МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ

КИЇВСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ УНІВЕРСИТЕТ
імені ТАРАСА ШЕВЧЕНКА

САМОЙЛЕНКО СЕРГІЙ ОЛЕКСАНДРОВИЧ

УДК 538.9

ВПЛИВ ДОПУВАННЯ НА ПРОЦЕС НАНОУТВОРЕННЯ, ЗМІНИ СТРУКТУРИ ТА ВЛАСТИВОСТЕЙ КОНДЕНСОВАНИХ СЕРЕДОВИЩ

01.04.14 – теплофізика і молекулярна фізика

Автореферат
дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико–математичних наук

Київ–2015

Дисертацією є рукопис.
Робота виконана на фізичному факультеті Київського національного університету імені Тараса Шевченка.

Науковий керівник: академік НАН України,
доктор фізико-математичних наук, професор
БУЛАВІН Леонід Анатолійович,
Київський національний університет імені Тараса Шевченка,
фізичний факультет, завідувач кафедри молекулярної фізики.

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, професор,
член-кореспондент НАН України
МОЛОДКІН Вадим Борисович,
Інститут металофізики НАН України ім. Г.В. Курдюмова,
головний науковий співробітник

доктор фізико-математичних наук, професор
КЛЕПКО Валерій Володимирович,
Інститут хімії високомолекулярних сполук НАН України,
заступник директора

Захист відбудеться "24" листопада 2015 р. о 14^{30} год. на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 26.001.08 Київського національного університету імені Тараса Шевченка за адресою: м. Київ, пр. Глушкова 2, корп. 1, фізичний факультет, ауд. 500.

З дисертацією можна ознайомитись у Науковій бібліотеці ім. М. Максимовича Київського національного університету імені Тараса Шевченка за адресою: м. Київ, вул. Володимирська, 58.

Автореферат розісланий " 22 " жовтня 2015 р.

Вчений секретар
спеціалізованої вченої ради Д.26.001.08,
кандидат фізико-математичних наук **Свечнікова О.С.**

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми. Вивчення допованих конденсованих середовищ має як загально науковий, так і прикладний інтерес. Дослідження процесів формування наноутворень в кристалічних і аморфних матрицях та зміни структури в дисперсних середовищах внаслідок їх допування мають дати корисну інформацію про властивості нових матеріалів і дозволять управляти їх фізичними властивостями за рахунок варіювання структури. З точки зору практичного застосування, доповані кристалічні матриці можуть бути застосованими у виробництві пристроїв для накопичення інформації. Включення до складу скляних матриць оксидів церію і титану забезпечує вибіркове поглинання світла і дає можливість застосовувати їх для виготовлення різноманітних виробів побутового та технічного призначення. Дисперсні системи на основі алюмолютецієвих та алюмоітрієвих гранатів, активовані іонами церію, широко застосовуються як оптичні конвертори в детекторах рентгенівського випромінювання та високоенергетичних часток в рентгенівській та скануючій позитрон-емісійній комп'ютерній томографії.

Зв’язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Дисертаційна робота є частиною досліджень, які проводяться на кафедрі молекулярної фізики фізичного факультету Київського національного університету імені Тараса Шевченка у рамках Комплексної наукової програми «Конденсований стан – фізичні основи новітніх технологій». Зміст роботи був узгоджений з планами роботи за держбюджетними темами «Фундаментальні дослідження молекулярних процесів в рідинних, полімерних, медико-біологічних і наносистемах, які визначають їх рівноважні та кінетичні властивості» (№ ДР 0106U006363); «Фундаментальні дослідження в галузі фізики конденсованого стану і елементарних частинок, астрономії і матеріалознавства для створення основ новітніх технологій» (№ ДР 0111U004954) та «Конденсований стан (рідинні системи, наноструктури, полімери, медико-біологічні об’єкти) – фундаментальні дослідження молекулярного рівня організації речовини» (№ ДР 0114U003475).

Мета і завдання дослідження. ***Метою*** дисертаційної роботи є виявлення та характеризація наноутворень в кристалічних і аморфних матрицях, аналіз зміни структури дисперсних середовищ, яке відбувається внаслідок їх допування іонами та оксидами, а також вплив спостережених структурних змін на фізичні властивості досліджуваних об’єктів.

Для досягнення поставленої мети необхідно було вирішити наступні ***задачі:***

1) за допомогою методів малокутового розсіяння рентгенівських променів та магнітних вимірювань дослідити процес формування наноутворень в кристалічних алюмінієвих матрицях після їх опромінення іонами гелію та заліза;
2) використовуючи метод малокутового розсіяння нейтронів, визначити механізми формування наноутворень в аморфному силікатному склі,

bjдопованому оксидами церію і титану та прослідити зв'язок розмірів наноутворень з фрактальною розмірністю аморфних матриць;

3) провести математичну обробку даних по малокутовому розсіянню нейтронів і визначити середнє значення елементного складу наноутворень в досліджуваних скляних матрицях, допованих оксидами церію та титану;

4) за допомогою методу малокутового розсіяння нейтронів дослідити механізми формування наноутворень в аморфному силікатному склі, допованому оксидами свинцю і сіркою та прослідити зв'язок між режимами термообробки та фрактальною розмірністю силікатного скла;

5) використовуючи методи нейтронної дифракції, дослідити зміни структури в дисперсних середовищах на основі алюмоітрієвого та алюмолютецієвого гранату, внаслідок допування їх оксидами лютецію та вплив цих змін їх фізичні властивості.

6) за допомогою методу нейтронної дифракції визначити зміни у структурі алюмолютецієвого гранату, допованого іонами церію за різних умов його термообробки;

7) провести аналіз зв’язку зміни міжатомних відстаней в алюмолютецієвих гранатах, допованих іонами церію зі зміною спектрів фотолюмінесценції досліджуваних гранатів за різних умов їх допування та термообробки.

Об’єкт дослідження - вплив допування іонами та оксидами на конденсоване середовище з метою формування в ньому наноутворень, зміни його структури та фізичних властивостей.

Предмет дослідження - процес утворення нанонеоднорідностей в конденсованих середовищах та зміна структури внаслідок їх опромінення іонами або введенням в них оксидів, а також зв'язок структурних змін в цих середовищах з їх фізичними властивостями.

Методи дослідження. Для дослідження процесу наноутворень та зміни структури, а також вивчення фізичних властивостей в допованих конденсованих середовищах були застосовані методи малокутового розсіяння нейтронів та рентгенівських променів, нейтронної дифракції, а також магнітних та оптичних вимірювань.

Наукова новизна одержаних результатів.

Методом малокутового розсіяння рентгенівських променів вперше знайдені розміри нанонеоднорідностей, які формуються в алюмінієвій матриці, опроміненій іонами гелію та заліза. Вперше встановлено зміну фрактальної розмірності кристалічних та аморфних матриць внаслідок їх допування. Запропоновано гетерогенний механізм формування наноутворень в скляних матрицях, допованих оксидами, який полягає в тому, що додавання саме оксидів церію та титану спонукає до формування наноутворень у скляній матриці. Вперше, використовуючи дані малокутового розсіяння нейтронів, визначено середнє значення елементного складу наноутворень в досліджуваних аморфних скляних матрицях. Методом нейтронної дифракції

знайдено зміни структури алюмолютецієвого граната, допованого іонами церію за різних умов термообробки.

Практичне значення одержаних результатів. Експериментально одержані результати є важливими для вдосконалення технології виготовлення магнітних та оптичних систем з наперед заданими властивостями та подальшого їх використання у різноманітних виробах побутового та технічного призначення.

Особистий внесок здобувача. Дисертація є самостійною науковою працею, в якій висвітлені власні ідеї та розробки автора, що дозволили вирішити поставлені завдання. Робота містить теоретичні та методичні положення і висновки, сформульовані дисертантом особисто. Використані в дисертації ідеї, положення чи гіпотези інших авторів мають відповідні посилання і використані лише для підкріплення ідей здобувача.

