

05:07

Сцинтилляционные свойства кристаллов SrF_2 и $\text{SrF}_2\text{—Ce}^{3+}$

© Р.Ю. Шендрик, Е.А. Раджабов, А.И. Непомнящих

Институт геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН, Иркутск
Иркутский государственный университет
E-mail: shendrik@ieeee.org

В окончательной редакции 25 февраля 2013 г.

Приводятся результаты измерения сцинтилляционных свойств беспримесных кристаллов SrF_2 и кристаллов, активированных различными концентрациями ионов Ce^{3+} . Световой выход данных материалов сравнивается с выходом известных сцинтилляторов NaI—Tl и $\text{CaF}_2\text{—Eu}^{2+}$. Установлено, что кристаллы фторида стронция, активированные ионами Ce^{3+} , обладают высоким световым выходом и перспективны для применения в гамма-каротажных сцинтилляционных детекторах.

В настоящее время сцинтилляторы находят все большее применение в различных областях физики, медицины, геологии. Они активно используются в детекторах в аэропортах, грузовых терминалах. В связи с этим растет спрос на сцинтилляционные материалы, что требует поиска новых материалов с лучшими характеристиками. Наибольший световой выход наблюдается для кристаллов иодидов, промидов и хлоридов, активированных ионами церия и европия [1,2]. Недостатком данных материалов является их высокая цена, а также гигроскопичность. Также в материалах, активированных европием, время затухания свечения составляет $\sim 1 \mu\text{s}$, к тому же данные сцинтилляторы имеют низкую температурную стабильность светового выхода, что накладывает ограничения на их использование, например, в геологии [3].

Для большинства применений достаточно, чтобы световой выход был на уровне сцинтиллятора NaI—Tl , но при этом сцинтиллятор имел бы более короткое время затухания и не был гигроскопичным. В этой связи перспективными могут быть кристаллы щелочно-земельных фторидов, активированных ионами Ce^{3+} , Pr^{3+} и Eu^{2+} . Предельный световой выход для таких материалов составляет примерно 50 000 photons/MeV [1]. Наибольший же световой выход был получен

в кристаллах $\text{CaF}_2\text{-Eu}^{2+}$, он составляет 18 000–24 000 photons/MeV. В кристаллах BaF_2 и $\text{BaF}_2\text{-Ce}^{3+}$ наблюдался меньший световой выход — 10 000 photons/MeV [2]. В представляемой работе впервые приводятся результаты исследования сцинтилляционных свойств кристаллов SrF_2 и $\text{SrF}_2\text{-Ce}^{3+}$.

Кристаллы SrF_2 и $\text{SrF}_2\text{-Ce}^{3+}$ выращивались методом Стокбаргера в вакууме. Для того чтобы избежать заражения кристаллов кислородом, в шихту добавлялся CdF_2 [4]. Полученные образцы не содержат примеси кислорода, что видно по отсутствию характерных полос в спектре поглощения кристаллов [5]. Были получены кристаллы $\text{SrF}_2\text{-Ce}^{3+}$ с концентрацией активатора от 0.03 до 3 mol.%.

Спектры рентгенолюминесценции (РЛ) измерялись при возбуждении рентгеновской трубкой с Pd-анодом, напряжение на трубке составляло 35 kV, ток 0.8 mA. Регистрация спектров производилась в режиме счета фотонов, для регистрации использовался ФЭУ-39а и монохроматор ВМ-4.

Измерение амплитудных спектров импульсов производилось с помощью ФЭУ-39а, предусилителя и спектрометрического усилителя Ortex 570. Время формирования импульса спектрометрического усилителя (shaping time) устанавливалось равным 10 μs , чтобы зарегистрировать как можно больше света от сцинтиллятора. Для возбуждения использовался калибровочный источник ^{137}Cs . Исследуемый образец, обернутый четырьмя слоями тефлоновой, отражающей УФ-свет ленты PTFE, помещался непосредственно на окно ФЭУ. Для лучшего оптического контакта между окном ФЭУ и сцинтиллятором наносилась глицириновая смазка.

