

О МЕХАНИЗМЕ СЦИНТИЛЛЯЦИЙ NaJ-Tl

И. Р. Гулаков и А. Н. Перцев

Исследована зависимость фронтов нарастания сцинтилляций NaJ-Tl от концентрации таллия при гамма-возбуждении и сделана попытка аналитического описания полученных данных на основе конкретной модели механизма передачи энергии.

Фронты нарастания сцинтилляционных импульсов при возбуждении сцинтилляторов ионизирующими частицами отражают кинетику преобразования поглощенной энергии в энергию возбуждения центров люминесценции. Вместе со спектральными измерениями исследования кинетики люминесценции дают основные сведения о происходящих при этом в сцинтилляторе процессах.

В щелочно-галогидных кристаллофосфорах, активированных таллием, роль основных центров высвечивания выполняют таллиевые центры. Квантовый выход последних при возбуждении в активаторной полосе поглощения близок к единице. Поэтому энергетический выход радиолюминесценции таких сцинтилляторов (и фронт нарастания) определяется процессами, происходящими до момента возбуждения активаторного центра.

Фронты нарастания неактивированного NaJ и NaJ-Tl при различных концентрациях таллия, температурах и типах возбуждения изучались в ряде работ [1-11]. Отмечается, что для NaJ-Tl при гамма-возбуждении и комнатной температуре время передачи поглощенной энергии к центрам высвечивания составляет величину менее 5 нсек. [6] и что фронт нарастания имеет сложную структуру [5], не поддающуюся простому описанию.

В данной работе проведено измерение фронтов нарастания сцинтилляций NaJ-Tl при комнатной температуре и гамма-возбуждении для различных концентраций таллия и сделана попытка аналитического описания полученных данных на основе конкретной модели механизма передачи энергии. Основанием для такой попытки являются результаты, полученные для CsJ-Tl при альфа- и гамма-возбуждении [12].

В качестве модели используется по существу механизм, предложенный в [13], описание которого распространено на фронт нарастания сцинтилляций. Образованные при поглощении частицы электронно-дырочные пары диффундируют, образуя со скоростью $1/\tau_1$ экситоны и исчезая по другим безызлучательным каналам со скоростью $1/\tau_1^0$. Экситоны, диффундируя, со скоростью $1/\tau_2$ захватываются активаторными центрами, $1/\tau_2^0$ испытывают радиационный распад, $1/\tau_2^1$ исчезают по другим каналам.

Если $C_1(r, t)$ и $C_2(r, t)$ — концентрации электронно-дырочных пар и экситонов соответственно в окрестности точки r в момент времени t , то двойной диффузионный процесс описывается уравнениями

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial C_1}{\partial t} = \frac{D_1}{r} \frac{\partial C_1}{\partial r} + D_1 \frac{\partial^2 C_1}{\partial r^2} - \alpha C_1, \\ \frac{\partial C_2}{\partial t} = \frac{D_2}{r} \frac{\partial C_2}{\partial r} + D_2 \frac{\partial^2 C_2}{\partial r^2} - \beta C_2 + \frac{1}{\tau_1} C_1, \end{array} \right. \quad (1)$$

где D_1 и D_2 — коэффициенты диффузии электронно-дырочных пар и экситонов соответственно, $\alpha = 1/\tau_1 + 1/\tau_1^0$, $\beta = 1/\tau_2 + 1/\tau_2^0 + 1/\tau_2^1$, описание ведется в цилиндрической геометрии (диффузия из цилиндра единичной длины). Вводя функцию возбуждения активаторных центров

$$N(t) = \frac{1}{\tau_2} \int_0^{\infty} C_2(r, t) 2\pi r dr, \quad (2)$$

получим из решения (1)

$$N(t) = \frac{N_0}{\tau_1 \tau_2} e^{-\beta t} \int_0^t \frac{D_2(t-\tau)}{D_1\tau + D_2(t-\tau)} e^{-(\alpha-\beta)\tau} d\tau, \quad (3)$$

где N_0 — число электронно-дырочных пар, образованных частицей на участке цилиндра единичной длины.

