

УДК 535.5: 537.226: 546.882
PACS number(s): 29.40.-n

ДЕТЕКТОР ІОНІЗАЦІЙНОГО ВИПРОМІНЮВАННЯ НА ОСНОВІ НАНОКРИСТАЛІВ ІОДИДУ ІНДІЮ

О. Бовгира, А. Франів, В. Франів

*Львівський національний університет імені Івана Франка,
вул. Кирила і Мефодія, 8, 79005 Львів Україна
e-mail: franiv@ukr.net*

На основі досліджень залежності інтегральної інтенсивності спектрів термостимульованої люмінесценції нанокристалів моногалогенідів індію, синтезованих у порожнинах поруватого кремнію запропоновано створення детекторів іонізаційного випромінювання. Обговорюються механізми рекомбінаційних переходів, які відбуваються у нанокристалах InI під час опромінення γ -квантами.

Ключові слова: інтегральна інтенсивність, нанокристал, γ -опромінення.

На сьогодні актуальним завданням напівпровідникової мікроелектроніки залишається проблема пошуку нових скінтіляційних матеріалів з метою створення на їхній основі передавачів відносно невисоких доз радіаційного випромінювання. Перспективними у цьому плані можуть бути нанорозмірні структури, вирощені методом молекулярної епітаксії, або синтезовані в порожнинах природних діелектричних, не змінюючи при цьому їх кристалічної будови та хімічного складу.

Відомо [1], що такі завдання можна практично реалізовувати, якщо поступово знижувати мірність та об'єм при переході від блочного трьохмірного до квазінульмірного кристала, типу "квантова точка" (quantum dot). Перспективними модельними об'єктами квазінульмірних середовищ, властивості яких на сьогодні активно вивчені [2–4], є періодичні ґратки мікрочасток різних напівпровідникових сполук, синтезованих у пустотах різних матриць, а також вирощених епітаксiальними методами. Основний науковий інтерес до таких об'єктів концентрується навколо питань можливості утворення трьохмірної надґратки, закономірностей перенормування енергетичного спектра носіїв заряду, загальних проблем теорії електронного енергетичного спектра у разі трансформації їх від суто трьохмірних, блочних монокристалічних до квазітрьохмірних, двомірних та нульмірних структур.

З огляду на це, в цій статті приведені результати досліджень впливу жорсткого рентгенівського випромінювання на рекомбінаційні процеси в шаруватих кристалах моногалогенідів індію, синтезованих в структурних матрицях природного цеоліту (морденіт) та поруватого кремнію під час зміни параметрів матриць і створенні умов, за яких в мікропорожнинах матриці

утворюються нанокристали з дискретною кількістю елементарних комірок кристала.

Як модельні об'єкти були вибрані шаруваті напівпровідники InI, синтезовані у мікропорожнинах природних матриць. З'ясувалося, такими матрицями могли б бути природні або синтетичні цеоліти (мінерали) та поруватий кремній. Цеоліти утворюються почерговими тетраедричними підгратками сполук AlO_4 і SiO_4 з порожнинною структурою, в якій знаходяться лужні катіони та молекули кристалічної води [5]. Канали, що існують у структурі цеолітів, формуються різними комбінаціями зв'язаних кілець тетраедрів. Залежно від виду природного цеоліту, діаметр внутрішніх порожнин може бути від 2,2 до 8Å, а синтетичних – 13 Å.

Матриці на основі природних цеолітів готувалися у такому порядку. Спочатку відбирали цеоліти, керуючись міркуваннями стійкості до температурних режимів і деградації (руйнування) кристалічної ґратки. Тобто, важливо було підібрати такі мінерали, які б витримували технологічні режими утворення порожнин. Не розглядаючи детальніше цей процес, зазначимо, що зупинку було зроблено на природному цеоліті – морденіті. Його хімічна формула має вигляд – $\text{Na}_2(\text{AlSi}_6\text{O}_{12})_2 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$. Голкоподібні кристали морденіту утримують сім молекул кристалічної води. Ці молекули є у порожнинах між тетраедрами AlO_4 і SiO_4 , що кристалічно пов'язані атомами натрію. Температура руйнування кристалічної ґратки морденіту $\sim 800^\circ\text{C}$, а температура зневоднення (виділення води з порожнин) – $150\text{--}250^\circ\text{C}$. З огляду на це, у проміжку $200 < T < 700^\circ\text{C}$ можна було отримати стійку зневоднену матрицю нанопорожнин з ефективним діаметром $d \approx 8\text{Å}$, в якій виконувати синтез нанокристалів досліджуваних об'єктів.

Голкоподібні кристали морденіту подрібнювали у центрифугі до мікронних розмірів. Згодом у кварцовій ампулі при температурі 200°C шляхом вакуумування відбувалося зневоднення мікрочастини цеоліту. Після чого проводилась іонообмінна реакція заміщення атомів натрію на атоми індію й талію. Під час такої реакції місця натрію заміщувалися на атоми індію й талію. Далі, за температури $T = 200^\circ\text{C}$ вакуумно відбирали продукти заміщення. У підготовлені в такий спосіб порожнини матриць морденіту за відповідних температур росту методом вакуумної сублімації, здійснювали ріст нанокристалів InI. Отож, було отримано нанокристали з ефективним розміром $\alpha_i \leq 8\text{Å}$, тобто 2–4 молекули синтезованої речовини. Поруватий кремній готували за методикою, описаною в [6].

