

О МЕХАНИЗМЕ СЦИНТИЛЛЯЦИЙ CsJ-Tl
ПРИ РАДИАЦИОННОМ И ФОТОВОЗБУЖДЕНИИ

И. Р. Гулаков и А. Н. Перцев

Дано описание сцинтилляционного процесса с помощью модели, которая базируется на результатах измерений фронтов нарастания сцинтилляций CsJ-Tl при гамма- и фотовозбуждении однофотонным методом.

Сочетание спектральных и временных методов изучения сцинтилляционного процесса в активированных щелочно-галогидных кристаллах при различной температуре, типах возбуждения и концентрации активатора позволило выяснить многие существенные стороны явлений, разыгрывающихся при этом в ионных кристаллах [1-4]. Действие поглощенной частицы подобно дельта-функции возбуждения основной решетки кристалла, а сцинтилляционный импульс — реакции кристалла на возбуждение. При этом импульс высвечивания состоит из двух различных частей: начальная часть модулируется процессами, протекающими до внутрицентровых процессов в ионах активатора, спадающая часть связана с внутрицентральной кинетикой. Последняя изучается также отдельно при фотовозбуждении. Начальная часть импульса отражает кинетику преобразования поглощенной кристаллом энергии в энергию возбуждения активаторных центров и может быть представлена в виде зависящей от времени функции возбуждения активатора; от вида функции возбуждения зависит конкретный вид внутрицентровых процессов (можно сказать, что задание функции возбуждения равносильно заданию начальных условий для внутрицентральной кинетики). Кроме того, знание функции возбуждения позволяет описать весь сцинтилляционный процесс, «сшить» начальную и конечную стадии импульса высвечивания. Начальная часть сцинтилляционного импульса обычно малодоступна для измерения из-за кратковременности процессов преобразования энергии; недостаточность экспериментальных данных приводит к неоднозначности в их объяснении. В частности, известна важная роль электронно-дырочных пар и экситонов в формировании сцинтилляционного процесса [1-4], но неясна их детальная роль.

В данной работе сделана попытка описать сцинтилляционный процесс с помощью конкретной модели, основанной на измерении фронтов нарастания сцинтилляций CsJ-Tl при жестком и фотовозбуждении однофотонным методом.

Предполагается в соответствии с [4], что преобразование поглощенной энергии в электронно-дырочные пары происходит очень быстро (10^{-11} сек.); поэтому описание начинается с процесса диффузии электронно-дырочных пар. Последние со скоростью $1/\tau_1$ преобразуются в экситоны и со скоростью $1/\tau_1^0$ исчезают по другим безызлучательным каналам. Экситоны, диффундируя, со скоростью $1/\tau_2$ захватываются активаторными центрами, со скоростью $1/\tau_2^0$ распадаются радиационно и со скоростью $1/\tau_2'$ исчезают по другим каналам.

Если $C(r, t)$ — концентрация электронно-дырочных пар в окрестности точки r в момент времени t , то диффузия электронно-дырочных пар

(точнее, медленной половины пар — дырок) из цилиндра единичной длины, образуемого треком частицы в кристалле, описывается уравнением диффузии «со стоком»

$$\frac{\partial C(r, t)}{\partial t} = \frac{D}{r} \frac{\partial C(r, t)}{\partial r} + D \frac{\partial^2 C(r, t)}{\partial r^2} - \left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_1^0} \right) C(r, t) \quad (1)$$

с решением

$$C(r, t) = \frac{N_0}{4\pi Dt} e^{-\frac{r^2}{4Dt}} e^{-\left(\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_1^0}\right)t}, \quad (2)$$

где D — коэффициент диффузии дырок, N_0 — число первоначально образованных электронно-дырочных пар.

