

ISSN 1025-8817



**O'ZBEKISTON
FIZIKA JURNALI**

**UZBEK JOURNAL
OF PHYSICS**

**Volume 18
Number 1
2016**

**O'zbekiston Respublikasi
Fanlar Akademiyasi
Academy of Sciences
of the Republic of Uzbekistan**



ISSN 1025-8817

O'ZBEKISTON FIZIKA JURNALI

1957 yilda tashkil topgan
Yilda 6 marta chiqadi

**UZBEK
JOURNAL OF PHYSICS**

Founded in 1957
Published 6 times a year

**УЗБЕКСКИЙ
ФИЗИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ**

Основан в 1957 г.
Выходит 6 раз в год

Volume 18

Number 1

January- February 2016

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ:

Э.А. ЗАХИДОВ (главный редактор),
Д.Т. АЛИМОВ, М.Х. АШУРОВ, Х. Б. АШУРОВ (зам. гл. редактора),
С.А. БАХРАМОВ, Э.М. ИБРАГИМОВА, С.Л. ЛУТПУЛЛАЕВ,
Р.А. МУМИНОВ (зам. гл. редактора), Г.И. МУХАМЕДОВ, У.Х. РАСУЛЕВ,
У.С. САЛИХБАЕВ, Ф.Т. УМАРОВА (ответственный секретарь),
У.Н. ТАШКЕНБАЕВ, Ш.А. ЭГАМБЕРДЫЕВ

Адрес редколлегии:

*100125 Ташкент, Мирзо Улугбекский р-н, ул. Дурмон йўли, 33
Институт ионно-плазменных и лазерных технологий АН РУз
Тел. 998-71-262-79-40*

О'zbekiston Respublikasi Fanlar Akademiyasi
Академия наук Республики Узбекистан

© Академия наук Республики Узбекистан, Ташкент, 2016

СОБСТВЕННАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ КРИСТАЛЛОВ BaFCl И BaFI

И. Нуритдинов¹, А.Б. Утениязова², Б.Т. Аташов²¹Институт ядерной физики АН РУз, Улугбек, Ташкент, Узбекистан²Нукусский государственный педагогический институт им. Ажинияза, Нукус, Узбекистан
(Получена 28.05.2015)

Рентгенолюминесценция (РЛ), гамма-люминесценция (ГЛ) ва катодолюминесценциялари (КЛ) ўрганиш асосида BaFCl ва BaFI кристалларининг хусусий люминесценциялари тадқиқ этилди. BaFI кристаллари учун максимуми 300–340 нм да бўлган, BaFCl кристаллари учун 360–365 нм да бўлган люминесценция полосалари ($V_k + e^-$) кўринишидаги автолокаллашган экситонлар билан боғлиқ эканлиги аниқланди.

Исследована собственная рекомбинационная люминесценция на основе изучения рентгенолюминесценции (РЛ), гамма-люминесценции (ГЛ) и термолюминесценции (ТЛ) кристаллов BaFX (X=Cl и I). Установлено, что полосы люминесценции с максимумами в области 300–340 нм для кристаллов BaFI и 360–365 нм для кристаллов BaFCl обусловлены свечением автолокализованных экситонов в виде ($V_k + e^-$).

The intrinsic recombination luminescence based on the study of X-ray luminescence (RL), gamma-luminescence (GL) and thermoluminescence (TL) of BaFX crystals (X = Cl and I) was investigated. It was found that the luminescence bands with a maximum at 300–340 nm for BaFI crystals and 360–365 nm for BaFCl crystals were caused by emission of self-trapped excitons in the form of ($V_k + e^-$).

Введение. Кристаллы BaFX (X=Cl, Br, I) являются одними из наиболее эффективных рентгенолюминофоров, обладающих более благоприятными по отношению к несенсибилизированной пленке спектром излучения и более эффективным поглощением рентгеновского излучения [1-3]. Они также применяются как запоминающие люминофоры [4]. Последнее свойство люминофоров широко используется для изготовления запоминающих рентгеновских экранов (imaging plate) в медицине, биологии, физике. Эти кристаллы также находят применение в дозиметрии как детекторы мягкого рентгеновского излучения, в электронной микроскопии, в системах хранения информации [5]. В медицине использование таких запоминающих экранов позволяет значительно уменьшить лучевую нагрузку на пациента при рентгеновской диагностике [1, 2, 5].

