

## ОПЫТ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ЗАПОМИНАЮЩИХ ЭКРАНОВ НА ОСНОВЕ ВаFBr(Eu<sup>2+</sup>) ДЛЯ ДИФРАКЦИОННОГО ЭКСПЕРИМЕНТА.

А.И.Анчаров<sup>1)</sup>, Б.Я.Пирогов<sup>1)</sup>, Б.П.Толочко<sup>1)</sup>,  
В.И.Кондратьев<sup>2)</sup>, М.В.Кузин<sup>2)</sup>, М.А.Шеромов<sup>2)</sup>  
Д.Б.Изергин<sup>3)</sup>.

<sup>1)</sup> Институт химии твёрдого тела СО РАН, Новосибирск

<sup>2)</sup> Институт ядерной физики им.Г.М.Будкера, Новосибирск

<sup>3)</sup> Челябинский государственный университет, Челябинск

В настоящее время в дифракционном эксперименте во всех ведущих центрах синхротронного излучения для регистрации синхротронного излучения (СИ) используют запоминающие экраны (ЗЭ) на основе люминофора ВаFBr(Eu<sup>2+</sup>) с эффектом фотостимулированной люминесценции. Этот способ регистрации СИ отличает: высокая квантовая эффективность и пространственное разрешение, большой динамический диапазон и большое поле регистрации.

В данной работе рассматриваются проблемы, возникающие при считывании информации с ЗЭ и последующей её обработке. Для люминофорных экранов, изготовленных по традиционной технологии, пространственное разрешение получаемых изображений ограничено, как размером зерен люминофора (структурный шум), так и рассеянием света люминесценции вдоль слоя люминофора. Попытка получить пространственное разрешение, превышающее толщину этого слоя приведена в другом докладе, представленном здесь же [1].

Другой комплекс проблем возникает при попытке получения цифрового сигнала стимулированной люминесценции с динамическим диапазоном, соответствующи диапазону линейности люминофора (более пяти десятичных порядков). Для построения сквозного оптико-электронного тракта регистрации, усиления и оцифровки сигнала с таким динамическим диапазоном использовались: зеркальный параболический светосборник, ФЭУ-130, прецизионные операционные усилители-интеграторы и АЦП с длиной слова данных 20 двоичных разрядов. Также показано, что для получения сигналов в указанном диапазоне в качестве источника стимулирующего излучения необходимо использовать лазерный диод со стабильностью

мощности излучения не хуже 0.001% либо, при использовании газового He-Ne лазера, вводить мониторинг канал для измерения мощности его излучения синхронно с измерением полезного сигнала. При дальнейшей обработке полезного сигнала данные о флюктуации мощности излучения лазера используются для коррекции этого сигнала.

Другая коррекция сигнала фотостимулированной люминесценции связана с наличием структурного шума ЗЭ, обусловленного зернистостью люминофорного слоя и флюктуациями его квантовой эффективности регистрации. Для реализации этой коррекции, в дальнейшем, предполагается дополнить устройство считывания ЗЭ механизмом точного (не хуже 5 микрон) позиционирования ЗЭ.

Часто требуется определить структуру вещества, когда количество образца измеряется микрограммами. При использовании традиционных дифрактометров проведение дифракционных исследований может растянуться на многие часы. При этом большая часть пиков может оказаться неотличимой от фона.

Для проведения фазового анализа и уточнения параметров ячейки микроколичеств образца было решено воспользоваться запоминающими экранами, как заменителями рентгеновской пленки. Наиболее подходящей для этой цели является методика съемки по Дебаю-Шерреру. Использовалась рентгеновская универсальная камера РКУ-114М. Номинальный расчетный диаметр камеры равен 114,59 мм. Камера была установлена на канале 2-а синхротронного излучения накопителя ВЭПП-3.

Синхротронное излучение из накопителя монохроматизировалось двойным кремниевым кристаллом-монохроматором. Длина волны используемого излучения была равна 1.5391 А.

Мелкозернистый порошок исследуемого вещества наклеивался на тонкую стеклянную нить (20 мкм) раствором канифоли в спирте. Диаметр образца не превышал 100 мкм, а его длина 500 мкм. Во время съемки осуществлялось вращение образца для увеличения числа рефлексов. Среднее время экспозиции составляло 60 мин. Для проведения тестовых экспериментов в качестве образца был использован порошок кварца. После экспозиции

производилось считывание информации с запоминающего экрана и запись ее в текстовый файл.



Рис.1 Рентгенограмма порошка кварца,полученная в ходе данного эксперимента.

Следующим этапом обработки является процесс определения горизонтальной и вертикальной осей симметрии рентгенограммы, для установления принадлежности каждой её точки соответствующему углу дифракции. То есть, преобразование координат на плоском изображении рентгенограммы в сферические координаты, связанные с центром рассеяния.

После суммирования интенсивностей, принадлежащих одному и тому же углу дифракции, и деления на длину дуги получается приведенная интенсивность для данного угла дифракции. Исходная рентгенограмма, полученная считыванием информации с запоминающего экрана, представлена на рис. 1.

