

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА,
ЭЛЕМЕНТАРНЫЕ ЧАСТИЦЫ И ФИЗИКА ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ

УДК 539.1.074.3

НОВЫЕ СЦИНТИЛЛЯЦИОННЫЕ КРИСТАЛЛЫ
YAG:Yb³⁺:Mg²⁺ И YAG:Yb³⁺:Ca²⁺:Mg²⁺ С КОРОТКИМ
ВРЕМЕНЕМ ВЫСВЕЧИВАНИЯМ. В. Белов¹, В. И. Власов², Ю. Д. Заварцев², М. В. Завертнев¹,
А. И. Загуменный², В. А. Козлов¹, Н. В. Пестовский¹, С. Ю. Савинов¹,
В. С. Цхай¹

Методом Чохральского впервые выращены новые кристаллы YAG:Yb:Mg и YAG:Yb:Ca:Mg, обладающие коротким временем высвечивания. Исследованы спектры импульсной катодолюминесценции новых сцинтилляторов, их световых выходы, а также их время высвечивания. Световых выходы кристаллов YAG:Yb:Mg и YAG:Yb:Ca:Mg составили 460 и 770 фотонов/МэВ, соответственно. Показано, что спектры времени высвечивания новых кристаллов описываются двумя компонентами 1.57/8.5 нс для YAG:Yb:Mg и 1.52/7.79 нс для YAG:Yb:Ca:Mg.

Ключевые слова: сцинтилляционные кристаллы, гамма-излучение, время затухания сцинтилляций, импульсная катодолюминесценция.

Неорганические кристаллы и керамики со сверхкоротким временем сцинтилляции на основе люминесценции с переносом заряда на ион Yb³⁺ перспективны для будущих применений в физике высоких энергий [1]. Сцинтилляционные параметры сверхбыстрых кристаллов Y_{3-x-y}Yb_xCa_yAl₅O_{12-0.5y} (YAG:Yb:Ca) и Y_{3-x-y}Yb_xCa_yAl_{5-z}Si_zO₁₂ (YAG:Yb:Ca:Si) исследованы в [2]. Эти кристаллы и керамики описываются общей кристаллохимической формулой алюминиевых гранатов {Re₃} [Al₂] (Al₃) O₁₂, где Re – редкоземельный элемент Y и Yb, фигурные скобки обозначают занимаемую ими позицию

¹ ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский пр-т, 53; e-mail: kozlovva@lebedev.ru.

² ИОФ РАН, 119991 Россия, Москва, ул. Вавилова, 38.

в кристаллической структуре с додекаэдрической координацией по кислороду O^{2-} , Al – алюминий, квадратные скобки – октаэдрические позиции, и круглые скобки – тетраэдрические позиции. Выращивание массивных кристаллов $Y_3Al_5O_{12}$ (YAG) осуществляют из конгруэнтно плавящегося состава расплава $Y_{3.03}Al_{4.97}O_{12}$, состав расплава которого совпадает с составом растущего из него кристалла, имеющего кристаллохимическую формулу $\{Y_3\} [Y_{0.03}Al_{1.97}] (Al_3) O_{12}$.

В [3] опубликованы величины ионных радиусов для положительно заряженных катионов и отрицательно заряженных ионов кислорода:

$$Y^{3+} = 0.97 \text{ \AA}, Yb^{3+} = 0.81 \text{ \AA}, Ca^{2+} = 1.04 \text{ \AA},$$

$$Al^{3+} = 0.57 \text{ \AA}, Mg^{2+} = 0.74 \text{ \AA}, O^{2-} = 1.36 \text{ \AA}.$$

В ранее изученном сцинтилляционном кристалле YAG:Yb:Ca [2] ионы двухвалентного Ca^{2+} замещают ионы иттрия Y^{3+} и образуют дефект $\{Ca_Y + V_o\}$ на базе кислородной вакансии V_o и иона Ca^{2+} в додекаэдрической позиции кристаллической решетки граната. Ионы магния имеют меньший радиус, поэтому образуют дефект $[Mg_{Al} + V_o]$ в октаэдрической позиции, и, следовательно, неясно, как этот дефект будет влиять на сцинтилляционные свойства кристалла.