З наукових статей, що видані у співавторстві до дисертації включені лише результати, що отримані автором особисто. Зокрема дисертант брав безпосередню участь у проведенні експериментів з малокутового розсіяння рентгенівських променів кристалічними матрицями, малокутового розсіяння нейтронів аморфним силікатним склом та нейтронної дифракції дисперсними системами, а також обговоренні результатів та написанні всіх робіт, викладених в [1-16]. В роботах [3,14,15] автором проведена математична обробка даних по малокутовому розсіянню нейтронів, з урахуванням елементного складу скла та густини амплітуд розсіяння компонентів скла, яка дозволила визначити середнє значення елементного складу наноутворень в скляних матрицях, допованих оксидами церію та титану. Вперше проаналізована зміна фрактальної розмірності кристалічних та аморфних матриць за розмірами наноутворень в них. Дисертантом був запропонований механізм формування наноутворень в аморфних скляних матрицях, що представлений у роботах [1,3,6,7,8,10,12,15,16]. У роботах [5,6,7,11] визначені зміни структури дисперсних середовищ, допованих оксидом лютецію та іонами церію, які в подальшому впливають на зміни їх спектрів фотолюмінесценції.

Апробація результатів дисертації. Основні результати дисертації доповідались та обговорювались на наукових конференціях, семінарах та школах, а саме: 1. SANS-YuMO user Meeting at the start-up of scientific experiments on IBR-2M devoted to the 75th anniversary of Yu.M Ostanevich. May 27-30, 2011, Dubna, RF; 2. VIII Национальная конференция «Рентгеновское, синхротронное излучения, нейтроны и электроны для исследования наносистем и материалов. Нано-био-инфо-когнитивные технологии» (РСНЭ-НБИК-2011). 14-18 ноября 2011, Москва, РФ; 3. 46-я Школа ПИЯФ по физике конденсированного состояния (ФКС-2012). 12-17 марта 2012, Гатчина, РФ; 4. XXII Международное совещание и Международная молодежная конференция «Использование рассеяния нейтронов в исследованиях конденсированного состояния», 2012, Санкт-Петербург, РФ; 5. XLVII Школа ФГБУ «ПИЯФ» по физике конденсированного состояния, 2013, Санкт-

Петербург, РФ; 6. II Международная конференция «Многомасштабное моделирование структур, строение вещества, наноматериалы и нанотехнологии». 11-14 ноября 2013, Тула, РФ; 7. International Conference ‘Condensed Matter Research at the IBR-2’ (CMR-2014). June 24-27, 2014, Dubna, RF; 8. Совещание и Молодежная конференция по использованию рассеяния нейтронов и синхротронного излучения в конденсированных средах, 27–31 октября 2014, Санкт-Петербург, РФ; 9. 48-я Школа ПИЯФ по физике конденсированного состояния (ФКС-2014). 10-15 марта 2013, Гатчина, РФ.

Публікації. Основні ідеї та результати дисертації опубліковано в 16 працях, зокрема у 6 статтях у реферованих фахових журналах та додатково відображені в 10 тезах доповідей на міжнародних наукових конференціях.

Структура та обсяг дисертаційної роботи. Дисертація складається зі вступу, п’ятьох розділів, висновків та списку використаних джерел, що містить 145 найменування. Роботу викладено на 136 сторінках машинописного тексту, який містить 41 рисунок та 16 таблиць.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У **вступі** обґрунтовано актуальність теми, її зв’язок з науковими програмами, темами, планами, сформульовано мету і завдання досліджень, наведено наукову новизну та практичне значення одержаних результатів, відображено особистий внесок автора, надано відомості про апробацію результатів, публікації, структуру та обсяг дисертації.

У **розділі 1** дисертації наводиться опис структури та властивостей досліджуваних конденсованих середовищ, а саме кристалічних матриць, які опромінені іонами гелію та заліза, аморфних матриць, допованих оксидами церію і титану, та дисперсних середовищ на прикладі багатокомпонентних люмінофорів, що доповані оксидами лютецію та іонами церію.

У **розділі 2** наведені основні відомості про дослідження конденсованих середовищ методами малокутового розсіяння нейтронів та рентгенівських променів і нейтронної дифракціїї. Малокутове розсіяння нейтронів – це метод дифракції нейтронів під малими кутами (до ~ 0,05 рад.), який дозволяє досліджувати структуру об’єктів з характерними розмірами (1÷100) нм. Важливою особливістю малокутового розсіяння нейтронів є можливість дослідження внутрішньої будови невпорядкованих систем. Головним особливістю даного методу є висока проникаюча здатність нейтронного випромінювання. Це дозволяє вивчати не лише поверхневу структуру речовин, а й структуру об’ємної фази.

Модель, що застосовувались при опрацюванні даних малокутового розсіяння рентгенівських променів та нейтронів з метою аналізу утворення неоднорідностей у кристалічних та аморфних матриць, враховує розсіяння від матриці, а також розсіяння від сформованих в ній наноутворень, які з’являються в результаті опромінення або допування матриці. При цьому

диференціальний переріз розсіяння нейтронів представляють у вигляді:

$$d\Sigma(q)/d\Omega = Aq^{-\alpha} + B\exp(-\frac{1}{3}q^2R_g^2) + C \quad (1),$$

де A – амплітуда степеневого розсіяння нейтронів, B – інтенсивність розсіяння в нульовий кут в наближенні Гіньє, C - некогерентний фон, R_g - радіус гірації, який визначає середній розмір утворених неоднорідностей внаслідок допування. α- показник степеневого розсіяння нейтронів, що пов'язаний з фрактальною розмірністю розсіюючих об'єктів, а саме для об'ємних фракталів, коли α = (1÷3), $\alpha = D_{об}$, де $D_{об}$ – фрактальна розмірність об'ємних фракталів, а для поверхневих фракталів, коли α = (3÷4), $D_{пов} = 6 - \alpha$, де $D_{пов}$ – фрактальна розмірність поверхневих фракталів. Вираз (1) справедливий в області малих векторів розсіяння q, тобто за умови $q \cdot R_g < 1$.

В нейтронному дифракційному експерименті на звичайні кути розсіяння досліджувалися інтегральні інтенсивності брегівських піків, що несуть інформацію про структуру досліджуваного об'єкта. В даній роботі, для аналізу дифракційних експериментів та визначення параметрів кристалічної структури був застосований метод Рітвельда.

У **розділі 3** досліджуються наноутворення, які сформувалися в кристалічних матрицях, що були опромінені іонами гелію та заліза. Опромінення кристалічних матриць з алюмінію відбувалося на циклотроні ECR Об'єднаного інституту ядерних досліджень в Лабораторії ядерних реакцій, (м. Дубна, Росія). Було проведено опромінення алюмінієвих матриць в чотири способи і виготовлено чотири зразки для подальших їх досліджень.

Дослідження опромінених зразків проводились за допомогою малокутового розсіяння рентгенівських променів на станції «Структурне матеріалознавство» в Курчатовському центрі синхротронного випромінювання та нанотехнологій (м. Москва, Росія). Криві малокутового розсіяння рентгенівського випромінювання для представленні на рис. 1.

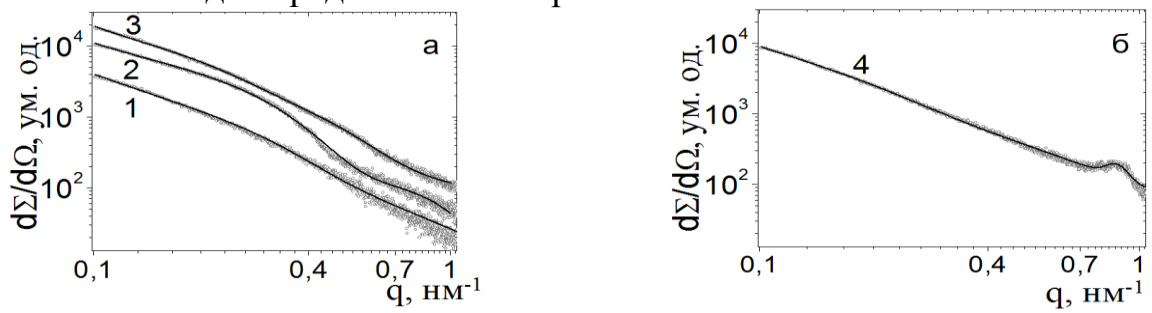


Рис. 1. Криві малокутового розсіяння рентгенівських променів алюмінієвими матрицями, які опромінені: 1 - лише іонами гелію; 2 - іонами гелію, а потім іонами заліза; 3 - лише іонами заліза; 4 - іонами заліза, а згодом іонами гелію

Обробка кривих малокутового розсіяння рентгенівських променів проводилася за допомогою моделі (1) з внесками розсіяння від алюмінієвої

матриці та розсіяння на наночастинках, що утворюються при опроміненні матриці.