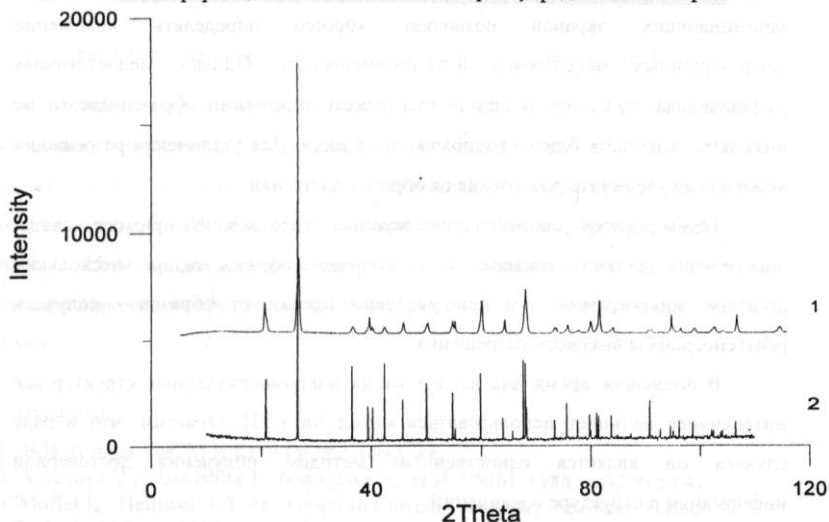


Рис.2 Дифракционные картины, полученные от кварцевого порошка: 1- полученная с использованием запоминающих экранов, 2 - полученная с использованием дифрактометра.

Этот же образец, для сравнения, снимался на дифрактометре. Образец набивался в стандартную кювету. Съемка осуществлялась на том же канале СИ. Использовался пучок с размерами 10\*1 мм. Съемка производилась в пошаговом

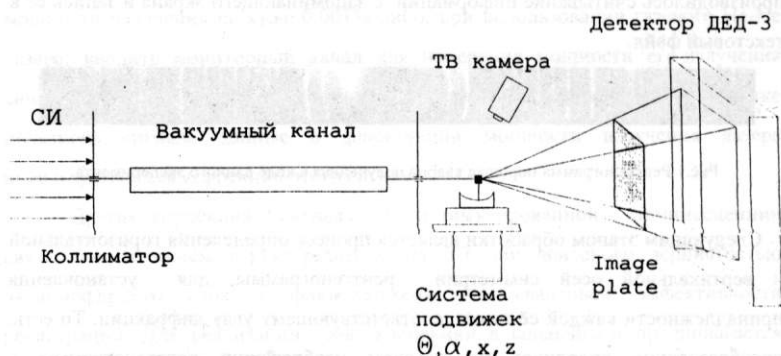


Рис.3 Схема эксперимента по методу Лауэ с использованием «Image Plate» и 2-х координатного детектора ДЕД-3.

режиме. Шаг сканирования 0.05 , время экспозиции на точке 3 сек. Результаты представлены на рис.2.

Из сравнения двух дифрактограмм видно, что использование запоминающих экранов позволяет хорошо определять положение дифракционных максимумов и их интенсивность. Однако, недостаточная разрешающая способность при используемом расстоянии образец-пленка не позволяет разрешать близко расположенные пики. Для увеличения разрешения необходимо увеличить расстояние от образца до пленки.

Таким образом ,запоминающие экраны с успехом могут применяться для определения фазового состава микроколичеств образца (около нескольких десятков микрограмма), а при удалении пленки от образца - получить рентгенограммы высокого разрешения.

В последнее время для исследования макромолекулярных структур все интенсивнее начинает использоваться метод Лауэ [3]. Отметим, что в ряде случаев он является единственным методом получения достоверной информации о структуре соединений.

В проводимых исследованиях отработывался новый компьютерный метод определения симметрии решетки неизвестной структуры в методе Лауэ. Его особенностью является минимальное число требуемых снимков (в идеале - один). В нем используется насыщенность дифракционной картины, характерная

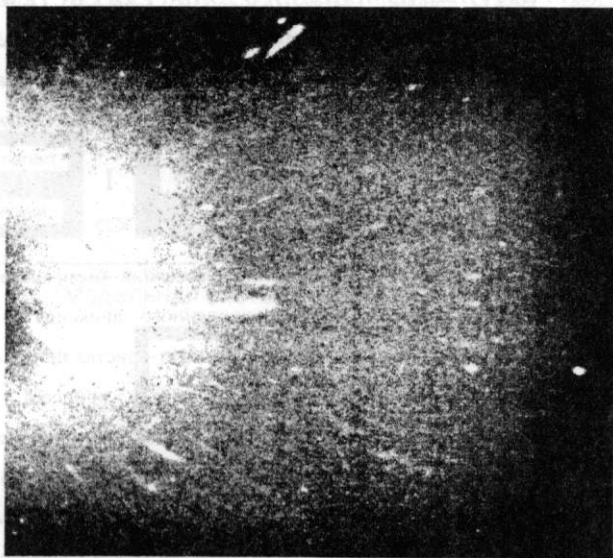


Рис.4. Часть Лауэграммы  $BaSO_4$  полученная с использованием «Image Plate»

для снимков полученных в пучках СИ, и высокая точность определения координат рефлексов, достигаемая с помощью "Image Plate". Съемка производилась "на просвет". Схема эксперимента показана на рис.3. Расстояние образец - ДЕД-3 : 247 мм, образец - Image Plate : 67 мм. Диаметр первичной щели : 25 мкм, диаметр рабочей поверхности кассеты 120 мм. Точность позиционирования образца : по  $\alpha$  :  $0.001^0$ , по  $\theta$  :  $0.001^0$ , по  $x$  - 1 мкм, по  $z$  - 1 мкм.

