

УДК 535.377

Т.О. Окунєва, В.Т. Маслюк, І.Г. Мегела, В.М. Головей, М.М. Біров
Інститут електронної фізики НАН України, 88017, Ужгород, вул. Університетська, 21
e-mail: nuclear@email.uz.ua

ЛЮМІНЕСЦЕНТНІ ВЛАСТИВОСТІ КРИСТАЛІВ $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$ ТА $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ В ЗАЛЕЖНОСТІ ВІД ТИПУ ТА УМОВ ОПРОМІНЕННЯ ІОНІЗУЮЧИМИ ЧАСТИНКАМИ

Досліджено вплив інтенсивності та дози опромінення електронами з енергіями 9,5 та 14,5 МеВ, а також опромінення фотонами від Co^{60} , швидкими та повільними нейтронами Pu-Be джерела на фосфоресценцію при кімнатній температурі та термолюмінесценцію нелегованих та легованих міддю та марганцем кристалів тетраборату літію.

Ключові слова: тетраборат літію, термолюмінесценція, дозиметрія, фосфоресценція.

Вступ

Тетраборат літію почав широко використовуватись поряд з лейкосапфіром (Al_2O_3) [1] та кристалами на основі LiF [2] для термостимульованої люмінесцентної (ТСЛ) дозиметрії іонізуючих випромінювань, а також нейтронів, які, при взаємодії з речовиною, в загальному випадку, не є іонізуючими частинками [3]. Реєстрація нейтронів термолюмінесцентними дозиметрами здійснюється за рахунок ядерних реакцій з Li та B, що супроводжуються утворенням вторинних іонізуючих частинок, вихід яких залежить від енергії нейтронів та ізотопного складу Li та B. Очевидно, що такий процес супроводжується, крім утворення іонізуючих частинок, також утворенням радіаційних дефектів у вигляді зміщених атомів, які, в свою чергу, змінюють термолюмінесцентні властивості опроміненого матеріалу [4]. В зв'язку з цим одним із актуальних питань є дослідження впливу на дозиметричні властивості кристалів тетраборату літію високоенергетичних електронів, які при взаємодії з кристалами, крім іонізації, утворюють також радіаційні дефекти.

Експеримент

Синтез вихідної шихти і вирощування монокристалів LTB:Cu, LTB:Mn та нелегованого LTB проводили в платинових тиглях на повітрі без перезавантаження. Вирощування монокристалів здійснювали за методом Чохральського на установках НХ-620 і „Донец-1”. З урахуванням інконгруентного випаровування розплаву LTB, його проводили зі складів з надлишком B_2O_3 до 0,5 мол.%. Домішки вводили у вихідну шихту у вигляді оксидів CuO і MnO_2 . Перед початком затравлювання розплав вихідної шихти для досягнення стабілізації його складу витримували при ~ 1223 К протягом 15-20 год. Швидкість витягування складала 3-5 мм·добу⁻¹, швидкість обертання – 4-10 об·хв⁻¹, аксіальний температурний градієнт на межі розділу кристал-розплав – 3-5 К·мм⁻¹. Для зменшення термічних напруг відірвані від розплаву кристали відпалювали протягом 12-24 год., після чого охолоджували зі швидкістю 20 К·год⁻¹ [5].

Вимірювання термолюмінесценції проводилось на установці описаній в роботі [6]. Для вимірювання інтенсивності

люмінесцентного свічення було використано фотоелектронний помножувач типу ФЕП-136 у режимі лічби фотонів. Криві ТСЛ одержувались в результаті лінійного нагріву досліджуваних зразків зі швидкістю $0,5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{сек}$ до $300\text{ }^{\circ}\text{C}$. Контроль температури під час нагріву здійснювався за допомогою хромель-алюмелевої термопары.

Опромінення кристалів тетраборату літію здійснювались: гамма-квантами джерела Co^{60} потужністю $9,8\text{ мкКл}/\text{кг}$, змішаними полями гамма-кванти плюс швидкі нейтрони, гамма-кванти плюс теплові нейтрони на радіаційному стенді на основі плутоній-берилієвого джерела ІБН-8 [7] і високоінтенсивними електронними та гамма пучками мікротрона М-30.