Крива (1) малокутового розсіяння (див. рис. 1) рентгенівського випромінювання на алюмінієвій матриці, що опромінена лише іонами He^+, відповідає розсіянню на порах, утворених внаслідок опромінення матриці. Крива (3) розсіяння на алюмінієвій матриці, яка опромінена лише іонами Fe, відповідає розсіюванню на наночастинках заліза, які утворилися в алюмінієвій матриці внаслідок опромінення. Обробка експериментальних даних показала, що при переході від опромінення лише іонами гелію до опромінення іонами заліза розміри наноутворень в алюмінієвій матриці збільшуються, але зменшується фрактальна розмірність матриць (табл. 1).

Таблиця 1

Розміри наночастинок заліза, що утворились в алюмінієвій матриці внаслідок її опромінення іонами, фрактальна розмірність та значення степенів Блоха

Зразок	Радіус неоднорідностей гірації R_g, нм	Фрактальна розмірність матриці D	Степінь Блоха b
1	6,95±0,01	2,43±0,02	1,27±0,04
2	7,10±0,02	2,10±0,03	1,62±0,03
3	10,4±0,01	1,94±0,01	1,58±0,03
4	6,80±0,02	2,12±0,04	1,58±0,02

Якщо кристалічну алюмінієву матрицю опромінити спочатку іонами гелію, а потім іонами заліза, то маємо зразок, в якому із чотирьох досліджених зразків кількість наноутворень буде максимальною, про що свідчить максимальна амплітуда відповідної кривої малокутового розсіяння рентгенівських променів та мінімальна фрактальна розмірність матриці. Дійсно, крива 3 на рис. 1а розташована над кривою 1 та 2, які відповідають малокутовому розсіянню на наноутвореннях в алюмінієвій матриці, що виникли внаслідок її опромінення окремо іонами гелію та іонами заліза.

Крива (4) на рис. 1б малокутового розсіяння рентгенівських променів, яка відповідає опроміненню алюмінієвої матриці спочатку іонами заліза, а потім іонами гелію має додатковий пік при $q = 0{,}87$ нм$^{-1}$ (рис. 1б). Це свідчить про існування певної впорядкованості в розташуванні наночастинок заліза в алюмінієвій матриці. Для аналізу цієї кривої було використане модифіковане рівняння (1), в якому для знаходження положення та напівширини спостережуваного піку було введено третій доданок $E\,exp((q-q_0)^2/2\sigma^2)$, що пов'язаний з періодичним розташуванням наноутворень. Обробка в цьому випадку даних про малокутове розсіяння рентгенівських променів зразка дозволила отримати положення піку в оберненому просторі: $q_0 = (0{,}87\pm0{,}02)$ нм$^{-1}$. Звідки випливає, що періодичність в розташуванні наночастинок заліза в гратці алюмінію становить $L = 2\pi/q_0 \approx (7{,}2 \pm 0{,}1)$ нм.

Порівняння знайдених структурних характеристик досліджуваних зразків (див. табл. 1) показує, що допування кристалічної алюмінієвої матриці спочатку іонами заліза, а згодом іонами гелію дає картину, подібну допування цієї матриці лише іонами заліза. Додаткове допування після цього іонами гелію в межах похибки експерименту майже не змінює фрактальну розмірність опроміненої алюмінієвої матриці, але трохи змінює розміри наноутворень заліза.

Для контролю за процесами утворення нанонеоднорідностей в опромінених кристалічних матрицях на установці SQUID в Об'єднаному інституті ядерних досліджень в Лабораторії ядерних реакцій, (м. Дубна, Росія) були досліджені залежності намагніченості опромінених зразків від температури та величини магнітного поля, які представлені на рис. 2.

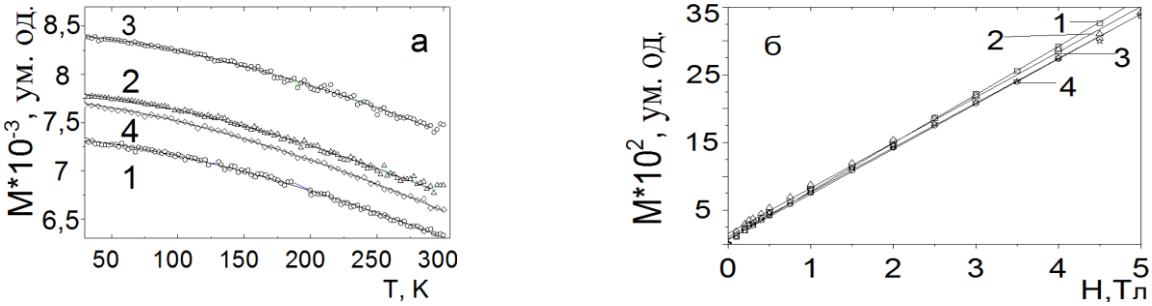


Рис. 2. Залежність намагніченості допованих алюмінієвих матриць від температури (а) та магнітного поля (б) при температурі T= 300 K. Точки – експериментальні дані, лінії відповідають лініям апроксимації за формулою (2)

Для температур, що нижчі температури Кюрі, температурна залежність намагніченості в рамках спін-хвильової теорії коливань задається законом Блоха:

$$M = M_0(1 - B\left(T / T_C\right)^b) \qquad (2)$$

де B константа, а b - степінь Блоха.

Застосування формули (2) для аналізу проведених магнітних вимірювань дозволило знайти степінь Блоха для опромінених алюмінієвих зразків наведені у табл. 1. Отримані значення b для досліджених зразків близькі до ідеальних значень степіня Блоха $b \sim 3/2$, що вказує на наявність невеликих магнітних наночастинок (див. табл. 1). Існування незначної намагніченості в зразку, що опромінений лише іонами гелію, може бути пояснено наявністю в матриці певних домішок. Цей зразок характеризується низьким значенням степіня Блоха $b = 1{,}27 \pm 0{,}04$.

Отже, за допомогою двох незалежних фізичних методів, а саме методу малокутового розсіяння рентгенівських променів та методу вивчення магнітних властивостей виявлено наявність наноутворень заліза в алюмінієвих матрицях, які опромінювались іонами заліза та гелію. Розміри таких наноутворень ~ 7 нм, а фрактальна розмірність опромінених алюмінієвих матриць внаслідок опромінення змінювалась від 2,43 до 1,94.

Розділ 4 присвячений дослідженням наноутворень у аморфному

силікатному склі, яке доповане оксидами титану та церію. За аморфну матрицю було вибрано силікатне скло з різним співвідношенням оксидів TiO_2 та CeO_2. Розміри наноутворень та фрактальну розмірність аморфної силікатної матриці вивчено за допомогою методу малокутового розсіяння нейтронів на установці SANS - 1, що розташована на стаціонарному реакторі FRG-1 Дослідницького центру GKSS (м. Гіштахт, Німеччина). Криві малокутового розсіяння нейтронів представлені на рис. 3, де на рис. 3а наведені криві недопованого скла та допованого лише оксидом церію з молярною концентрацією 2 %.

Експериментально отримані залежності диференціального перерізу малокутового розсіяння нейтронів на вказаних зразках представлені на рис. 3. У випадку невпорядкованих систем поза межами області Гіньє крива малокутового розсіювання нейтронів на силікатному склі без домішок описується степеневим законом, а саме першим доданком у формулі (1). При цьому отримане з аналізу експериментальних даних значення фрактальної розмірності недопованого скла (див. рис. 3а) склало $D = 2{,}90 \pm 0{,}05$. В такому випадку розсіюючими об'єктами є пори, що утворилися в процесі виготовлення стекол з розміром ~ 1 нм.

При допуванні стекол не лише оксидом церію, а оксидом церію та оксидом титану спостерігається помітна зміна форми кривих малокутового розсіяння нейтронів (рис. 3. б, с). З лінійної залежності $d\Sigma/d\Omega = f(q)$ вони перетворюються в S-подібні, причому ступінь відхилення від лінійності зростає із збільшенням кількості допування в матрицю диоксиду титану. В цьому випадку для опису експериментальних даних про малокутове розсіяння нейтронів була використана модель (1), що включає крім розсіяння на порах скла розсіяння на нанонеоднорідностях Ce-Ti-O.