#### Литература

1. В.И.Кондратьев, М.В.Кузин и др. Здесь же.
2. Amemiya Y., Matsushita T., Nakagawa A., et al. //NIM. 1988. v.A266 p.645.
3. Moffat K., Helliwell J.R. /in: Topics in Current Chemistry. Springer-Verlag Berlin Heideberg. 1989. p.61.

# ИССЛЕДОВАНИЕ РЕЛАКСАЦИИ ЭЛЕКТРОННЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ В ШИРОКОЗОННЫХ ДИЭЛЕКТРИКАХ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ И ЭЛЕКТРОННЫХ ПУЧКОВ

В. А. Пустоваров<sup>1)</sup>, Э. И. Зинин<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Уральский государственный технический университет - УПИ, Екатеринбург

<sup>2)</sup> Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН, Новосибирск

Наличие импульсной структуры синхротронного излучения (СИ), его стабильность, широкий спектр, линейная поляризация, варьирование плотности в широких пределах в сочетании с быстродействующей системой электронной регистрации позволяют эффективно использовать его для исследования быстропротекающих процессов излучательной релаксации электронных возбуждений (ЭВ) в твердых телах <sup>1/</sup>.

Методом люминесцентной спектроскопии с наносекундным временным разрешением в работе исследованы процессы быстрой излучательной релаксации ЭВ в широкозонных диэлектриках (преимущественно сцинтилляционных неорганических материалах) при возбуждении их импульсами синхротронного излучения (СИ) рентгеновского диапазона накопителя ВЭПП-3 ИЯФ СО РАН и импульсами ускорителей электронов типа РАДАН-220, ГИН-600. Особое внимание уделено изучению зависимости характеристик люминесценции от плотности возбуждения. Параметры импульсов СИ: гауссова форма ( $\sigma=430$  пс), энергия фотонов 4-60 кэВ, частота следования 4 МГц, плотность СИ на образце до  $8 \cdot 10^{16}$  фотонов/с см<sup>2</sup>, что на 4-6 порядков выше, чем плотность возбуждения при использовании рентгеновских трубок <sup>2/</sup>. Концентрация электронно-дырочных пар (ЭДП) в поглощающем слое при максимальной плотности СИ составляла  $n=10^{16}$  ЭДП/см<sup>3</sup>\*имп. Для регистрации стационарных и с временным разрешением спектров и кинетики люминесценции ( $10^{-10}$  -  $10^{-6}$  с) применялся стробоскопический метод электронно-оптической хронографии с пикосекундным временным разрешением <sup>2/</sup>. Параметры кинетики затухания люминесценции определялись методом расчета свертки. Предельное временное разрешение установки не хуже 100 пс и ограничивается длительностью импульса СИ.

Параметры электронных пучков:  $\tau=2-5$  нс, средняя энергия  $E_{cp}=200-250$  кэВ, плотность тока  $J_{max}=10^3$  А/см<sup>2</sup>\*имп., импульсы одиночные или с частотой следования 1-10 Гц, концентрация создаваемых носителей  $n=10^{18}$  ЭДП/см<sup>3</sup> имп.

Исследованы радиационно-стойкие кристаллы на основе бинарных и сложных оксидов ( $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ,  $\text{Bi}_2\text{Ge}_3\text{O}_9$ ,  $\text{Bi}_2\text{Ga}_4\text{O}_9$ ,  $\text{Bi}_2\text{Ge}_4\text{O}_9$ ,  $\text{AWO}_4$  ( $A=\text{Ca}, \text{Cd}, \text{Zn}$ ),  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{BeO}$ ,  $\text{LiB}_3\text{O}_5$ ,  $\text{R}_2\text{SiO}_5\text{-Ce}$  ( $\text{R}=\text{Y}, \text{Gd}, \text{Lu}, \text{Sc}$ ),  $\text{YAlO}_3\text{-Ce}$ ,  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}\text{-Ce}$ ,  $\text{La}_2\text{Be}_2\text{O}_5\text{-Ce}$ ), фторидов щелочно-земельных металлов как чистых, так и легированных РЗ-ионами, а также кристаллов  $\text{CeF}_3$ , некоторых радиационно-стойких ЦГК ( $\text{NaI}$ , промышленных сцинтилляторов  $\text{NaI-Tl}$ ,  $\text{CsI-Tl}$ ), а также неупорядоченные системы, в частности, бериллиево-фосфатные стекла.

Достижение больших токов накопителя (до 200 мА), позволило получить новые эффекты, связанные именно с высокой плотностью возбуждения, см.<sup>[3,6]</sup> Для всех исследуемых кристаллов (за исключением  $\text{BeO}$ ) при превышении определенного уровня плотности возбуждения СИ, индивидуального для каждого материала, наблюдается резкое сокращение времени затухания и уменьшение амплитуды импульса люминесценции. Время затухания собственной люминесценции сокращается в 10-500 раз. Спектр излучения при этом определяется спектром быстрой компоненты, а выход свечения практически не зависит от температуры в исследованной области 80-450К.