Одержані результати та їх обговорення

Опромінення гамма-квантами та нейтронами від джерел. На рисунку 1 показано криві термовисвічування зразка $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$, опроміненого гамма-квантами Co^{60} (а), змішаним радіаційним полем з швидких нейтронів та гамма-квантів Рн-Ве джерела (б) і полем, створеним у радіаційному стенді [7] шляхом сповільнення швидких нейтронів, до складу якого входять потоки швидких і повільних нейтронів та гама-квантів (в). Як видно з рисунка, для всіх випадків опромінення температурне положення обох піків співпадає, різниця полягає тільки в інтенсивності їх висвічування. Для опромінення у змішаному полі (рис. 1в) показано залежність площі під піком кривої термовисвічування при температурі $210\text{ }^{\circ}\text{C}$ від часу опромінення (рис. 1г). Як видно з рисунка, спостерігається лінійна залежність площі піка від часу опромінення (набраної дози), що свідчить про можливість використання таких зразків для дозиметрії змішаних гамма-нейтронних полів. Проте, враховуючи величину радіаційно зважуючого фактору (для нейтронів залежно від їх енергії останній може приймати значення від 10 до 20), для визначення еквівалентної дози необхідно визначити поглинуту дозу як від нейтронів, так і від гама-квантів.

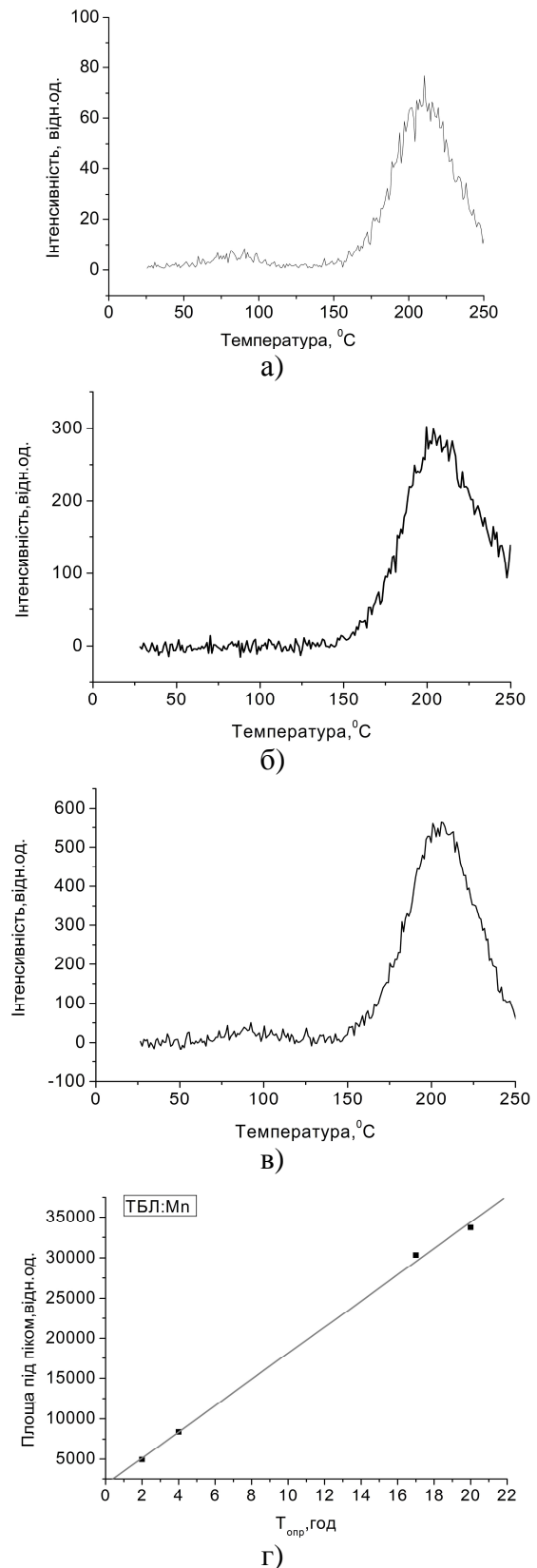


Рис. 1. Криві термовисвічування зразка $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$, опроміненого гамма-квантами Co^{60} (а), змішаним радіаційним полем зі швидких нейтронів та гамма-квантів Рн-Ве джерела (б) і полем, до складу якого входять потоки швидких, повільних нейтронів та гамма-квантів (в); г - залежність площі під піком кривої термовисвічування при температурі $210\text{ }^{\circ}\text{C}$ від часу опромінення зразка.