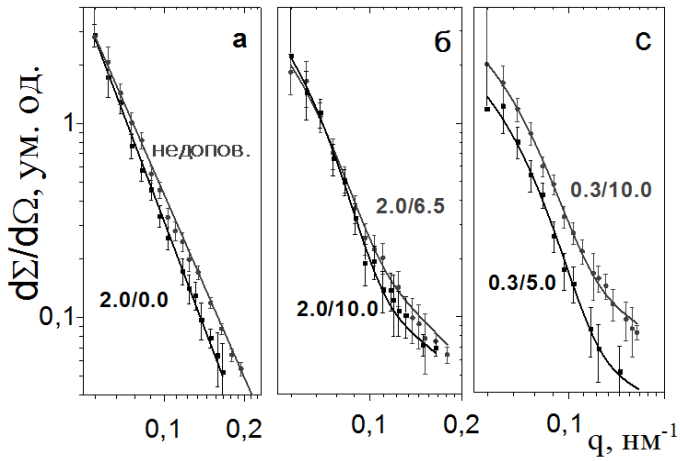


Рис. 3. Малокутове розсіяння нейтронів на недопованому (а) та допованому (б, с) силікатному склі. Точки – експеримент, лінії відповідають апроксимації (1)

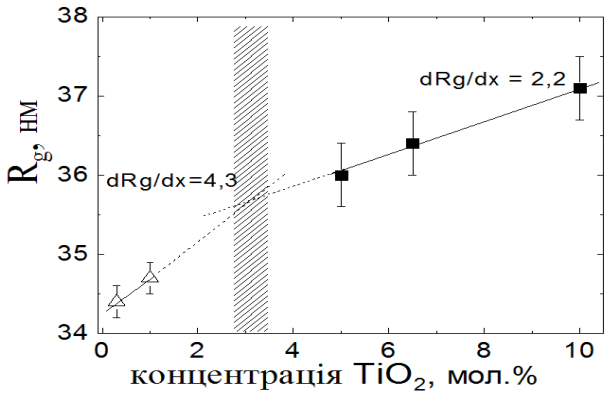


Рис. 4. Концентраційна залежність розмірів нанонеоднорідностей, які утворилися в силікатному склі при його допуванні оксидами церію та титану за умови фіксованої молярної концентрації церію

Проаналізуємо зміни фрактальної розмірності зразків силікатного скла, які відбуваються внаслідок їх допування. У стеклах, допованих лише оксидом церію нанокластерів не було виявлено (див. табл. 2).

Таблиця 2

Значення радіуса гірації R_g нанонеоднорідностей, які утворилися внаслідок допування силікатних стекол та їх фрактальна розмірність

Допування		Радіус гірації наноутворень	Фрактальна розмірність
TiO_2, %	CeO_2, %	R_g, нм	матриці D
0,3	2,0	34,4±0,2	1,79±0,11
1,0	2,0	34,7±0,2	1,91±0,03
5,0	2,0	36±0,4	1,63±0,02
6,5	2,0	36,4±0,4	1,6±0,1
10,0	2,0	37,1±0,4	1,28±0.02
0	2,0	не виявлено	2,90±0,08
0	0,3	не виявлено	2,85±0,11
5,0	0,3	33,1±0,5	1,06±0,16
10,0	0,3	32,9±0,4	1,16±0,09

Аналіз даних про малокутове розсіяння нейтронів в допованих церієм та титаном силікатних стеклах вказує на дві структурні особливості. По-перше, це відсутність формування наноутворень за нульової концентрації TiO_2. При цьому фрактальна розмірність дорівнює майже 3, що додатково свідчить про відсутність в матриці наноутворень. По-друге, зменшення в молярній концентрації оксиду CeO_2 від 2,0 % до 0,3 % призводить до зменшення розмірів нанонеоднорідностей в середньому від 36 нм до 33 нм. Величина параметра α, який пов'язаний з фрактальною розмірністю скляної матриці, зменшується від 1,8 до 1,3 при збільшенні концентрації TiO_2 з 0,3 % до 10,0 %, що вказує на зміну фрактальної розмірності скляної матриці при утворенні нанонеоднорідностей.

У стеклах з меншою концентрацією оксиду церію 0,3 % також спостерігається формування нанонеоднорідностей, при цьому радіус гірації слабо залежить від концентрації TiO_2, $R_g \approx 33$ нм (табл. 2), і його значення помітно менше у порівнянні з стеклами, що мають більш високу концентрацію 2,0 %. Величина параметра α виявляється ще менше та становить 1,1-1,2. Це може підтверджувати припущення про формування таких наноутворень саме з оксиду титану і оксиду церію при мінімальній участі інших компонентів скла. Таким чином, величина параметрів R_g і α, які визначають структуру зразка, що моделюється формулою (1), зумовлена як концентрацією TiO_2, так і концентрацією CeO_2.

За допомогою малокутового розсіяння нейтронів на силікатних стеклах, допованих іонами титану та церію визначено розміри нанонеоднорідностей, які утворюються в стеклах внаслідок процесу їх допування. З’ясувалося, що розміри утворених кластерів порядка 40 нм. У зв’язку з цим було проведено порівняння результатів нейтронного експерименту з результатами оптичних досліджень силікатних стекол.

З цією метою проаналізовано зв’язок тангенсу кута нахилу оптичного спектру пропускання *K* силікатних стекол з визначеними за допомогою малокутового розсіяння нейтронів неоднорідностями, які утворилися внаслідок допування силікатних стекол. Така залежність представлена на рис. 5а.

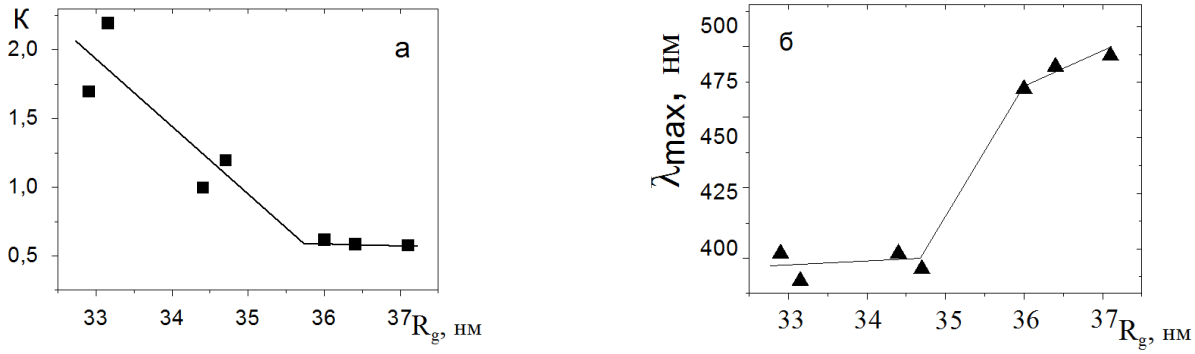


Рис.5. Зв’язок між тангенсом кута нахилу оптичного спектру пропускання крізь доповані силікатні стекла (а) та порогу пропускання оптичного спектру допованими силікатними стеклами (б) з розмірами неоднорідностей, які утворилися внаслідок їх допування оксидами церію та титану

При цьому максимальне значення довжини світлової хвилі λ_{max}, що проходить крізь зразок (так званий поріг пропускання) в інтервалі розмірів неоднорідностей (33 - 35) нм є незмінним, а далі при збільшені розмірів неоднорідностей спостерігається стрибкоподібне його збільшення до величини $\lambda_{max} \approx 475$ нм (див. рис. 5б). Опираючись на отримані результати малокутового розсіяння нейтронів в допованих силікатних стеклах та існуючі літературні дані по дослідженню центрів забарвлення, можна запропонувати модель формування складних оксидних агрегатів в таких об'єктах. При невеликих відносних концентраціях оксидів титану та церію наноутворення формуються переважно з кисню, трьохвалентних іонів церію Ce^{3+} і чотирьохвалентного титану Ti^{4+}. При збільшенні відносної концентрації оксидів титану та церію відбувається зміна валентного стану іона церію до Ce^{4+}, що зумовлює формування іншого типу наноутворень з більшим значенням їх середнього розміру (рис. 4) і як наслідок зміною оптичних властивостей досліджених стекол (рис. 5а – 5б).

З метою дослідження процесу утворення нанонеоднорідностей в силікатних стеклах на спектрометрі ЮМО, розташованому на реакторі ІБР–2 Лабораторії нейтронної фізики ім. І. М. Франка Об'єднаного інституту ядерних досліджень (м. Дубна, Росія) були проведені додаткові експерименти по малокутовому розсіянню нейтронів були проведені.