Следует отметить типичные особенности в наблюдаемых плотностях эффектах (ПЭ) при СИ-возбуждении. 1. Зависимость от условий облучения: образец находится в условия вакуума или атмосфере воздуха (аргона). Откачка газа резко уменьшает квантовый выход люминесценции. 2. Зависимость от подготовки образца: ПЭ наиболее ярко проявляются на монокристаллах в виде полированных пластинок нежели на порошках разной степени дисперсности или керамике. 3. В процессе облучения СИ наблюдается уменьшение квантового выхода собственной люминесценции, связанное с сокращением времени затухания, но не с образованием и накоплением радиационных СИ-индуцированных дефектов. Наряду с этим в легированных кристаллах наблюдается рост квантового выхода примесного свечения, отражающий процессы передачи энергии примесному центру. 4. В процессе облучения СИ для многих кристаллов наблюдается растрескивание.

Для сцинтилляционных кристаллов, легированных  $\text{Ce}^{3+}$  ионами, ПЭ менее выражены и проявляются в уменьшении выхода люминесценции на порядок, сокращении времени затухания в 2-4 раза, исчезновении стадии разгорания в кинетике люминесценции (подробные параметры приведены в<sup>[3,5]</sup>). Спектр люминесценции определяется  $5d\text{---}4f$  переходами в ионе  $\text{Ce}^{3+}$ , с ростом плотности возбуждения увеличивается веро-

ятность длинноволновых  ${}^2D_{3/2} \rightarrow {}^2F_{7/2}$  переходов, что связано с образованием в процессе облучения СИ  $Ce^{4+}$ -ионов: которые реабсорбируют и сенсбилизируют свечение  $Ce^{3+}$  центров.

Анализ возможных механизмов ПЭ при возбуждении СИ с учетом результатов, полученных исследованиями передачи энергии между РЗ-ионами и Vi-содержащих систем, показал, что большинство ПЭ обусловлено безызлучательной передачей энергии с возбужденных состояний центров свечения или центрам внешнего тушения (в большинстве случаев), или примесным центрам<sup>(3-5)</sup>. Специфика СИ-возбуждения такова, что частота импульсов высока (относительно времени жизни возбужденного состояния) и возбужденное состояние центра не успевает релаксировать за время между импульсами СИ. Со временем облучения СИ максимум плотности состояний смещается на верхние возбужденные состояния, вероятность безызлучательной передачи энергии с которых значительно (на несколько порядков) выше, и наблюдаемая люминесценция будет характеризоваться быстрым временем затухания. Поскольку свечение определяется переходами с верхнего возбужденного состояния, его интенсивность и время затухания в установившемся режиме от температуры не зависят.

Количественные характеристики переноса энергии определены нами для кристаллов  $Y_2SiO_5$ -Ce,Tb. В работе<sup>(12)</sup> показано: что в этих кристаллах наблюдается эффективная безызлучательная передача энергии от ионов  $Ce^{3+}$  к ионам  $Tb^{3+}$  по индуктивно-резонансному механизму. Используя это, по формуле

$$K_t = (1/\tau - 1/\tau_0) / C_a, \quad (1)$$

где  $\tau$  и  $\tau_0$  - время затухания люминесценции  $Ce^{3+}$  при наличии и отсутствии акцептора,  $C_a$  - концентрация акцептора (моль.%), была определена абсолютная константа скорости переноса  $K_t$ . Так для  $Y_2SiO_5$ -Ce (0,1%)+Tb(3%) при  $T=300K$   $K_t = 4,8 \cdot 10^8$  моль $^{-1}$  с $^{-1}$ . Расчет вероятности переноса энергии Ce--- Tb, основанный на измерении уменьшения амплитуды импульса люминесценции ( $I_0/I$ ) в полосе свечения  $Ce^{3+}$ -центров при введении активатора (Tb) проведен по формуле:

$$W_0 = \frac{1}{\tau_0} \left( \frac{I_0}{I} - 1 \right). \quad (2)$$

При 300K получена величина  $W_0 = 5 \cdot 10^7$  с $^{-1}$ , которая наряду с большим значением  $K_t$  отражает высокую эффективность переноса энергии Ce --- Tb даже при низкой плотности СИ-возбуждения.



Параметры  $K_i$  и  $W_0$  существенно зависят от плотности СИ-возбуждения. Так при увеличении тока накопителя на порядок ( $i=180^{\text{мкА}}$ ) время затухания люминесценции  $\text{Ce}^{3+}$ -центров сокращается до 1,9 нс, чему соответствует  $K_i=1,7 \cdot 10^{10}$  моль $^{-1}$  с $^{-1}$ . Расчет вероятности переноса  $W_0$  от  $\text{Ce}^{3+}$ -ионов к центрам тушения при высокой плотности СИ-возбуждения для  $\text{Y}_2\text{SiO}_5\text{-Ce}(0,1\%)$  при 300К,  $i=76$  мА дает значение  $W_0=1,1 \cdot 10^8$  с $^{-1}$ , которое и далее увеличивается с ростом плотности СИ.