Люминесцентные свойства кристаллов этого класса наиболее подробно исследованы в нелегированных и легированных различными примесями кристаллах BaFCl [1, 2, 6-16], в некоторой степени в кристаллах BaFBr [5, 14-19]. В этом плане кристаллы BaFI исследованы слабо. Нам известны лишь несколько работ [н-р, 3, 15, 16, 19], в которых приводятся некоторые сведения о люминесцентных свойствах кристаллов BaFI. В настоящей работе систематически исследована собственная рекомбинационная люминесценция кристаллов BaFCl и BaFI.

Методика исследования. Рекомбинационная люминесценция исследована на основе изучения рентгенолюминесценции (РЛ), гамма-люминесценции (ГЛ) и

термолюминесценции (ТЛ) кристаллов $BaFX$ ($X=Cl$ и I), выращенных в ВНИСИМС (г. Александров) в автоклаве гидротермальным способом в 20% растворителе KOH . В качестве шихты использованы порошки BaF_2 , BaI_2 марки «Ч». Давление в автоклаве – 300 атм, температура растворения – $290^\circ C$, температура кристаллизации – $210^\circ C$.

Для измерения спектров РЛ, ГЛ и ТЛ из выращенных кристаллов по плоскости спайности откалывали пластины толщиной 0.5–1 мм перпендикулярно оси C . Спектры люминесценции измеряли в диапазоне 200–800 нм на спектрофлюориметре, собранном на базе монохроматоров МСД-2 и СПМ-2. Гамма-облучение проводили на гамма-установке ИЯФ АН РУз при мощности 590–1200 Р/с дозами 105–108 Рад при температуре канала ≈ 330 К.

При снятии спектров РЛ возбужденная рентгеновскими лучами люминесценция падала на монохроматор, на выходе которого при помощи ФЭУ-19 и ФЭУ-39 регистрировалось излучение. Источником рентгеновского излучения являлся РУП-120 (120 кВ, 5 мА).

Гамма-люминесценцию кристаллов исследовали на установке, несколько видоизмененной по сравнению с описанной в работе [20]. Светопровод для снятия ГЛ изготовлен из алюминиевой трубки, имеющей высокий коэффициент отражения (90%), слабо зависящий от длины волны в исследуемом диапазоне. К концу светопровода прикрепляли держатель для образца, а последний при низкотемпературных ($T < 273$ К) измерениях помещали в сосуд Дьюара и охлаждали до 77 К. Термолюминесценцию кристаллов при температуре 77–500 К исследовали в специальной печи, снабженной термометром. Скорость нагрева – 6–8 град/мин.

Результаты исследования и их обсуждение. В спектрах рентгенолюминесценции (РЛ), гамма-люминесценции (ГЛ), и термолюминесценции (ТЛ) кристаллов $BaFCl$ и $BaFI$ при комнатной температуре обнаружены широкие полосы свечения с максимумами при 365 и 325 нм соответственно и несколько слабо интенсивных полос (рис. 1).

