

I S S N 0021–3411

ИЗВЕСТИЯ
ВЫСШИХ УЧЕБНЫХ ЗАВЕДЕНИЙ

ФИЗИКА

ФИЗИКА ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ЧАСТИЦ И ТЕОРИЯ ПОЛЯ

ФИЗИКА ПОЛУПРОВОДНИКОВ И ДИЭЛЕКТРИКОВ

ФИЗИКА КОНДЕНСИРОВАННОГО СОСТОЯНИЯ

ФИЗИКА МАГНИТНЫХ ЯВЛЕНИЙ

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

КВАНТОВАЯ ЭЛЕКТРОНИКА

ФИЗИКА ПЛАЗМЫ

11/3·2011

ИЗДАНИЕ
ТОМСКОГО ГОСУНИВЕРСИТЕТА

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

Багров В.Г., д.ф.-м.н., профессор; Войцеховский А.В., д.ф.-м.н., профессор;
Гаман В.И., д.ф.-м.н., профессор (зам. гл. редактора); Дударев Е.Ф., д.ф.-м.н.,
профессор (зам. гл. редактора); Жуковский В.Ч., д.ф.-м.н., профессор;
Звягин И.П., д.ф.-м.н., профессор; Кайгородов В.Р., д.ф.-м.н., профессор;
Карацаев Г.Ф., д.ф.-м.н., профессор; Коноров П.П., д.ф.-м.н., профессор;
Кортаев А.Д., д.ф.-м.н., профессор; Майер Г.В., д.ф.-м.н., профессор;
Осипов А.И., д.ф.-м.н., профессор; Панин В.Е., д.ф.-м.н., академик РАН;
Петраковский Г.А., д.ф.-м.н., профессор; Портнова Т.С., к.ф.-м.н.
(отв. секретарь); Потекаев А.И., д.ф.-м.н., профессор (гл. редактор);
Ушаков В.Я., д.ф.-м.н., профессор

К сведению авторов!

Ссылку на это издание следует оформлять следующим образом:

Автор(ы) // Изв. вузов. Физика. – 2011. – № 11/3. – С. ...

Сведения о журнале можно найти на сайте в Интернете:

<http://www.ntl.tomskinvest.ru>

Электронную версию журнала «Известия вузов. Физика» смотрите: <http://www.elibrary.ru>

Электронную версию Russian Physics Journal (перевод на английский язык журнала «Известия вузов. Физика») смотрите: www.springer.com/11182; www.springerlink.com/content/1573-9228

Свидетельство о регистрации ПИ № 77-11546 от 4 января 2002 г.

Старший редактор *Н. И. Шидловская*
Верстка *Л. В. Пермяковой*

Сдано в набор 21.10.2010 г. Подписано к печати 21.12.2011 г.
Формат 60×84¹/₈. Бум. книжно-журнальная. Гарнитура Таймс. Печать офсетная.
Усл. п. л. 43,71. Усл. кр.-отг. 44,06. Уч.-изд. л. 48,96.
Тираж 100 экз. Заказ № 14.

Адрес редакции: 634050, г. Томск, пл. Ново-Соборная, 1, Сибирский физико-технический институт,
редакция журнала «Известия высших учебных заведений. Физика», тел. 53-33-35

Отпечатано в типографии ЗАО «М-Принт», г. Томск, ул. Пролетарская, 38/1

УДК 535.375

Л.А. ЛИСИЦЫНА*, В.И. КОРЕПАНОВ**, Л. ТРЕФИЛОВА***, В.М. ЛИСИЦЫН**, А.А. АБДРАХМЕТОВА****,
А.Т. АКЫЛБЕКОВ****, А.К. ДАУЛЕТБЕКОВА****

ВЛИЯНИЕ ПРЕДВАРИТЕЛЬНОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЮ КИСЛОРОДСОДЕРЖАЩИХ КРИСТАЛЛОВ LiF

Методами импульсной спектроскопии с наносекундным временным разрешением в температурном интервале 15–300 К исследованы спектрально-кинетические характеристики фото- и катодолюминесценции в спектральной области 3,7–1,6 эВ различных кислородсодержащих кристаллов LiF: LiF–O, LiF–OH и LiF–OH(WO₃), облученных импульсами электронов в интервале поглощенных доз 10²–10⁴ Гр.