Зависимость некоторых ПЭ от условий облучения СИ, полная аналогия этих зависимостей с эффектами, возникающими при облучении кристаллов электронными пучками <sup>7,8/</sup> позволяют предполагать их связь с проявлением еще одного механизма формирования объемного СИ-индуцированного электрического заряда. Выход носителей на поверхность с последующей безызлучательной аннигиляцией за счет дрейфа в поле радиационно-индуцированного заряда конкурирует с их рекомбинацией. Это приводит к формированию обедненного носителями "мертвого" слоя и тушению объемной рекомбинационной люминесценции. Как и при электронном облучении диэлектриков <sup>7,8/</sup> с этой точки зрения находит объяснение зависимость выхода СИ-люминесценции от напуска-откачки газа: адсорбция газа приводит к изменению эффективности стока носителей к поверхности, снятию электрического заряда, восстановлению "мертвого" слоя. Однако прямого экспериментального подтверждения этот механизм пока не получил.

Экспериментально установлена некоторая корреляция параметров излучательной релаксации ЭВ при возбуждении диэлектриков СИ и одиночными импульсами электронов различной плотности. Импульсная катодолуминесценция (ИКЛ) при высокой плотности возбуждения характеризуется следующим.

1. В спектрах ИКЛ при достигнутом уровне возбуждения новых полос не наблюдается и проявлений коллективизации ЭВ экспериментально не обнаружено.

2. В спектрах ИКЛ с ростом плотности возбуждения также, как и при СИ-возбуждении наблюдается неоднородное уширение спектров с коротковолновым смещением максимума (кристаллы ВГО, сложные оксиды).

3. Выход ИКЛ зависит от плотности возбуждения. Вид этой зависимости индивидуален для каждого конкретного материала (см. также <sup>9-11/</sup>). Одна из причин этого - образование при электронном облучении френкелевских радиационных дефектов, возникающих либо по механизму ударного смещения (некоторые оксиды), либо в результате распада ЭВ в ходе колебательной релаксации (ЩГК).

4. Время затухания ИКЛ сокращается с ростом плотности (например, для ВГО в 1,5 раза при  $j=j_{\max}$ ). Кинетика ИКЛ при высокой плотности может иметь явно неэкспоненциальный характер, особенно в начальной стадии. Это связано с реабсорбцией люминесценции образующимися в процессе электронного облучения короткоживущими ( $10^{-9}$  -  $10^{-5}$  с) оптически активными центрами. Такие центры проявляются в спектрах транзитного поглощения <sup>7,11</sup>.

5. Верхний предел плотности электронного пучка лимитируется электрическим пробоем и хрупким разрушением образцов.

Работа выполнена при поддержке РФФИ и Госкомвуза (гранты 1996 г.).

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Синхротронное излучение. Свойства и применения: Пер. с англ. / Под ред. К.Кунца. М., Мир. 1981.
2. Зинин Э.И., Пустоваров В.А., Рогалев А.Л. //Тез. докл. VIII Всес. конф. по физике вакуумного ультрафиолета и его взаимодействию с веществом. Иркутск, 1989. С.282-283.
3. Пустоваров В.А., Шульгин Б.В., Зинин Э.И., Кузнецов А.Ю. // Известия ВУЗов. Физика. 1996. Т11. С.120-135.
4. Пустоваров В.А., Зинин Э.И., Рогалев А.Л. и др. // Изв. АН Латв. ССР. Сер. физ. и техн. наук. 1990, N5. С. 54-59.
5. Pustovarov V.A., Krymov A.L., Zinin E.I. // Rev. Sc. Instr. 1992. Vol.63, N4. P. 3521-3523.
6. Пустоваров В.А., Зинин Э.И., Рогалев А.Л. и др. //ЖПС. 1991.Т.54, N6. С. 976-980.
7. Алукер Э.Д., Гаврилов В.В., Дейч Р.Г., Чернов С.А. Быстропротекающие радиационно-стимулированные процессы в щелочно-галоидных кристаллах. Рига: Зинатне, 1987. -184 с.
8. Воробьев А.А., Лисицин В.М., Селезнев В.В. //Изв. ВУЗов. Физика. 1976. N4. С.137.
9. Eby F.S., Jentschke W.K. // Phys. Rev. 1954. Vol.96, N4. P.911-920.
10. Murray R.B., Meyer A. // Phys. Rev. 1961. Vol.122, N3. P.815-826.
11. Кравченко В.А., Яковлев В.Ю. // ФТТ. 1988. Т. 30, N3. С.706-710.
12. Pustovarov V.A., Shulgin B.V., Smirnov S.A. and Zinin E.I. // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., A, 1997 (in press).

## КИНЕТИКА УФ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ КОРУНДА ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ СИНХРОТРОННЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ

А.И.Сюрдо<sup>1)</sup>, В.С.Кортов<sup>1)</sup>, В.А.Пустоваров<sup>1)</sup>, Ф.Ф.Шарафутдинов<sup>1)</sup>, Э.И.Зинин<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Уральский государственный технический университет, Екатеринбург

<sup>2)</sup> Институт ядерной физики СО РАН, Новосибирск

При использовании синхротронного излучения изучена быстрая излучательная релаксация электронных возбуждений в номинально чистых, анионодефектных и облученных быстрыми электронами и нейтронами кристаллах корунда. Обнаружен при 80К сложный характер кинетики свечения в полосе 3.8 эВ (FWHM=0.36 эВ). Непосредственно после импульса возбуждения ( $\tau_{11}=0.43$  нс) наблюдаются три стадии: быстрое затухание с постоянной  $\tau_1 \approx 3$  нс, разгорание ( $\tau_2 \approx 20$  нс) и затухание ( $\tau_3 \approx 200$  нс). Предполагается, что в области 3.8 эВ излучают не менее 4 типов дефектов: автолокализованные экситоны,  $F^{+}$ -,  $Al^{+}$  - и неидентифицированные центры.