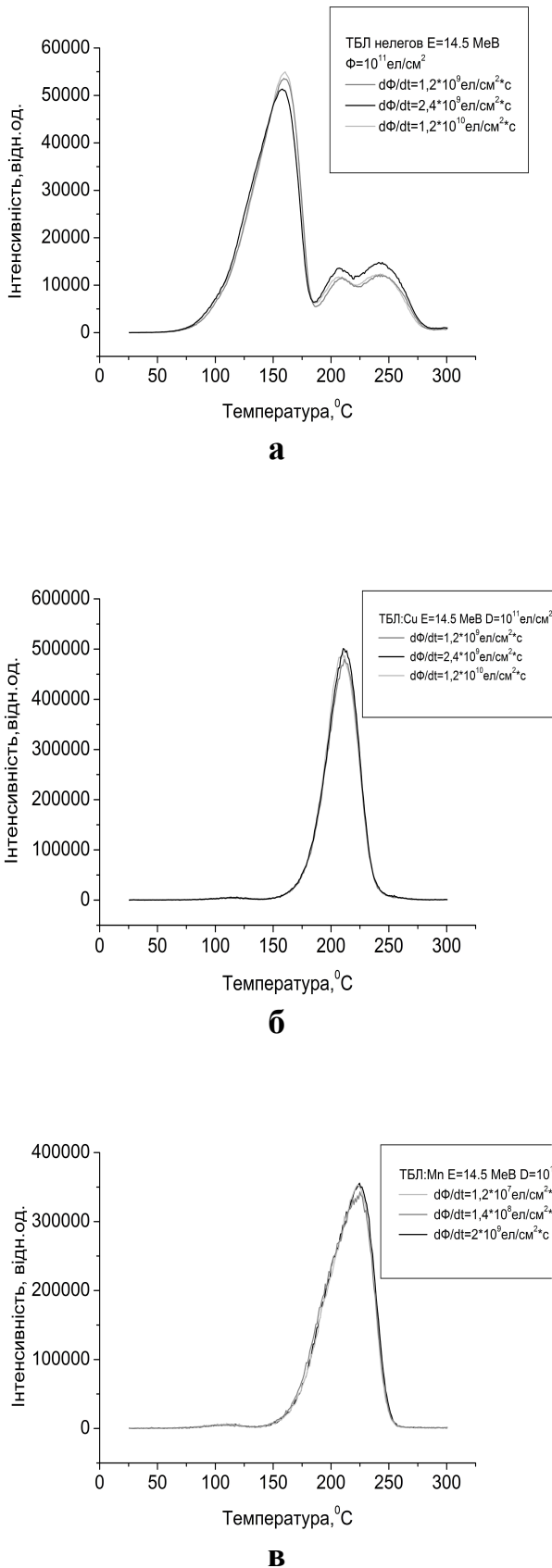


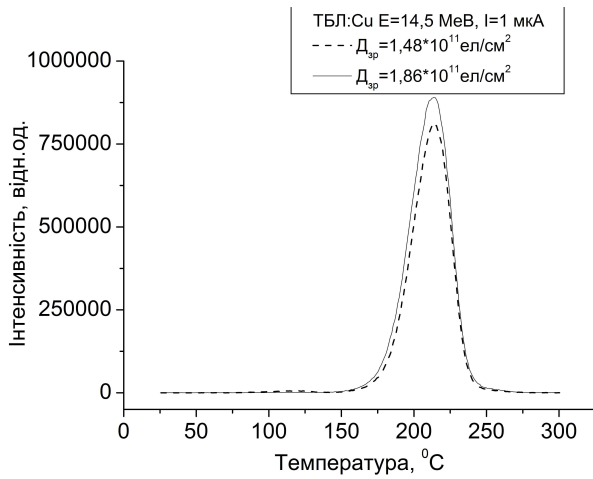
Рис. 2. Криві термолюмінесценції нелегованого кристала $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (а) та легованих кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$ (б), $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ (в) після опромінення електронним пучком мікротрона М-30 флюенсом 10^{11} ел/см² різними щільностями флюенсу.

Опромінення на мікротроні. Типові криві термолюмінесценції нелегованого кристала $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ та легованих кристалів $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$, після опромінення електронним пучком мікротрона М-30 флюенсом 10^{11} ел/см², приведені на рисунку 2. В нелегованих кристалах тетраборату літійу спостерігаються три піки ТСЛ при температурах 150 °С, 206 °С, 240 °С. Очевидно, що ці піки пов'язані з неконтрольованими дефектами, які створюють рівні прилипання. Що стосується центрів випромінювальної рекомбінації, природа їх також наразі невідома. Інтенсивність свічення ТСЛ, в порівнянні з легованими кристалами, менша приблизно у 400 раз. У опромінених кристалах $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ спостерігається по два максимуми при температурі 110 °С та 210 °С.