Ключевые слова: импульсная спектроскопия, спектральная область, кислородные примеси.

Введение

В последнее десятилетие в качестве детекторов излучения получили широкое применение такие сцинтилляционные материалы, как вольфраматы, молибдаты, ванадаты (см., например, [1, 2]), основные достоинства которых – высокий световой выход, большая плотность, определяющая минимальный размер сцинтиллятора, и низкий собственный радиационный фон, дающий возможность исследования редких событий.

В перечисленных материалах свечение инициируется в спектральной области 2,5–3,5 эВ удобной для измерения ФЭУ и фотодиодами. Известно, что в этой же спектральной области возбуждается люминесценция и в кислородсодержащих щелочно-галоидных кристаллах [3–5]. Ближние значения спектрально-кинетических параметров возбуждаемого свечения в кислородсодержащих материалах, различных как по типу кристаллической решетки, так и по типу соактиваторов, свидетельствуют о том, что в составе излучательных центров присутствует кислород.

Сложность идентификации структуры кислородсодержащих дефектов в материалах, отсутствие контроля исходной дефектности выращенных кристаллов, ограниченный объем информации о свойствах возбуждаемого свечения не позволили до настоящего времени описать ни механизм возбуждения свечения, ни строение излучательных кислородсодержащих центров.

В настоящей работе представлены результаты исследований активированных кристаллов LiF трех типов: LiF–O, LiF–OH и LiF–OH(WO₃). Сравнительный анализ исследованных материалов дает возможность выявить влияние типа кислородной примеси в решетке и сопутствующих дефектов (поливалентные ионы вольфрама) на излучательные характеристики материала.

Объект и методы исследований

Исследовались кристаллы фтористого лития трех типов: LiF, активированные Li₂O (тип 1), кристаллы LiF, активированные гидроокисью (тип 11), выращенные методом Стокбаргера в Государственном оптическом институте (Санкт-Петербург) и кристаллы LiF, активированные окисью вольфрама, выращенные методом Киропулоса в Институте монокристаллов НАН Украины, Харьков (тип 111). Концентрация вольфрама определялась химическим методом и составила 0,02 вес. %.

Граница прозрачности всех кристаллов – 6 эВ. В вакуумной ультрафиолетовой области спектры оптического поглощения (СОП) всех кристаллов были одинаковыми и состояли из нескольких максимумов при 10,6; 9,05; 7,3 и 6,2 эВ.

В ИК-спектрах пропускания необлученных кристаллов LiF–O присутствовала дублетная линия в области 0,36 эВ. В спектрах кристаллов LiF–OH и LiF–OH(WO₃) (рис. 1) кроме дублетной области 0,36 эВ присутствовал ряд узких полос в области 0,45 эВ, обусловленных различными дород-кислородными соединениями: OH⁻, Me–OH⁻, NOF, НОО, H₂O₂ [6–8].

Концентрация свободных ионов гидроксида в решетке оценивалась по интенсивности полосы 0,46 эВ при величине силы осциллятора равной 0,042 [9] и по нашим оценкам составляла в различных кристаллах от $3 \cdot 10^{16}$ до $1 \cdot 10^{18}$ см⁻³.

Общая концентрация кислорода в кристалле определялась протон-активационным методом и изменялась в диапазоне $1 \cdot 10^{-4}$ – $2,5 \cdot 10^{-3}$ вес. %.

Спектры оптического поглощения кристаллов (СОП) в диапазоне 6–1,5 эВ измерялись на спектрофотометре СФ-256, спектры пропускания (СП) в диапазоне 0,5–0,15 эВ измерялись на спектрометре Perkin-Elmer 4617R.