Проведена з урахуванням елементного складу скла та густини амплітуд розсіяння компонентів скла математична обробка даних по малокутовому розсіянню нейтронів в допованому силікатному склі дозволила встановити середній розмір наноутворень та їх середній об'єм, який становить R_g=(30±1) нм та V=(0,72±0,3) нм^3. На рис. 6 представлена відновлена структурна модель виявлених неоднорідностей у силікатному склі.

Рис. 6. Три проекції флуктуацій густини в синтезованому силікатному склі, які відновлені внаслідок математичної обробки даних про малокутове розсіяння нейтронів

Проведений аналіз за допомогою запропонованого математичного формалізму дозволив визначити середнє значення елементного складу нанокластерів у досліджуваних скляних матрицях, який складає: ~29 % оксидів металу, ~20 % кварцу SiO_2 та ~51 % оксидів Ce-Ti-O та відтворити три проекції такого наноутворення.

Наступним класом досліджуваних систем були стекла з наночастинками PbS, які утворилися внаслідок допування склоутворюючої системи SiO_2-Al_2O_3-ZnO-Na_2O-K_2O. Для формування наночастинок PbS у склі його склад допувався оксидом свинцю та сіркою.

Для визначення розмірів наноутворень PbS в виготовлених зразках та зміни фрактальної розмірності зразків в залежності від термічних умов їх виготовлення (див. табл. 3) було застосовано метод малокутової дифракції нейтронів.

Таблиця 3

Умови температурної обробки скла, радіуси наночастинок PbS у силікатному склі та фрактальна розмірність матриць

Зразок	Температура обробки, ^oC	Час обробки, год	Розмір наночастинок R, нм	Фрактальна розмірність матриці *D*
1	480	50	3,0 ± 0,3	$D_{пов}$ = (2,3 ± 0,3)
2	480	70	3,47 ± 0,19	$D_{об}$ = (2,5 ± 0,3)
3	480	120	3,87 ± 0,15	$D_{об}$ = (2,8 ± 0,2)
4	525	80	3,7 ± 0,5	$D_{об}$ = (2,7 ± 0,16)

У результаті проведених експериментів отримано залежності інтенсивності малокутового розсіяння нейтронів від модуля переданого хвильового вектора q, які наведені на рис. 7.

Для обробки експериментальних даних була використана модель, що включає розсіювання нейтронів на відносно великих за розміром неоднорідностях (порах і порожнечах скла), що описується законом розсіювання на фрактальних структурах, а також розсіюванням на наноутвореннях PbS. При цьому криву розсіяння на наночастинках PbS вдалося апроксимувати в рамках моделі ізотропних частинок зі сферичною морфологією. В такому випадку криві малокутового розсіяння нейтронів можна описати за допомогою формули:

$$d\Sigma(q)/d\Omega = Aq^{-\alpha} + Bf^2(qR) + C \qquad (3)$$

де *f(qR)* - форм-фактор розсіяння від сферичної частинки:

$$f(t) = 3\left(\frac{\sin t - t\cos t}{t^3}\right) \qquad (4)$$

де $t=qR$, а R-радиус наночастинки.

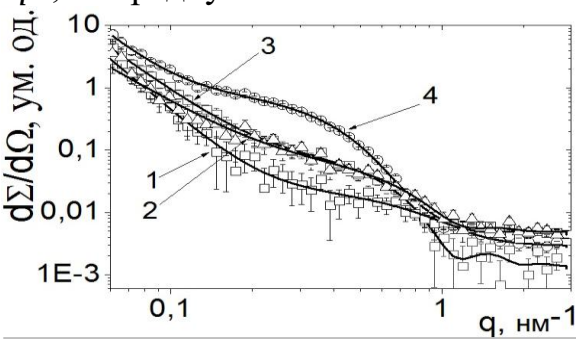


Рис. 7. Криві малокутового розсіяння нейтронів стеклами з наночастинками PbS, які утворились за різних умов термообробки скла (див. табл. 4). Суцільні лінії - апроксимація формулою (5)

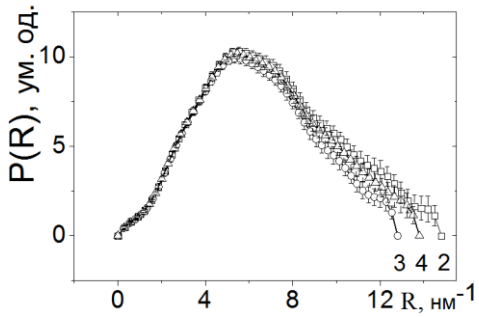


Рис. 8. Функції розподілу наночастинок PbS за розмірами у відповідних зразках виготовлених стекол

З проведеної обробки кривих малокутового розсіяння нейтронів випливає, що для зразка 1 характерним є розсіяння від поверхневих фракталів, в той час як для інших зразків розсіяння нейтронів відповідає розсіянню на об'ємних фракталах. Слід припустити, що на першій стадії термообробки скла, що віддзеркалює зразок 1, в звареному склі утворюється порожнечі, які згодом при наступних стадіях термообробки скла заповнюються частинками PbS.

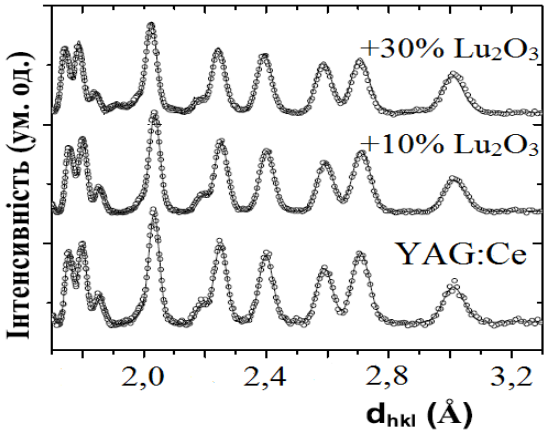
Розміри нанокластерів у склі можуть бути визначені з нейтронних даних і іншим шляхом. На рис. 8 представлені знайдені функції розподілу наночастинок PbS у склі за розмірами, які не вимірюються безпосередньо. У процесі розсіяння вони трансформується за перетворенням Фур'є у функції розсіяння I(q), тобто функції розподілу наночастинок за розмірами є фактично оберненим перетворенням Фур'є експериментальних даних. З аналізу функцій розподілу випливає, що розміри наноутворень в межах похибки їх визначення в такий спосіб майже співпадають з розмірами наночастинок PbS, які були отримані з прямого аналізу кривих малокутового розсіяння нейтронів, що підтверджує справедливість отриманих результатів.

З урахуванням представлених нейтронних даних (табл. 3) та результатів електронної мікроскопії, можна запропонувати наступну модель формування наночастинок PbS в допованих термооброблених стеклах. Спочатку внаслідок термообробки скла в ньому з'являються неоднорідності (порожнечі, пори) значних розмірів, що підтверджує знайдене нами розсіяння нейтронів на поверхневих фракталах в зразку 1. При подальшій термообробці відбуваються водночас два процеси. З одного боку, збільшення часу термообробки приводить до зменшення розмірів порожнеч у склі, а з іншого боку – відбувається процес нуклеації PbS у порожнечах. Подальше збільшення часу термообробки приводить з одного

боку до наступного зменшення розмірів порожнеч, а з іншого – до проростання зародків кристалізації PbS і таким чином збільшення розмірів наначастинок PbS. Останій процес зупиняється в той час, коли розміри порожнечи та розміри наночастинки співпадають. Саме ці розміри і визначаються методом малокутового розсіяння нейтронів.

Розділ 5 присвячений дослідженням властивостей дисперсних систем багатокомпонентних люмінофорів, допованих оксидами лютецію і іонами церію. За дисперсну систему обрано люмінофори на основі алюмоітрієвих та алюмолютецієвих гранатів.

З метою визначення змін в структурі алюмоітрієвих та алюмолютецієвих гранатів, які відбуваються внаслідок їх допування оксидами лютецію. За допомогою методу дифракції нейтронів на установці ДН-12, яка розміщена на реакторі ІБР-2 Об'єднаного інституту ядерних досліджень (м. Дубна, Росія) був проведений аналіз кристалографічного оточення багатокомпонентних люмінофорів. Спектри дифракції нейтронів на допованих гранатах $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ і $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ представлені на рис. 9.



