

УДК 661.862

## **ОПТИЧЕСКИЕ И ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СЦИНТИЛЛИРУЮЩИХ СРЕД ДЛЯ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ В КАЧЕСТВЕ РЕГИСТРАЦИИ ДЕТЕКТОРОВ ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ**

**В. В. СИДСКИЙ, А. В. СЕМЧЕНКО,  
В. В. ВАСЬКЕВИЧ, М. И. МОСКВИЧЕВ**

*Учреждение образования «Гомельский государственный  
университет имени Ф. Скорины», Республика Беларусь*

**В. Б. ЗАЛЕСКИЙ, В. В. МАЛЮТИНА-БРОНСКАЯ**

*Государственное научно-производственное объединение  
«Оптика, оптоэлектроника и лазерная техника», г. Минск,  
Республика Беларусь*

**А. А. БОЙКО**

*Учреждение образования «Гомельский государственный  
технический университет имени П. О. Сухого»,  
Республика Беларусь*

**Ключевые слова:** золь-гель процесс, сцинтиллятор, люминесценция, порошок, европий, иттрий, ионизирующее излучение.

### **Введение**

В последние годы возникла необходимость разработки новых сцинтиллирующих сред для использования в качестве детекторов ионизирующих излучений [1]–[6]. Повышение чувствительности и эффективности регистрации гамма-излучения зачастую осложняется ограничением по диаметру детектора и может решаться только путем увеличения высоты сцинтиллятора и поиска сцинтилляционных материалов с более высоким эффективным атомным номером. Применение с этой целью известных сцинтилляторов (АНВ, сложные оксиды и др.) в настоящее время проблематично в связи с трудностями в получении кристаллов требуемых размеров, с низким световым выходом, плохой прозрачностью к собственному излучению, низкой термостойкостью [1].

Актуальность решаемой проблемы заключается в необходимости разработки новых материалов для оптоэлектроники, светотехники, бытовой техники, медицинских применений. Оптические люминесцентные радиационные детекторы сцинтилляционного типа, работающие в режиме реального времени, и запоминающие детекторы термолюминесцентного типа широко применяются в комплексах и системах радиационного, радиоэкологического и радиологического мониторинга для обнаружения делящихся и радиоактивных веществ. Такие детекторы все больше применяются для радиационного контроля природного и вторичного сырья и материалов, используемых в металлургической промышленности и строительной индустрии, для контроля природной и технической воды по радиационному фактору. Люминесцентные детекторы широко используются в медицине для контроля дозозатрат персонала и пациентов, в качестве функциональных элементов в томографах, в рентгеновских экранах, а также для целей персональной дозиметрии лиц, работающих в атомной промышленности и на установках ядерно-физического профиля.

Целью работы было исследование оптических и фотоэлектрических свойств сцинтиллирующих сред, полученных золь-гель методом, и определение возможности их применения в качестве детекторов ионизирующих излучений.

### Экспериментальная часть

В рамках данной статьи рассматриваются свойства неорганических сцинтилляторов на основе боросиликатного стекла, полученных золь-гель методом. В качестве легирующих элементов были использованы соли редкоземельных элементов: Eu, Sm, а также соли Y и Nb. Химический состав золя подобран экспериментальным путем.

Для изготовления сцинтилляторов золь-гель методом с высокой прозрачностью и равномерным распределением по всему объему необходимо соблюдать ряд условий технологического процесса:

- проведение глубокой очистки и тщательного перемешивания исходных материалов;
- выдержка необходимого температурного режима;
- выполнение этапов вакуумирования и микрофльтрации;
- выполнение отжига изделия для удаления остатков мономера и снятия остаточных напряжений.

Золь-гель методом получены образцы боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}$ , солигированного ионами Y ( $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$ ),  $\text{Sm}^{3+}$ , солигированного ионами Y ( $\text{Sm}^{3+}:\text{Y}$ ),  $\text{Sm}^{3+}$ , солигированного ионами Y и Nb ( $\text{Sm}^{3+}:\text{Y:Nb}$ ). Температура отжига на воздухе составляла  $900\text{ }^\circ\text{C}$ , продолжительность отжига – 60 мин. Полученные материалы представляют собой прозрачные бесцветные стекла, которые чувствительны к воздействию излучения, близкого к ультрафиолетовому ( $\lambda = 400\text{ нм}$ ), и при облучении излучают ярко-розовое видимое свечение (рис. 1).