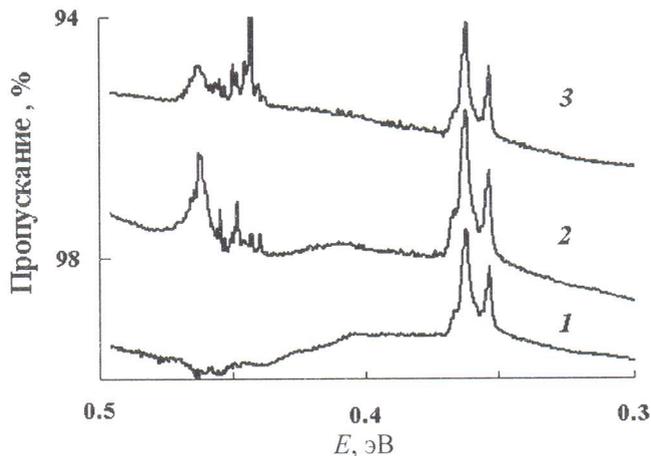


Рис. 1. Спектры пропускания необлученных кристаллов LiF–O (кр. 1), LiF–OH(WO₃) (кр. 2) и LiF–OH (кр. 3)

Импульсная катодолуминесценция (ИКЛ) кристаллов измерялась в спектральной области 3,7–1,6 эВ, а импульсная фотолуминесценция (ИФЛ) в области 3–1,6 эВ. Кристаллы при измерениях были либо необлучены, либо предварительно облучены серией импульсов электронов (ИЭ) в диапазоне поглощенных доз 10^2 – 10^4 Гр. ИКЛ возбуждалась ИЭ в температурном диапазоне 15–300 К. Параметры ИЭ: длительность импульса – 10 нс, средняя энергия электронов – 250 кэВ. ИФЛ возбуждалась четвертой гармоникой лазера Nd–GNY (4,66 эВ) с длительностью импульса 5 нс и энергией за импульс 40 мДж.

Интенсивность свечения регистрировалась через монохроматор МДР-206 фотоумножителем ФЭУ-97. Спектры не пересчитывались на чувствительность ФЭУ. Кинетические кривые люминесценции на выбранной длине волны записывались осциллографом LeGroy-WP-6030 во временном интервале $1 \cdot 10^{-8}$ – $1 \cdot 10^{-3}$ с после окончания действия возбуждающего импульса.

Кинетика затухания люминесценции в полосе с максимумом при E_j описывалась функцией вида $J(E_j, t) = \sum J_{0i}(E_j) \exp(-t/\tau_i)$, где $J_{0i}(E_j)$ и τ_i – амплитудное значение интенсивности i -го компонента люминесценции и величина его характеристического времени затухания соответственно. Спектр свечения i -го компонента затухания люминесценции измерялся как зависимость $J_{0i} = f(E)$.

Временное разрешение измерительного тракта импульсного оптического спектрометра – 20 нс, спектральное разрешение – 2 нм.

Результаты исследований

Вид спектров ИФЛ необлученных кристаллов LiF–O и LiF–OH, измеренных через 10 мкс после воздействия лазерного импульса, одинаков и состоит из монополосы 3,1 эВ с полушириной при 300 К, равной 0,5 эВ, и совпадает с данными по стационарным исследованиям, например [10]. В спектре ИФЛ необлученных кристаллов LiF, активированных окисью вольфрама, присутствует широкая полоса в области 2,7 эВ с полушириной 0,8 эВ при 300 К (рис. 2).

Облучение серией импульсов электронов при $T > 250$ К приводит к радиационному созданию и накоплению электронных центров окраски (ЦО) в кристаллах всех трех типов. Короткоживущие спектры ИФЛ всех кристаллов имеют одинаковый вид и состоят из полосы 3,1 эВ и полос с мак-

симумами при 2,33 и 1,85 эВ, которые обусловлены излучательными переходами в F_3^+ - и F_2^- центрах соответственно (рис. 2).