Времена затухания свечения ионов Ce^{3+} в кристаллах $\text{SrF}_2\text{-Ce}^{3+}$ измерялись при возбуждении калибровочным источником ^{137}Cs . Кривые затухания регистрировались с помощью осциллографа Rigol DS-1202CA.

На рис. 1 представлены спектры РЛ кристаллов SrF_2 , NaI-Tl , $\text{SrF}_2\text{-0.3 mol. \% Ce}^{3+}$ и $\text{CaF}_2\text{-0.1 mol. \% Eu}^{2+}$. В спектре SrF_2 широкая полоса с максимумом в области 280 nm связана со свечением экситонов. В кристалле фторида стронция, активированного ионами церия, свечение экситонов тушится и исчезает при концентрациях активатора выше 1 mol.%. Наиболее интенсивные полосы в спектре РЛ кристалла $\text{SrF}_2\text{-Ce}^{3+}$ с максимумами при 310 и 325 nm связаны с $5d\text{-}4f$ -свечением ионов Ce^{3+} . Световой выход этих образцов можно

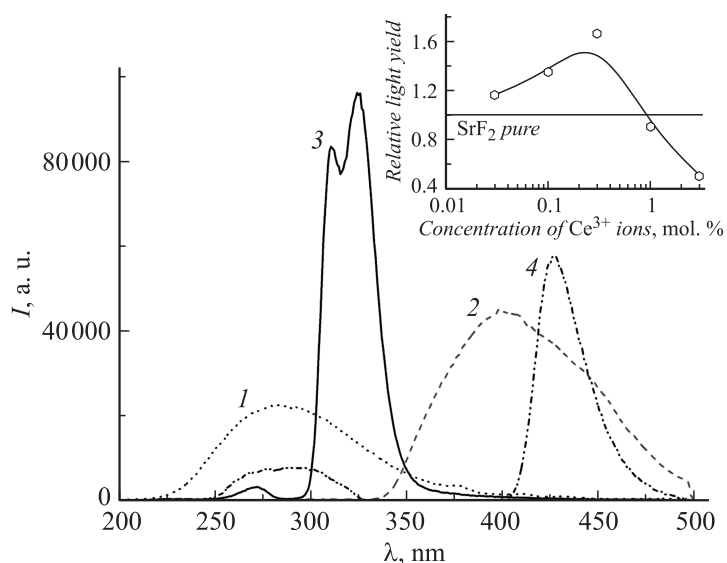


Рис. 1. Спектры свечения кристаллов SrF_2 (кривая 1), NaI-Tl (кривая 2), $\text{SrF}_2-0.3 \text{ mol.}\% \text{ Ce}^{3+}$ (кривая 3) и $\text{CaF}_2-0.1 \text{ mol.}\% \text{ Eu}^{2+}$ (кривая 4) при возбуждении рентгеновским излучением. На вставке представлена зависимость светового выхода при рентгеновском возбуждении от концентрации ионов Ce^{3+} в кристаллах SrF_2 . За единицу принят световой выход беспримесного кристалла SrF_2 .

оценить, сравнив площади под спектрами свечения образцов. На вставке к рис. 1 показана концентрационная зависимость светового выхода кристаллов, активированных различными концентрациями ионов церия (от 0.03 до 3 mol. %), нормированная на световой выход беспримесного кристалла SrF_2 . Наибольший световой выход наблюдается в кристаллах, активированных 0.3 mol. % ионов Ce^{3+} .

