

УДК 539.1.074.3.546.33'15'683:535.376

ВЛИЯНИЕ СОДЕРЖАНИЯ АКТИВАТОРА НА ИЗМЕНЕНИЕ РАДИОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ И СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫХ ПАРАМЕТРОВ $\text{NaI}(\text{Tl})$

А.М.Кудин, А.Н.Панова, Л.В.Удовиченко

Известно, что спектрометрическое качество кристаллов $\text{NaI}(\text{Tl})$, используемых для детектирования ионизирующих излучений, в значительной степени определяется содержанием активатора. Однако систематические исследования влияния содержания таллия (С) на изменение собственного энергетического разрешения (τ) кристаллов $\text{NaI}(\text{Tl})$ отсутствуют, а интерпретация концентрационной зависимости выхода сцинтилляций ($\eta_{\text{сц}}$) неоднозначна.

Зависимость $\eta_{\text{сц}}(\text{С})$ кристаллов, возбуждаемых γ -квантами ^{137}Cs , характеризуется протяженностью плато при С от $(2-3) \cdot 10^{-2}$ до 10^{-1} молярных долей $\% \text{Tl}^{+} / 1, 2/$, где значения $\eta_{\text{сц}}$ максимальны. При этом за сцинтилляции ответственны Tl^{+} -центры, перенос энергии к которым осуществляется как электронно-дырочным, так и дырочно-электронным механизмами /3/ с преимущественным вкладом излучательных рекомбинаций, кратковременно локализованных на Tl^{+} -центрах электронов с дырочными Tl^{2+} -центрами /4/. Нижняя граница плато зависимости $\eta_{\text{сц}}(\text{С})$ обусловлена плотностью ионизации (dE/dx). Снижение $\eta_{\text{сц}}$ выше верхней границы плато объясняется либо концентрационным тушением люминесценции /5/, либо конкуренцией в захвате носителей заряда между основными Tl^{+} - и образованными из них сложными $n\text{Tl}^{+}$ -центрами /2/.

В то же время протяженность плато и достижение максимальных значений $\eta_{\text{сц}}$ с увеличением dE/dx при больших содержаниях активатора в работах /6-8/ объясняется значительным вкладом

*Здесь и далее содержание таллия выражено в молярных долях $\% \text{Tl}^{+}$

в сцинтилляционный процесс сложных активаторных центров nTl^+ , заметно проявляющихся при $C \geq 6 \cdot 10^{-2} \% TlI$ /2/, тогда как максимальное количество Tl^+ -центров образуется при $C \approx 3,7 \cdot 10^{-2} \% TlI$ /8/.

С целью получения дополнительных сведений о роли Tl^+ - и nTl^+ -центров свечения в сцинтилляционном процессе кристаллов $NaI(Tl)$ и в изменении их собственного энергетического разрешения в настоящей работе исследовано влияние содержания таллия (до $7 \cdot 10^{-1} \% TlI$) на изменение выхода ($\eta_{РД}$) радиолюминесценции (РЛ) и ее интенсивности ($I_{РД}$) в полосах указанных центров, сцинтилляционных параметров ($\eta_{сц}$ и τ) этих кристаллов, а также на изменение количества Tl^+ -центров и однородности распределения активатора в них.

Исследование проводили на тонких дисках размером $30 \times 5 \text{ мм}^2$, изготовленных из кристаллов диаметром 80 и высотой 120 мм, выращенных по Стокбаргеру в герметичных кварцевых выпухах с использованием солей NaI и TlI квалификации осч с принудительным перемешиванием расплава и без него. РЛ возбуждали γ -квантами ^{241}Am , значения $\eta_{сц}$ и τ определяли для γ -квантов ^{137}Cs . Об изменении количества Tl^+ -центров судили по изменению интенсивности термостимулированной люминесценции (ТСЛ) при температуре 105 К (T_{Tl^+}), соответствующей температуре дelokализации электронов из Tl^+ -центров, исходя из предположения, что вероятность захвата электронов Tl^+ -центрами пропорциональна их содержанию. Измерение ТСЛ проводили на образцах, изодозно (0,25 Гр) облученных при температуре 77 К γ -квантами ^{137}Cs со скоростью нагрева 0,04 К/с. Однородность распределения таллия в кристаллах изучали методом электронной микроскопии /9/, а его содержание определяли полярографическим методом.