Спектры долгоживущего компонента затухания ИФЛ всех кристаллов до облучения и после облучения совпадают. Для кристаллов $\text{LiF-OH}(\text{WO}_3)$ существует особенность: после воздействия радиации широкая полоса в области 2,7 эВ разделяется на две с положением максимумов при 3 и 2,6 эВ с полуширинами 0,5 эВ каждая. На рис. 2 для примера приведены спектры ИФЛ кристаллов LiF-O и $\text{LiF-OH}(\text{WO}_3)$, измеренные с различной временной задержкой относительно окончания действия импульса возбуждения.

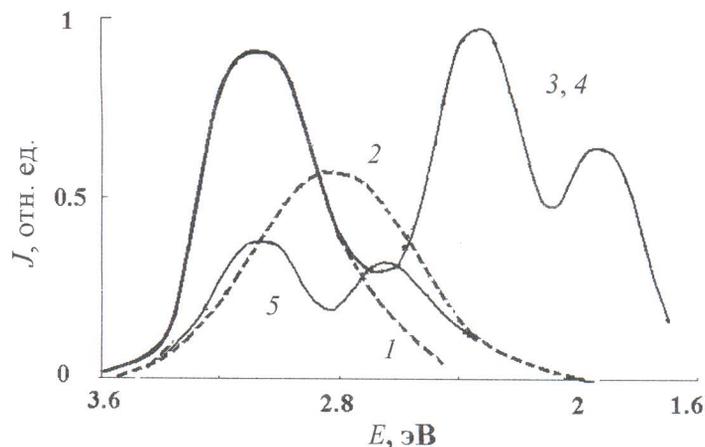


Рис. 2. Спектры ИФЛ необлученных (кр. 1, 2) и облученных ($D = 10^3$ Гр) (кр. 3–5) кристаллов LiF-O (кр. 1, 3) и $\text{LiF-OH}(\text{WO}_3)$ (кр. 2, 4, 5), измеренные при 300 К с различной временной задержкой относительно окончания действия лазерного импульса: 10 нс (кр. 3, 4), 10 мкс (кр. 1, 2, 5). Кр. 1, 4 нормированы

СОП облученных кристаллов всех трех типов одинаковые и состоят из полос поглощения, обусловленных электронными ЦО (F , F_2^+ , F_2 , F_3^+ , F_3). Однако эффект воздействия радиации на СП кристаллов различен. Так, в спектрах поглощения кристаллов LiF-OH и $\text{LiF-OH}(\text{WO}_3)$ с ростом дозы облучения наблюдается уменьшение пропускания всех полос в области 0,45 эВ, возникает новая широкая полоса на 0,27 эВ и уменьшается пропускание дублета в области 0,36 эВ. При этом в кристалле LiF-O , прозрачном в области 0,45 эВ, наблюдаются только два последних радиационных эффекта.

Различия в процессах, протекающих в поле радиации в кристаллах прозрачных и непрозрачных в области 0,45 эВ, были выявлены нами при исследовании ИКЛ этих кристаллов.

Установлено, что спектральный состав короткоживущего компонента затухания в спектре ИКЛ отличается от долгоживущего компонента затухания ИКЛ в каждом из исследованных кристаллов. Спектр наносекундного компонента ИКЛ облученного кристалла LiF-O , как и в [11], состоит из полос 3,7 и 3,1 эВ (полосы синего свечения) с полушириной каждой из полос равной 0,4 эВ и полос 2,33 и 1,85 эВ, обусловленных F_3^+ - и F_2^- -центрами окраски. То есть спектры ИКЛ и ИФЛ кристалла LiF-O в наносекундном временном интервале отличаются присутствием в спектре ИКЛ дополнительной полосы с максимумом при 3,7 эВ.

Спектр ИКЛ кристалла LiF-O , измеренный через 10 мкс после окончания действия ИЭ, состоит из полосы 3,1 эВ с полушириной 0,5 эВ, как и спектр ИФЛ этого кристалла до облучения.