В подынтегральном выражении (3) времена τ и $t-\tau$ имеют смысл длительности диффузии электронно-дырочных пар и экситонов соответственно. Эти длительности обратно пропорциональны величинам частотных сумм α и β . Кроме того, значение t , начиная с которого фронт нарастания становится доступным измерению, определяется разрешающим временем экспериментальной установки. Последнее в нашем случае составляло величину ~ 2 нсек. Если τ меньше разрешающего времени и, что особенно важно в качестве предположения, $D_1\tau \ll D_2(t-\tau)$, то

$$\frac{D_2(t-\tau)}{D_1\tau + D_2(t-\tau)} \approx 1. \quad (4)$$

Сделанное предположение оправдывается последующими результатами. При выполнении (4) выражение (3) принимает вид

$$N(t) = \frac{N_0}{\tau_1 \tau_2} \frac{1}{\beta - \alpha} (e^{-\alpha t} - e^{-\beta t}). \quad (5)$$

Зная функцию возбуждения активаторных центров (5), легко составить систему уравнений, описывающих внутрицентровую кинетику при данной функции возбуждения, и решить для фиксированной температуры [12]. Поскольку кинетика внутрицентровых процессов более чем на порядок медленнее кинетики процессов передачи энергии [14], указанная процедура приводит к следующему выражению для начальной части импульса высвечивания в функции времени:

$$N_{\Phi}(t) \approx \frac{N_0}{\tau_1} \frac{1}{\beta - \alpha} \left\{ \frac{1}{\tau_2^0} (e^{-\alpha t} - e^{-\beta t}) + \frac{1}{\tau_c} \frac{1}{\tau_2} \left[\frac{1}{\beta} (e^{-\beta t} - 1) - \frac{1}{\alpha} (e^{-\alpha t} - 1) \right] \right\}, \quad (6)$$

где τ_c — время жизни возбужденного уровня активаторного центра.

Применяя к (6) высказанное выше предположение $\alpha \gg \beta$, получим

$$N_{\Phi}(t) = N_0 \left\{ \frac{1}{\tau_2^0} e^{-\beta t} + \frac{1}{\tau_c} \frac{1}{\tau_2} \frac{1}{\beta} (1 - e^{-\beta t}) \right\}, \quad (7)$$

или

$$\frac{N_{\Phi}(t)}{N_0} = \varepsilon_1 \cdot e^{-\beta t} + \varepsilon_2 (1 - e^{-\beta t}), \quad (8)$$

где $\varepsilon_1 = 1/\tau_2^0$, $\varepsilon_2 = 1/\tau_c \tau_2 \beta$.

Выражение (8) использовалось для описания экспериментально измеренных фронтов нарастания NaJ-Tl при гамма-возбуждении.

Фронты нарастания сцинтилляционных импульсов измерялись по одnofотонной методике с использованием время — амплитудного преобразователя [15] и многоканального амплитудного анализатора импульсов АИ-256. Возбуждение сцинтилляций осуществлялось гамма-квантами Cs¹³⁷. Ослабление сцинтилляций и выделение полосы активаторного све-

чения осуществлялось с помощью набора светофильтров. Время набора измеряемых кривых составляло 5 час. и более.

Результаты измерений представлены на рис. 1 для образцов NaJ-Tl с концентрацией активатора 2, 0.5 и $\sim 10^{-4}\%$. Характерным является независимость фронта нарастания для указанных величин концентрации Tl, что совпадает с результатами [1]. Однако длительность фронтов нарастания в нашем случае составляет 10 нсек. на уровне от 0.1 до $0.9 \cdot 10^{-8}$ сек., [5] — 18 нсек., [9] — 12 нсек.). Разложение фронтов нарастания в логарифмическом масштабе позволяет найти

$$\beta = \frac{1}{\tau_2} + \frac{1}{\tau_2^0} + \frac{1}{\tau_2^1} = 0.25 \cdot 10^9 \text{ сек.}^{-1}$$

и описать форму начальной части импульса при $\varepsilon_1 = -60$, $\varepsilon_2 = 120$ (ε_1 и ε_2 — в относительных единицах). В связи с удовлетворительным описанием фронтов нарастания при указанных значениях величин можно отметить две особенности. Во-первых, ε_1 входит с отрицательным знаком; по определению же эта величина положительна и связана с излучением экситона. Знак минус может означать, что в наших условиях собственное излучение экситона просто не регистрируется и поэтому неявно модулирует фронт нарастания. Во-вторых, из значений ε_1 и ε_2 следует, что

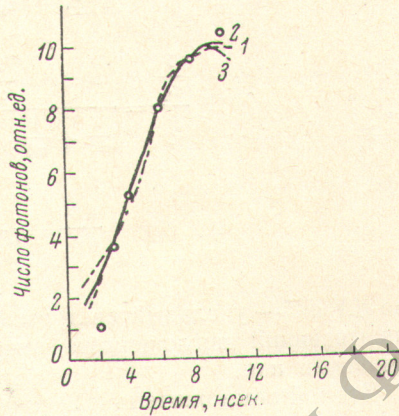


Рис. 1. Фронты нарастания NaJ-Tl при гамма-возбуждении.