Рис. 1. Внешний вид неорганического сцинтиллятора на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Sm}^{3+}:\text{Y}$

Световыход сцинтилляций для предлагаемых неорганических сцинтилляторов на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Sm}^{3+}:\text{Y}$ , измеряли при комнатной температуре с использованием установки КЛАВИ-Р (разработка Института электрофизики УрО РАН), генерирующей импульсные электронные пучки с энергией 200 кэВ, длительностью 1,5; 15 нс.

Измерение вольт-амперных характеристик образцов проводились с использованием светодиодов красного, зеленого и синего цвета и импульсного тестера ИФТ-4/3 (имитатора солнечного излучения со спектром АМ 1,5). Импульсный тестер ИФТ-4/3 представляет собой комбинацию импульсного источника излучения и электронного измерительного устройства.

### Результаты и их обсуждение

Рассмотрим характерные особенности спектров световыхода сцинтилляций для неорганических сцинтилляторов на основе боросиликатного стекла, легированного

$\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  (8–16 мас. % Eu). Для проведения сравнительного анализа был использован сцинтиллятор на основе  $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}^{2+}$  (рис. 2 и 3).

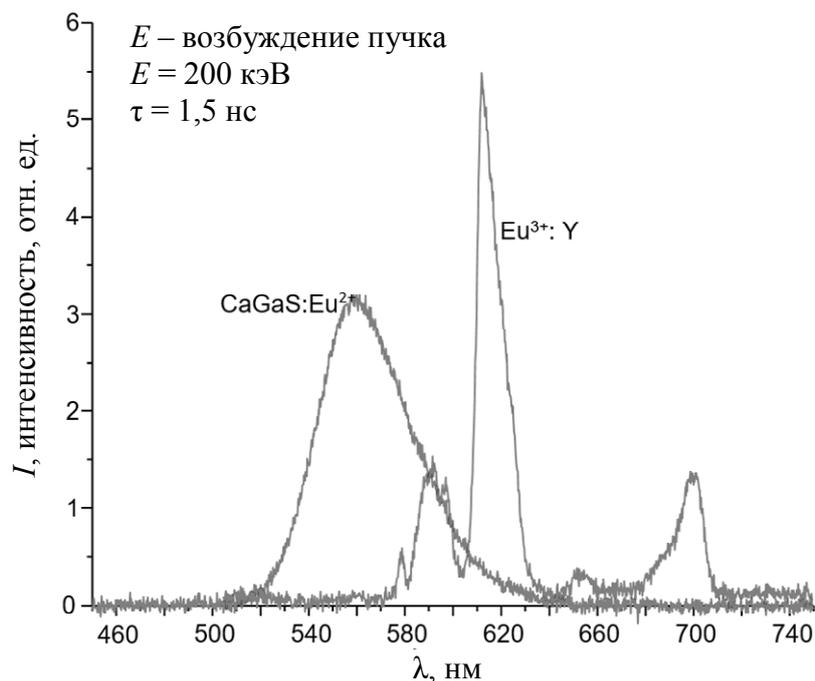


Рис. 2. Световыход сцинтилляций для неорганического сцинтиллятора на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  (8 мас. % Eu), и сцинтиллятора на основе  $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}^{2+}$ , используемого для сравнения