Световой выход люминесценции кристаллов SrF_2 и $\text{SrF}_2-\text{Ce}^{3+}$ при возбуждении рентгеновским излучением сравнивается с выходом люминесценции кристаллов NaI-Tl . Световой выход используемого кристалла NaI-Tl составляет 43 000 photons/MeV, таким образом можно оценить световой выход остальных исследуемых кристаллов при рентгеновском возбуждении. Данные приведены в таблице. Оцен-

Световой выход кристаллов SrF_2 , $\text{SrF}_2\text{-Ce}^{3+}$, NaI-Tl и $\text{CaF}_2\text{-0.1 mol.}\% \text{Eu}^{2+}$, измеренный при возбуждении рентгеновским и гамма-излучением

Сцинтиллятор	Световой выход, полученный из спектров рентгенолюминесценции		Световой выход, полученный из амплитудных спектров импульсов	
	rel.units	photons/MeV	rel.units	photons/MeV
NaI-Tl	1	43 000	1	43 000
CaF ₂ -0.1 mol.% Eu	0.5	21 500	0.44	18 920
SrF ₂	0.48	20 640	0.42	18 060
SrF ₂ -0.3 mol.% Ce ³⁺	0.79	33 970	0.32	13 760
SrF ₂ -1 mol.% Ce ³⁺	0.43	18 490	0.2	8 600

ка светового выхода для кристалла $\text{CaF}_2\text{-0.1 mol.}\% \text{Eu}^{2+}$ составляет 21 500 photons/MeV, что согласуется с литературными данными [2]. Для SrF_2 световой выход составляет 20 640 photons/MeV, для кристаллов SrF_2 , активированных 0.3 mol.% ионов $\text{Ce}^{3+} \sim 34\,000$ photons/MeV, 1 mol.% $\text{Ce}^{3+} \sim 18\,500$ photons/MeV.

На рис. 2, а приведены амплитудные спектры импульсов кристаллов SrF_2 , $\text{SrF}_2\text{-0.3 mol.}\% \text{Ce}^{3+}$ и NaI-Tl . По оси абсцисс на рисунке отложены каналы амплитудных распределений. На вставке представлена зависимость светового выхода, измеренного по положению пика полного поглощения, от концентрации ионов Ce^{3+} в SrF_2 . За единицу принят световой выход беспримесного кристалла SrF_2 . Энергетическое разрешение пика полного поглощения NaI-Tl составляет 6.7%, у SrF_2 — 10%, а разрешение образца $\text{SrF}_2\text{-0.3 mol.}\% \text{Ce}^{3+}$ — 9.3%. Световой выход беспримесного кристалла SrF_2 составляет 42% от NaI-Tl , что близко к значениям, полученным из спектров РЛ (см. таблицу). Световой выход кристаллов SrF_2 , активированных 0.3 mol.% ионов Ce^{3+} , составляет 32% от выхода NaI-Tl , что существенно ниже значений, полученных из спектров РЛ. Эти данные приведены также в таблице. Отметим, что в таблице приводятся некорректированные на спектральную чувствительность канала регистрации величины. Однако известно [6], что спектральная чувствительность фотокатода S20 (ФЭУ-39а) в области 400 nm выше, чем в области 280–330 nm.