Уникальные возможности, которые предоставляет синхротронное излучение (СИ) с его рекордно высокой интенсивностью и малой длительностью импульса, позволяют исследовать центры свечения, имеющие близкие спектральные и кинетические характеристики. Особый интерес вызывает изучение быстропотекающих процессов накопления, передачи и релаксации энергии возбуждения в активных центрах корунда из-за его широкого применения в термолюминесцентной дозиметрии ионизирующих излучений и лазерной технике. Целью данной работы явилось исследование электронных возбуждений, их миграции и релаксации в номинально чистых, анионодефектных и облученных быстрыми электронами и нейтронами кристаллах корунда с привлечением методов люминесцентной спектроскопии с временным разрешением.

### Объекты исследования и методика эксперимента.

В работе исследовались номинально чистые монокристаллы корунда ( $\alpha$ - $Al_2O_3$ ), выращенные методом Вернейля и направленной кристаллизации. Часть образцов термообработывалась в сильно восстановительной среде в присутствии углерода и в парах алюминия для создания анионной нестехиометрии. Концентрация  $F^{+}$  - и  $F$ - центров (анионные вакансии с одним и двумя электронами, соответственно) составляла  $10^{17}$  -  $10^{18}$  см<sup>-3</sup>. Для генерации радиационных дефектов ис-

пользовались нейтроны реактора ( $10^{17}$  нейтр/см<sup>2</sup>) и быстрые электроны микротро- на М-20 ( $E=16$ МэВ,  $\Phi_e=10^{17}-6*10^{18}$  эл/см<sup>2</sup>).

Исследование кинетики рентгенолюминесценции, ее стационарных и с временным разрешением спектров проводилось на станции люминесцентной спек- троскопии с субнаносекундным разрешением на канале СИ накопителя ВЭПП-3 Института ядерной физики СО РАН<sup>1/</sup>. Возбуждающий импульс СИ имел следую- щие параметры: гауссова форма ( $\tau_{II} = 0,43$ нс), энергия фотонов 3- 62 кэВ, частота следования 4МГц.

### Основные результаты и обсуждение

Высокая интенсивность СИ позволяет наблюдать в спектрах люминесцен- ции даже очень слабые полосы. Нами обнаружено, что независимо от примесного состава и метода выращивания в спектрах стационарной рентгенолюминесценции (РЛ) анонодефектных и номинально чистых кристаллов регистрируется полоса с максимумом при 290 нм (4,3 эВ) с полушириной FWHM = 0,9 эВ. Это свечение сильно перекрывается с люминесценцией при 325 нм и имеет отличную от нее ки- нетику затухания. При T=300К имеется две постоянные:  $\tau_1 = 2,3$ нс и  $\tau_2 = 289$ нс, тогда как для свечения с максимумом при 325 нм (3,8 эВ) анонодефектных образцов кривая затухания хорошо описывается одной экспонентой. Уменьшение темпера- туры до 80К приводит к значительному увеличению времени затухания ( $\tau > 800$ нс) РЛ при 290 нм и исчезновению быстрой составляющей. Наличие короткой компо- ненты затухания ( $\tau_1 = 2,3$ нс) и особенности температурной зависимости могут явиться достаточно веским основанием, чтобы приписать свечение при 290 нм из- лучению экситоноподобных образований или связать его с туннельной рекомби- нацией электронов и автолокализованных дырок<sup>2,3/</sup>.

Спектрально-кинетические характеристики РЛ при 325 нм (положение мак- симума, полуширина, постоянные затухания) сильно зависят от температуры, от- клонения от стехиометрии и дефектного окружения. Свечения при 325 нм суб- страктивно и адитивно окрашенных кристаллов, содержащих один преобладаю- щий тип дефектов анионные вакансии, имеют при 300К примерно одинаковые FWHM(= 0,41 эВ) и  $\tau$ (=15-20 нс). При понижении температуры до 80К в субстрак- тивно окрашенных образцах обнаружен сложный характер кинетики свечения в полосе при 325нм (FWHM= 0,41 эВ). Непосредственно после импульса возбужде- ния ( $\tau_0=0,43$  нс) наблюдаются три стадии (рис.1): быстрое затухание с постоянной  $\tau_1 \approx 3$  нс, разгорание( $\tau_2 \approx 20$  нс) и затухание ( $\tau_3 \approx 200$  нс). Существенно, что в кинетике

