

05.6;09.1

Радиационная деградация сцинтилляторов на основе LiF:W

© Г. Гэ, В.И. Корепанов, П.В. Петикарь

Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Томск, Россия

E-mail: Koropanov@tpu.ru

Поступило в Редакцию 10 апреля 2019 г.

В окончательной редакции 10 апреля 2019 г.

Принято к публикации 17 апреля 2019 г.

Изучены закономерности и причины изменения спектрально-кинетических характеристик катодолуминесценции кристаллов LiF:W при облучении наносекундными электронными импульсами. Установлен вклад в искажение катодолуминесценции процессов преобразования дорадиационной дефектности и накопления центров окраски. Определены оптимальные условия эксплуатации сцинтилляторов LiF:W. Обнаружено, что предварительное облучение LiF:W дозами 10^3 – 10^4 Gy приводит к увеличению интенсивности катодолуминесценции в 1.5–2 раза („эффект малых доз“).

Ключевые слова: Катодолуминесценция, радиационная деградация, сцинтилляторы, LiF:W, дефекты.

Объектом исследования настоящей работы является активаторная люминесценция кристаллов LiF:W. Кристаллы LiF с примесями, в том числе W, могут быть эффективными сцинтилляторами для медицинской диагностики, регистрации частиц темной материи и других областей [1–3]. Цель работы — установить основные закономерности и причины радиационной деградации катодолуминесценции LiF:W, определить оптимальные условия эксплуатации кристалла в поле радиации, способы повышения эффективности.

Облучение образцов, возбуждение импульсной катодолуминесценции (ИКЛ) и стационарной катодолуминесценции (КЛ) производились пучком электронов длительностью 10 ns (поглощенная доза за импульс 200–250 Gy) со средней энергией 200 keV при температурах 20–300 K. Измерение спектров КЛ проводилось волоконно-оптическим спектрометром AvaSpec 3648-USB2 за один импульс электронов после облучения серией импульсов (различными дозами). Спектры ИКЛ были измерены с временным разрешением 7 ns.

Радиационная деградация — важнейшая эксплуатационная характеристика сцинтилляторов. Она характеризуется изменениями спектров излучения, длительности послесвечения, светового выхода и других параметров.

Типичные спектры активаторной КЛ LiF:WO₃ представлены на рис. 1 и состоят из перекрывающихся полос 3.1 и 2.64 eV, которые обусловлены излучательными переходами в кислородных центрах O²⁻-V_a (кислород-анионная вакансия) и центрах O²⁻-V_a, возмущенных примесью металла, соответственно [4].

При $T > 200$ K после облучения электронами в спектрах КЛ появляется характерный „провал“ в области энергий квантов $E = 2.77$ eV (рис. 1, a), связанный с поглощением КЛ накопленными F₂-центрами окраски [5]. При $T < 200$ K даже длительное облучение не приводит к появлению „провала“ (рис. 1, b). Однако искажение спектра люминесценции есть и связа-

но с поглощением части активаторной КЛ центрами окраски (ЦО) F₂ ($E_{\max} = 2.77$ eV), F₃⁺ ($E_{\max} = 2.74$ eV), V_k ($E_{\max} = 3.54$ eV). Суммарный спектр поглощения этими центрами не имеет узких полос в диапазоне 3.6–2.1 eV [6], и спектр КЛ даже при больших дозах облучения не имеет выраженных „провалов“.

Таким образом, при любых температурах с ростом дозы электронного облучения происходит искажение спектра и интенсивности активаторной КЛ в результате поглощения накопленными ЦО и появления дополнительных каналов диссипации поглощенной энергии радиации (захват первичных дефектов центрами окраски). Характер и степень искажения зависят от температуры, дозы облучения, типа и количества накопленных ЦО.