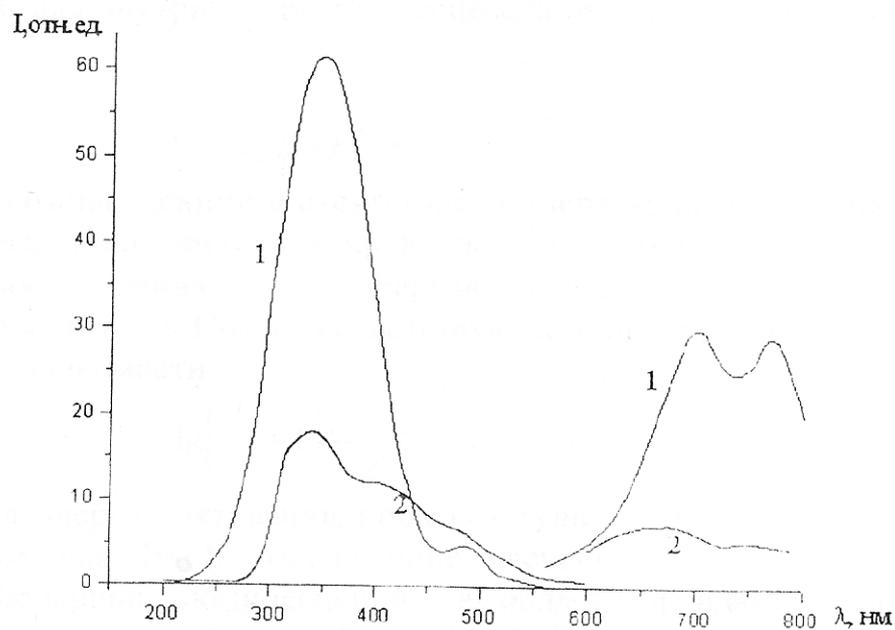


Рис. 1. Спектры РЛ нелегированных кристаллов $BaFCl$ (1) и $BaFI$ (2) при 300 К.

При понижении температуры от комнатной до температуры жидкого азота эти полосы сужаются, их интенсивности увеличиваются вплоть до температуры ~ 200 К для кристаллов ВаFCl и ~ 150 К для ВаF1 и ниже этой температуры интенсивности излучений практически не изменяются (рис. 2).

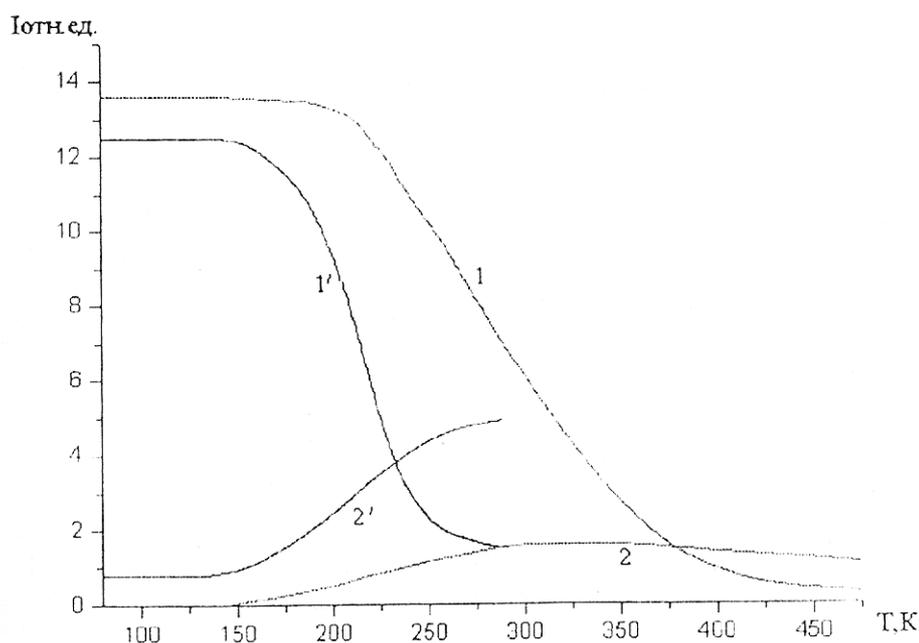


Рис. 2. Температурные зависимости интенсивности РЛ для нелегированных кристаллов ВаFCl (1, 2) и ВаF1 (1', 2') на максимумах свечения в области 360–365 нм (1), 300–340 нм (1'), 700–770 нм (2) и 640–700 нм (2').

Максимумы полосы при охлаждении до 77 К сдвигаются в коротковолновую сторону. При этом интенсивности всех остальных полос люминесценции сильно уменьшаются (рис. 2, кривые 2 и 2'). Зависимости интенсивности свечения полос 365 и 325 нм от температуры возбуждения $I(T)$ в области температурного тушения имеют вид, характерный для внутрицентровых процессов, и хорошо описываются формулой Мотта [21]:

$$I = \frac{I_0}{1 + a \exp(-E_t / kT)},$$

где I_0 – интенсивность люминесценции в отсутствие температурного тушения, I – интенсивность люминесценции при фиксированной температуре в области температурного тушения свечения, E_t – энергия активации тушения, a – коэффициент пропорциональности. После соответствующего преобразования этого уравнения и построения зависимости

$$\lg\left(\frac{I_0}{I} - 1\right) \sim \frac{1}{T}$$

(рис. 3) была вычислена энергия активации процесса тушения $E_t = 0.24$ эВ для ВаFCl и $E_t = 0.20$ эВ для ВаF1. Аналогичное свечение наблюдается при фотовозбуждении стационарной люминесценции в области фундаментального поглощения нелегированных кристаллов. Свечение более эффективно возбуждается на экситонных полосах кристаллов (рис. 4). В области прозрачности эти свечения не возбуждаются.

