

ДИНАМИКА СВЕЧЕНИЯ ИОНОВ Gd^{3+} В СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫХ ЛИТИЙ-ФОСФАТ-БОРАТНЫХ СТЕКЛАХ

*Д.Т. Валиев, к.ф.-м. н., асс., А.В. Окунская, магистрант гр. 4ВМ2Б
Томский политехнический университет, 634050, г.Томск, пр.Ленина,30,
тел.(3822)-420-567*

E-mail: dtdamirka@gmail.com

Неорганические сцинтилляторы широко используются во многих областях фундаментальных и прикладных исследований - в физике высоких энергий, ядерной физике, диагностической медицинской аппаратуре, использующей рентгеновское и гамма-излучения, во многих промышленных измерительных системах [1]. Традиционно к сцинтилляторам предъявляются основные общие требования: высокий световой выход, высокая плотность и высокий атомный номер Z , достаточное быстродействие [2]. Среди свойств, необходимых для большинства приложений, например, для применения в компьютерной томографии, плотность сцинтилляторов является важной характеристикой, поскольку может привести к увеличению поглощения рентгеновских лучей сцинтилляторами, тем самым значительно повысить соотношение сигнал-шум.

На сегодняшний день существует достаточно много коммерческих сцинтилляторов, которые обладают этими свойствами, однако их высокая стоимость и достаточно трудоемкий процесс получения, вводит некоторые ограничения на их доступность. Аналогом таких сцинтилляторов могут быть стекла, активированные редкоземельными ионами (РЗИ). Относительно недорогой синтез, возможность изготавливать волокна различной формы и размеров делают их перспективными материалами. Тем не менее, плотность существующих «стеклянных» сцинтилляторов низка ниже 4 г/см^3 [3]. Хотя плотность стекол может быть легко повышена более чем на $6,0 \text{ г/см}^3$, что является желательным для большинства приложений, путем введения некоторых тяжелых компонентов, таких как PbO , Bi_2O_3 , это часто сопровождается резким снижением светового выхода люминесценции редкоземельных ионов.

Введение тяжелых оксидов металлов, таких как Gd_2O_3 , Y_2O_3 , Lu_2O_3 может повысить плотность стекол, не влияя при этом на световой выход. Кроме того активированное РЗИ стекло, обогащенное литием и бором, является перспективным материалом для создания дозиметров, сцинтилляторов для регистрации потоков нейтронов, т.к. литий и бор обладают большим сечением захвата тепловых нейтронов. Литий-фосфат-боратные стекла удовлетворяют всем этим требованиям.

Ион гадолиния Gd^{3+} отличается наибольшим энергетическим зазором, между первым возбужденным уровнем ${}^6P_{7/2}$ и его основным состоянием ${}^8S_{7/2}$ среди ионов лантаноидной группы. Большой энергетический зазор (32000 см^{-1}) позволяет рассматривать этот ион в качестве предполагаемого посредника («сенситизатора») между матрицей и другими РЗИ [4].

Целью данной работы является комплексное исследование зависимости динамики свечения ионов Gd^{3+} в литий-фосфат-боратном стекле от различных факторов: концентрации активатора, плотности возбуждения и температуры.

В работе исследовались стекла состава $Li_2O-B_2O_3-P_2O_5-CaF_2$ (LBPC), активированные: Gd 7,5 масс % (LBPC:Gd7,5); Gd 5 масс %: (LBPC:Gd5); Gd 2,5 масс %: (LBPC:Gd2,5). Образцы были синтезированы в Институте

монокристаллов Национальной Академии наук Украины (г. Харьков). Полученные стекла характеризуются гомогенностью, хорошей прозрачностью и влагостойкостью, так же высокой растворимостью редкоземельных компонентов.

Спектральные и кинетические характеристики затухания люминесценции были измерены на импульсном оптическом спектрометре при возбуждении образцов потоком электронов, генерируемых сильноточным ускорителем электронов. Технические возможности спектрометра: спектральная область измерений 200-1100 нм, временной диапазон 10^{-8} до 10^{-2} с, временное разрешение ~ 10 нс, средняя энергия электронов 250 кэВ, длительность потока электронов на полувысоте 10 нс. Исследуемые образцы находились в вакууме при остаточном давлении $\sim 10^{-3}$ Па. Поверхность образца располагалась под углом 45° к траектории распространения потока электронов, кинетика затухания люминесценции образца регистрировалась с облучаемой поверхности образца, световой поток фокусировался на входную щель монохроматора МДР-3 с помощью системы линз и регистрировался с помощью ФЭУ-106 и цифрового осциллографа GWInstek GDS-2204 (200 МГц). Для изучения плотностных зависимостей проводились измерения с набором калиброванных диафрагм сетчатого типа, располагающихся между катодом ускорителя и образцом и служащих в качестве анода. Плотность возбуждения менялась в диапазоне от 6 мДж/см² до 300 мДж/см². Температурные измерения проводились при комнатной и азотной температурах.