На основе исследований ИКЛ кристаллов LiF:WO₃ с наносекундным временным разрешением [5] установлено, что облучение приводит к накоплению молекулярных ионов O₂⁻ по реакции OH⁻ → O₂⁻. Люминесценция ионов O₂⁻ состоит из серий узких полос, а затухание происходит в наносекундном временном диапазоне. Спектр активаторной люминесценции — широкая полоса (рис. 1), затухающая по экспоненциальному закону с характеристическим временем затухания $\tau = 38$ μs при 300 K. Спектральные диапазоны активаторного излучения и излучения, обусловленного ионами O₂⁻, близки, но высвеченная светосумма ИКЛ ионов O₂⁻ на порядок меньше, чем ИКЛ активаторного свечения. Поэтому вклад КЛ молекулы O₂⁻ в искажение параметров сцинтилляций LiF:WO₃ в микросекундном временном диапазоне невелик. Процесс преобразования OH⁻ → O₂⁻ эффективен при температурах выше 200 K, а интенсивность люминесценции выше при низких температурах. Поэтому использование сцинтилляторов при низких температурах существенно снижает влияние этого эффекта.

При больших дозах искажение спектрально-кинетических характеристик излучения кристаллов LiF:WO₃ происходит за счет появления люминесценции

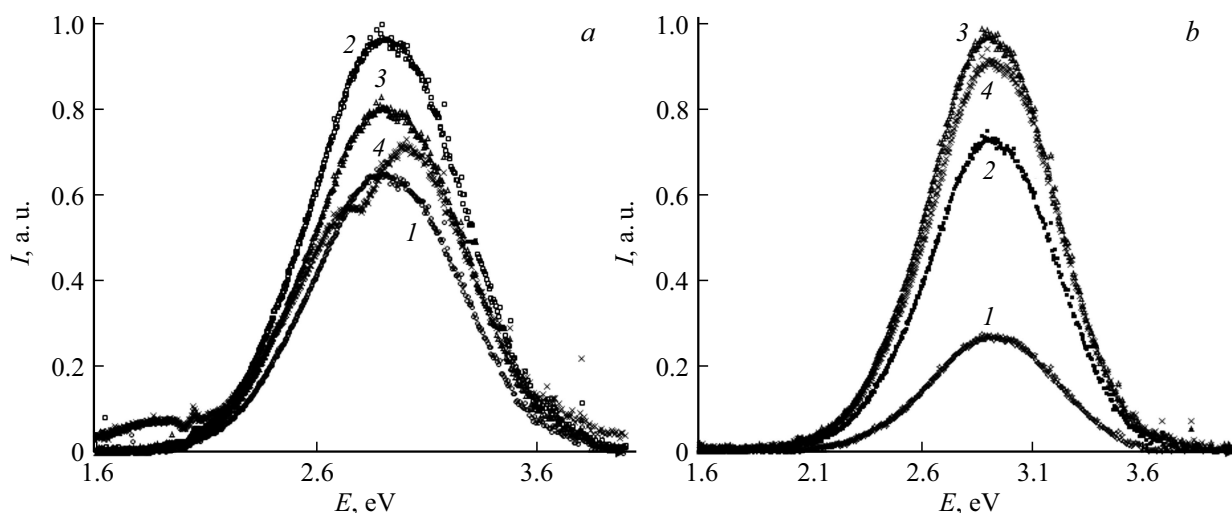


Рис. 1. Спектры КЛ кристаллов LiF:WO₃ после облучения различными дозами импульсного электронного облучения при 300 (a) и 100 К (b). 1 — 250 Gy, 2 — 750 Gy, 3 — 1.5 kGy, 4 — 20 kGy.

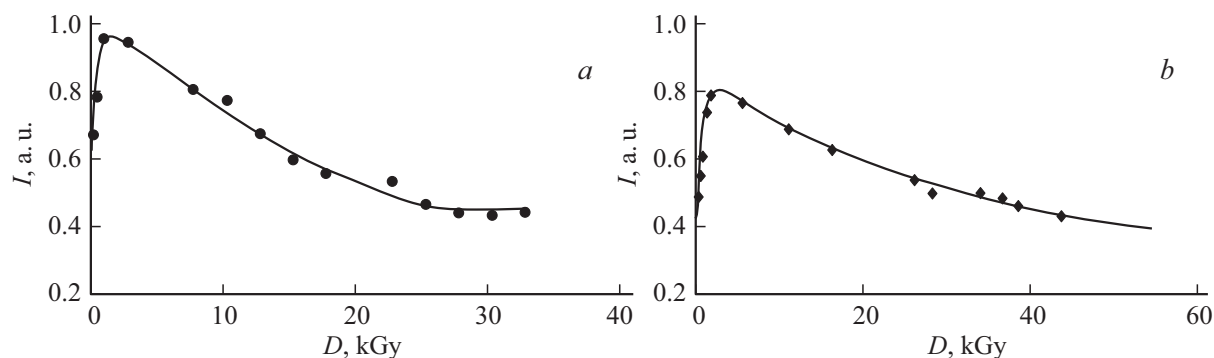


Рис. 2. Изменение интенсивности катодолюминесценции кристаллов LiF:WO₃ при $E = 2.8$ eV в зависимости от дозы импульсного электронного облучения при 300 (a) и 100 К (b).