Залишки силосену ($\text{Si}_5\text{O}_3\text{H}_6$), які спричиняють появу червоного $\sim 0,7$ мкм світіння відбирали термічно вакуумним шляхом. У підготовленні в такий спосіб порожнини матриць поруватого кремнію за відповідних температур росту методом вакуумної сублімації здійснювали синтез нанокристалів InI.

У такий спосіб було отримано нанокристали з ефективним розміром $\alpha_i \geq 10$ нм, тобто 20–30 молекул синтезованої речовини.

Далі, за кімнатної температури, відбувалось опромінення зразків наноструктур від джерела γ -випромінювання – ізотопу ^{60}Co з інтенсивністю $\approx 10^9 \text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$ з тривалістю 1–24 год. Усі зразки опромінювали безпосередньо в камері радіоактивного джерела в атмосфері повітря.

Експериментальні дослідження проводили з метою з'ясування динаміки спектрів термостимульованої люмінесценції (ТСЛ) нанокристалів InI, підданих жорсткому γ -опроміненню та виявлення особливостей дозової поведінки

інтегрального свічення спектрів, а також можливості застосування цих об'єктів як передавачів рентгенівського випромінювання.

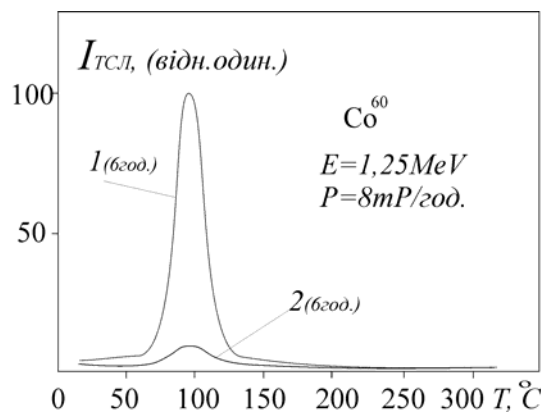


Рис. 1. Спектри ТСЛ матриць морденіту (1) та пластинок поруватого кремнію (2), опромінених γ -квантами протягом шести годин

Оскільки досліджувані об'єкти представляли собою нанокристали, синтезовані в мікропорожнинах відповідних матриць (пороватий кремній та морденіт), насамперед завдання полягало у дослідженні спектрів ТСЛ відповідних матриць. Ці спектри представлені на рис. 1. З рисунка видно, що у спектрах ТСЛ зразків поруватого кремнію та морденіту попередньо опромінених γ -квантами, простежено лише одну слабку за інтенсивністю і незалежну від дози опромінення смугу ТСЛ з максимумом інтенсивності $T=100^\circ\text{C}$.

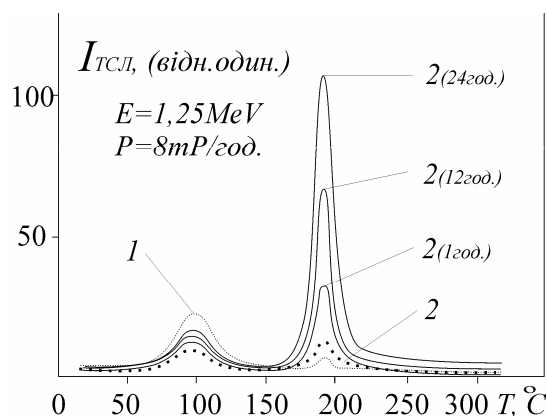


Рис. 2. Спектри ТСЛ нанокристалів InI, синтезованих у порожнинах морденіту (1) та пластинах поруватого кремнію (2), опромінених γ -квантами різної дози

Наявність цієї смуги у спектрах ТСЛ цілком різних за природою (пороватий кремній – напівпровідник, морденіт – природний цеоліт, діелектрик) матрицях та слабка залежність інтенсивності від дози радіації свідчить про те, що поява цієї

смуги найімовірніше зумовлена процесами у неконтрольованих домішках речовин, які могли залишитись в мікропорожнинах матриць під час приготування та радіолізі при жорсткому опроміненні γ -квантами. Зокрема, це можуть бути молекули кристалічної води, силосену ($\text{Si}_5\text{O}_3\text{H}_6$) або його продукти розпаду типу Si_2O_6 , O_2SiH [7]. Докорінна перебудова спектра ТСЛ відбувається у зразках поруватого кремнію, в яких синтезовано мікрокристали InI. Зокрема на рис. 2 показано спектри ТСЛ нанокристалів InI, опроміненних протягом 0,5–12 годин γ -квантами ізотопу ^{60}Co .