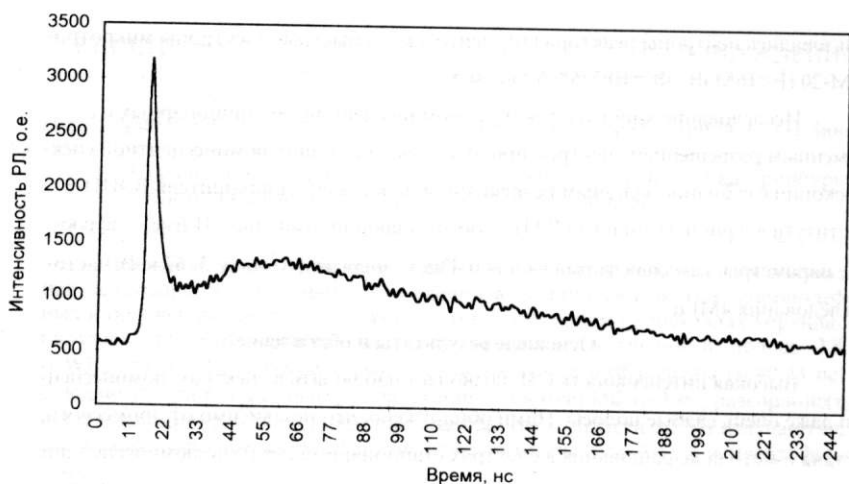


Рис. 1. Кинетика затухания свечения в полосе 325 нм при 80К в субстрактивно окрашенном корунде

свечения аддитивно окрашенных образцов в указанной области зарегистрирована только медленная компонента ( $\tau > 1$  мкс), и наблюдается уменьшение полуширины до 0.26 эВ. В нормализованных стехиометричных образцах снижение температуры до 80К приводит к смещению максимума от 338 нм к 326 нм и уменьшению полуширины с 0.6 эВ до 0.43 эВ. Форма кривых затухания не изменяется при снижении температуры, и они близки к аналогичным для субстрактивно окрашенных кристаллов. Значительно увеличивается только медленная компонента затухания с 200 пс до 970 пс.

На рис.2 изображены спектры РЛ с временным разрешением (СВР) субстрактивно окрашенного корунда при 80К. Видно, что вклад полосы при 325 нм значительно уменьшается с ростом времени задержки  $t_d$ , которое в наших экспериментах составляло 40 нс. РЛ с максимумом при 290нм имеет сравнительно низкую интенсивность и не может существенно влиять на кинетические параметры свечения при 325 нм. Следовательно, представленная на рис.1 кривая затухания не является суперпозицией кинетических кривых свечений при 290 и 325 нм. Из ана-

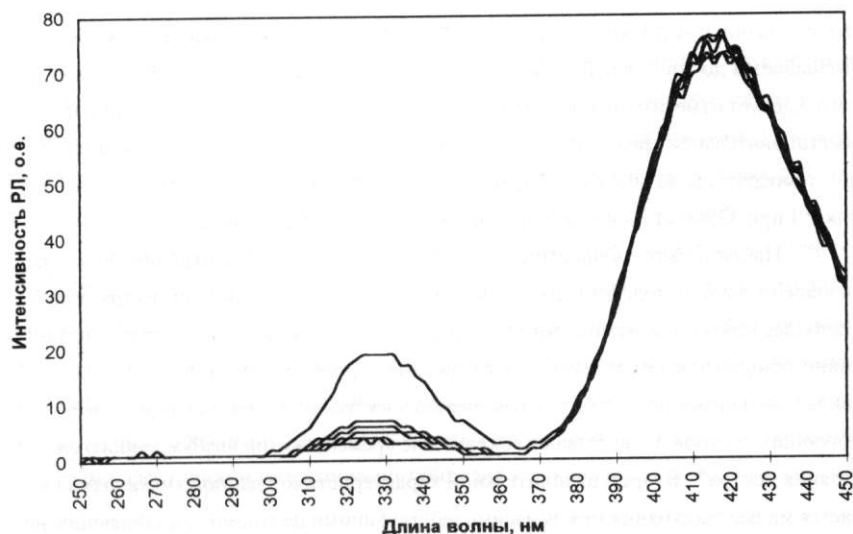


Рис. 2. Спектры люминесценции с временным разрешением субстрактивно окрашенного корунда (1 -  $t_d = 0$  с, 2 - 40 нс, 3 - 80 нс, 4 - 120 нс, 5 - 160 нс, 6 - 200 нс)

лиза представленных выше данных можно заключить, что наряду с известным <sup>2,3/</sup> свечением при 325 нм (FWHM = 0.41 эВ), обусловленного экситоноподобными образованиями, в аддитивно окрашенных кристаллах обнаружено при 80 К свечение с отличными кинетическими параметрами.

РЛ при 325 нм с FWHM = 0.41 эВ, наблюдаемая при 300 К, связана с излучательными переходами F<sup>+</sup>-центра. Время жизни возбужденного состояния F<sup>+</sup>-центра по литературным данным <sup>4/</sup> составляет единицы нс. Большинство авторов его определяли в нейтронно-облученных кристаллах, поскольку концентрация F<sup>+</sup>-центров в анионодефектных образцах мала из-за их эффективного положительного заряда. При возбуждении СИ можно наблюдать свечение F<sup>+</sup>-центров как в облученных нейтронами и электронами, так и в анионодефектных кристаллах.