Так как электроны и дырки являются источником рождения экситонов, то для концентрации экситонов $C_1(r, t)$ справедливо

$$\frac{\partial C_1(r, t)}{\partial t} = -\left(\frac{1}{\tau_2} + \frac{1}{\tau_2^0} + \frac{1}{\tau_2'}\right) C_1(r, t) + \frac{1}{\tau_1} C(r, t), \quad (3)$$

$$C_1(r, t) = e^{-(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t} \left[\int_0^t \frac{1}{\tau_1} C(r, t) e^{(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t} dt \right]. \quad (4)$$

Если диффузия дырок более медленный процесс, чем диффузия экситонов, то диффузия дырок модулирует процесс рождения экситонов, и скорость создания возбужденных активаторных центров $\Phi(t)$

$$\begin{aligned} \Phi(t) &= \int_0^\infty \frac{1}{\tau_2} C_1(r, t) 2\pi r dr = \int_0^\infty p N_A C_1(r, t) 2\pi r dr = \\ &= \frac{p N_A N_0}{\tau_1} \frac{1}{1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2' - 1/\tau_1 - 1/\tau_1^0} \left[e^{-(1/\tau_1 + 1/\tau_1^0)t} - e^{-(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t} \right]. \end{aligned} \quad (5)$$

Если длительность диффузии экситонов преобладает над длительностью диффузии дырок, то описание можно начинать с

$$\frac{\partial C_1(r, t)}{\partial t} = \frac{D_1}{r} \frac{\partial C_1(r, t)}{\partial r} + D_1 \frac{\partial^2 C_1(r, t)}{\partial r^2} - \left(\frac{1}{\tau_2} + \frac{1}{\tau_2^0} + \frac{1}{\tau_2'} \right) C_1(r, t), \quad (6)$$

$$C_1(r, t) = \frac{N_0}{4\pi D_1 t} e^{-\frac{r^2}{4D_1 t}} e^{-(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t}, \quad (7)$$

$$\Phi'(t) = \int_0^\infty p N_A C_1(r, t) 2\pi r dr = p N_A N_0 e^{-(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t}. \quad (8)$$

Из сравнения (5) и (8) видно, что

$$\Phi(t) \rightarrow \Phi'(t) \text{ при } \sigma_1 \rightarrow 0,$$

Особенность структуры нижнего возбужденного состояния активаторного центра связана с существованием системы двух или трех близко расположенных уровней 3P_0 , ${}^3P_1^{(1)}$, ${}^3P_1^{(2)}$; нижний из них — 3P_0 — является метастабильным, а верхние — ${}^3P_1^{(1)}$ и ${}^3P_1^{(2)}$ — излучающими; если расщепление уровней 3P_0 и 3P_1 проявляется всегда, то расщепление уровней ${}^3P_1^{(1)}$ и ${}^3P_1^{(2)}$, видимо, незначительно [5]. Обозначая через $n_1(t)$ — заселенность метастабильного уровня 3P_0 , через $n_2(t)$ — заселенность уровней ${}^3P_1^{(1)}$ и ${}^3P_1^{(2)}$, через $n_3(t)$ — число экситонов в момент времени t , получим неоднородную систему дифференциальных уравнений

$$\left. \begin{aligned} \frac{dn_2}{dt} &= \frac{1}{\tau_2} n_3 + \left(-\frac{1}{\tau} - V_{21} e^{-\Delta E_2/kT} \right) n_2 + V_{12} e^{-\Delta E_{12}/kT} n_1, \\ \frac{dn_1}{dt} &= V_{21} e^{-\Delta E_2/kT} n_2 - V_{12} e^{-\Delta E_{12}/kT} n_1, \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

где τ — время жизни уровней ${}^3P_1^{(1)}$ и ${}^3P_1^{(2)}$, V_{ij} — частотные множители, ΔE_{ij} и ΔE_j — энергетические барьеры для переходов между уровнями и

$$n_3(t) = \frac{1}{\tau_1} \frac{1}{1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2' - 1/\tau_1 - 1/\tau_1^0} \left[e^{-(1/\tau_1 + 1/\tau_1^0)t} - e^{-(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t} \right]. \quad (10)$$

Форма сцинтилляционного импульса описывается выражением

$$N_\Phi(t) = \frac{1}{\tau_2^0} n_3(t) + \frac{1}{\tau} n_2(t). \quad (11)$$

Решение (9) удобно приводить при задании численных множителей перед функциями $n_i(t)$.

