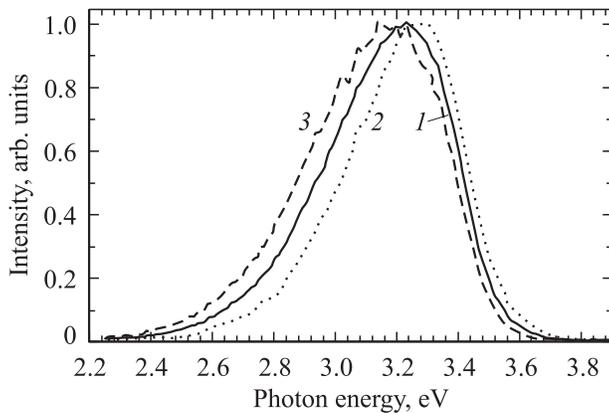


Рис. 1. Спектры ФЛ стекла $\text{Li}_2\text{O-MgO-SiO}_2\text{-Ce}$ при $T = 9\text{ K}$. (1) — время-интегрированный, (2) — быстрый компонент, (3) — медленный компонент.

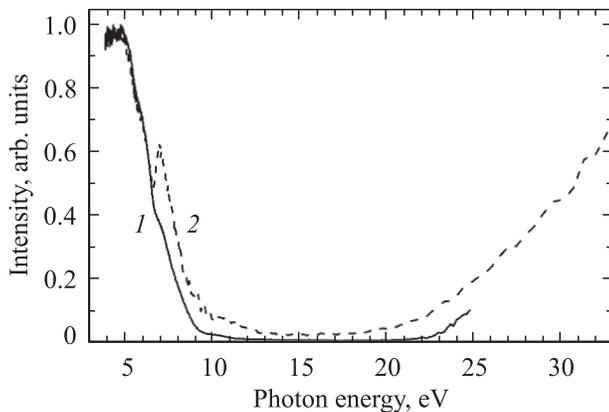


Рис. 2. Время-разрешенные спектры возбуждения быстрого компонента ФЛ (3.2 eV) стекла $\text{Li}_2\text{O-MgO-SiO}_2\text{-Ce}$ при $T = 295$ (1) и 9 K (2).

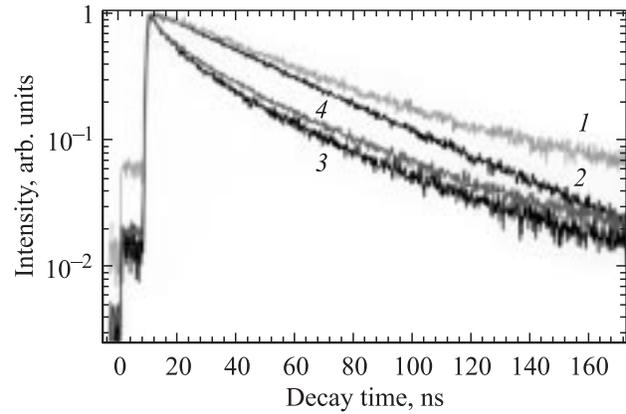


Рис. 3. Кинетика затухания ФЛ 3.2 eV стекла $\text{Li}_2\text{O-MgO-SiO}_2\text{-Ce}$ при энергии фотонного возбуждения 7.8 (1), 5.0 (2), 13.8 (3) и 31.0 eV (4); $T = 9\text{ K}$.

На рис. 3 представлены кинетики затухания ФЛ 3.2 eV стекла при различных E_{exc} . Установлено, что при возбуждении непосредственно в области примесного поглощения, т.е. при $E_{\text{exc}} = 4\text{--}6\text{ eV}$, ФЛ затухает по экспоненциальному закону с постоянной времени $\tau = 37.5\text{ ns}$. При возбуждении в области края фундаментального поглощения в кинетике ФЛ появляется компонент микросекундного диапазона. При возбуждении в области фотонного умножения ($E_{\text{exc}} > 25\text{--}33\text{ eV}$) время затухания сокращается, кинетика становится явно неэкспоненциальной ($\Delta t_{1/2} = 20.8\text{ ns}$).