Спектры наносекундного компонента ИКЛ облученных при 300 К кристаллов LiF-OH и $\text{LiF-OH}(\text{WO}_3)$ при 300 К представляют собой наложение двух типов спектров: спектра, обусловленного центрами окраски и электронно-колебательного спектра (ЭКС), состоящего из совокупности хорошо разрешенных узких эквидистантных полос с огибающей, имеющей максимум при 2,5 эВ. Эквидистантные полосы являются компонентами ЭКС, впервые обнаруженного нами в кислородсодержащих кристаллах LiF при 15 К в [12]. При $T < 250$ К, когда эффективность создания сложных ЦО в кристаллах LiF мала, облучение кристаллов LiF-OH и $\text{LiF-OH}(\text{WO}_3)$ электронами инициирует появление только ЭКС (рис. 3). На рис. 3 приведены спектры облученных при 200 К кристаллов, измеренные при 15 К с различной временной задержкой по отношению к окончанию действия ИЭ.

Установлены следующие свойства инициированного воздействием радиации спектра ЭКС в кислородсодержащих кристаллах LiF:

- 1) ЭКС не возникает при облучении электронами кристаллов LiF-O.
- 2) ЭКС кристаллов LiF-OH и LiF-OH(WO₃) одинаковы и состоят при 15 К из восьми узких эквидистантных полос с расстоянием между соседними полосами 0,15 эВ. Положение максимума огибающей находится в области 2,5 эВ в спектре каждого кристалла.
- 3) Величина характеристического времени затухания ЭКС одинакова в кристаллах типов II и III, равна 100 нс при 15 К и уменьшается до 50 нс при 300 К.

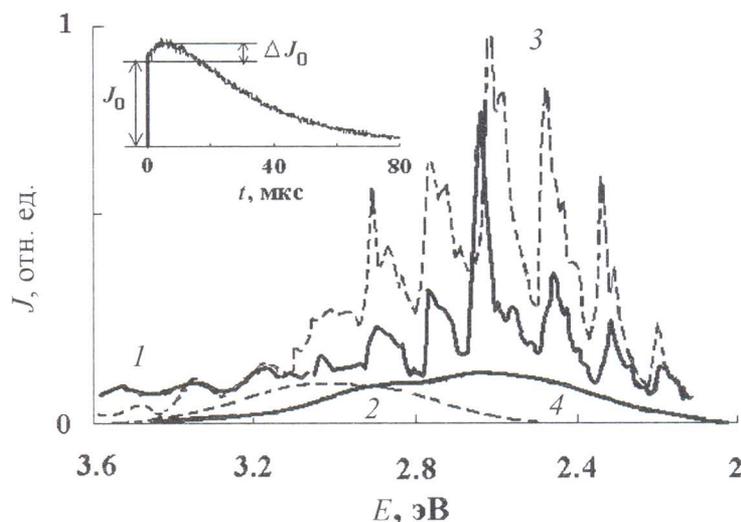


Рис. 3. Спектры наносекундного (кр. 1, 3) и микросекундного компонента ИКЛ (кр. 2, 4) при 15 К кристаллов LiF-OH (кр. 1, 2) и LiF-OH(WO₃) (кр. 3, 4), облученных при 200 К. На вставке: кинетика разгорания ИКЛ на 2,8 эВ при 300 К в кристалле LiF-OH(WO₃)

4) В области 15–100 К интенсивность всех полос ЭКС не зависит от величины поглощенной дозы, а в температурном интервале 150–300 К линейно увеличивается с тенденцией к насыщению при $D > 10^4$ Гр. На рис. 4 представлены, для примера, дозные зависимости интенсивности полосы 2,59 эВ ЭКС кристаллов обоих типов при 200 К, ΔJ – прирост интенсивности полосы в спектре ИКЛ каждого из кристаллов в указанном диапазоне поглощенных доз.

