

ВЛИЯНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ НА РЕНТГЕНОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЮ  
ДВУХАКТИВАТОРНЫХ КРИСТАЛЛОВ  $Y_3Al_5O_{12}$

М. Х. Абутов, С. Х. Батыгов, Б. И. Денкер

УДК 535.376.

Исследовалась рентгенолюминесценция (РЛ) кристаллов  $Y_3Al_5O_{12}$  -  $TR_1$ ,  $TR_2$ , ( $TR_1 = Yb, Yb$ ;  $TR_2 = Tb, Pr$ ). С повышением температуры РЛ одного активатора усиливается, а другого ослабляется, что связано с рекомбинационным взаимодействием активаторов. Из температурных зависимостей РЛ найдено, что в ИАГ термическая устойчивость  $Yb^{2+}$  выше, в  $Yb^{2+}$  ниже, чем  $Tb^{4+}$  и  $Pr^{4+}$ .

Известно, что температурные зависимости выхода рекомбинационной люминесценции кристаллов определяются не только процессами внутрицентрового тушения, но и изменением относительных эффективностей различных каналов рекомбинации. Когда скорость термического освобождения зарядов с одного из уровней становится сравнимой со скоростью рекомбинации на нем, эффективность этого канала уменьшается, а остальных, более глубоких, увеличивается, что проявляется в тушении и разгорании соответствующих полос люминесценции /1,2/. Можно ожидать, что в кристаллах, содержащих центры захвата, связанные с разными активаторами, характер температурных зависимостей полос разных активаторов позволяет определить последовательность термического опустошения ловушек при нагревании. Благодаря этому температурные зависимости люминесценции могут дополнить кривые термолюминесценции (ТЛ) в выяснении вопроса о "знаке" термостимулированной рекомбинации.

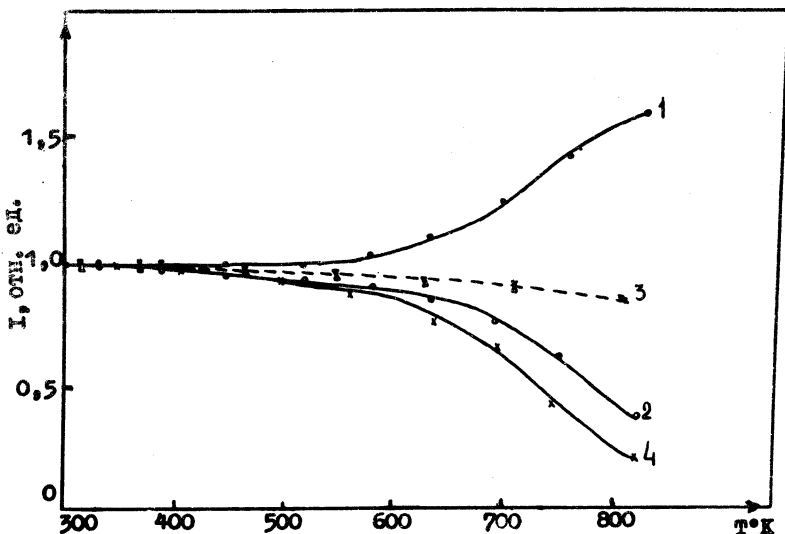
В данной работе исследовалась рентгенолюминесценция (РЛ) кристаллов иттрий-алюминиевого граната (ИАГ), содержащих два активатора, из которых один образует электронные уровни захвата ( $Yb, Yb$ ), второй - дырочные ( $Tb$  или  $Pr$ ). Использовались те же кристаллы, что в работе /3/.

## I. Аппаратура и методика эксперимента

Температурные зависимости РЛ и ФЛ для выбранных излучательных переходов  $Tb^{3+}$  снимались в диапазоне температур от 300 до 800°K. Для возбуждения РЛ использовалась рентгеновская трубка с вольфрамовым антикатодом (30 кв, 10 мка), ФЛ возбуждалась лампой ДКСШ-1000. Линии люминесценции разных активаторов выделялись монохроматором МДР-2. При построении температурных зависимостей интенсивностей РЛ и ФЛ интенсивность люминесценции при  $T=300^{\circ}K$  принималась за единицу.