Цель настоящей работы – исследование сцинтилляционных параметров кристаллов $Y_{3-x-y}Yb_xMg_yAl_{5-y}O_{12-0.5y}$ (YAG:Yb:Mg) и $Y_{3-x-z}Yb_xMg_yCa_zAl_{5-y}O_{12-0.5y-0.5z}$ (YAG:Yb:Mg:Ca). Оба кристалла содержат дефекты кристаллической решетки – кислородные вакансии, возникающие вследствие замещения трехвалентного иона на двухвалентные ионы Mg^{2+} и Ca^{2+} , концентрацию которых показывает индекс y и z , а количество кислородных вакансий в формульных единицах равно концентрации $0.5(y+z)$. Существенный вопрос состоит в том, сводится ли роль ионов Mg^{2+} и Ca^{2+} только к созданию кислородных вакансий или же дополнительное легирование ими вызывает какие-либо иные процессы, влияющие на сцинтилляционные свойства.

В качестве исходных материалов были использованы высокочистые реактивы Y_2O_3 , Yb_2O_3 , Al_2O_3 , CaO , MgO , содержащие 99.99% основного материала. Кристалл YAG:Yb:Mg выращивали из расплава $Y_{2.567}Yb_{0.453}Mg_{0.01}Al_{4.97}O_{11.995}$, а кристалл YAG:Yb:Mg:Ca – из расплава $Y_{2.5519}Yb_{0.453}Ca_{0.0151}Mg_{0.01}Al_{4.97}O_{11.98745}$ методом Чохральского из нагреваемых радиочастотным полем иридиевых тиглей диаметром 40 мм в атмосфере аргона, имеющей состав 99.9% Ar + 0.1% O_2 (рис. 1). Скорость роста составляла 1 мм/ч, скорость вращения была равна 10 об/мин. В методе Чохральского состав растущего кристалла отличается от начального состава расплава, который точ-

но известен перед началом роста кристалла. В связи с этим, с терминологической точки зрения предпочтительно характеризовать состав кристалла, указывая концентрации легирующих примесей в начальном расплаве.



Рис. 1: Кристаллы $YAG:Yb:Mg$ (a) и $YAG:Yb:Ca:Mg$ (b).

Наглядным подтверждением наличия кислородных вакансий в кристаллах $YAG:Yb:Mg$ и $YAG:Yb:Ca:Mg$ выступает их окрашивание в коричневый цвет за счет образования центров окраски на основе кислородных вакансий.

Спектры коэффициентов поглощения для полированных образцов кристаллов YAG , $YAG:Yb$, $YAG:Yb:Mg$ и $YAG:Yb:Ca:Mg$ (рис. 2) измерялись спектрофотометром UNICO 2800 UV-VIS.

С целью изучения спектров импульсной катодолуминесценции (ИКЛ) новых кристаллов использовалась установка КЛАВИ [4]. Возбуждение люминесценции происходило под действием ускорителя электронов РАДАН-ЭКСПЕРТ, генерирующего импульсы электронов со средней энергией 150 кэВ, длительностью 2 нс и пиковой плотностью мощности ~ 10 МВт/см². Световой поток люминесцирующего образца через кварцевый световод направлялся на входную щель спектрографа OCEAN FLAME-S-XR1-ES. Спектрограф снабжен дифракционной решеткой с плотностью штрихов 600 штр./мм. Спектральное разрешение ~ 2.0 нм, диапазон длин волн – 200–1025 нм, время экспозиции – до 30 с. Ускоритель генерировал импульсы с частотой 1 Гц. Таким образом, каждый ИКЛ-спектр представляет собой результат до 30 усреднений от отдельных импульсов. Спектры ИКЛ для кристаллов $YAG:Yb:Mg$ и $YAG:Yb:Ca:Mg$ представлены на рис. 3.