1 — 2% Tl, 2 — 0.5% Tl, 3 — $\sim 10^{-4}\%$ Tl, точки — рассчитанные значения.

$$\left| \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} \right| = \frac{1}{\tau_c} \frac{\tau_2^0}{\tau_2} \frac{1}{\frac{1}{\tau_c} + \frac{1}{\tau_2^0} + \frac{1}{\tau_2^1}} = 2,$$

откуда

$$\frac{\tau_2^0}{\tau_2} = 5 \cdot 10^8 \tau_c. \quad (9)$$

Фронт нарастания, как отмечалось в [5], обладает не элементарной структурой и его форма чувствительна при описании к выбору параметров. Во всяком случае его не удастся описать путем подбора простой функции без выбора подходящей модели.

Из используемой модели и (5) можно написать выражение для полного светового выхода сцинтилляций (A)

$$A = \int_0^{\infty} \frac{N_0}{\beta - \alpha} \frac{1}{\tau_1} (e^{-\alpha t} - e^{-\beta t}) \left(\frac{1}{\tau_2^0} + \frac{1}{\tau_2} \right) dt = \frac{N_0}{\tau_1 \tau_2} \frac{1}{\beta - \alpha} \left(1 + \frac{\tau_2}{\tau_2^0} \right) \times \\ \times \int_0^{\infty} (e^{-\alpha t} - e^{-\beta t}) dt = N \frac{1}{\alpha} \frac{1}{\beta} \left(1 + \frac{\tau_2}{\tau_2^0} \right), \quad (10)$$

или с учетом (9) ($\tau_2/\tau_2^0 \ll 1$)

$$A \approx N_0 \frac{1}{\alpha} \frac{1}{\beta}. \quad (11)$$

Выражение (11) содержит произведение вероятностей преобразования электронно-дырочных пар в экситоны и экситонов в возбужденные состоя-

ния активаторных центров высвечивания. Для частиц с различной удельной плотностью ионизации (dE/dx) выражение (11) можно представить в виде

$$\left. \begin{aligned} A &= \frac{dN}{dx}, \quad N_0 = \gamma \frac{dE}{dx}, \quad \frac{A}{N_0} = \frac{dN}{\gamma dE}, \\ \frac{1}{\alpha} &= \frac{\frac{1}{\tau_1}}{\frac{1}{\tau_1} + \frac{1}{\tau_1^0} \frac{1}{\gamma \frac{dE}{dx}}} = \frac{\frac{1}{\tau_1} \frac{dE}{dx}}{\frac{1}{\tau_1} \frac{dE}{dx} + \frac{1}{\tau_1^0}}, \\ \frac{1}{\beta} &= \frac{\frac{1}{\tau_2}}{\frac{1}{\tau_2} + \frac{1}{\tau_2^0} + \frac{1}{\tau_2^1} \gamma \frac{dE}{dx}} \approx \frac{\frac{1}{\tau_2}}{\frac{1}{\tau_2} + \frac{\gamma}{\tau_2^1} \frac{dE}{dx}}, \\ \frac{dN}{dE} &= \gamma \frac{\frac{dE}{dx}}{\lambda_1 + \frac{dE}{dx}} \frac{\lambda_2}{\lambda_2 + \frac{dE}{dx}}, \end{aligned} \right\} (12)$$

где dN/dE — удельный световыход, $\lambda_1 = \tau_1/\tau_1^0\gamma$, $\lambda_2 = \tau_2^1/\tau_2\gamma$, γ — коэффициент, связывающий поглощенную энергию с числом образованных электронно-дырочных пар.

Второй сомножитель (12) играет роль при малых dE/dx и имеет известный вид вероятности колоночной рекомбинации [13], третий сомножитель сказывается при больших dE/dx , уменьшая световыход. Оба сомножителя имеют ясный физический смысл: диффузия электронов и дырок уменьшает относительную долю образующихся экситонов, в свою очередь диффузия экситонов необходима для передачи энергии возбуждения активаторным центрам, но при больших dE/dx эффективность передачи падает из-за роста сопровождающих диффузию безрадиационных потерь.