Як видно з рисунка, у спектрах ТСЛ, окрім смуги з максимумом $T=100^\circ\text{C}$, у зразках нанокристалів TP3 InI, синтезованих в мікропорожнинах поруватого кремнію з'являється додаткова смуга з максимумом в околі 180°C .

Це може бути зумовлено тим, що фізичні механізми, які покладено в основу формування цієї смуги, пов'язані з особливостями фазових структурних перетворень і залежать також від ефективних розмірів нанопорожнин відповідних матриць, в яких відбувається синтез нанокристалів. Тобто в морденті, ефективний діаметр порожнин якого становить $\approx 8 \text{ \AA}$, згідно з [4], можуть синтезуватись нанокристали InI об'ємом 1–2 елементарні комірки, а в пластинках поруватого кремнію (ефективний діаметр порожнин яких становить 1–10 нм) розміри мікрокристалів можуть досягати сотні елементарних комірок. Причому зі зміною розмірів мікропорожнин матриці закономірно змінюється і розмір нанокристалів InI. Останнє, відповідно, і спричинює зміну спектрів ТСЛ у досліджуваних об'єктах.

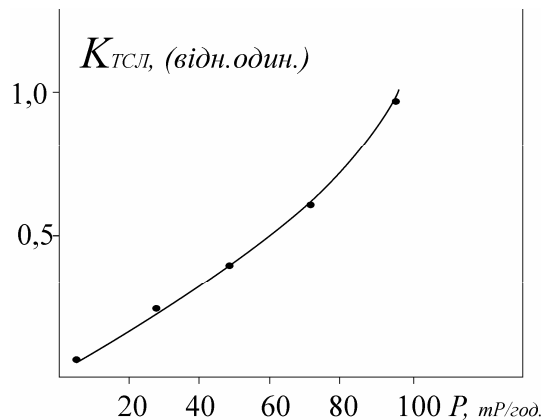


Рис. 3. Дозова залежність інтегральної інтенсивності смуги ТСЛ з максимумом $T \approx 180^\circ\text{C}$

Зокрема, цей висновок робимо на підставі з того, що під час зростання дози γ -опромінення інтегральна інтенсивність цієї смуги ТСЛ зростає, як показано на рис. 3. На нашу думку процеси, що зумовлюють появу високотемпературної смуги ТСЛ ($T=180^\circ\text{C}$) у зразках нанокристалів InI, синтезованих в нанопорожнинах, пов'язані з зворотними внутрішньокристалічними фазовими переходами. Ріст інтегральної інтенсивності цієї смуги під час зростання дози залежить від впливу іонізуючого випромінювання на активізацію фазового структурного переходу.

У нанокристалах InI, опроміненних γ -квантами ізотопу ^{60}Co , простежено інтегральну термостимульовану люмінесценцію. Причому інтегральна інтенсивність цього випромінювання залежить від розмірів нанокристалів.

У разі підвищення дози опромінення зростає квантовий вихід інтегрального свічення термостимульованої люмінесценції нанокристалів.

Флуктуація розмірів нанокристалів впливає на крутизну дозової залежності інтегральної інтенсивності ТСЛ.

1. *Шпак А. П., Куницький Ю. А.* Квантові низькорозмірні системи. К.: Академперіодика, 2003. 309 с.
2. *Заячук Д. М.*, Низькорозмірні структури та надгратки. Львів: “Львівська політехніка”, 2006. 219 с.
3. *Блонский И. В., Бродин М. С., Пирятинський Ю. П.* и др. Фотогенерація звука в системі термоізоляризованих мікрокристаллов CdS в цеолите // Письма в ЖЭТФ. 1995. Т. 107. № 5. С. 1685–1697.
4. *Franiv A. V., Peleshchyshyn R. V., Kolosivski Yu. M.* Optical properties of quantum size $\text{In}_x\text{Tl}_{1-x}\text{I}$ embedded in solid matrices // Ukr. J. Phys. Opt. Lviv. 2000. Vol. 1. N 1. P. 24–27.
5. *Сендеров Э. Э., Хитров Н. И.* Цеолиты, их синтез и условия образования в природе. М.: Наука, 1970. 283 с.
6. *Reuben T. Collins, Philippe M. Fauchet et al.* Porous Silicon: From Luminescence to LEDs // Physics Today. 1997. Vol. 1. P. 24–30.
7. *Беллалли Л.* Новые данные по ИК-спектрам сложных молекул. М.: Мир, 1971. 231 с.

RADIATION DETECTOR BASED ON INDIUM IODIDE NANOCRYSTALS

O. Bovgyra, A. Franiv, V. Franiv

*Ivan Franko Lviv National University
Kyrylo & Mefodii Str., 19, UA-79005 Lviv, Ukraine
e-mail: franiv@ukr.net*

Based on investigations of the dose dependence of integral intensity of thermostimulated luminescence spectra of indium monohalogenides nanostructures synthesized in porous silicon voids, the radiation detectors are proposed. The mechanisms of recombinational processes in InI nanocrystals exposed to hard γ -radiation have been discussed.

Key words: integral intensity, nanocrystal, γ -radiation.

Стаття надійшла до редколегії 15.02.2008
Прийнята до друку 08.07.2008