В качестве примера приведем результаты расчета для CsJ-Tl при комнатной температуре, используя результаты [6, 7] для численных множителей: $V_{ij} = 8 \cdot 10^5$ сек.⁻¹, $\Delta E_{12} = 0.039$ эв, $\Delta E_2 = 0.014$ эв, $\tau = 7 \cdot 10^{-6}$ сек. и при начальных условиях $n_1(t)|_{t=0} = 0$, $n_2(t)|_{t=0} = 0$

$$\begin{aligned} N_\Phi(t) = & \frac{1}{\tau_2^0} \frac{N_0}{\tau_1} \frac{1}{1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2' - 1/\tau_1 - 1/\tau_1^0} \left[e^{-(1/\tau_1 + 1/\tau_1^0)t} - e^{-(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t} \right] + \\ & + \frac{1}{\tau} \frac{0.37 N_0}{\tau_2 \tau_1} \frac{1}{1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2' - 1/\tau_1 - 1/\tau_1^0} \times \\ & \times \left\{ \frac{1.55}{-1/\tau_1 - 1/\tau_1^0 + 0.9 \cdot 10^5} \left[e^{-(1/\tau_1 + 1/\tau_1^0)t} - e^{-0.9 \cdot 10^5 t} \right] - \right. \\ & - \frac{1.55}{-1/\tau_2 - \tau_2^0 - 1/\tau_2' + 0.9 \cdot 10^5} \left[e^{-(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t} - e^{-0.9 \cdot 10^5 t} \right] + \\ & + \frac{1.12}{-1/\tau_1 - 1/\tau_1^0 + 13.1 \cdot 10^5} \left[e^{-(1/\tau_1 + 1/\tau_1^0)t} - e^{-13.1 \cdot 10^5 t} \right] - \\ & \left. - \frac{1.12}{-1/\tau_2 - 1/\tau_2^0 - 1/\tau_2' + 13.1 \cdot 10^5} \left[e^{-(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t} - e^{-13.1 \cdot 10^5 t} \right] \right\}. \quad (12) \end{aligned}$$

Выражение (12) может значительно упроститься при рассмотрении конкретных случаев.

Если $1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2' \gg 1/\tau_1 + 1/\tau_1^0$, то начальная часть импульса сцинтилляции описывается выражением

$$\begin{aligned} \frac{N_\Phi(t)}{N_0 \frac{1}{\tau_1} \frac{1}{1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2'}} & \simeq \varepsilon_1 \left[e^{-(1/\tau_1 + 1/\tau_1^0)t} - e^{(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t} \right] + \\ & + \varepsilon_2 \left[1 - e^{-(1/\tau_1 + 1/\tau_1^0)t} \right], \quad (13) \end{aligned}$$

где $\varepsilon_1 = \frac{1}{\tau_2^0}$, $\varepsilon_2 = \frac{1}{\tau} \frac{1}{\tau_2} \frac{1}{1/\tau_1 + 1/\tau_1^0}$.

На рис. 1 представлены экспериментально измеренный фронт нарастания CsJ-Tl при гамма-возбуждении и рассчитанные по (13) точки при $1/\tau_1 + 1/\tau_1^0 = 1/53 \cdot 10^{-9}$ сек.⁻¹, $1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2' = 1/4.6 \cdot 10^{-9}$ сек.⁻¹, $\varepsilon_1 = 0.2$, $\varepsilon_2 = 2$. Величины для частотных сумм получены из разложения фронта нарастания в логарифмическом масштабе, а ε_1 и ε_2 подбирались при описании опытных данных с помощью (13). Так как $\varepsilon_2/\varepsilon_1 = 10$, то

$$\frac{1}{\tau} \frac{1}{\tau_2} \frac{1}{1/\tau_1 + 1/\tau_1^0} = \frac{10}{\tau_2^0}.$$

Поскольку $\tau = 7 \cdot 10^{-6}$ сек., $1/\tau_1 + 1/\tau_1^0 = 1/53 \cdot 10^{-9}$ сек.⁻¹, то $\tau_2^0/\tau_2 = 1.32 \cdot 10^3$, т. е. скорость захвата экситонов активаторными центрами на три порядка превышает скорость радиационного распада экситонов (концентрация активатора в данном случае составляла $5.1 \cdot 10^{-2}$ моль Tl/моль CsJ). Отсюда время жизни экситона по отношению к ра-

диационному распаду можно оценить в $6 \cdot 10^{-6}$ сек. и ожидать проявления радиационного распада экситонов в кристаллах с концентрацией активатора 10^{-5} моль Tl/моль CsJ (с одновременным увеличением безрадиационных потерь).