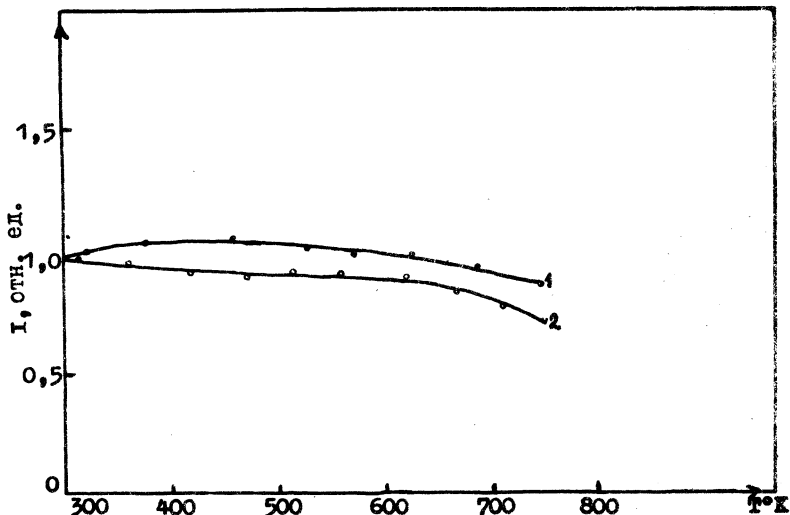
## 2. Результаты

На рис. 1 приведены температурные зависимости интенсивностей линий 4Г9нм ( $Tb$ ) и 592 нм ( $Eu$ ) стационарной РЛ и фотолюминесценции (ФЛ)  $Eu$  и  $Tb$  в кристаллах ИАГ- $Eu$ ,  $Tb$ , а на рис. 2 показаны соответствующие зависимости (РЛ) в одноактиваторных кристаллах. В ИАГ- $Eu$ ,  $Tb$  в области 600°K РЛ тербия гасится, а европия



Р и с. 1. Температурные зависимости люминесценции в кристаллах ИАГ- $Eu$ ,  $Tb$ : 1 - РЛ  $Eu^{3+}(J_1)$ ; 2 - РЛ  $Tb^{3+}(J_2)$ ; 3 - ФЛ  $Eu^{3+}$  и  $Tb^{3+}$ ; 4 -  $J_2/J_1 \sim n_2$ .

разгорается. Сравнение рисунков 1 и 2 показывает, что температурные зависимости РЛ в ИАГ-Еу, Ть определяются в основном рекомбинационным взаимодействием активаторов. Очевидно, тушение  $Tb^{3+}$  в области выше  $600^{\circ}K$  указывает на термическое освобождение

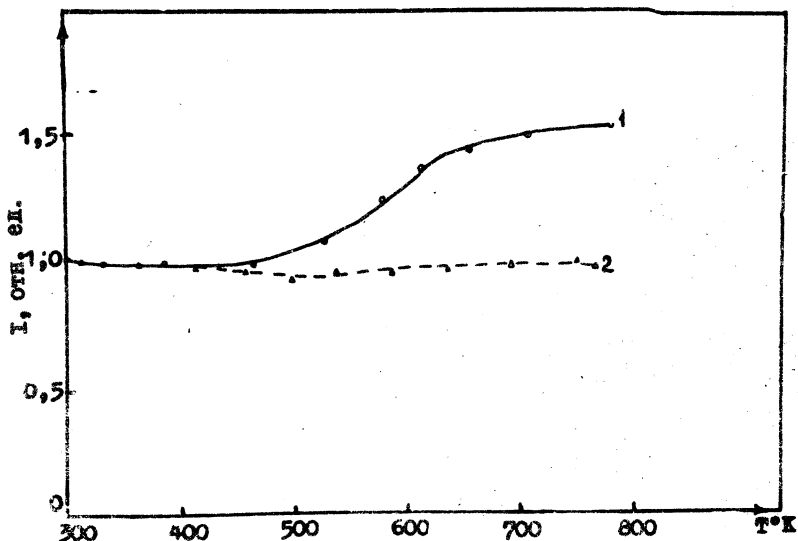


Р и с. 2. Температурные зависимости РЛ  $Eu^{3+}$  в ИАГ-Еу (1) и  $Tb^{3+}$  в ИАГ-Ть (2)

ние дырок с  $Tb^{3+}$ . Повышение концентрации дырок в валентной зоне вызывает повышение скорости рекомбинации через  $Eu^{2+}$ . Аналогичные зависимости наблюдались в ИАГ-Еу, Рг, где тушение  $Pt^{3+}$  также сопровождалось разгоранием Еу.