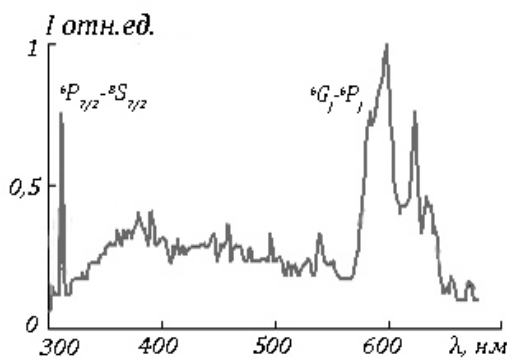


Рис. 1. Спектры люминесценции образца стекла *LBPC:Gd7.5* измеренные через 10 мкс после окончания импульса возбуждения

В спектре люминесценции при возбуждении потоком электронов, образца *LBPC:Gd 7.5* регистрируется узкая линия в УФ-области с максимумом 312 нм, соответствующая оптическому переходу ${}^6P_{7/2} \rightarrow {}^8S_{7/2}$ в ионе гадолиния и серия полос в спектральной области 550-600 нм (рис.1). Подобное свечение иона гадолиния проявляется при фото- [4] и рентгеновском возбуждении [5] в разных аморфных системах. Однако природа этого свечения интерпретируется авторами по-разному. По мнению авторов [4] широкополосное свечение в области 450-650 нм в алюмо-боросиликатной матрице связано с

люминесценцией оптически- активных кислород-дефицитных дефектов в матрице стекла. По мнению авторов [6] в системе энергетических уровней гадолиния происходит процесс многофотонной релаксации при прямом возбуждении 6G_7

Детально нами были исследованы кинетики затухания люминесценции при различных концентрациях иона-активатора. На рис. 2. представлены кинетики затухания в полосе 312 нм при импульсном электронном возбуждении с различной концентрацией ионов гадолиния в стекле. Кинетика затухания свечения может быть описана двумя экспоненциальными составляющими: коротковременная компонента с $\tau_1 \sim 1,5$ мс, 0,6 мс, 0,6 мс и длинновременная с $\tau_2 \sim 4,7$ мс, 4,3 мс, 4,2 мс при концентрации ионов Gd^{3+} 2,5, 5 и 7,5 масс%, соответственно. При изменении концентрации активатора в литий-фосфат-боратном стекле наблюдается динамика

изменения характеристического времени затухания.

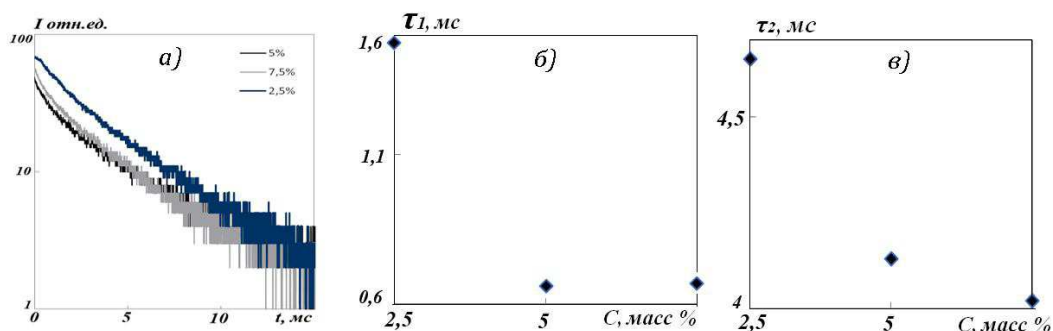


Рис. 2. Кинетика затухания свечения LBPC стекол, активированных Gd^{3+} разной концентрации в полосе 312 нм при возбуждении электронным пучком (а); зависимость характеристического времени затухания τ_{fast} (б) и τ_{slow} (в) от концентрации активатора

При увеличении концентрации Gd^{3+} наблюдается уменьшение характеристического времени жизни. Это может быть связано с процессом кроссрелаксации.