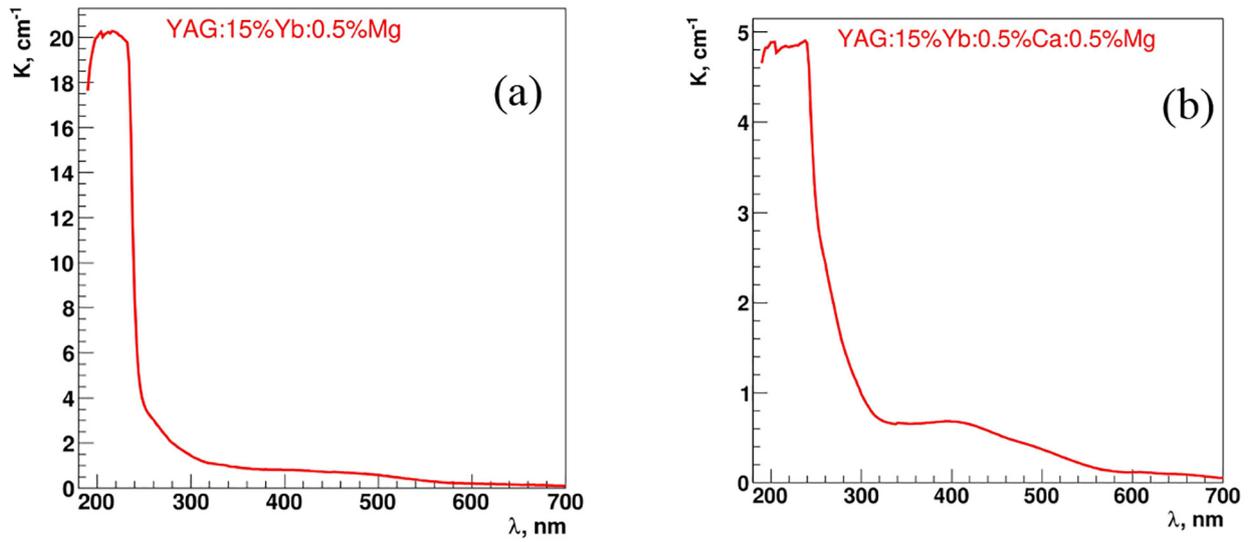


Рис. 2: Спектры коэффициентов поглощения для полированных образцов кристаллов YAG:Yb:Mg (a) и YAG:Yb:Ca:Mg (b).