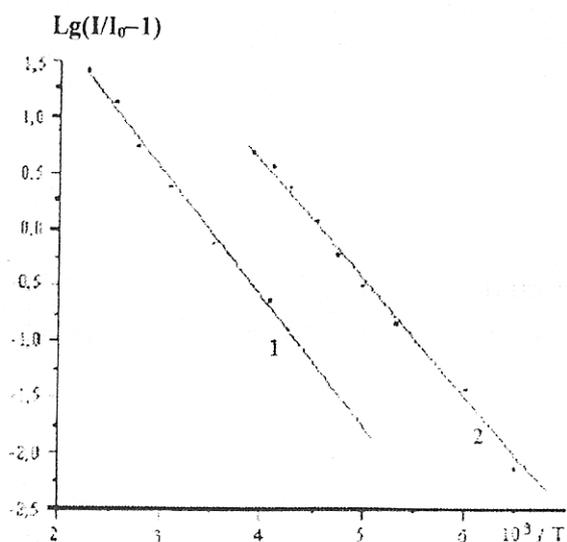


Рис. 3. Температурные зависимости интенсивностей ГЛ и РЛ на полосах 360–365 нм для кристалла BaFCl (1) и 300–340 нм для кристалла BaFI (2).

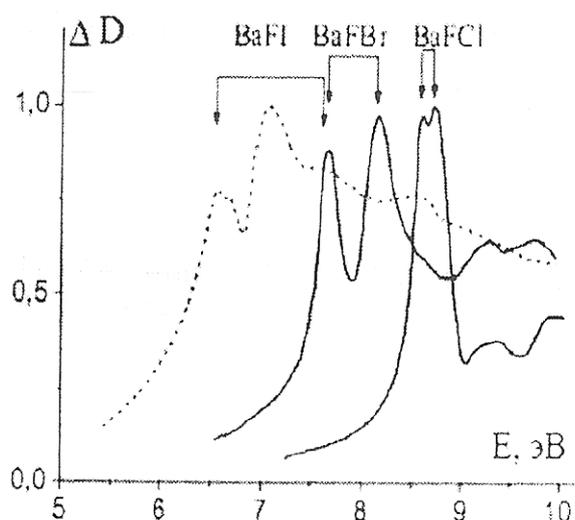


Рис. 4. Спектры фундаментального поглощения кристаллов BaFX (по [14]). Стрелками показаны максимумы экситонных полос кристаллов.

Интенсивности свечения с максимумом 360–365 и 300–340 нм зависят от наличия собственных дефектов структуры и сильно уменьшаются при увеличении дозы γ -облучения $D_\gamma > 5 \times 10^6$ рад (рис. 5), т.е. при дозах, когда наблюдается эффективное создание радиационных дефектов типа F - и V -центров (см. [22, 23]). Не было обнаружено корреляции этого свечения с концентрацией определенных примесей в структуре BaFX. Все эти данные свидетельствуют, что люминесценция в полосах 360–365 нм для BaFCl и 300–340 нм для BaFI относится к собственному свечению основы кристаллов и не связана со структурными дефектами и примесями.

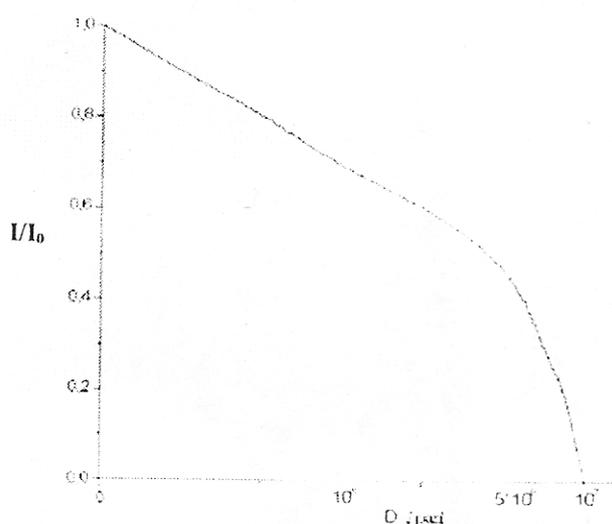


Рис. 5. Дозовая зависимость интенсивности РЛ нелегированного кристалла BaFI при комнатной температуре на полосе ГЛ 340 нм.