На рисунке 3 показана зависимость коротковременной и длинновременной составляющих от плотности возбуждения. Изменение плотности возбуждения в широком диапазоне не приводит к значительным изменениям характера затухания люминесценции. (рис. 3). Характеристическое время длинновременной компоненты в пределах 3,5-4,2 мс.

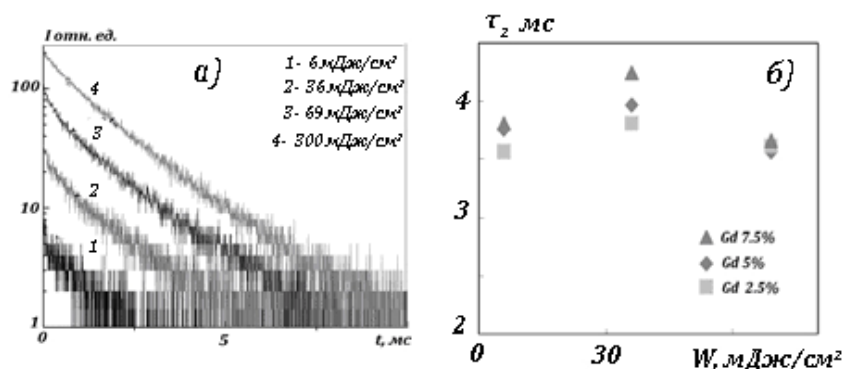


Рис.3 Кинетики затухания люминесценции (а) и время затухания длинновременной компоненты при разной плотности возбуждения (б) при концентрации Gd 5 масс% на длине волны 312нм.

Исследовано влияние температуры на временные характеристики свечения. В области $\lambda = 578$ нм в кинетике люминесценции присутствует две компоненты коротковременная $\tau_1 \approx 3 \pm 2$ мкс и длинновременная составляющая $\tau_2 \approx 40 \pm 2$ мкс. В исследованном диапазоне температур кинетика в полосе 578 нм практически не меняется.

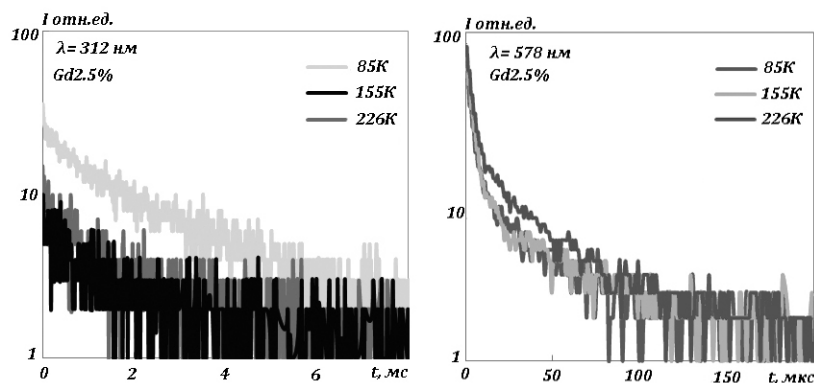


Рис.4 Кинетика затухания свечения образца $LBPC:Gd\ 2.5$ в полосе 312 нм. измеренная при различных температурах 85К, 155К, 226К.

В спектральной области $\lambda = 312$ нм, можно отметить незначительное изменение характеристического времени жизни с $\tau_2 \approx 2,9$ мс при $T = 226$ К до 3,5 мс при понижении температуры до 85 К для образца с концентрацией гадолия 2,5 масс%(рис. 4).

В работе изучены влияние концентрации, плотности возбуждения и температуры на кинетические характеристики люминесценции фосфат-борат-флюоридных стекол, активированных ионами Gd^{3+} при возбуждении импульсным электронным пучком наносекундной длительности. Показано, что изменение концентрации ионов гадолия влияет на характеристическое время затухания свечения. Обнаружено, что плотность возбуждения не оказывает значительного влияния на характеристическое время затухания люминесценции гадолия. Влияние температуры образца на кинетику люминесценции в полосе 312 нм демонстрирует существование температурно-активируемых стадий в процессе переноса энергии на уровень ${}^6P_{7/2}$ с которого осуществляется излучательный переход. Независимость кинетических характеристик затухания от температуры в полосе 578 нм, соответствует переходам ${}^6G_j \rightarrow {}^6P_j$, что свидетельствует об отсутствии метастабильных уровней в системе переходов.