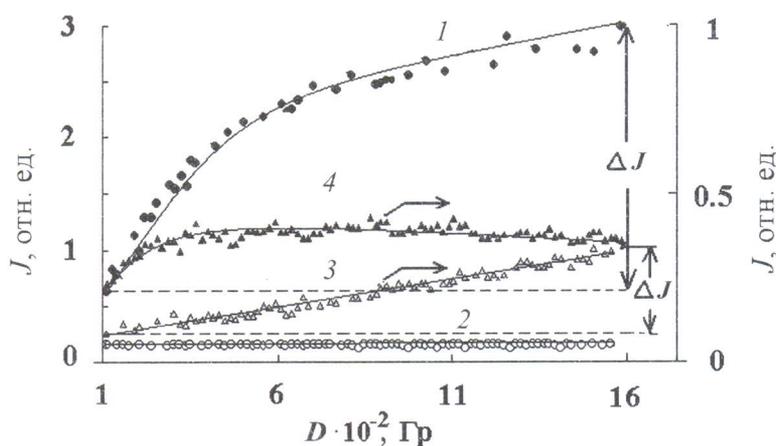


Рис. 4. Зависимости интенсивностей наносекундного (кр. 1, 3) и микросекундного компонента затухания ИКЛ при 2,59 эВ (кр. 2, 4) после облучения кристаллов LiF-OH (кр. 1, 2) и LiF-OH(WO₃) (кр. 3, 4) электронами при 200 К

5) Установлено, что эффективность радиационного создания дефектов, ответственных за ЭКС, в кристаллах LiF-OH(WO₃) не зависит от температуры, а в кристаллах LiF-OH увеличивается с ростом температуры в диапазоне 150–300 К. На рис. 5 представлена температурная зависи-

мость величины прироста интенсивности в полосе ЭКС 2,59 эВ (значение ΔJ на рис. 4) в пределах поглощенных доз от $1 \cdot 10^2$ до $6 \cdot 10^3$ Гр в кристаллах типа 11 и типа 111.

Энергия активации процесса создания соответствующих радиационных дефектов в кристаллах LiF-OH составляет величину $\sim 0,2$ эВ и определена из зависимости $\Delta J \tau = f(T)$, где ΔJ – изменение интенсивности в максимуме полосы на 2,59 эВ в спектре ЭКС в интервале доз (10^2 – $1,6 \cdot 10^3$) Гр, τ – величина характеристического времени затухания ЭКС при соответствующей температуре кристалла во время облучения.

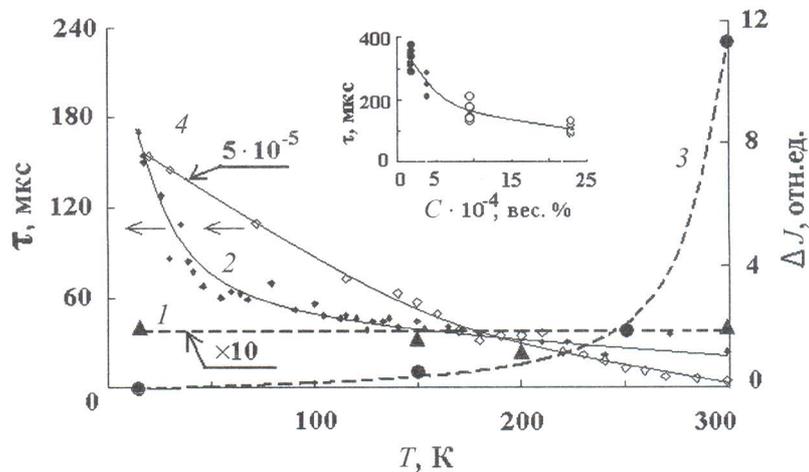


Рис. 5. Температурные зависимости эффективности радиационного создания молекулярных ионов O_2^- (кр. 1, 3) (см. описание в тексте) и величин характеристического времени затухания долгоживущего компонента ИКЛ (кр. 2, 4) в кристаллах LiF-OH(WO_3) (кр. 1, 2) и LiF-OH (кр. 3, 4). На вставке: зависимость величины характеристического времени затухания люминесценции на 3 эВ от концентрации кислорода в кристаллах LiF при 300 К

Таким образом, принципиальное отличие кислородсодержащих кристаллов LiF-OH, дополнительно содержащих поливалентный катионный соактиватор в виде ионов вольфрама, от кристаллов LiF-OH заключается в отсутствии влияния температуры на эффективность процесса создания радиационных дефектов, ответственных за ЭКС.