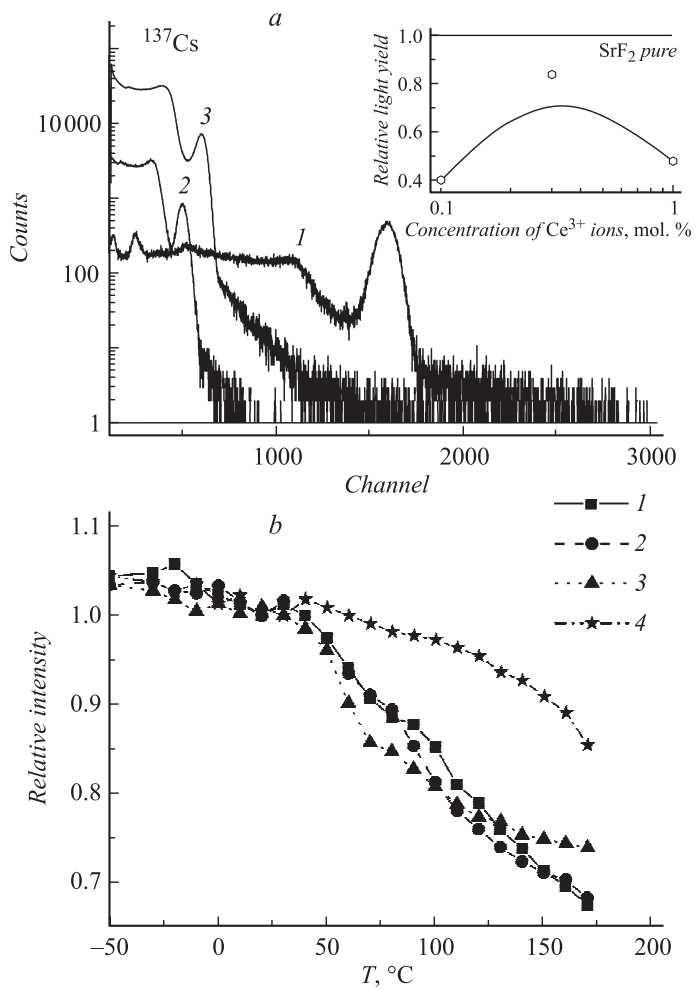


Рис. 2. Амплитудные спектры импульсов кристаллов NaI-Tl (кривая 1), SrF₂-0.3 mol.% Ce³⁺ (кривая 2) и SrF₂ (кривая 3) при возбуждении гамма-источником ¹³⁷Cs (662 keV) (a) и температурная зависимость светового выхода кристаллов SrF₂, активированных 0.01 mol.% Ce³⁺ (кривая 1), 0.1 mol.% Ce³⁺ (кривая 2), 0.3 mol.% Ce³⁺ (кривая 3) и 1 mol.% Ce³⁺ (кривая 4) (b). На вставке представлена концентрационная зависимость светового выхода кристаллов SrF₂-Ce³⁺.

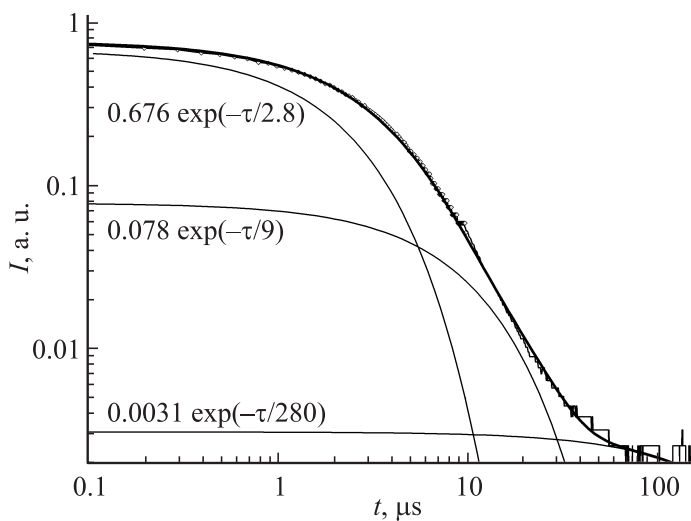


Рис. 3. Кривая затухания сцинтилляций кристалла SrF_2 , измеренная при возбуждении гамма-источником ^{137}Cs (энергия 662 keV). Отдельно показаны экспоненциальные компоненты, на которые раскладывается суммарная кривая.

На рис. 3 представлена кривая затухания сцинтилляций кристалла $\text{SrF}_2-0.3 \text{ mol.}\% \text{ Ce}^{3+}$. При измерении использовалось интегрирующее сопротивление $2.6 \text{ k}\Omega$, которое ставилось на вход осциллографа, для регистрации длительных компонент в свечении ионов Ce^{3+} . Аппаратное временное разрешение регистрирующей системы при использовании входного сопротивления $2.6 \text{ k}\Omega$ составляет порядка $2.8 \mu\text{s}$. Таким образом, первая компонента в затухании свечения — $2.8 \mu\text{s}$ — является проинтегрированной короткой компонентой, которая при сопротивлении входа 50Ω составляет 130 ns . Из рис. 3 видно, что вклад медленных компонент в свечение кристалла $\text{SrF}_2-0.3 \text{ mol.}\% \text{ Ce}^{3+}$ может достигать 50%.