Исследования выполнены при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 14-02-31297 мол_a и поддержке Минобрнауки РФ (госзадание «Наука», проект 3.1329.2014)

Список литературы:

1. Глобус М., Гринев Б. Неорганические новые и традиционные Сцинтилляторы, Второе издание, Акта, Харьков, 2001. – 408 с.
2. Lecoq P., Annenkov A., Gektin A., Korzik M., Pedrini C. Inorganic scintillators for detector systems Physical Principles and Crystal Engineering Springer.- 2006.- p.251
3. Placious R.C., Polansky D., Berger H., Bueno C. et al // Materials Evaluation. – 1991. – P.1419.
4. Мальчукова Е.В., Непомнящих А.И., Voizot V., Шамирзаев Т., Petit G. Люминесценция алюмоборосиликатных стекол, легированных ионами Gd^{3+} // ФТТ.– 2010. в.52 – С. 1789-1794.

5. Mares J.A., Nikl M., Nitsch K., Solovieva N. et al A role of Gd³⁺ in scintillating processes in Tb-doped Na–Gd phosphate glasses // Journal of Luminescence. 2001.–v. 94.– pp. 321–324.

6. Z. Tian, H. Liang, B. Han, Q. Su, Y. Tao, G. Zhang, Y. Fu. Photon Cascade Emission of Gd³⁺ in Na(Y,Gd)FPO₄ // J. Phys. Chem. C 112, 12 524 (2008).

ЛАЗЕРНОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ В СТРУКТУРАХ КРТ С КВАНТОВЫМИ ЯМАМИ: АНАЛИЗ НАУЧНОГО-ТЕХНИЧЕСКОГО УРОВНЯ.

*Д.И. Горн, к.ф.м.н., с.н.с., А.В. Войцеховский, д.ф.м.н., профессор
Национальный исследовательский Томский государственный университет,
634050, г.Томск, пр. Ленина,36, тел.(3822)-413-517
E-mail: gorn_dim@sibmail.com*

Одним из перспективных направлений в области создания эффективных излучателей среднего и дальнего инфракрасного (ИК) диапазона является применение в качестве активной области излучателя наноструктур с квантовыми ямами (КЯ) на основе узкозонного твёрдого раствора Cd_xHg_{1-x}Te (КРТ).

Применение квантовых ям в излучательных структурах при определённых условиях позволяет существенно снизить скорость Оже-рекомбинации за счёт изменения функции плотности электронных состояний в КЯ и появления запретов на некоторые типы оптических переходов. Например ещё в [0] было теоретически показано, что применение квантовых ям на основе КРТ может позволить снизить скорость безызлучательной Оже-рекомбинации в несколько десятков раз.

В данной работе мы рассмотрим имеющиеся на настоящий момент наработки по вопросу получения стимулированного излучения в ИК-диапазоне в структурах на основе КРТ с квантовыми ямами. Также нами будет проведён анализ представленных в рассмотренных работах экспериментальных данных и по возможности будет дана интерпретация наблюдаемого излучения. Теоретический анализ будем проводить на основании модели самосогласованного потенциала полупроводниковой гетероструктуры, основанной на совместном численном решении уравнений Пуассона и Шрёдингера для структуры с КЯ [0].

спонтанного и стимулированного излучения с максимумом спектральной характеристики на длине волны 2,85 мкм и 2,75 мкм соответственно. Авторами рассматривалась структура с множественными квантовыми ямами Cd_{0,37}Hg_{0,63}Te (16,6 нм) / Cd_{0,85}Hg_{0,15}Te (6 нм), состоящая из 30 периодов, выращенная методом МЛЭ. Накачка в эксперименте осуществлялась Nd:YAG лазером в непрерывном режиме. Полученные в работе спектры представлены на рисунке 1. Оценочный расчёт даёт следующие результаты. Наиболее близким по энергии к наблюдаемым линиям люминесценции является излучательный переход $c_2 \rightarrow hh_2$ между вторым уровнем размерного квантования электронов и вторым уровнем квантования тяжёлых дырок. Этот переход осуществляется на длине волны 2,77 мкм при температуре 5 К и 2,73 мкм при температуре 60 К. Расчетное значение в хорошей степени согласуется с наблюдением при высокой температуре.