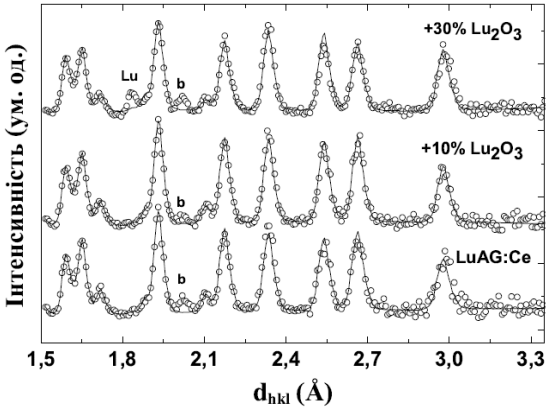


Рис. 9. Нейтронні дифракційні спектри допованих гранатів $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ (праворуч) і $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ (ліворуч) при концентраціях допування 0 мас.%, 10 мас.% і 30 мас.%. Стрілками позначені додаткові рефлекси від утвореної в процесі синтезу кристалічної фази $Y_{3-x}Lu_xAl_5O_{12}:Ce^{3+}$

Аналіз рис. 9 показує, що на нейтронних дифракційних спектрах $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ з максимальним вмістом Lu_2O_3 існує дифракційний максимум d_{hkl} ~ 1,9 Å, який відноситься до найбільш інтенсивного відображення фази Lu_2O_3 з кубічної структурою (просторова група $I2_13$). В спектрах $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ спостерігається поява слабоінтенсивного плеча при дифракційному піку з d_{hkl} ~ 2,0 Å. Це плече, на нашу думку, відповідає найбільш інтенсивному рефлексу сформованої в процесі синтезу фази $(Y_{3-x}Lu_x)Al_5O_{12}$, що утворилась в результаті взаємодії компонентів системи $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$ та Lu_2O_3

З аналізу дифракційних даних були отримані структурні параметри і міжатомні відстані в гранатах $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ і $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2$. На рис. 10 представлені залежності відносних довжин зв'язку Al-O для тетраедричного і октаедричного кисневого оточення алюмінію.

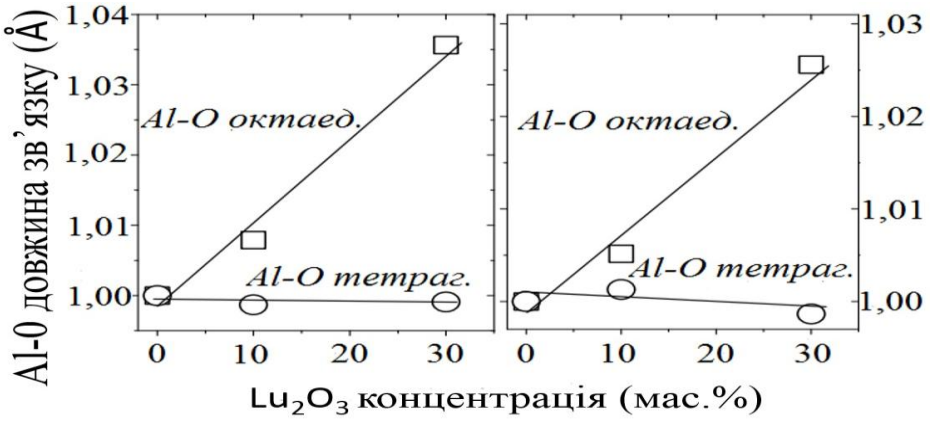


Рис. 10. Залежність відносної зміни довжини зв'язку Al-O в кисневих оточеннях у структурі $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ (праворуч) та структурі $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ (ліворуч) від концентрації Lu_2O_3

Аналіз рис. 10 показує, що при збільшенні концентрації Lu_2O_3, спостерігається помітне зростання довжини зв'язку Al-O в октаедричному кисневому оточенні. Це можна пояснити формуванням стійкої дефектної структури в оксидній підгратці досліджуваних люмінофорів, які були отримані колоїдно-хімічним методом.

При додаванні Lu_2O_3 до $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$ спостерігається незначне зростання міжатомного зв'язку Y-O1 і зменшення зв'язку Y-O2 (див. рис. 11).

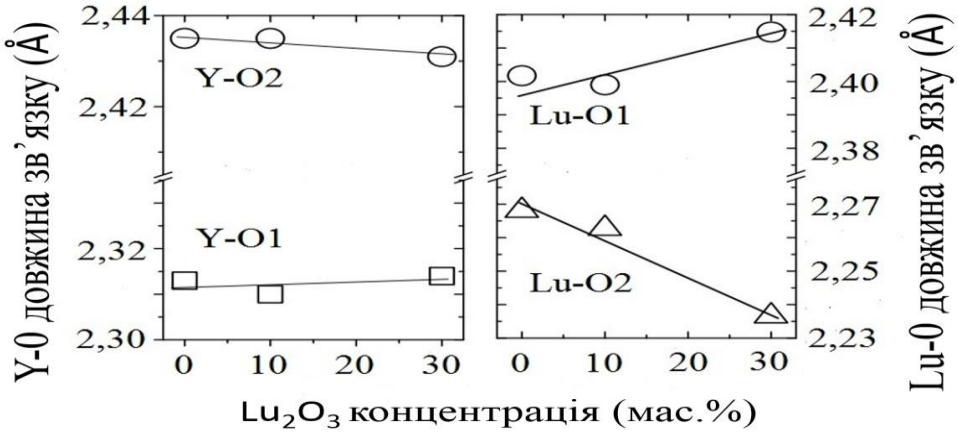


Рис. 11. Залежність довжин зв'язків Y-O1 і Y-O2 в $Y_3Al_5O1_2:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ та Lu-O1 і Lu-O_2 в $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ від концентрації введеного Lu_2O_3

Для $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$ при збільшенні концентрації Lu_2O_3 також спостерігається зростання більшої міжатомної відстані Lu-O1 і зменшення зв'язку Lu-O2. Це вказує на анізотропний характер зміни об’єму кисневого додекаедра навколо атомів Y і Lu. Анізотропний характер зміни кисневого додекаедра навколо Y або Lu повинен призводити до змін кристалографічного оточення оптично-активного іона Ce^{3+} і, відповідно, до перерозподілу інтенсивності люмінесценції.

Наступним класом досліджуваних систем були алюмолютецієві гранати, які доповані іонами церію. Для дослідження кристалічної структури зразків LuAG:Ce в залежності від температури формування

активатора та його концентрації були проведені експеременти по дифракції нейтронів. На рис. 12 представлені спектри дифракції нейтронів на гранатах LuAG:Ce, допованих церієм при їх термообробці при температурах 1000 °C і 1300 °C.

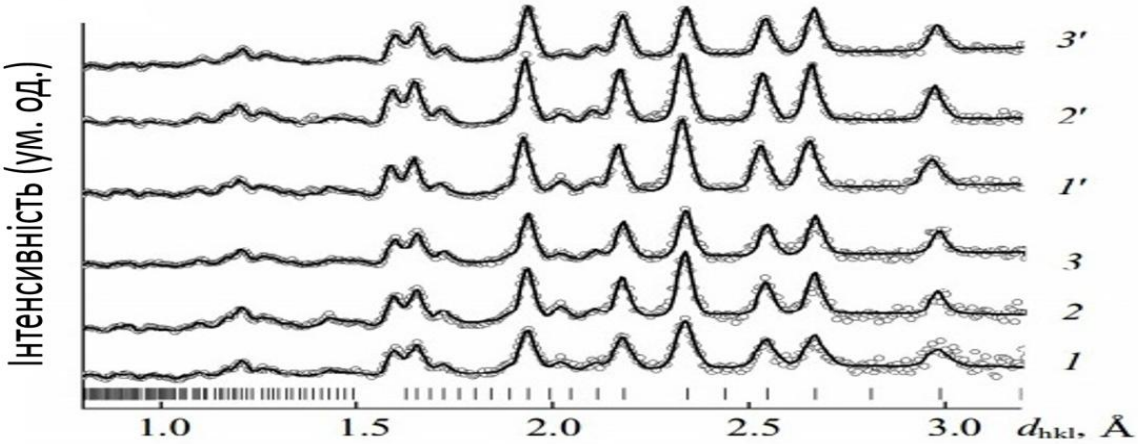


Рис. 12**.** Нейтронні дифракційні спектри гранатів LuAG, допованих іонами церію з масовими концентраціями: 1 – 0.5 %; 2 – 1.0 %; 3 – 5.0 %, які були синтезованих температурах T=1000 °C та T=1300 °C ($1^{/}$, $2^{/}$, $3^{/}$)

У результаті обробки дифракційних даних були визначені параметри елементарної комірки і довжини міжатомних відстаней в досліджуваних зразках. Розшифровка спектрів дифракції нейтронів показала, що процес допування збільшує довжини міжатомних зв'язків в допованих гранатах, що свідчить про наявність в них вищевказаної дефектної структури.