Если речь идет о коротком возбуждении CsJ-Tl в активаторной полосе поглощения при длительности импульса возбуждения в несколько нсек., то (12) переходит в

$$N_{\Phi}(t) = \frac{1}{\tau} [0.57e^{-0.9 \cdot 10^8 t} + 0.41e^{-13.1 \cdot 10^8 t}]. \quad (14)$$

На рис. 2 представлены рассчитанные и измеренные значения $N_{\Phi}(t)$; опыт дает значение $\tau^1 = 750$ нсек., расчет — 764 нсек. (τ' — время, за которое $N_{\Phi}(t)$ уменьшается в e раз). В качестве источника возбуждения использовалась коаксиальная кислородная лампа с длительностью импульса на полувысоте 4.5 нсек. Возбуждение осуществлялось через светофильтр УФС-1, а излучение CsJ-Tl выделялось светофильтром ЗС-1.

Если $1/\tau_1 + 1/\tau_1^0 \gg 1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2'$, то начальная часть импульса сцинтилляции описывается

$$\frac{N_{\Phi}(t)}{N_0 \frac{1}{\tau_1} \frac{1}{1/\tau_1 + 1/\tau_1^0}} \simeq \varepsilon_1 \left[-e^{-(1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2')t} + e^{-(1/\tau_1 + 1/\tau_1^0)t} \right] + \varepsilon_2 \left[1 - e^{-(1/\tau_1 + 1/\tau_1^0)t} \right], \quad (15)$$

где $\varepsilon_1 = \frac{1}{\tau_2^0}$, $\varepsilon_2 = \frac{1}{\tau} \frac{1}{\tau_2} \frac{1}{1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2'}$.

На рис. 3 представлены измеренный фронт нарастания альфа-сцинтилляции CsJ-Tl и рассчитанный при $1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2' = 1/4.6 \cdot 10^{-9}$ сек. $^{-1}$;

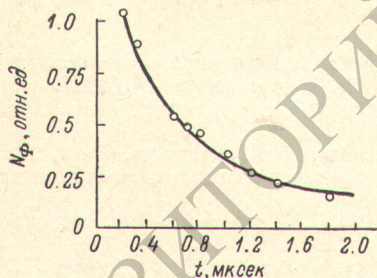


Рис. 2. Кривая высвечивания CsJ(Tl) при фотовозбуждении в активаторной полосе возбуждения. Точки — рассчитанные значения.

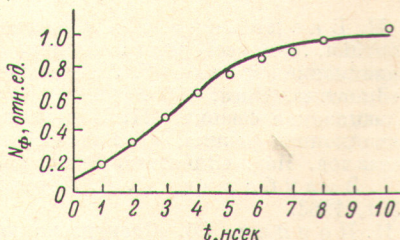


Рис. 3. Фронт нарастания альфа-сцинтилляции CsJ(Tl). Сплошная кривая — экспериментальная, точки — рассчитанные значения.

$1/\tau_1 + 1/\tau_1^0 = 1/1.1 \cdot 10^{-9}$ сек. $^{-1}$, $\varepsilon_1 = 68$, $\varepsilon_2 = 60$ (ε_1 и ε_2 , как и ранее, в относительных единицах). Из $\varepsilon_1/\varepsilon_2 = 1.13$ следует соотношение $\tau_2^0/\tau_2 = 1.72 \cdot 10^3$.

Полученные результаты позволяют надеяться, что предлагаемая модель механизма сцинтилляций правильно описывает экспериментальные данные; она согласуется, в частности, с эффектом влияния внешнего электрического поля на амплитуду сцинтилляций [4]: очевидно, что чем длительнее процесс перехода электронно-дырочных пар в экситоны, тем сильнее должно быть выражено влияние поля. Действительно, внешнее поле эффективнее действует на амплитуду гамма-сцинтилляций CsJ-Tl, чем в случае альфа-сцинтилляций.