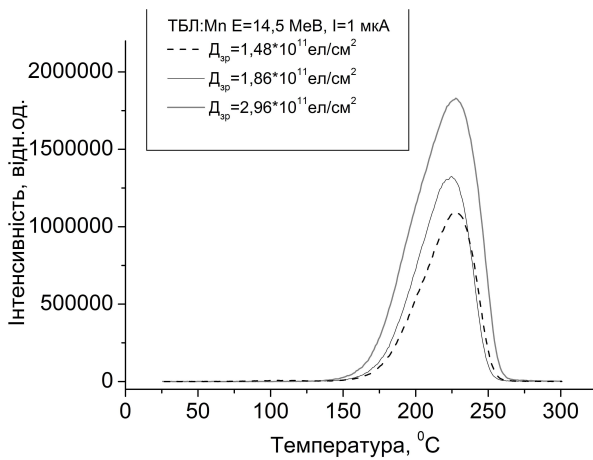
Залежність кривих термолюмінесценції зразків $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$ та $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ від флюенсу електронів показано на рисунку 3. При збільшенні флюенса спостерігається як ріст площі під піком, так і інтенсивність його максимуму і зсув вершини останнього в область менших температур, що вказує на кінетику ТСЛ, яка описується квадратичною залежністю від початкової концентрації накопичених на пастках електронів $\sim n_0^2$.

Як і у випадку опромінення для LiF, у зразках на основі $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$ та $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ виявлено довготривалу фосфоресценцію, величина якої суттєво залежить як від дози опромінення, так і її потужності. На рисунку 4 наведено криві затухання фосфоресценції зразків $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$ (а) та $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ (б), опромінених рівними інтегральними потоками електронів 10^{11} ел/см² при різній щільності потоку.

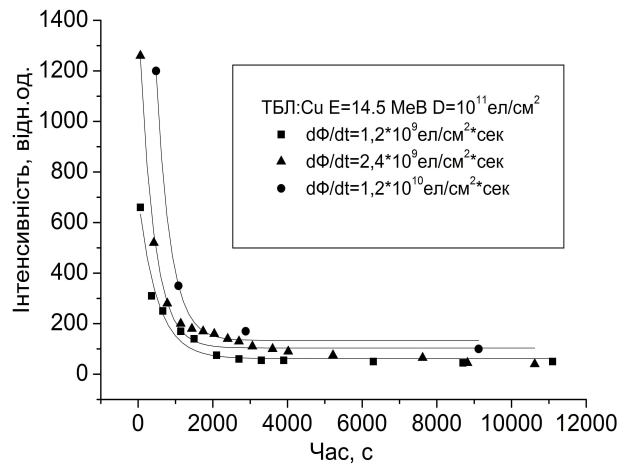
Як видно з рисунка, інтенсивність свічення фосфоресценції при збільшенні щільності потоку зростає, в той час як світлосума кривих термовисвічування для цих же зразків не змінюється (рис. 2). З аналізу одержаних результатів слідує, що затухання фосфоресценції з часом добре узгоджується з гіперболічним законом, на основі чого можна зробити висновок про її рекомбінаційну природу.



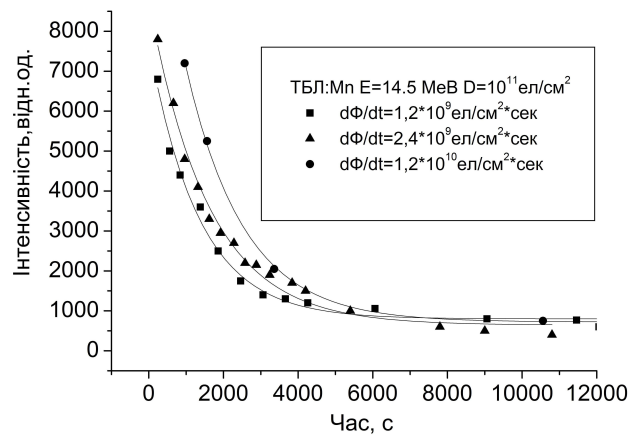
а



б



а



б

Рис. 3. Залежність кривих термолюмінесценції зразків $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$ (а) та $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ (б) від флюєнсу електронів, опромінених електронним пучком мікротрона М-30 однаковою інтенсивністю флюєнсу.