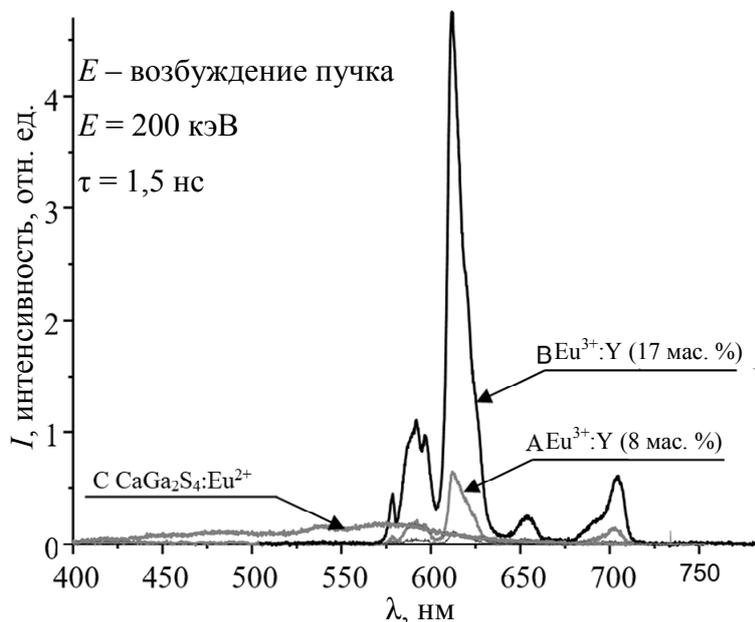


Рис. 3. Световыход сцинтилляций для неорганического сцинтиллятора на основе: А – боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  (8 мас. % Eu); В – боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  (17 мас. % Eu); С –  $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}^{2+}$ , используемого для сравнения

Спектр свечения полученного неорганического сцинтиллятора на основе боросиликатного стекла имеет максимум при 615–620 нм, связанный с переходами в электронных энергетических уровнях ионов  $\text{Eu}^{3+}$ . Неорганический сцинтиллятор

$\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}^{2+}$  имеет максимум при 540–560 нм, связанный с переходами в электронных энергетических уровнях ионов  $\text{Eu}^{2+}$ . Световыход сцинтилляций для полученного неорганического сцинтиллятора на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$ , в 1,5 раза выше, чем таковой для известного состава  $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}^{2+}$ . При увеличении концентрации  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  в боросиликатном стекле до 17 мас. % световыход сцинтилляций для неорганического сцинтиллятора увеличился в 5,8 раза, в сравнении с составом  $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}^{2+}$ .

Поместив полученные сцинтилляторы на фотодиод, проведены измерения вольт-амперных характеристик при освещении светодиодами. Данная характеристика является зависимостью силы тока при постоянном потоке света от напряжения. На рис. 4 представлены ВАХ двух сцинтилляторов (sc1 – на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  (8 мас. % Eu), и sc2 – на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  (17 мас. % Eu)) при синем освещении.

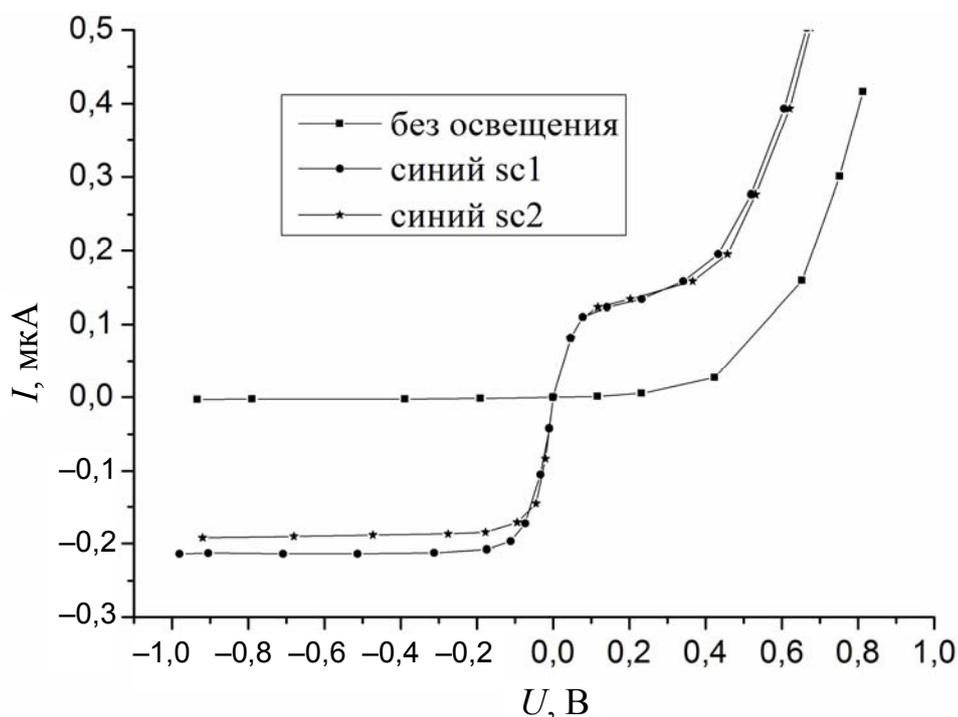


Рис. 4. ВАХ двух сцинтилляторов (sc1 – на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  (8 мас. % Eu) и sc2 – на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  (17 мас. % Eu)) при синем освещении

На графике видно, что полученные сцинтилляторы при освещении их светодиодами синего цвета имеют довольно малый участок тока насыщения и быстро переходят в область, называемую областью ударной ионизации, которая характеризуется резким возрастанием тока при незначительном изменении напряжения. Это свидетельствует о том, что полученные сцинтилляторы наиболее чувствительны к излучению, близкому к ультрафиолетовому спектру.