Анализ спектров возбуждения ионов Ce^{3+} с учетом данных о спектрах свободных ионов Ce^{3+} показывает, что наблюдается две группы структурных полос: при 3.7–5.2 и 6.4–7.7 eV. Первая связана с межконфигурационными $4f \rightarrow 5d$ переходами. Вторая группа полос может быть связана либо с переходами на более высокоэнергетические состояния $5d$ -оболочки, либо с переходами на состояния незаполненной $6s$ -оболочки. Полосу в спектрах возбуждения ФЛ, связанную с переходами типа $4f \rightarrow 6s$ в ионах Ce^{3+} (в решетке LaF_3), впервые интерпретировали Педрини и Бельский [4–6]; она была зафиксирована при $\sim 7.7\text{ eV}$. Для исследуемого стекла такая полоса возбуждения наблюдается в области 6.4–7.7 eV, что не противоречит данным [4–7].

В работе [5] предложена модель конфигурационных кривых иона Ce^{3+} для кристаллов (рис. 4, a). Данная модель при некоторой модификации представляется пригодной и для объяснения спектров ФЛ ионов Ce^{3+} в исследуемом стекле (рис. 4, b), она учитывает эффект перезарядки ионов Ce^{3+} [8], а также эффекты переноса заряда и фотоионизации, предложенные авторами [5] в кристаллах.

Таким образом, в спектрах фото- и радиолуминесценции стекло $\text{Li}_2\text{O-MgO-SiO}_2\text{-Ce}$ проявляется один и тот же центр свечения, связанный с ионом Ce^{3+} . В работе [8] показано, что ионизирующее излучение вызывает в стеклах с ионами Ce^{3+} перезарядку и появление рекомбинационной люминесценции со спектром свечения, характерным для Ce^{3+} . Эффект пере-

на высокоэнергетические состояния $5d$ -оболочки, так и на $6s$ -оболочку. Это позволило уточнить модель конфигурационных кривых для ионов Ce^{3+} в стекле с учетом переноса заряда и фотоионизации. Анализ спектров возбуждения ФЛ в расширенном энергетическом диапазоне позволил обнаружить при $E_{\text{exc}} > 25 \text{ eV}$ эффект фотонного умножения, что является основанием для применения стекла как эффективного сцинтилляционного материала. На основе исследуемых стекол с использованием фундаментальных результатов разработан и испытан сцинтилляционный детектор нейтронов с повышенными техническими характеристиками.

Список литературы

- [1] Б.В. Шульгин, А.Л. Шаляпин, Ф.Ф. Гаврилов, В.Г. Чухланцев, Н.И. Кордюков. ЖПС **14**, 89 (1971).
- [2] А.с. № 463641 СССР. Стекло / И.А. Дмитриев, А.Ф. Зацепин, А.Л. Шаляпин, Б.В. Шульгин. БИ. М. (1975).
- [3] V.I. Arbuzov, N.Z. Andreeva, V.A. Vitenko, M.A. Milovidov. Radiation Measurements **25**, 1–4, 475 (1995).
- [4] C. Pedrini, C. Dujardin, J.C. Gacon, A.N. Belsky, A.N. Vasiliev, A.G. Petrosyan. Radiation Effects and Defects in Solids **154**, 277 (2001).
- [5] C. Pedrini, C. Dujardin, N. Garnier. Проблемы спектроскопии и спектрометрии. Межвуз. сб. научн. тр. УГТУ УПИ, Екатеринбург, **11**, 3 (2002).
- [6] A.N. Belsky, J.C. Krupa. Displays **19**, 185 (1999).
- [7] П.А. Родный, Д.М. Селиверстов. Препринт № 1886. ПИЯФ, Гатчина (1993). 27 с.
- [8] В.И. Арбузов, М.Н. Толстой. Физика и химия стекла **14**, 1, 3 (1988).
- [9] V.A. Pustovarov, A.L. Krymov, E.I. Zinin. Nucl. Instr. and Methods in Phys. Res. A **359**, 336 (1995).
- [10] ГОСТ 8.355–79. Радиометры нейтронов. Методы и средства поверок.