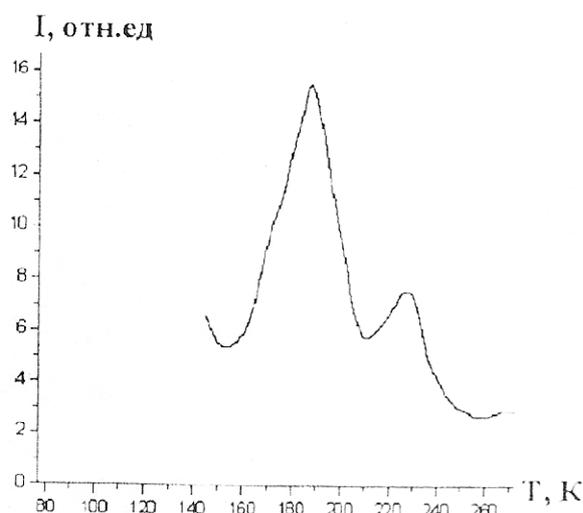


Рис. 6. Кривые ТВ нелегированного кристалла BaFI.

В кривых ТЛ нелегированных кристаллов содержится пик с максимумом в области $\sim 180^\circ\text{C}$ (рис. 6), спектральный состав которого состоит из полосы люминесценции 360 и 340 нм соответственно для кристаллов BaFCl и BaFBr. Энергии активации этих пиков, вычисленные методом Ч.Б.Лушика, равны $E_a = 0.24$ и 0.20 эВ, которые соответствуют энергиям активации тушения полос люминесценций 365 и 325 нм, определенным по формуле Мотта. Интенсивности этих пиков ТЛ уменьшаются при больших дозах γ -облучения.

Собственная рекомбинационная люминесценция кристаллической основы с подобной температурной зависимостью хорошо известна для щелочно-галогидных кристаллов [21], щелочноземельных фторидов [24] и для оксидных материалов [25-27]. Природа этой люминесценции в указанных матрицах надежно установлена: свечение появляется при излучательной аннигиляции автолокализованного экситона, возникающего при рекомбинации электрона с V_k -центрами. Поскольку такая рекомбинация может произойти в любом месте решетки, то, несмотря на подвижность V_k -центров при $T > T_{кр}$ ($T_{кр}$ – критическая температура, при которой автолокализованные дырки становятся подвижными), миграционные потери отсутствуют, и зависимость интенсивности люминесценции от температуры имеет вид, характерный для внутрицентровых процессов, и описывается формулой Мотта [21].

Учитывая все вышесказанное, с уверенностью можно утверждать, что свечение с максимумом в 360–365 нм и 300–340 нм в спектрах ГЛ, РЛ и ТЛ кристаллов BaFCl и BaFBr соответственно обусловлено излучательным распадом автолокализованных экситонов типа $(V_k + e^-)$.

Заключение. На основе исследования характеристик рекомбинационной люминесценции кристаллов установлено, что свечение с максимумом в 300–340 нм для BaFBr и 360–365 нм для BaFCl обусловлено свечением автолокализованных экситонов в виде $(V_k + e^-)$.

Работа выполнена при поддержке гранта Республики Узбекистан № Ф2-ФА + Ф118.