Теперь проанализируем изменение вольт-амперной характеристики каждого сцинтиллятора, воздействуя на них светодиодами красного, зеленого и синего цвета. Для сравнения приведем вольт-амперную характеристику фотодиода без сцинтиллятора (рис. 5 и 6).

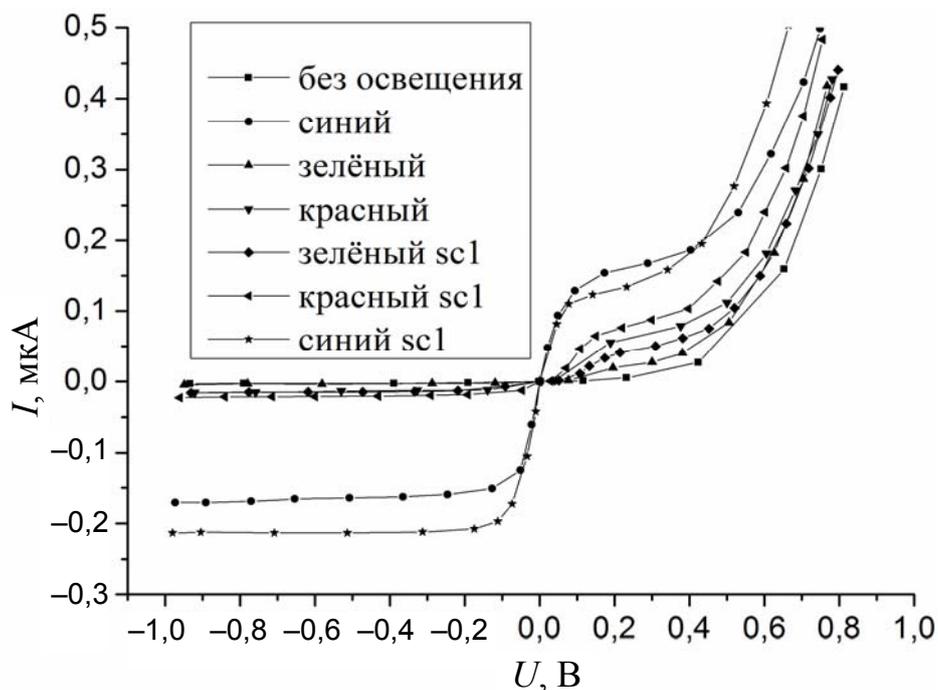


Рис. 5. Сравнение характеристик с первым сцинтиллятором на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  (8 мас. % Eu), RGB