ЦО. Например, в облученном кристалле можно наблюдать ИКЛ F_2 -центров, кинетика затухания которой представлена собственным наносекундным свечением и свечением с $\tau = 38 \mu\text{s}$, совпадающим с τ активаторной ИКЛ. Появление второго компонента связано с фотовозбуждением F_2 -центров активаторной КЛ. Поэтому с ростом дозы облучения растет вклад люминесценции ЦО и изменяются кинетические характеристики затухания их свечения. Однако люминесценция F_2 -центров находится за пределами спектрального диапазона активаторного свечения.

Кинетика (дозовые зависимости) изменения интенсивности КЛ кристаллов LiF:WO₃ с энергией квантов $E = 2.8$ eV приведена на рис. 2. Эти зависимости качественно демонстрируют характер и степень деградации параметров сцинтилляций в LiF:WO₃ в процессе их эксплуатации. Кинетика состоит из двух стадий (нарастания и уменьшения). Рост интенсивности КЛ происходит в пределах поглощенных доз $10^3 - 10^4$ Gy. Дальнейшее облучение приводит к ее уменьшению. Вид кинетики характерен для всех температур в пределах всего спектра

активаторного свечения. При температурах, близких к комнатной, эффективность нарастания КЛ значительно ниже, чем при низких температурах.

Наращение интенсивности КЛ при малых дозах облучения („эффект малых доз“) обусловлено взаимодействием дорадиационной дефектности с первичными радиационными дефектами, например парами Френкеля (F , H -парами). Об этом свидетельствует тот факт, что дозы, при которых происходит насыщение интенсивности активаторной КЛ, и концентрации накопленных ЦО в LiF:WO₃ на быстрой стадии [6] близки ($10^3 - 10^4$ Gy). Быстрая стадия накопления ЦО в ионных кристаллах связана с дорадиационной дефектностью и обусловлена появлением в решетке дополнительных ловушек для H -центров [6]. При выращивании фторида лития с примесями металлов в кристалле создаются комплексы дефектов, компенсирующие избыточный заряд примеси, например кислородные центры [4,7,8]. Такие комплексы могут быть эффективными ловушками электронных (e^- , p^+ -пары) и ионных (F , H -пары) возбуждений.

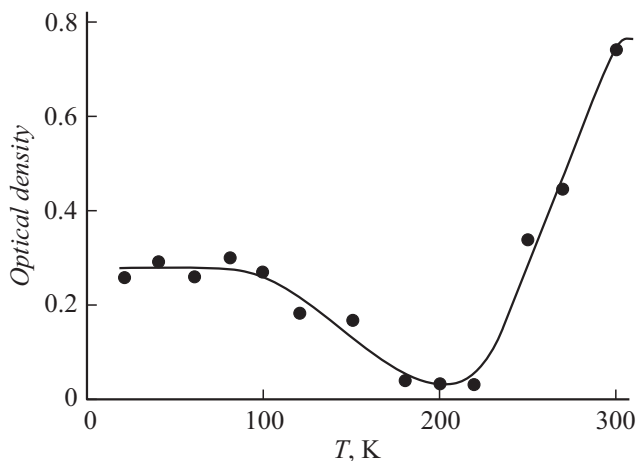


Рис. 3. Температурная зависимость эффективности накопления F_2 -центров в кристаллах $\text{LiF}:\text{WO}_3$.