Согласно приведенным на рис.1 данным, зависимость $\eta_{сц}(C)$ кристаллов, выращенных без принудительного перемешивания расплава, подобна зависимости, полученной в /2/, и характеризуется наличием плато в диапазоне концентраций от $2 \cdot 10^{-2}$ до $7,4 \cdot 10^{-2} \% TlI$. Дальнейшее увеличение содержания таллия до $7 \cdot 10^{-1} \% TlI$ приводит к существенному спаду значений $\eta_{сц}$. Выход РЛ, как видно из рис.2, не претерпевает концентрационного тушения. Однако изменение $I_{РД}$ в полосах свечения основных

и дополнительных активаторных центров различно. Если изменение $I_{РЛ} Tl^{+}$ -центров (410 нм) коррелирует с зависимостью $\eta_{сц}(c)$, то составляющая РЛ, обусловленная свечением

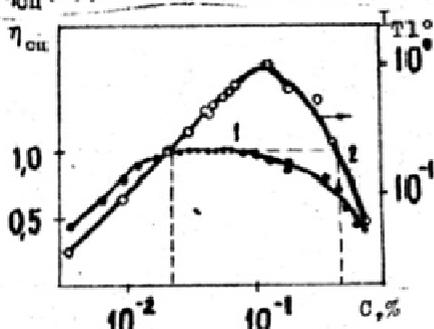


Рис.1. Концентрационные зависимости $\eta_{сц}$ (1) и I_{Tl^0} (2) кристаллов NaI(Tl). Пунктиром обозначена область содержания активатора, при котором количество Tl^{+} -центров достаточно для достижения максимальных значений $\eta_{сц}$.

nTl^{+} -центров (460 нм), увеличивается с ростом содержания таллия. Эти данные свидетельствуют о том, что nTl^{+} -центры существенного вклада в сцинтилляции кристаллов NaI(Tl) не вносят. Уменьшение интенсивности РЛ в полосе 410 нм может указывать на снижение при $c > 7,4 \cdot 10^{-2}\%$ TlI количества Tl^{+} -центров. Однако результаты исследования концентрационной зависимости интенсивности ТСЛ при температуре разрушения Tl^0 -центров не подтверждают этого. Как видно из рис.1, значение I_{Tl^0} возрастает

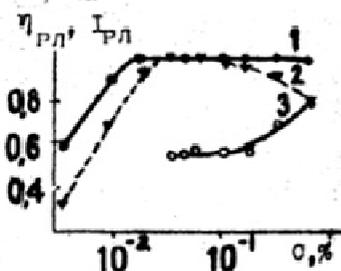


Рис.2. Концентрационная зависимость $\eta_{РЛ}$ (1) и $I_{РЛ}$ на длинах волн 410 (2) и 460 нм (3) кристаллов NaI(Tl).

с увеличением c до $1,3 \cdot 10^{-1}\%$ TlI . Следовательно, до этих содержаний таллия возрастает и количество Tl^{+} -центров. С дальнейшим увеличением значений c количество Tl^{+} -центров резко убывает, но даже при $c = 4,3 \cdot 10^{-1}\%$ TlI , когда выход γ -сцинтилляций потушен на 35%, соответствует количеству Tl^{+} -центров, необходимому для достижения максимального значения $\eta_{сц}$. Это обстоятельство, а также

отсутствие концентрационного тушения $\eta_{РЛ}$, указывает на то, что спад $\eta_{сц}$ при $c = (7,4 \cdot 10^{-2} - 4,3 \cdot 10^{-1})\%$ TlI не связан ни с концентрационным тушением люминесценции системы NaI(Tl), ни

с уменьшением количества Tl^+ -центров. Антисимпатный характер зависимостей $\eta_{sc}(c)$ и $\tau_{рл}(c)$ nTl^+ -центров в указанном диапазоне содержания таллия может свидетельствовать о том, что концентрационное тушение η_{sc} связано с конкуренцией в захвате носителей заряда между Tl^+ и возрастающим количеством nTl^+ -центров свечения, вклад которых в сцинтилляции незначителен. Основной причиной низкого вклада сложных центров в сцинтилляционный процесс является то, что они не участвуют в кратковременных электронно-дырочных рекомбинациях, поскольку длительность пребывания электронов на этих центрах существенно превосходит длительность сцинтилляционного импульса $[1, 2]$. Вклад в сцинтилляции дырочного механизма переноса энергии к nTl^+ -центрам, не превышающий 20-40% $[4, II]$ даже в переносе энергии к основным Tl^+ -центру 1 , с ростом содержания активатора должен снижаться вследствие увеличения r плотности образования Tl^{2+} -центров окраски. При этом в случае однородного распределения сложных центров в объеме кристаллов приведенное на рис. 3 (кривая 2) снижение η_{sc} на 23% с увеличением c

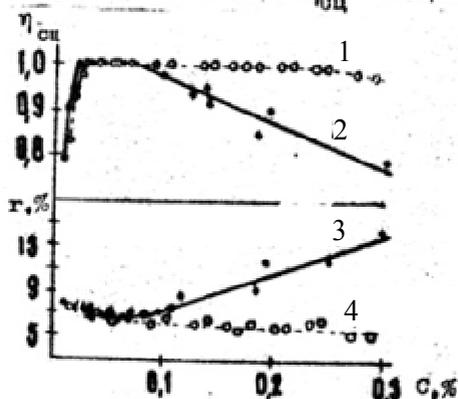


Рис. 3. Концентрационные зависимости η_{sc} (1, 2) и r (3, 4) кристаллов $NaI(Tl)$, выращенных без (2, 3) и с принудительным перемешиванием расплава (1, 4).