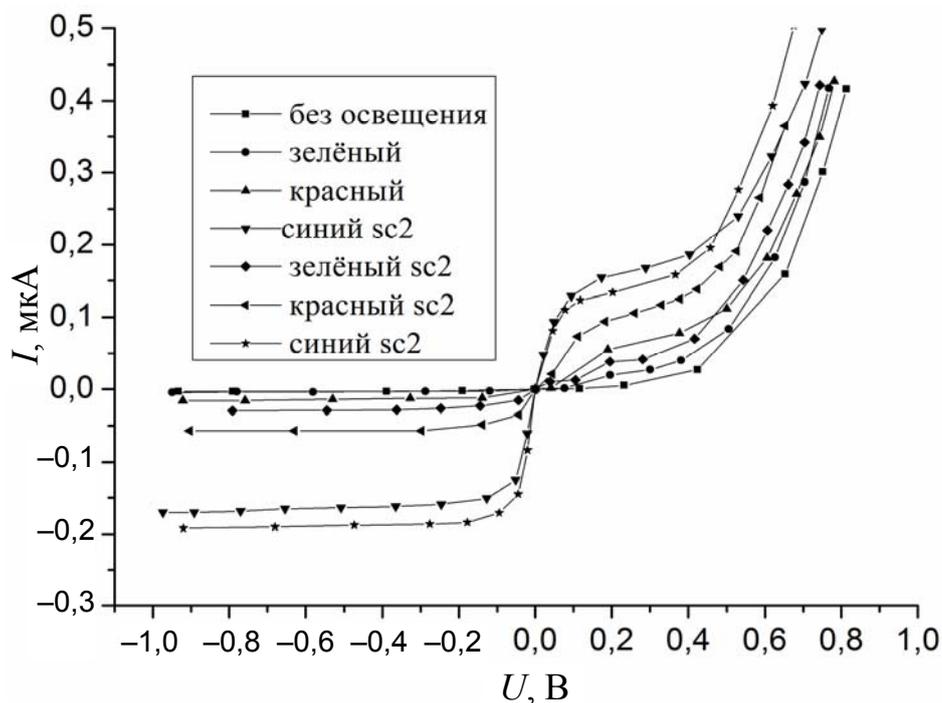


Рис. 6. Сравнение характеристик со вторым сцинтиллятором на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}$  (17 мас. % Eu), RGB

Проанализировав приведенные выше вольт-амперные характеристики, можно сделать вывод о том, что воздействие на полученный фотодиод излучением зеленого спектра практически не приводит к изменению вольт-амперной характеристики, в отличие от того результата, который дает излучение, близкое к ультрафиолетовому спектру.

В сцинтилляторах при воздействии ионизирующего излучения атомы (молекулы) длительное время остаются в возбужденном состоянии и переходят в стабильное состояние с испусканием кванта света при получении дополнительной энергии от воздействия инфракрасного (теплого) или ультрафиолетового излучения. На приведенной выше вольт-амперной характеристике видно, что полученный сцинтиллятор проявляет выраженную чувствительность при облучении его светодиодами красного и синего цвета.

Золь-гель методом были синтезированы сцинтиллирующие среды на основе боросиликатного стекла, легированные самарием 1, и сцинтиллирующие среды на основе боросиликатного стекла, содержащего кристаллы ниобата иттрия, легированного самарием 2 (рис. 7).

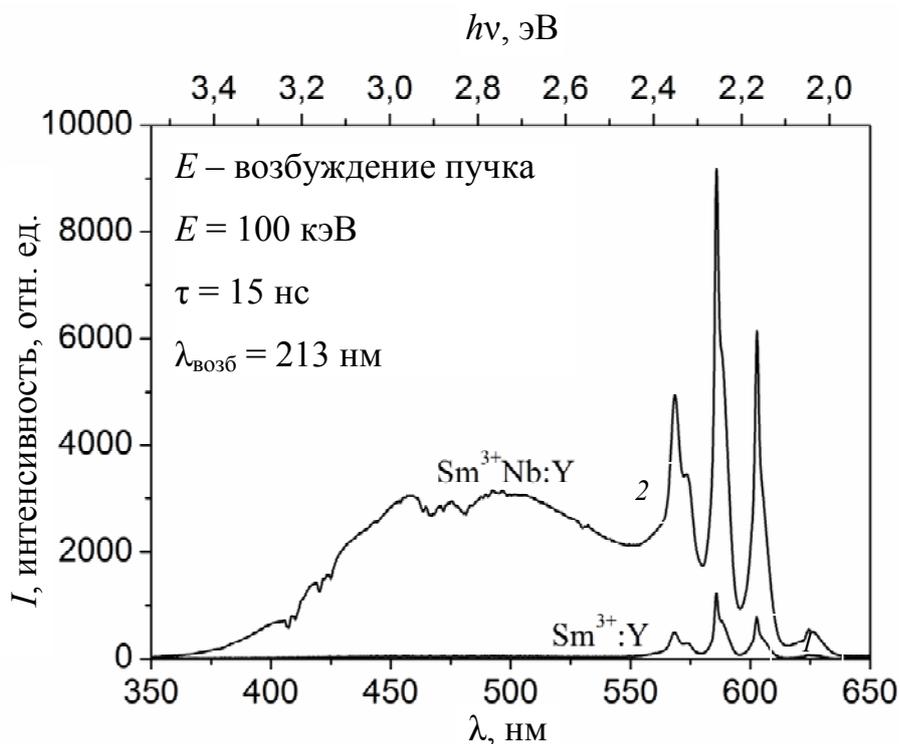


Рис. 7. Световых выходов сцинтилляций, полученных золь-гель методом образцов:

- 1 — на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Sm}^{3+}:\text{Y}$ ;  
2 — на основе боросиликатного стекла, легированного  $\text{Sm}^{3+}:\text{Y:Nb}$

Излучение в видимом диапазоне соответствует излучению иона редкоземельного элемента. Резкий рост пиковой интенсивности люминесценции иона самария при соактивации боросиликатного стекла легированного  $\text{Sm}^{3+}:\text{Y}$  ниобием, наблюдающийся независимо от боросиликатной матрицы, соответствует процессу передачи энергии от иона ниобия на ион самария  $\text{Sm}^{3+}$ .