В поле радиации при малых дозах (10^3 – 10^4 Gy) происходит преобразование дорадиационных дефектов, их стабилизация, количество свободных ловушек для электронных и ионных возбуждений уменьшается, что приводит к насыщению эффективности накопления ЦО и прекращению роста интенсивности КЛ в $\text{LiF}:\text{WO}_3$. Однако детали процессов, приводящих к „эффекту малых доз“, требуют дополнительных исследований. Отметим, что преобразование не связано с реакцией $\text{OH}^- \rightarrow \text{O}_2^-$, так как при понижении температуры скорость преобразования $\text{OH}^- \rightarrow \text{O}_2^-$ уменьшается [5], а эффективность нарастания КЛ на первой стадии увеличивается.

Уменьшение интенсивности КЛ в $\text{LiF}:\text{WO}_3$ связано с ЦО, кинетика накопления которых состоит из быстрой (отсутствует в LiF) и медленной (присутствует в чистом LiF) стадий при всех температурах [6]. Скорость накопления всех типов ЦО на быстрой стадии (0 – 10^4 Gy) при всех температурах на порядок выше. Этот фактор увеличивает эффективность радиационной деградации активаторного свечения как за счет поглощения ЦО, так и за счет появления дополнительного канала поглощения энергии радиации. Наименьшая эффективность накопления ЦО приходится на область 175 – 225 К (рис. 3), и этот диапазон является оптимальным для эксплуатации сцинтилляторов на основе $\text{LiF}:\text{WO}_3$.

С учетом изложенного выше можно сделать следующие выводы.

1. Основными видами и причинами радиационной деградации сцинтилляторов на основе $\text{LiF}:\text{WO}_3$ являются:

- искажение спектров активаторной КЛ $\text{LiF}:\text{WO}_3$ за счет поглощения центрами окраски, появления люминесценции O_2^- -центров, люминесценции центров окраски, в том числе при фотовозбуждении;

- изменение кинетических параметров ИКЛ за счет появления люминесценции O_2^- -центров и фотовозбуждения центров окраски;

- изменение интенсивности активаторной люминесценции за счет поглощения центрами окраски и появления дополнительных каналов поглощения энергии радиации.

2. Основной вклад в искажение КЛ вносят преобразование дорадиационной дефектности, сопровождающееся ростом интенсивности люминесценции („эффект малых доз“), и накопление центров окраски, сопровождающееся уменьшением интенсивности люминесценции („эффект больших доз“).

3. Среди практических рекомендаций по оптимизации параметров КЛ $\text{LiF}:\text{WO}_3$ отметим следующие:

- при выращивании кристаллов нужно создавать условия, минимизирующие накопление ионов OH^- ;

- необходимо предварительное облучение малыми дозами до 10^4 Gy, что приведет к увеличению интенсивности КЛ;

- оптимальной температурной областью эксплуатации является 175 – 225 К, так как в этом интервале минимальны как эффективность накопления центров окраски, так и эффективность образования ионов O_2^- .

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Kawaguchi N., Kawano N., Okada G., Yanagida T. // *Sensors Mater.* 2017. V. 29. N 10. P. 1431–1438.
- [2] Абдурашитов Д., Гектин А., Непомнящих А., Раджабов Е., Ширин Н. Возможности применения сцинтилляционных кристаллов LiF как детекторов частиц темной материи // ИСМАРТ-2012. Дубна, 2012.
- [3] Kurosawa S., Yamaji A., Pejchal J., Yokota Y., Ohashi Y., Kamada K., Yoshikawa A. // *J. Mater. Sci.* 2017. V. 52. N 10. P. 5531–5536.
- [4] Korepanov V.I., Petikar P.V., Ge G., Lipovka A.A. // *Key Eng. Mater.* 2017. V. 769. P. 141–145.
- [5] Lisitsyna L.A., Korepanov V.I., Lisitsyn V.M., Petikar P.V., Kasymkanova R.N., Esilbaev D.B. // *Proc. of Higher Education Physics.* 2012. V. 55. N 11/3. P. 95–99.
- [6] Корепанов В.И., Петикарь П.В. // *Изв. вузов. Физика.* 2015. Т. 58. № 6-2. С. 147–151.
- [7] Небогин С.А., Брюквина Л.И., Иванов Н.А., Глазунов Д.С. // *ФТТ.* 2017. Т. 59. В. 6. С. 1118–1124.
- [8] Mysovsky A.S., Sushko P.V., Radzhabov E.A., Reichling M., Shluger A.L. // *Phys. Rev. B.* 2011. V. 84. N 6. P. 064133.