

Механизм образования включений в кристаллах NaI(Tl) и его экспериментальная проверка

А.В. Колесников, А.М. Кудин, А.И. Митичкин, В.П. Семиноженко, К.А. Кудин

*Институт сцинтилляционных материалов НАН Украины, Харьков, пр. Ленина, 60
e-mail: kudin@isma.kharkov.ua*

Для ряда применений необходимы сцинтилляционные кристаллы NaI(Tl) очень больших размеров (детекторы диагностических гамма-камер, спектрометрические порталы, и др.). Для подобных назначений выращивают слитки диаметром 500 мм и более автоматизированным методом Киропулоса с подпиткой [1]. Актуальным вопросом роста крупногабаритных кристаллов является проблема светорассеяния, центры которого (ЦРС – центры рассеяния света) сосредоточены в полосах захвата.

Анализ представлений о природе ЦРС показал, что противоречия между ними можно устранить, если предположить, что механизм распада – гетерогенный, а очагами распада являются газовые каналы, наполненные CO_2 . Показано, что преимущественным типом включений в областях захвата являются выделения новой фазы в виде полых стержней, ориентированные вдоль оси роста [2]. На основании данных о растворимости второй фазы сделан вывод о том, что выделения связаны с карбонатами натрия и таллия. Этот вывод согласуется с данными ИК-спектроскопии об изменении локального окружения карбонат-ионов в областях захвата по сравнению с регулярной решеткой. Предложен механизм образования выделений, включающий три стадии. На первом этапе окись натрия диффундирует к внешним и внутренним поверхностям кристалла. На втором происходит химическая реакция превращения окиси в карбонат. На третьем – образовавшаяся фаза выстилает внутреннюю поверхность газонаполненного канала. Образовавшийся каркас придает морфологическую устойчивость газовым каналам.

Предложенный механизм экспериментально проверен с разных позиций. Масс-спектрометрическим анализом показано, что газовые пузырьки действительно наполнены углекислым газом, аргоном и водой. Анализ состава рассеивающих кристаллов показал, что концентрация карбонат-ионов в них слишком мала для эффективного образования выделений при отжиге образцов. Основной посторонней примесью в таких кристаллах является окись натрия. Отжиг кристаллов, содержащих $\sim 2 \cdot 10^{-4}$ % ионов CO_3^{2-} и $5 \cdot 10^{-2}$ % O^{2-} , в вакууме и реактивной атмосфере при 550°C показал, что на внешней поверхности сколов образуется карбонат натрия только в том случае, если отжиг проводился в CO_2 .

Показано, что для прозрачной части кристалла характерен стандартный набор ИК полос поглощения с максимумами при 1440 см^{-1} (валентное ν_3 -колебание) и 880 см^{-1} (деформационное ν_1). Локальное окружение карбонат-ионов в мутной части кристалла отличается: кроме полосы 880 см^{-1} наблюдаются колебания при 1380 и 1530 см^{-1} . Полоса 1530 см^{-1} была приписана ранее выделениям фазы Na_2CO_3 . Однако таблетки из соли NaI с диспергированным карбонатом натрия или таллия не показали наличие полосы 1530 см^{-1} . Указанная полоса появилась в таблетках после отжига при 500°C . По этой причине мы полагаем, что природа ЦРС соответствует карбонатам переменного состава.

[1] В.И. Горилецкий, Б.В. Гринев, Б.Г. Заславский, Н.Н. Смирнов, В.С. Суздаль. Рост кристаллов. – Харьков, Акта, 2002. - 535 с.

[2] К.А. Кудин, В.И. Глушко, В.В. Шляхтуров, и др. // Физическая инженерия поверхности, 2011. - Т. 9, 4. - С. 395-398.