### Заключение

Проведен анализ взаимосвязи исходного состава и структурных свойств, установлен характер зависимости оптических характеристик от условий формирования и соотношения компонентов в исходном составе стекла. Определены оптимальные параметры для синтеза наиболее эффективных стеклокристаллических сцинтилляторов.

При увеличении концентрации ионов  $\text{Eu}^{3+}$  и  $\text{Y}$  до 17 мас. % в боросиликатной матрице световых выходов сцинтилляций увеличился в 5,8 раза, в сравнении с составом  $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}^{2+}$ .

Из анализа вольт-амперных характеристик можно сделать вывод, что воздействие на сцинтиллятор излучением зеленого спектра практически не приводит к изменению вольт-амперной характеристики, но проявляет ярко выраженную чувствительность при облучении его светодиодами красного и синего цвета.

Анализ спектров люминесценции сцинтиллирующих сред на основе боросиликатного стекла, легированного ионами  $\text{Sm}^{3+}:\text{Y}$  и  $\text{Sm}^{3+}:\text{Y}:\text{Nb}$ , показывает, что активация ниобием увеличивает пиковую интенсивность люминесценции ионов самария в семь раз. Это объясняется передачей возбуждения с уровней собственной люминесценции от иона ниобия на уровни редкоземельного иона  $\text{Sm}^{3+}$ , что повышает выход люминесценции этого материала при поглощении ионизирующего излучения.

Синтезированные золь-гель методом сцинтиллирующие среды на основе легированного боросиликатного стекла могут применяться в качестве активных сред для оптических люминесцентных радиационных детекторов сцинтилляционного типа  $\beta$ -,  $\gamma$ -излучения, лавинных фотодиодов, работающих в режиме реального времени и в качестве запоминающих детекторов термолюминесцентного типа, широко применяемых в комплексах и системах радиационного, радиоэкологического и радиологического мониторинга для обнаружения делящихся и радиоактивных веществ. Дополнительными преимуществами полученных неорганических сцинтилляторов являются их повышенная чувствительность, универсальность и избирательность регистрации корпускулярного излучения.

*Работа выполнена при частичной поддержке Белорусского республиканского фонда фундаментальных исследований (грант № Т19РМ-030).*

### Литература

1. Synthesis and study of the luminescent properties of europium-doped yttrium niobate / A. Mester [et al.] // Opt. Spectrosc. – 2016. – Vol. 120, № 5. – P. 726–731.
2. Luminescence and Raman studies of  $\text{YNbO}_4$  phosphors doped by  $\text{Eu}^{3+}$ ,  $\text{Ga}^{3+}$ , and  $\text{Al}^{3+}$  / M. Nazarov [et al.] // J. Appl. Phys. – 2010. – Vol. 107, № 10. – P. 103–104.
3. Production, characterization, and luminescent properties of  $\text{Eu}^{3+}$  doped yttrium niobate-tantalate films / S. Yildirim [et al.] // Journal of Advanced Ceramics. – 2017. – Vol. 6 (1). – P. 33–42.
4. Nazarov, M. New Generation of Europium-and Terbium-Activated Phosphors: From Synthesis to Applications / M. Nazarov, D. Y. Noh // Jenny Stanford Publishing, 2011. – 300 p.
5. Structural characteristics and spectral properties of novel transparent lithium aluminosilicate glass-ceramics containing  $(\text{Er}, \text{Yb})\text{NbO}_4$  nanocrystals / O. S. Dymshits [et al.] // J. Lumin. – 2015. – Vol. 160. – P. 337–345.
6. Transparent glass-ceramics with  $(\text{Eu}^{3+}, \text{Yb}^{3+}):\text{YNbO}_4$  nanocrystals: Crystallization, structure, optical spectroscopy and cooperative upconversion / P. A. Loiko [et al.] // J. Lumin. – 2016. – Vol. 179. – P. 64–70.

*Получено 18.11.2019 г.*