ЛИТЕРАТУРА

1. А.М. Гурвич, В.Б. Гутан, М.А. Ильина, В.П. Кавторова, Р.В. Катомина, М.Г. Мягова и Т.И. Савихина, Оптика и спектроскопия 52, 289 (1982).
2. А.М. Гурвич. В сб: Спектроскопия кристаллов (Ленинград, Наука, 1985), с. 59.
3. G. Gundiah, E. Bourret-Courchesne, G. Bizarri, S.M. Hanrahan, A. Chaudhary, A. Canning, W.W. Moses, S.E. Derenzo. In: Nuclear Science Conference Record (Orlando, USA, 24 October-1 November, 2009), p. 1575.
4. H. Nanto, T. Araki, M. Daimon, E. Kusano, A. Kinbara, K. Kawabat, and Y. Nakano, Radiation Protection Dosimetry 100, 385 (2002).
5. А.А. Шалаев, У.А. Раджабов. In: Proceedings of XII International Conference on Radiation Physics and Chemistry of Inorganic Materials (Tomsk, Russia, 23-27 September, 2003), p.542.
6. Б.Т. Аташов. Дисс. ... канд. физ.-мат наук (Ташкент, 1999), 153с.
7. И. Нуритдинов, Б. Есемуратов, Б.Т. Аташов. Тезисы докладов IV Международной школы-симпозиума «Физика и химия твердого тела» (Благовещенск, Россия, 11-13 мая, 1994), с.12.

8. И. Нуритдинов, Б.Т. Аташов. Тезисы докладов Международной конференции «Современные проблемы физики полупроводников и диэлектриков» (Ташкент, Узбекистан, 20-22 декабря, 1995), с.107.
9. И. Нуритдинов, Б.Т. Аташов, Ким Ген Чан, Атомная энергия **85**, 248 (1998).
10. Ш.А. Вахидов, И. Нуритдинов, Б.Т. Аташов. In: Proceedings of Intern. Conf. "Space Research, Techn. and Conversion" (Tashkent, Uzbekistan, 12-14 May 1999), p. 80.
11. I. Nuritdinov, B.T. Atashov. In: Book of Abstracts of Int.conf. "Modern Problems of Nuclear Physics" (Bukhara, Uzbekistan, 23-27 August, 1999), p. 328.
12. Wie Chen, N. Kristapoller, A. Shmilevich, J. Phys. Chem., В **109**, 11505 (2005).
13. E.A. Radzhabov and A.V. Egranov, J. Phys.: Condens. Matter **6**, 5639 (1994).
14. E.A. Radzhabov. In: Proceedings of the Third International Conference on Excitons Processes in Condensed Matter. Volume **98**, No 25 (Pentagon, New Jersey, USA, 1998), p.409.
15. Su. Mianzeng. In: New Front in Rare Earth Science and Applications (Beijing, China, 1985), p.757.
16. K. Takahashi, J. Miyahara, Y. Shibahara, J. Electrochem. Soc. **132**, 1492 (1985).
17. N. Subramanian, R. Kesavamoorthy, K. Govinda Rajan, Mohammad Yousuf, Santanu Bera, and S.V. Narasimhan, Phys.: Condens. Matter **9**, 4769 (1997).
18. T. Hangleiter, F.K. Koschnick, J-M. Spaeth, R.H.D. Nuttall, and R.S. Eachus, J. Phys.: Condens. Matter **2**, 6837 (1990).
19. K. Govinda Rajan and A. Jestin Lenus, Indian Academy of Sciences **65**, 323 (2005).
20. Б. Каипов, Ш.А. Вахидов. В сб: Радиационные явления в диэлектриках и полупроводниках (Ташкент, Фан, 1968), с.336.
21. Э.Д. Алукер, Д.Ю. Лусис, С.А. Чернов. Электронные возбуждения и радиолюминесценция щелочногаллоидных кристаллов (Рига, Зинатне, 1979).
22. И. Нуритдинов, Б.Т. Аташов, Ким Ген Чан, Узбек. физич. журн. **1**, 35 (1999).
23. И. Нуритдинов, Б.Т. Аташов, А.Б. Утениязова, К.Турданов, Неорганические материалы **47**, 884 (2011).
24. J.A. Beaumont, W. Hayes, G.P. Summers, J.W. Twiddel, Pros. Roy. Soc. A **315**, 69 (1970).
25. Sh.A. Vakhidov, E.M. Ibragimova, I. Nuritdinov, A.F. Rakov, G.I. Ikramov, Phys. Stat. Sol. (b) **106**, 31 (1981).
26. А.И. Кузнецов, В.Н. Арамов, Н.С. Розе, Е.И. Савихина, Письма в ЖТФ **28**, 652 (1978).
27. А.Н. Трухин, А.Э. Плаудес, ФТТ **21**, 1109 (1979).