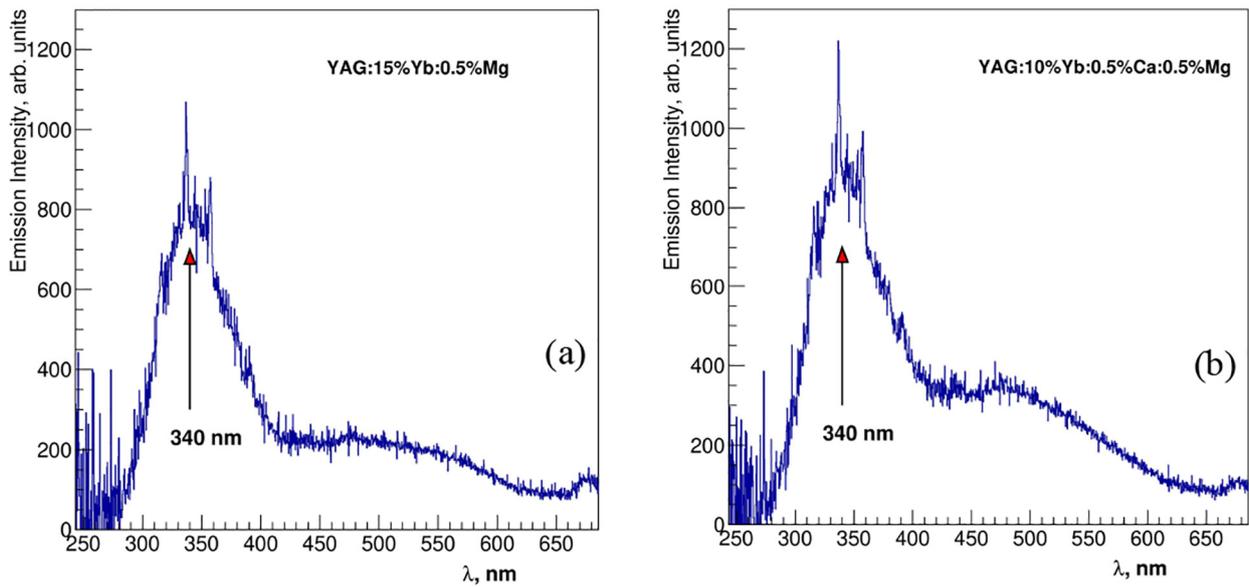


Рис. 3: Спектры ИКЛ для исходных неполированных кристаллов YAG:Yb:Mg (a) и YAG:Yb:Ca:Mg (b).

Времена высвечивания кристаллов YAG:Yb:Mg и YAG:Yb:Ca:Mg исследовались на специальной установке, с использованием метода “задержанных совпадений”, который заключается в измерении распределения временных интервалов Δt между возбужде-

нием в сцинтилляторе и образованием фотоэлектрона на фотокатоде ФЭУ. Временное распределение измерялось относительно сигнала “Старт”, который получался от исследуемого кристалла, присоединенного к фотоумножителю R4125Q с кварцевым окном. Исследуемый кристалл, облученный γ -квантами от источника ^{137}Cs , находился на расстоянии 4 см от фотоумножителя R4125Q, включенного в канал “Стоп”. Диафрагма перед этим ФЭУ позволяла регулировать световой поток от сцинтиллятора для того, чтобы система работала в режиме счета фотонов. Сигналы с фотоумножителей каналов “Старт” и “Стоп” через предусилители поступали на дискриминаторы со следящим порогом CAEN C808 и далее на 2048-канальный времяцифровой преобразователь (TDC) КА-317, информация с которого считывалась в память персонального компьютера. На рис. 4 представлена зависимость интенсивности высвечивания от времени для новых кристаллов.

Спектры времени высвечивания новых кристаллов описываются двумя компонентами: 1.57 нс/8.5 нс для YAG:Yb:Mg и 1.52 нс/7.79 нс для YAG:Yb:Ca:Mg.