до $3 \cdot 10^{-1} \% Tl$ должно сопровождаться возрастанием $r \sim 1/\sqrt{\eta_{sc}}$ не более чем на 8%. Однако, как видно из данных рис. 3 (кривая 3), собственное энергетическое разрешение исследуемых кристаллов при указанном содержании таллия ухудшается в два раза.

Согласно /12/, существенный вклад в ухудшение τ могут вносить нецинтиллирующие микрон неоднородности, размер которых значительно меньше длины трека фотоэлектронов, вследствие непостоянства удельного выхода сцинтилляций вдоль трека (dL/dx), поскольку в неоднородностях $\eta_{\text{сц}} = 0$. Очевидно, что увеличение количества таких неоднородностей должно приводить и к тушению выхода сцинтилляций.

Исходя из этого, можно предположить, что подобными неоднородностями в исследуемых кристаллах являются участки, обогащенные сложными центрами, в которых $\eta_{\text{сц}}$ существенно снижен. В пользу сказанного свидетельствуют полученные нами предварительные результаты электронно-микроскопических исследований кристаллов с различным содержанием активатора. Если картины декорирования кристаллов, содержащие теллия в которых соответствует плато зависимостей $\eta_{\text{сц}}(C)$ и $\tau(C)$, характеризуются однородным распределением активаторных дефектов, то на картинах декорирования кристаллов с более высоким содержанием теллия, когда имеет место спад $\eta_{\text{сц}}$ и рост τ , наблюдаются неоднородности размером несколько микрон. Последний существенно меньше пробега фотоэлектронов, создаваемых в NaI γ -квантами ^{137}Cs (0,6мм). Число неоднородностей увеличивается с ростом C . Такие же неоднородности были обнаружены и в кристаллах $\text{CsI}(Tl)$ и $\text{CsI}(Na)$, содержание активатора в которых соответствовало области концентрационного тушения выхода γ -сцинтилляций /13/. При этом установлено, что с повышением содержания активатора доля объема, занятая одиночными центрами, уменьшается, а средний размер неоднородностей увеличивается.

Очевидно, что тушение выхода γ -сцинтилляций кристаллов NaI(Tl) при $C = (7,4 \cdot 10^{-2} - 4,3 \cdot 10^{-1})\%$ TlI на фоне достаточного для достижения его максимальных значений среднего содержания Tl⁺-центров происходит в результате снижения величин $\eta_{\text{сц}}$ в обедненных Tl⁺-центрами активаторных неоднородностях-локальных участках трека, количество которых увеличивается с ростом C . Вследствие этого непостоянство dL/dx в треках увеличивается, что и является причиной ухудшения собственного энергетического разрешения.

Таким образом, при основном вкладе в γ -сцинтилляцию све-

чения Tl^+ -центров концентрационное тушение τ_{sc} и ухудшение τ кристаллов $NaI(Tl)$ обусловлено ростом содержания в них активаторных микрогетерогенностей.

Достижение максимальных значений выхода рентгеновских и α -сцинтилляций в кристаллах $NaI(Tl)$ при более высоких содержаниях активатора, соответственно при $7,3 \cdot 10^{-2}$ /8/ и $1,3 \cdot 10^{-1}$ % TlI /14/, когда количество Tl^+ -центров еще возрастает, указывает на то, что и с увеличением dE/dx основная роль в сцинтилляционном процессе принадлежит Tl^+ -центрам.

В заключение необходимо отметить, что верхняя граница плато зависимости $\tau_{sc}(C)$, степень спада τ_{sc} и роста τ не являются фундаментальными свойствами системы, а в значительной мере определяются условиями получения кристаллов. Так, в кристаллах $NaI(Tl)$, выращенных в условиях принудительного перемешивания расплава, таллий распределен более однородно, интенсивность свечения nTl^+ -центров в РЛ существенно ниже, а количество Tl^+ -центров возрастет с увеличением содержания активатора по крайней мере до $3 \cdot 10^{-1}$ % TlI . Вследствие этого, как видно из рис. 3 (кривые 1, 4), концентрационное тушение τ_{sc} в указанных кристаллах выражено весьма слабо, а на зависимости $\tau(C)$ наблюдается тенденция к уменьшению значений τ . Улучшение собственного энергетического разрешения по всей вероятности, как и предполагалось в /8/, связано с уменьшением вклада в значения τ составляющей, обусловленной непропорциональностью выхода энергии электронов при возрастающем количестве Tl^+ -центров.

Авторы глубоко признательны Птицкину Г.В. за получение карт декорирования, Милчину С.Л. за измерение сцинтилляционных параметров кристаллов, а также Бабич Г.А. за определение в них содержания таллия.

Список литературы

1. Белая Л.М., Галанник И.Д., Моргенштерн Э.П., Чижикова Э.А. Докл. АН СССР, 1955, т.105, с.57-60.
2. Муштафина Р.Х., Павлова А.Н. - В сб.: Монокристаллы и техника, Харьков: ЕНИИ монокристаллов, 1970, № 1, с.81-87.
3. Данил Ч.Б., Денно В.П., Мильво Э.Р. и др. - 3 сб.: Тр. ИИМ АН СССР, 1966, № 34, с.89-114.