Проведені оптичні дослідження дисперсних систем на основі алюмолютецію, які доповані церієм, підтверджують результати, що були отримані з використанням нейтронної дифракції.

ВИСНОВКИ

Методами малокутового розсіяння нейтронів та рентгенівських променів, нейтронної дифракції, а також шляхом вивчення намагніченості та люмінесценції зразків проведено дослідження впливу допування на процеси наноутворень, зміни структури та властивостей конденсованих середовищ.

Досліджено вплив допування кристалічних алюмінієвих матриць, яке виконувалося шляхом їх опромінення іонами заліза та гелію, на процес утворення нанокластерів в алюмінієвих матрицях та на зміну їх фрактальної розмірності.

1. Методом малокутового розсіяння рентгенівських променів визначено розміри наноутворень заліза в алюмінієвих матрицях, які складають ~ 7 нм. Встановлено, що вказані наноутворення впливають на властивості опромінених алюмінієвих матриць, змінюючи їх фрактальну структуру в інтервалі від 1,94 до 2,43. Показано, що допування алюмінієвих матриць іонами заліза змінює магнітні властивості матриці. Визначено степінь Блоха для опромінених матриць алюмінію.

2. Методом малокутового розсіяння нейтронів знайдено, що при допуванні склянної матриці оксидами церію та титану в ній формуються наноутворення з розміром (33÷38) нм. Показано, що знайдені наноутворення в досліджуваних аморфних матрицях впливають на пропускання та поріг пропускання оптичного спектру. Визначено, що фрактальна розмірність скляних матриць в залежності від умов допування змінюється від 1,79 до 1,28.

3. Досліджена динаміка наноутворень в аморфних матрицях, яка пов'язана з наявністю флуктуацій густини в синтезованих стеклах. Показано, що саме флуктуації густини матеріалу синтезованого скла слугують в майбутньому центрами нуклеації для формування оксидних наноутворень титану і церію. Визначено елементний склад наноутворення «скло-оксиди церію і титану».

4. За допомогою малокутової дифракції нейтронів досліджено формування наночастинок PbS в силікатному склі, яке доповане PbO та S. Визначені розміри наноутворень PbS, які в залежності від умов термообробки змінюються від 3,3 нм до 3,9 нм. Знайдена фрактальна розмірність стекол, яка в процесі термообробки змінюється від (2,3±0,3) до (2,8 ± 0.2), що свідчить про утворення на початку термообробки поверхневих фракталів, а в подальшому – об'ємних фракталів.

5. За допомогою дифракції нейтронів встановлено, що в дисперсних системах алюмоітрієвого та алюмолютецієвого граната після допування їх оксидом лютецію в кисневій підгратці формується дефектна структура, яка підтверджується змінами структурних параметрів цих люмінофорів.

6. Встановлено, що в дисперсному люмінофорі $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ із збільшенням концентрації оксиду лютецію спостерігається значне зростання інтенсивності люмінесценції, в той час як для люмінофора $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ за таких же умов спостерігається зменшення люмінесценції. Така відмінність може бути пояснена перерозподілом іонів церію між фазами, сформованими в процесі синтезу, в яких Ce^{3+} може випромінювати або може знаходиться в невипромінюючому стані.

7. За допомогою дифракції нейтронів визначені зміни структурних параметрів дисперсних систем на основі алюмолютецієвих гранатів, допованих церієм. Спостережувані зміни міжатомних відстаней узгоджуються зі зміною спектрів фотолюмінесценції досліджених гранатів за різних умов їх допування та термообробки.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. Исследование структурных аспектов кластерообразования в силикатных стеклах, допированных оксидами церия и титана, методом малоуглового рассеяния нейтронов / [**С.А. Самойленко**, С.Е. Кичанов, А.В. Белушкин, Д.П. Козленко, В.М. Гарамус, В,С. Гурин, Е.А. Трусова, Г.П. Шевченко, С.К. Рахманов, Л.А. Булавин, Б.Н. Савенко] // ФТТ – 2011. - Т. 53. - № 12 - С. 2308–2311.

2. A study of formation of iron nanoparticles in aluminium matrix with helium pores / [S.E. Kichanov, D.P. Kozlenko, A.V. Belushkin, V.F. Reutov, **S.O. Samoilenko**, Z. Jirák, B.N. Savenko, L.A. Bulavin, Y.V. Zubavichus] //

Journal of Physics: Conference Series. – 2012. – V. 351. – P. 012013 (5).
3. Исследования особенностей структуры оксидных нанокластеров церия и титана в силикатном стекле методом малоуглового рассеяния нейтронов / [С.Е. Кичанов, А.Х. Исламов, **С.А. Самойленко**, Д.П. Козленко, А.В. Белушкин, В.С. Гурин, Г.П. Шевченко, Е.Е. Трусова, Л.А. Булавин, Б.Н. Савенко] // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования – 2014. - № 2. - С. 5–10.
4. Кристалическая структура и оптические свойства $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}$, полученного коллоидно-химическим методом синтеза / [**С.А. Самойленко**, Е.В. Третьяк, Г.П. Шевченко, С.Е. Кичанов, Д.П. Козленко, Г.Е. Малашкевич, А.П. Ступак, Б.Н. Савенко] // Журнал прикладной спектроскопии – 2014.- Т. 81. - № 6. – с. 958-965.
5. Нейтронні та оптичні дослідження багатокомпонентних кристалічних люмінофорів $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ та $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ / [**С.О. Самойленко**, Е.В. Третяк, С.Е. Кічанов, Г.П. Шевченко, Д.П. Козленко, Л.А. Булавін, Г.Е. Малашкевич, Б.Н. Савенко] // УФЖ – 2014.–Т. 59.-№ 9.- с. 902-906.
6. Наноутворення в допованому силікатному склі та його фрактальна розмірність / [Л.А. Булавін, **С.О. Самойленко**, С.Е. Кічанов, Д.П. Козленко, А.І. Іваньков, В.М. Гурін, Г.Є. Рачковська, Г.Б. Захаревич, А.Х. Ісламов, Б.Н. Савенко] // Ядерна фізика та енергетика.- 2015.- № 2. - С. 22 -26.
7. Кичанов С.Е. II Международная конференция, Многомасштабное моделирование структур, строение вещества, наноматериалы и нанотехнологиии [текст] / Д.П. Козленко, Г.П. Шевченко, Е.В. Лукин, Б.Н. Савенко, **С.А. Самойленко** // Структурный аспект формирования оптических свойств в оптически-активных материалах – Тула, -2013.- С. 40.
8. Samoilenko S.O. SANS-YuMO User Meeting [text] / **S.O. Samoilenko**, S.E. Kichanov, A.V. Belushkin, D.P. Kozlenko, V.M. Haramus, G.P. Shevchenko, V.S. Gurin, L.A. Bulavin, B.N. Savenko, E.E. Trusova //. The study of structure aspects of cluster forming in the silicate glasses doped by cerium and titan oxides – Dubna, -2011.- P. 59.
9. Samoilenko S.O. SANS-YuMO User Meeting / **S.O. Samoilenko**, S.E. Kichanov, D.P. Kozlenko, V.F. Reutov, L.A. Bulavin, B.N. Savenko, V.M. Haramus // Studies of the formation of iron nanoparticles encapsulated in an aluminium matrix – Dubna,-2011.- P. 77.
10. Самойленко С.А. РСНЭ-НБИК-2011 РНЦ «Курчатовский Институт» [текст] / **С.А. Самойленко**, С.Е. Кичанов, А.В. Белушкин, Д.П. Козленко, Б.Н. Савенко, Л.А. Булавин, В.М. Гарамус, Г.П. Шевченко, В.С. Гурин // Исследования структурных аспектов кластерообразования в силикатных стеклах при допировании оксидами церия и титана. – Москва, -2011.- С. 205.
11. Samoilenko S.O. International Conference "Condensed Matter Research at the IBR-2" [text] / **S.O. Samoilenko**, S.E. Kichanov, D.P. Kozlenko, B.N. Savenko // Neutron and optical investigations of multi-component crystalline $Y_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ and $Lu_3Al_5O_{12}:Ce^{3+}/Lu_2O_3$ luminophors – Dubna, – 2014.- P. 26.
12. Самойленко С.А. РНСИ-КС–2014 [текст] / **С.А. Самойленко**,

С.Е. Кичанов, Д.П. Козленко, Б.Н. Савенко, Л.А. Булавин // Исследование силикатных стекл, допированных оксидами церия и титана с помощью метода малоуглового рассеяния нейтронов - Санкт-Петербург,- 2014.-С. 217.