Таким образом, в кристаллах ИАГ-Еу, Ть и ИАГ-Еу, Рг с повышением температуры термическое освобождение дырок с Ть или Рг начинается раньше, чем электронов с Еу. Этот вывод противоречит сделанному нами в работе /3/, где пики термовиссечивания (ТВ) в кристаллах ИАГ-Еу, Ть и ИАГ-Еу, Рг связывались с освобождением электронов с  $Eu^{2+}$ , что основывалось на совпадении положения пиков ТВ в этих двух кристаллах. Возможно, совпадение положения пиков в ИАГ-Еу, Ть ИАГ-Еу, Рг обусловлено близостью глубин дырочных уровней  $Tb^{3+}$  и  $Pt^{3+}$ .

В кристаллах  $\text{ИАГ-Уь,Ть}$  и  $\text{ИАГ-Уь,Рг}$  было исследовано свечение только  $\text{Ть}$  или  $\text{Рг}$ , поскольку при повышенных температурах люминесценция  $\text{Уь}^{3+}$  на 980 нм маскируется тепловым излучением кристалла и печи. Зависимости интенсивностей РЛ и ФЛ  $\text{Ть}^{3+}$  в  $\text{ИАГ-Уь, Ть}$



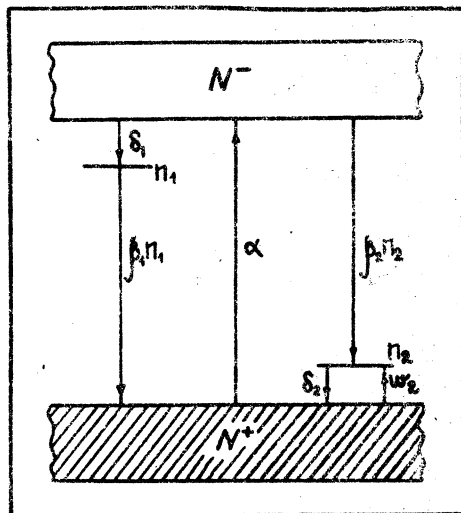
Р и с. 3. Температурные зависимости РЛ (1) и ФЛ (2)  $\text{Ть}^{3+}$  в  $\text{ИАГ-Уь, Ть}$

от температуры показаны на рис. 3. Сходные зависимости получаются для РЛ и ФЛ  $\text{Рг}^{3+}$  (611 нм) в  $\text{ИАГ-Уь,Рг}$ ; для линии 489 нм  $\text{Рг}^{3+}$  зависимости искажены резко выраженным внутрицентровым тушением. Как видно из рис.3 повышение температуры ведет к разгоранию РЛ  $\text{Ть}^{3+}$ , это можно связать с термическим освобождением электронов с  $\text{Уь}^{2+}$ . Следовательно,  $\text{Уь}^{2+}$ , в отличие от  $\text{Eu}^{2+}$ , термически менее устойчив, чем  $\text{Рг}^{4+}$  и  $\text{Ть}^{4+}$ , а термостимулированная люминесценция (ТСЛ)  $\text{ИАГ-Уь,Ть}$  и  $\text{ИАГ-Уь,Рг}$  обусловлена рекомбинацией электронов на дюрочных центрах.

### 3. Обсуждение

Будем предполагать, что треки вторичных электронов сливаются, так что реализуется условие стационарности возбуждения.