Рис. 4. Криві затухання фосфоресценції зразків $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$ (а) та $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ (б), опромінених рівними інтегральними потоками електронів 10^{11}ел/см^2 при різній щільності потоку.

Висновки

Прояв фосфоресценції в опромінених високоінтенсивними пучками електронів і гамма-квантів, яка не спостерігається при опроміненні низькоактивними джерелами, може бути пояснено наявністю в досліджуваних зразках $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$ та $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$

неглибоких рівнів прилипання, на які, при дії іонізуючого опромінення, потрапляють електрони, які при кімнатній температурі за рахунок теплового викидання переходять в зону провідності з наступною їх рекомбінацією через центри свічення (Cu, Mn).

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Кортвов В.С., Мильман И.И., Никифоров С.В. Особенности кинетики термостимулированной люминесценции кристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ с дефектами // Физика твердого тела. – 1997. – Т.39. – №9. – С. 1538–1543.
2. Weinstein M., German U., Alfassi Z.B. On neutron-gamma mixed field dosimetry with $\text{LiF}:\text{Mg},\text{Ti}$ at radiation protection dose levels // Rad. Prot. Dosym. – 2006. – Vol. 119. – No. 1–4. – P. 314–318.

3. Белоконь Н.Г., Корнеева В.В. Термолюминесцентна дозиметрія: напрямки розвитку // Український Радіологічний Журнал. – 2004. – № 12. – С. 88–94.
4. Xiong ZhengYe, Zhang ChunXiang. Thermoluminescence characteristics of $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$, Ag,P // Chinese Science Bulletin. – 2007. – Vol. 52. – No. 13. – P. 1776–1779.
5. Головей В.М. Получение монокристаллов тетрабората лития / В.М. Головей // Квантовая электроника. – 1993. – № 44. – С. 103–110.
6. Lyamayev V.I. A low-cost microcontroller-based measurement system for fractional glow technique / V.I. Lyamayev // Meas. Sci. Technol. – 2006. – Vol. 17. – P. 75–80.
7. Окунева Т.А., Парлаг О.А., Маслюк В.Т., Стець М.В., Гошовський М.В., Ганич П.П., Лямаєв В.І., Мегела І.Г., Головей В.М., Биров М.М., Щербинин К.Р., Костенко В.В., Присяжнюк А.А., Зелінський В.О. Радіаційний стенд ІЕФ НАНУ для реакторної дозиметрії // Тезиси доповідей VIII конференції по фізиці високих енергій, ядерної фізиці і прискорителям (ННЦ ХФТИ), Харків, 22-26 лютого 2010 г. – Харків. – 2010. – С. 71.

Стаття надійшла до редакції 29.05.2011

T.O. Okunieva, V.T. Maslyuk, I.G. Megela, V.M. Holovej, M.M. Birov
Institute of Electron Physics of NAS of Ukraine, 88017, Uzhhorod, Universytetska Str., 21

DEPENDENCE OF LUMINESCENT PROPERTIES $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$ AND $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ CRYSTALS ON THE TYPE AND CONDITION OF IONIZING

Influence of intensity and dose of irradiation by 9,5 and 14,5 MeV electrons, ^{60}Co photons, fast and slow neutrons from Pu-Be source on room temperature phosphorescent and thermoluminescent properties of Cu and Mn-doped lithium tetraborate crystals has been studied.

Key words: lithium tetraborate, thermoluminescence, dosimetry, phosphorescence.

T.O. Окунева, В.Т. Маслюк, І.Г. Мегела,
В.М. Головей, М.М. Биров
Институт электронной физики НАН Украины, 88017, Ужгород, ул. Университетская, 21

ЛЮМИНЕСЦЕНТНЫЕ СВОЙСТВА КРИСТАЛЛОВ $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu}$ И $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ТИПА И УСЛОВИЙ ОБЛУЧЕНИЯ ИОНИЗИРУЮЩИМИ ЧАСТИЦАМИ

Исследовано влияние интенсивности и дозы облучения электронами с энергиями 9,5 и 14,5 МэВ, а также облучение гамма квантами от источника Co^{60} , быстрыми и медленными нейтронами Pu-Be источника на фосфоресценцию при комнатной температуре и термолюминесценцию нелегированных и легированных медью и марганцем кристаллов тетрабората лития.

Ключевые слова: тетраборат лития, термолюминесценция, дозиметрия, фосфоресценция.