<sup>5/</sup> нами исследованы кривые затухания свечения F<sup>+</sup>-центров в трех образцах при 300 К. Получено, что в аддитивно окрашенном кристалле (концентрация анионных вакансий  $10^{18} \text{ см}^{-3}$ ) время жизни составляет 15 нс. При

его облучении быстрыми электронами ( $\Phi_e = 6 \cdot 10^{18}$  эл/см<sup>2</sup>) постоянная затухания уменьшается до 5нс, а в нейтронно-облученном корунде она равна 2,5нс. Кроме того, следует отметить, что в анионодефектном кристалле, выращенном в сильно восстановительной среде с углеродом, время жизни составляет 22нс. При понижении температуры до 80К в облученных частицами кристаллах постоянные затухания РЛ при 325нм становятся близкими и составляют примерно 2,1нс.

Наблюдаемое уменьшение длительности свечения F<sup>+</sup>-центра при 300К обусловлено его взаимодействием с электронными возбуждениями других центров. Наиболее вероятным механизмом переноса энергии возбуждения является индуктивно-резонансная безызлучательная передача. Процессы миграции энергии по такому механизму не приводят к изменению электронных спектров взаимодействующих центров, но вызывают сокращение времени жизни возбужденного состояния центра<sup>6/</sup>. Второй отличительной характеристикой данного механизма является малые расстояния между взаимодействующими центрами, составляющие не более нескольких постоянных решетки. Возможным партнером F<sup>+</sup>-центра в этой ситуации может быть Al<sub>i</sub><sup>+</sup>-центр (междоузельный атом алюминия) с полосой поглощения при 305нм и фотолюминесценции при 325нм (T=80К) и 510нм (T=300К). Согласно нашей модели Al<sub>i</sub><sup>+</sup>-центра<sup>7/</sup> его стабилизация осуществляется вблизи анионной вакансии. Следовательно, но, в данном случае выполняются оба выше приведенных условия индуктивно-резонансной передачи энергии возбуждения. В спектрах стационарной РЛ и с временным разрешением наблюдается свечение Al<sub>i</sub><sup>+</sup>-центров при 510нм в кристаллах, облученных электронами и нейтронами. Расстояние между F<sup>+</sup>- и Al<sub>i</sub><sup>+</sup>-центрами мало.

Таким образом, время жизни возбужденного состояния F<sup>+</sup>-центра зависит от дефектного окружения. В кристаллах, содержащих только анионные вакансии, оно составляет 22нс. При увеличении их концентрации, появлении дефектов типа Al<sub>i</sub><sup>+</sup>-центров и, возможно, F-агрегатных центров время жизни уменьшается до 2,5нс.

Наблюдаемая в облученных частицами образцах при низких температурах независимость длительности затухания ( $\tau = 2,1$ нс) свечения с максимумом при 325нм и уменьшение его полуширины до 20 нм связано с тем, что регистрируемая люминесценция обусловлена не F<sup>+</sup>-, а Al<sub>i</sub><sup>+</sup>-центрами. При 80К у свечения F<sup>+</sup>-центров имеется температурное тушение, одновременно обусловленная Al<sub>i</sub><sup>+</sup>-центрами люминесценция разгорается<sup>4,7/</sup>.

## Выводы

1. С применением методов люминесцентной спектроскопии с временным разрешением при возбуждении СИ рентгеновского диапазона различной плотности при  $T=80-400\text{K}$  исследована быстрая излучательная релаксация электронных возбуждений в номинально чистых, анонодефектных и облученных различными флюенсами быстрых электронов и нейтронов кристаллах корунда.

2. В образцах корунда с различной предысторией и дефектностью обнаружена при 300K полоса свечения при 290nm с двумя компонентами кинетики затухания  $\tau_1=2.3\text{нс}$  и  $\tau_2=290\text{нс}$ , обусловленная предварительно экситоноподобными образованиями. В этом же диапазоне в кристаллах с преднамеренно введенными анонными вакансиями наблюдается свечение  $F^+$ -центров при 325nm с временем жизни 15нс. Облучение номинально чистых и анонодефектных образцов быстрыми электронами и нейтронами приводит к сокращению длительности свечения до 2-5нс.

3. Исследованы спектры РЛ с временным разрешением стехиометричных и анонодефектных кристаллов корунда и спектрально-кинетические параметры наблюдаемых в них свечений с максимумом при 325nm в зависимости от температуры. Получено, что в области 3.8 эВ излучают не менее 4 типов дефектов: автолокализованные экситоны,  $F^+$ ,  $Al^+$  - и неидентифицированные центры.

## Список литературы

1. Pustovarov V.A., Zinin E.I., Krymov A.L. and Shulgin B.V. Rev. of scienc. Instrum. 63, N6 (1992) 3521.
2. Кулис П.А. и др. - В кн.: Электронные процессы и дефекты в ионных кристаллах, Рига, ЛГУ, 1985, с.85.
3. Кузнецов А.И., Намозов Б.Р., Мюрк В.В. Физика твердого тела., 25, N10 (1985)3030.
4. J.H. Crawford, Jr. //Nucl. Instrum. and Meth. Phys. Res., B229, № 2-3 (1984) 159.
5. A.I. Syurdo et al. //Nucl. Instrum. and Meth. Phys. Res., (1997)(in printed).
6. Левшин Л. В., Салецкий А. М. Люминесценция и ее измерение. Москва, МГУ, 1989, 272 с.
7. Сюрдо А.И., Кортон В.С., Мильман И.И. Украинский физический журнал. 33, N6 (1988) 872.