13. Самойленко С.А. XLVI Школа ФГБУ «ПИЯФ» по физике конденсированного состояния [текст] / **С.А. Самойленко**, С.Е. Кичанов, А.В. Белушкин, Д.П. Козленко, Б.Н. Савенко, Л.А. Булавин, В.М. Гарамус, Г.П. Шевченко, В.С. Гурин // Исследование структурных аспектов кластерообразования в силикатных стеклах при допировании оксидами церия и титана - Санкт-Петербург,- 2012.- С. 117.

14. Самойленко С.А. XLVII Школа ФГБУ «ПИЯФ» по физике конденсированного состояния / **С.А. Самойленко**, С.Е. Кичанов, Д.П. Козленко, Б.Н. Савенко, Г.П. Шевченко, В.С. Гурин, В.С. Гарамус, Л.А. Булавин // Исследование силикатных стекол, допированных оксидами церия и титана с помощью метода малоуглового рассеяния нейтронов - Санкт-Петербург.- 2013.- С. 128.

15. Самойленко С.А. XLVIII Школа ПИЯФ по физикеконденсированного состояния [текст] / **С.А. Самойленко**, С.Е. Кичанов, А.Х. Исламов, Д.П. Козленко, А.В. Белушкин, В.С. Гурин, Г.П. Шевченко, Е.Е. Трусова, Л.А. Булавин, Б.Н. Савенко // Исследование особенностей структуры оксидных нанокластеров церия и титана в силикатном стекле методом малоуглового рассеяния нейтронов - Санкт-Петербург,- 2014.- С. 70.

16. Самойленко С.А. XXII Международное совещание и Международная молодежная конференция «Использование рассеяния нейтронов в исследованиях конденсированного состояния» [текст] / **С.А. Самойленко**, С.Е. Кичанов, А.В. Белушкин, Д.П. Козленко, Б.Н. Савенко, Л.А. Булавин, В.М. Гарамус, Г.П. Шевченко, В.С. Гурин // Кластерообразование в силикатных стеклах, допированных оксидами церия и титана – Санкт-Петербург, - 2012.- С. 79.

АНОТАЦІЯ

Самойленко С.О. **Вплив допування на процес наноутворення, зміни структури та властивостей конденсованих середовищ**. – Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико–математичних наук за спеціальністю 01.04.14 – теплофізика і молекулярна фізика – Київський національний університет імені Тараса Шевченка, Київ, 2015.

Дисертація присвячена дослідженню наноутворень та зміни структури допованих конденсованих середовищ методами нейтронної дифракції, малокутового розсіяння нейтронів та рентгенівських променів. Увага приділяється дослідженню наноутворень у кристалічних матрицях, опромінених іонами гелію та заліза, наноутворень в досліджених аморфних матрицях, допованих оксидами церію, титану і свинцю, а також зміні структури дисперсних систем, які доповані оксидами лютецію і іонами

церію та дослідженню змін фізичних властивостей конденсованих середовищ, що відбулися внаслідок їх допування.

За допомогою малокутового розсіяння рентгенівських променів та нейтронів досліджено процеси формування наноутворень у кристалічних та аморфних матрицях, а також проаналізовано зміну фрактальної розмірності матриць. На основі даних малокутового розсіяння нейтронів визначено середнє значення елементного складу наноутворення. З експериментів по нейтронній дифракції знайдені зміни структурних параметрів дисперсних систем на основі алюмолютецієвих і алюмоітрієвих гранатів, допованих оксидами лютецію та іонами церію.

Ключові слова: наноутворення, фрактальна розмірність, малокутове розсіяння нейтронів, люмінесценція.

АННОТАЦИЯ

Самойленко С. А. ***Влияние допирования на процесс нанообразования, изменение структуры и свойств конденсированных сред. –*** *Рукопись.*

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико–математических наук по специальности 01.04.14 – теплофизика и молекулярная физика – Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко, Киев, 2015.

Диссертация посвящена исследованию нанообразований и изменения структуры допированных конденсированных сред методами нейтронной дифракции, малоуглового рассеяния нейтронов и рентгеновских лучей. Внимание уделяется исследованию нанообразований в кристаллических матрицах, облученных ионами гелия и железа, в аморфных матрицах, допированных оксидами церия, титана и свинца и изменении структуры дисперсных систем допированных оксидами лютеция и ионами церия, а также исследованию изменений физических свойств конденсированных сред, произошедшие вследствие облучения или допирования.

Эксперименты малоуглового рассеяния рентгеновских лучей на облученных алюминиевых матрицах проводились на станции «Структурное материаловедение» в Курчатовском центре синхротронного излучения и нанотехнологий, г. Москва, Россия. Были найдены нанообразования железа в алюминиевых матрицах, а также определено, что фрактальная размерность алюминиевых матриц в зависимости от условий облучения изменяется. Показано, что указанные нанообразования влияют на свойства облученных алюминиевых матриц.

Проведены эксперименты малоуглового рассеяния нейтронов на допированных силикатных стеклах проводились на спектрометре малоуглового рассеяния ЮМО реактора ИБР-2 Объединенного института ядерных исследований, г.Дубна, Россия, а также на установке SANS-1, расположенной на стационарном реакторе FRG-1 Исследовательского центра GKSS, г. Гиштахт, Германия. Были найдены нанообразования в

допированных стеклянных матрицах, а также изменение фрактальной размерности матриц в зависимости от ее допирования оксидами церия и титана. Показано, что указанные нанообразования влияют на оптические свойства допированных стеклянных матриц.

Эксперименты по дифракции нейтронов на многокомпонентных люминофорах, допированных оксидами лютеция и ионами церия проводились на установке ДН-12, которая размещена на реакторе ИБР-2 Объединенного института ядерных исследований, г. Дубна, Россия. Были определенные изменения структурных параметров дисперсных систем на основе алюмолютециевих гранатов, допированных церием.

Наблюдаемые изменения структурных параметров исследуемых образцов, таких, как параметр решетки, длины связей Al–O для кислородного октаэдра, Lu–O в додекаэдрическом искаженном кислородном окружении, обусловлены особенностями синтеза и указывают на формирование значительного количества дефектов, наиболее вероятными из которых являются кислородные вакансии и антиструктурные дефекты [$Lu^{3+}Al$].

Ключевые слова: нанообразования, фрактальная размерность, малоугловое рассеяние нейтронов, люминесценция.

SUMMARY

Samoilenko S.O. **Influence of doping on nanoformation process, structure and properties change of condensed media.** – Manuscript.

Thesis for Doctor of Philosophy degree (Candidate of science in Physics and Mathematics) by speciality 01.04.14 – thermal physics and molecular physics – Taras Shevchenko National University of Kyiv, Kyiv, 2015.

The Disseration is devoted to the investigation of nanoformation and change of the structure of doped condensed media by neutron diffraction, small-angle neutron scattering and X-ray method. The attention is paid to the investigation of nanoformation in crystalline matrices irradiated by helium and iron ions; nanoformation in amorphous matrices doped with cerium, titanium and plumbum oxides; and to the change of the structure of disperse systems doped with lutetium oxides and cerium ions as well as to investigation of the change of physical properties of condensed media that was caused by their doping.

By means of small-angle X-ray and neutron scattering the nanoformation processes in crystalline and amorphous matrices were investigated, and the change of fractal dimension of the matrices was analyzed. On the basis of the small-angle neutron scattering data the average value of nanoformation elementary composition was determined. From the neutron diffraction experiments the change of structural parameters of disperse systems based on lutetium-aluminum and yttrium-aluminum garnets, doped with lutetium oxides and cerium ions, was determined.

Keywords: nanostructures, fractal dimension, small-angle neutron scattering, luminescence.