Как было сказано выше, спектры ИКЛ, измеренные с разной временной задержкой по отношению к окончанию действия ИЭ, имеют различный спектральный состав. Анализ свойств длинновременного компонента затухания свечения кристаллов позволил установить следующие закономерности.

1) Спектральный состав медленного компонента затухания ИКЛ совпадает со спектральным составом медленного компонента затухания ИФЛ для каждого из трех типов кристаллов и представляет собой монополосу в области 3 эВ в кристаллах LiF-O и LiF-OH и полосы 3,1 и 2,65 эВ в кристалле LiF-OH(WO_3).

2) Интенсивность полос в спектре медленного компонента затухания ИКЛ во всех кристаллах практически не зависит от величины поглощенной дозы при $D > 1 \cdot 10^2$ Гр при любой температуре в диапазоне 15–300 К. На рис. 4 для примера приведены дозные зависимости интенсивности полос при 3,1 эВ в спектрах кристалла LiF-OH и при 2,65 эВ в спектре кристалла LiF-OH(WO_3) при 200 К.

3) Величина характеристического времени затухания в максимуме полосы 3,1 эВ в кристаллах LiF-O и LiF-OH зависит от температуры и общей концентрации кислорода в кристалле и уменьшается с ростом обоих параметров. На рис. 5 представлены температурные зависимости величин характеристического времени затухания люминесценции в полосе 3,1 эВ в кристалле LiF-OH и полосе 2,65 эВ в кристалле LiF-OH(WO_3).

4) Световой выход в полосах долгоживущего компонента ИКЛ во всех кристаллах не зависит от температуры в диапазоне 15–250 К при $D > 1 \cdot 10^2$ Гр.

5) Во всех кристаллах кинетика разгорания ИКЛ в полосе 3,1 эВ имеет два компонента: безынерционный и пострadiационный (рис. 4, вставка). Первый совпадает с длительностью импульса возбуждения и присутствует при любой температуре в интервале 15–300 К. Второй компонент

разгорания появляется в области $T \geq 250$ К. Величина характеристического времени разгорания составляет десятки микросекунд в LiF–O и LiF–OH и 5 мкс – в кристаллах LiF, активированных оксидом вольфрама. Спектр разгорающегося компонента совпадает со спектром безынерционного долгоживущего компонента и представляет собой полосу с максимумом при 3 эВ (LiF–O и LiF–OH) и две полосы с максимумами при 3 и 2,65 эВ в кристалле LiF–OH(WO₃).

Обсуждение результатов

Исходная дефектность исследуемых трех типов кристаллов LiF отличается общей концентрацией кислорода (по данным протон-активационным анализа), присутствием в кристаллах LiF–OH и LiF–OH(WO₃) различных типов кислород-водородных соединений, определяющих прозрачность кристаллов в области 0,45 эВ и присутствием дополнительно катионного поливалентного соактиватора в кристалле LiF–OH(WO₃).

Из проведенных нами исследований установлены как общие характерные для всех кристаллов свойства, так и особенности этих свойств в каждом типе кристаллов.

К общим свойствам относится присутствие полосы в области 3 эВ в спектрах ИФЛ и ИКЛ всех кислородсодержащих кристаллов LiF. О единой природе полосы в области 3 эВ в спектрах всех кристаллов свидетельствует также существование дополнительного инерционного компонента разгорания ИКЛ в этой полосе во всех кристаллах при $T > 250$ К и отсутствие этого компонента при оптическом возбуждении люминесценции в области 3 эВ также во всех исследованных кристаллах при $T > 250$ К. Эта полоса в исследованных кристаллах обладает сцинтилляционными свойствами (световыход постоянен в интервале доз выше 10^2 – 10^4 Гр и в области температур 15–250 К).