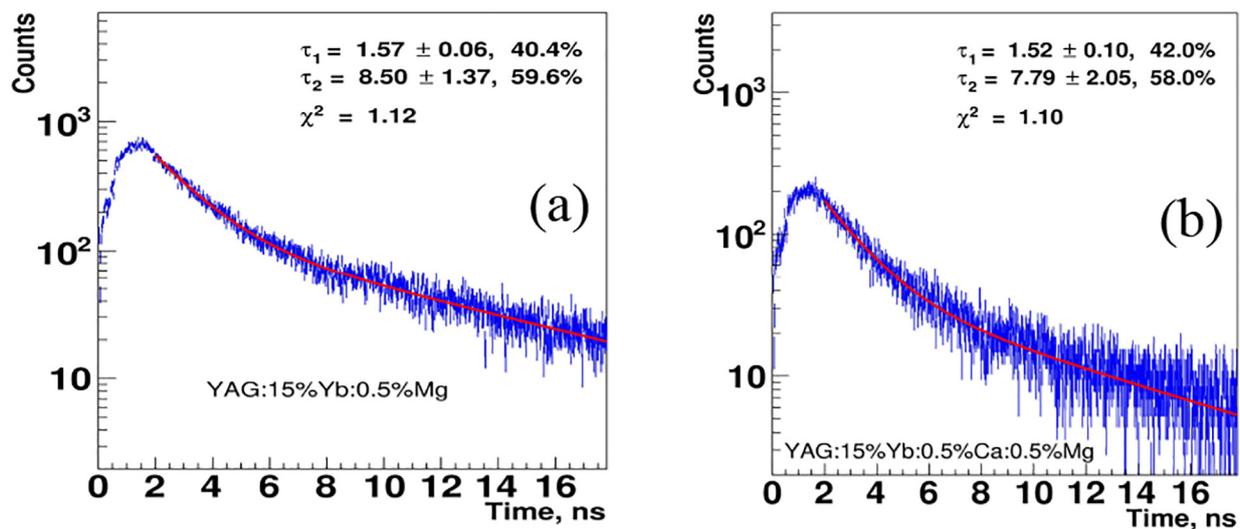


Рис. 4: Зависимость интенсивности высвечивания сцинтилляционных кристаллов YAG:Yb:Mg (a) и YAG:Yb:Ca:Mg (b).

Для оценки световыхода кристаллов YAG:Yb:Mg и YAG:Yb:Ca:Mg использовался хорошо известный сцинтилляционный кристалл CeF_3 , световойход которого равен 2400 фотонов/МэВ [5]. Исследуемые полированные сцинтилляционные кристаллы имели размер $10 \times 10 \times 3$ мм³. Сцинтилляции в кристалле возбуждались радиоактивным источником ^{137}Cs . Световойход новых кристаллов в терминах фотонов/МэВ определял-

ся путем сравнения их фототока с фототоком от кристалла CeF_3 . Предполагая, что чувствительность фотоумножителя к высвечиванию CeF_3 и новых кристаллов одинакова из-за близко лежащих их эмиссионных спектров, получаем световыход кристаллов YAG:Yb:Mg и YAG:Yb:Ca:Mg , равным 460 ± 110 и 770 ± 240 фотонов/МэВ, соответственно.

Таким образом, давно известный кристалл $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG) становится быстрым сцинтиллятором, если ионы двухвалентного Ca^{2+} замещают ионы иттрия Y^{3+} и образуют дефект $\{\text{Ca}_Y + V_o\}$ на базе кислородной вакансии V_o и иона Ca^{2+} в додекаэдрической позиции кристаллической решетки граната. Ионы магния имеют меньший радиус, поэтому образуют дефект $[\text{Mg}_{Al} + V_o]$ в октаэдрической позиции. Сцинтилляционные параметры кристаллов YAG:Yb:Mg и YAG:Yb:Ca:Mg улучшаются вследствие образования дефектов в кристаллической решетке.

Новые сцинтилляторы YAG:Yb:Mg и YAG:Yb:Ca:Mg перспективны для применения в экспериментальных установках на новом российском коллайдере NICA (Nuclotron-based Ion Collider fAcility, Объединенный институт ядерных исследований, Дубна).

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] C. Hu, L. Zhang, R. Zhu, et al., *Instruments* **6**, 67 (2022). DOI: 10.3390/instruments6040067.
- [2] М. В. Белов, Ю. Д. Заварцев, М. В. Завертяев и др., *Краткие сообщения по физике ФИАН* **50**(11), 10 (2023). DOI: 10.3103/S1068335623110039.
- [3] Г. Б. Бокий, *Кристаллохимия* (Москва, Наука, 1971).
- [4] V. I. Solomonov, S. G. Michailov, A. I. Lipchak, et al., *Laser Physics* **16**(1), 126 (2006). DOI: 10.1134/S1054660X06010117.
- [5] A. J. Wojtovicz, M. Balcerzyk, E. Berman, A. Lempicki, *Phys. Rev. B* **49**(21), 14860 (1994). DOI: 10.1103/PhysRevB.49.14880.

Поступила в редакцию 24 марта 2024 г.

После доработки 4 июня 2024 г.

Принята к публикации 5 июня 2024 г.