Выражение (12) позволяет описать кривую зависимости dN/dE от dE/dx . В качестве примера на рис. 2 представлена зависимость удельного светового выхода от удельной ионизации для NaJ-Tl [13] и результаты расчета по (12) при $\lambda_1 = 0.7$ кэВ·см²/мг, $\lambda_2 = 660$ кэВ·см²/мг.

Можно также отметить, что влияние электрического поля на сцинтилляции NaJ-Tl на порядок меньше, чем для CsJ-Tl [16], что согласуется со сделанным в начале предположением о большой скорости перехода электронно-дырочных пар в экситоны.

При всей сложности процессов, протекающих в щелочно-галогидных кристаллофосфорах при поглощении энергии ионизирующей частицы, и, возможно, спорности использованного механизма сцинтилляций изложенные результаты позволяют сделать следующие выводы.

1. Изучение фронта нарастания гамма-сцинтилляций NaJ-Tl при комнатной температуре указывает на сложную структуру фронта. Структура фронта нарастания допускает аналитическое описание при использовании простого двухкаскадного механизма преобразования поглощенной энергии в энергию испускаемых фотонов (модель Муррея и Мейера, модифицированная для описания фронта нарастания).

2. Обсуждаемая модель позволяет описать зависимость удельного светового выхода от удельной плотности ионизации без привлечения эффекта насыщения активаторных центров.

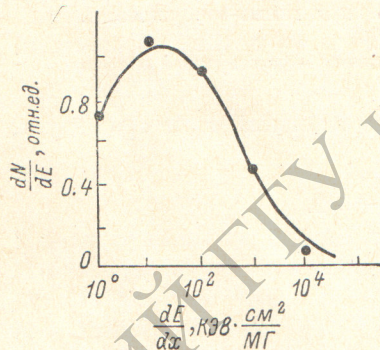


Рис. 2. Зависимость удельного светового выхода NaJ-Tl от плотности ионизации.

Сплошная кривая — экспериментальные данные [13], точки — рассчитанные значения.

3. Согласно полученным результатам, фронт нарастания NaJ-Tl при гамма-возбуждении и комнатной температуре определяется процессами передачи энергии к центрам высвечивания, при этом время жизни электронно-дырочных пар короче минимального времени, доступного для измерения, а время жизни экситонов составляет $4 \cdot 10^{-9}$ сек.

Литература

- [1] F. S. Eby, W. K. Jentschke. Phys. Rev., 96, 911, 1954.
- [2] W. J. Van Sciver. IRE Trans. Nucl. Sci., NS-3, № 4, 39, 1956.
- [3] W. J. Van Sciver. IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-13, № 3, 1966.
- [4] Э. Х. Реало, Т. А. Соовик. Тр. ИФА АН ЭССР, 31, 275, 1966.
- [5] Т. А. Соовик. Элементарные механизмы радиолуминесценции активированных ионных кристаллов. Автореф. канд. дисс., Тарту, 1967.
- [6] W. R. Wall, K. J. Roulston. IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-15, 153, 1968.
- [7] M. P. Fontana, H. Blume, W. J. Van Sciver. Phys. Stat. Sol., 29, 159, 1968.
- [8] H. Blume, M. P. Fontana, W. J. Van Sciver. Phys. Stat. Sol., 31, 133, 1969.
- [9] Frank J. Luncb. IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-13, № 3, 140, 1966.
- [10] И. К. Плявинь. Опт. и спектр., 7, 71, 1959.
- [11] А. Тоjo. Nucl. Instr. and Methods, 50, 38, 1967.
- [12] И. Р. Гулаков, А. Н. Перцев. Опт. и спектр., 35, 492, 1973.
- [13] R. B. Murray, A. Meyer. Phys. Rev., 122, 815, 1961.
- [14] Л. Е. Нагли. Изв. АН ЛатвССР, сер. физ. и техн. наук, 2, 50, 1966.
- [15] Ю. Г. Будяшов, В. Г. Зинов. ПТЭ, 4, 102, 1968.
- [16] В. А. Григорьев, В. К. Ляпидевский, И. М. Ободовский, В. В. Рыльцов. ПТЭ, 5, 97, 1966.

Поступило в Редакцию 2 февраля 1972 г.