Таким образом, разница в световом выходе, полученном из спектров РЛ и амплитудных спектров импульсов, связана с тем, что в свечении ионов церия присутствуют интенсивные медленные компоненты (рис. 3), которые дают вклад в световой выход. При измерении амплитудных спектров импульсов время формирования импульса со-

ставляет $10 \mu\text{s}$, поэтому значительная доля света не регистрируется. При измерении спектров РЛ время интегрирования составляет порядка 1 с.

Практические результаты исследования заключаются в следующем. Оценки температурной стабильности светового выхода (рис. 2, *b*) проводились по методике, описанной в работе [7]. В области температур от -50 до 50°C световой выход кристаллов $\text{SrF}_2 - \text{Ce}^{3+}$ не зависит от температуры. При температурах выше 50°C наблюдается уменьшение светового выхода с температурой. Для кристаллов, активированных $0.01 \text{ mol.}\% \text{ Ce}^{3+}$ (рис. 2, *b*, кривая 1) и $0.1 \text{ mol.}\% \text{ Ce}^{3+}$ (рис. 2, *b*, кривая 2), световой выход при температуре 170°C уменьшается на 30%, для образцов с концентрацией $0.3 \text{ mol.}\% \text{ Ce}^{3+}$ — 25% (рис. 2, *b*, кривая 3). В кристаллах с примесью $1 \text{ mol.}\% \text{ Ce}^{3+}$ световой выход при температуре 170°C снижается на 15% (рис. 2, *b*, кривая 4). Таким образом, высокую температурную стабильность светового выхода в интервале температур от -50 до 170°C демонстрируют кристаллы $\text{SrF}_2 - 0.3 \text{ mol.}\% \text{ Ce}^{3+}$ и $\text{SrF}_2 - 1 \text{ mol.}\% \text{ Ce}^{3+}$, что делает перспективным использование кристаллов $\text{SrF}_2 - \text{Ce}^{3+}$ в качестве сцинтилляторов для гамма-каротажных детекторов.

Кристаллы SrF_2 при сравнимом световом выходе с NaI-Tl имеют более высокую температурную стабильность светового выхода, плотность (4.18 g/cm^3) в сравнении с NaI-Tl (3.67 g/cm^3), а также не гигроскопичны. Потенциальный световой выход кристаллов $\text{SrF}_2 - \text{Ce}^{3+}$ может достигать $34\,000 \text{ photons/MeV}$. Таким образом, SrF_2 и $\text{SrF}_2 - \text{Ce}^{3+}$ являются перспективными кристаллами для сцинтилляционных применений.

Кристаллы $\text{SrF}_2 - 0.3 \text{ mol.}\% \text{ Ce}^{3+}$ по своим характеристикам: относительно высокий световой выход, негигроскопичность, температурная стабильность светового выхода — являются перспективным материалом для гамма-каротажных сцинтилляционных детекторов.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации и Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 11-02-00717-а).

Список литературы

- [1] Dorenbos P. // IEEE Transactions on Nuclear Science. 2010. V. 57. P. 1162.
- [2] Derenzo S.E. Database: <http://scintillator.lbl.gov>

- [3] *Ellis D.V., Singer J.M.* Well logging for earth scientists /2nd ed. Springer, 2007.
- [4] *Radzhabov E.* // J. Phys. Cond. Matter. 2001. V. 13. P. 10 955.
- [5] *Егранов А.В., Раджабов Е.* Спектроскопия кислородных и водородных примесных центров в щелочно-галогидных кристаллах. Новосибирск: Наука, 1992.
- [6] *Flyckt S.O.* Photomultipliers tubes. France: Photonis, 2002.
- [7] *Shendrik R., Radzhabov E.* // IEEE Transactions on Nuclear science. 2010. V. 57. P. 1295.