На рис. 4 показана зонная схема кристалла ИАГ-Ва, Тб. Кинетические уравнения для стационарной люминесценции с учетом малого заполнения ловушек носителями имеют вид /1/:



Р и с. 4. Зонная схема кристаллов ИАГ-Ва, Тб

$$\frac{dN^+}{dt} = \alpha - \delta_2 N^+ - \beta_1 n_1 N^+ + \omega_2 n_2 = 0, \quad (1)$$

$$\frac{dN^-}{dt} = \alpha - \delta_1 N^- - \beta_2 n_2 N^- = 0, \quad (2)$$

$$\frac{dn_1}{dt} = \delta_1 N^- - \beta_1 n_1 N^+ = 0, \quad (3)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = \delta_2 N^+ - \beta_2 n_2 N^- - \omega_2 n_2 = 0. \quad (4)$$

Здесь  $\alpha$  - интенсивность возбуждения,  $\delta_1$  и  $\delta_2$  - вероятности захвата электронов и дырок на уровнях захвата  $E_1$  и  $E_2$ ,  $\beta_1$  и  $\beta_2$  - коэффициенты рекомбинации на уровнях 1 и 2,  $\omega_2 = \omega_0 \exp(-E_2/kT)$  - вероятность термического освобождения дырок с уровня  $E_2$  глубокой  $E_2$ ,  $N^-$  и  $N^+$  - концентрации свободных электронов и дырок,  $n_1$  и  $n_2$  - концентрации  $E_1^{2+}$  и  $E_2^{4+}$ . Не учитывается выношение

щее действие ионизирующей радиации и термическое освобождение электронов с  $\text{Eu}^{2+}$ . Решение подобной системы уравнений должно дать температурные зависимости интенсивностей люминесценции активаторов. Однако без дополнительных упрощающих предположений не удастся получить решения, поддающиеся анализу.

В фосфорах, запасавших большие светосуммы, при фотовозбуждении предполагается  $n \gg N$ , т.е.  $n_1 \approx n_2 / I$  согласно уравнению электронейтральности  $n_1 + N^- = n_2 + N^+$ . Для сцинтилляторов иногда принимается  $N^- \approx N^+ = \text{const} / 2$ , что равносильно условию  $n \ll N$ . В применении второго условия к объяснению разгорания РЛ с температурой скрыто противоречие, так как при  $N^- \approx N^+ = \text{const}$  концентрация электронов на ловушках  $n_1 = \delta_1 N^- / \beta_1 N^+$  также постоянна и, следовательно, должна быть постоянной и интенсивность РЛ  $\text{Eu}^{2+} J_1 \sim \beta_1 n_1 N^+$ .

Легко убедиться, что концентрация электронов в зоне проводимости в действительности изменяется. Интенсивность свечения  $\text{Eu}^{3+}$

$$J_1 = \eta_1 \beta_1 n_1 N^+$$

где  $\eta$  - выход свечения. Из уравнения (3) следует, что  $J_1 = \eta_1 \delta_1 N^-$ . Таким образом, ход кривой  $J_1(T)$  на рис. I передает и температурную зависимость относительной концентрации свободных электронов. По температурным зависимостям интенсивности РЛ легко определить также температурную зависимость концентрации  $\text{Eu}^{4+}$ . Интенсивность свечения  $\text{Eu}^{3+}$

$$J_2 = \eta_2 \beta_2 n_2 N^- = \eta_2 \beta_2 n_2 J_1 / \eta_1 \delta_1,$$

отсюда

$$n_2 = \eta_1 \delta_1 J_2 / \eta_2 \beta_2 J_1.$$

Зависимость  $n_2(T)$  в относительных единицах приведена на рис. I (кривая 4). Очевидно, в данном случае изменения концентраций свободных и связанных носителей сравнимы, и нет оснований считать какую-либо из этих концентраций постоянной, что лишает смысла расчеты, основанные на допущении постоянства концентрации одного вида носителей.

Поступила в редакцию  
28 сентября 1973 г.

## Л и т е р а т у р а

1. М. В. Фок. Введение в кинетику люминесценции кристаллофосфоров, стр. 95, Изд-во "Наука", М., 1964 г.
2. Э. Д. Алукер. Сб. Радиационная физика, У, стр. 7, Рига, 1967 г.
3. С. Х. Батыгов, Д. К. Воронько, Б. И. Денкер, В. В. Осико. ФТТ, 14, 2114 (1972).