Кроме того, из (13) и (15) можно получить отношение амплитуд для гамма- и альфа-сцинтилляций (при одинаковой поглощенной энергии)

$$\frac{A_{\alpha}}{A_{\gamma}} = \frac{\int_0^{\infty} N_{\Phi}^{\alpha}(t) dt}{\int_0^{\infty} N_{\Phi}^{\gamma}(t) dt} =$$

$$= \frac{N_0 \frac{1}{\tau_1} \frac{1}{1/\tau_1 + 1/\tau_1^0} \left\{ \frac{1}{\tau_2^0} \left[\frac{1}{1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2'} - \frac{1}{1/\tau_1 + 1/\tau_1^0} \right] + \right.}{N_0 \frac{1}{\tau_1} \frac{1}{1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2'} \left\{ \frac{1}{\tau_2^0} \left[\frac{1}{1/\tau_1 + 1/\tau_1^0} - \frac{1}{1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2'} \right] + \right.}, \quad (16)$$

$$\left. + \frac{1}{\tau_2} \frac{1}{1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2'} \left[\tau_{\alpha} - \frac{1}{1/\tau_1 + 1/\tau_1^0} \right] \right\}}{\left. + \frac{1}{\tau_2} \frac{1}{1/\tau_1 + 1/\tau_1^0} \left[\tau_{\gamma} - \frac{1}{1/\tau_1 + 1/\tau_1^0} \right] \right\}}$$

где числитель относится к возбуждению альфа-частицами, знаменатель — гамма-квантами; τ_{α} и τ_{γ} — соответствующие времена высвечивания. После подстановки численных значений получаем

$$\frac{A_{\alpha}}{A_{\gamma}} = \frac{1.1 \cdot 10^{-9}}{4.6 \cdot 10^{-9}} \frac{(\tau_2^0/\tau_2)_{\alpha} 0.66 \cdot 10^{-3} \tau_{\alpha}}{(\tau_2^0/\tau_2)_{\gamma} 0.16 \cdot 10^{-3} \tau_{\gamma}} = 1.29 \frac{\tau_{\alpha}}{\tau_{\gamma}}.$$

Используя литературные данные $\tau_{\alpha} = (0.4-0.6)$ мксек., $\tau_{\gamma} = (1.1-1.5)$ мксек. [7], имеем $A_{\alpha}/A_{\gamma} \approx 0.5$, что согласуется с обычно приводимым отношением 0.5.

Таким образом, изучение фронтов нарастания CsJ-Tl при альфа- и гамма-возбуждении и введение функции возбуждения позволяет описать форму сцинтилляционного импульса; при этом решающую роль играет скорость перехода электронно-дырочных пар в экситоны. Световой выход сцинтиллятора определяется тем, насколько двухкаскадный механизм превращения электронно-дырочных пар в фотоны отклоняется от оптимального.

Литература

- [1] Н. Н. Васильева. Сб. «Релеевское и комбинационное рассеяние, металлооптика, люминесценция щелочных иодидов». Изд. «Наука», М., 1967.
- [2] Радиационная физика, V. Люминесценция и дефекты ионных кристаллов. Изд. «Зинатне», Рига, 1965.
- [3] Радиационная физика, III. Ионные кристаллы. Изд. «Зинатне», Рига, 1965.
- [4] Радиационная физика, VI. Радиационные дефекты и люминесценция ионных кристаллов. Изд. «Зинатне», Рига, 1970.
- [5] С. Г. Зазубович, Н. Е. Лущик, Ч. Б. Лущик. Опт. и спектр., 15, 381, 1963.
- [6] А. Н. Перцев. Сб. «Спектроскопия твердого тела», 4. Изд. «Наука», Л., 1969.
- [7] Я. Д. Белявский, И. Р. Гулаков, А. Н. Перцев. Ж. прикл. спектр., 15, 658, 1971.

Поступило в Редакцию 18 января 1972 г.