Таким образом, во всех исследованных кристаллах LiF присутствует центр излучения с энергетическим переходом в области 3 эВ, возбуждаемом как оптически, так и под действием ионизирующей радиации. Спектрально-кинетические характеристики люминесценции этого центра зависят от общей концентрации кислорода в кристалле и остаются неизменными в исследованном диапазоне поглощенных доз 10^2 – 10^4 Гр. В состав такого центра, по-видимому, во всех исследованных кристаллах входит ион O^{2-} , расположенный в регулярных узлах решетки, как это доказано для кристалла LiF–O в [10].

В спектрах ИФЛ и ИКЛ кристалла LiF–OH(WO₃) присутствуют две полосы: 3 и 2,65 эВ. Оба излучательных перехода возникают безынерционно как при оптическом, так и электронном возбуждениях кристалла в температурном интервале 15–300 К. Поскольку при $T > 250$ К ИКЛ в обеих полосах имеет общую специфическую особенность: стадию пострадиационного разгорания при возбуждении кристаллов ионизирующей радиацией, следует полагать, что излучательный переход при 2,65 эВ в кристалле LiF–OH(WO₃) принадлежит иону O^{2-} в координационной сфере вольфрама, так как эта полоса отсутствует в спектре не активированного вольфрамом кристалла.

Находясь в координационной сфере катионного соактиватора, спектрально-кинетические параметры излучательного перехода на ионе O^{2-} претерпевают следующие изменения:

- 1) смещение спектрального положения в длинноволновую область на 0,4 эВ (с 3,1 до 2,65 эВ);
- 2) уменьшение величины характеристического времени разгорания люминесценции с 20 мкс (полоса в области 3 эВ в спектре кристалла LiF–O) до 3 мкс в полосе 2,65 эВ в спектре кристалла LiF–OH(WO₃);
- 3) уменьшение величины времени затухания люминесценции при 15 К с 1,5 мс в полосе 3,1 эВ в кристалле LiF–O до 250 мкс (LiF–OH(WO₃)) (полоса 2,7 эВ).

Активаторные кислород-водородные центры, оптически активные в области 0,45 эВ, присутствуют только в кристаллах LiF–OH и LiF–OH(WO₃) (кристаллы LiF–O прозрачны в этой области спектра). Этот тип дефектности, в отличие от описанной выше, под действием радиации претерпевает изменения, приводящие к следующим результатам:

- 1) уменьшение интенсивности полос в области 0,45 эВ;
- 2) возникновение новой широкой полосы в области 0,27 эВ;
- 3) образование молекулярных ионов кислорода O_2^- , о присутствии которых свидетельствует появление ЭКС, состоящего из восьми узких эквидистантных полос с расстоянием равным 0,15 эВ между соседними полосами (рис. 2) и с положением максимума огибающей при 2,5 эВ. Вид спектра, обусловленного молекулярным ионом O_2^- , и его свойства для других типов ЩГК хорошо известны [5, 11–15]).

Мы предполагаем, что интенсивность полос ЭКС пропорциональна общему количеству накопленных в процессе радиационного воздействия ионов O_2^- , а не их количеству, создаваемому действием возбуждающего ЭКС электронного импульса. Данное заключение подтверждается возможностью возбудить одинаковое значение интенсивности в полосе ЭКС в облученном кристалле либо сразу по окончании действия последнего ИЭ серии, либо через некоторое время хранения кристалла – под действием единичного ИЭ при той же температуре облучения. Отметим, что поглощенная кристаллом доза при действии единичного ИЭ ($1,6 \cdot 10^1$ Гр) на порядки меньше величины интегральной поглощенной дозы.

По нашим оценкам эффективность процесса создания O_2^- -центров в области $T \geq 200$ К при $D = 10^3$ Гр в кристалле LiF–ОН не превышает 10^{-2} от числа присутствующих в решетке OH^- -ионов.

Как оказалось, в исследованных кристаллах радиационное создание O_2^- -активаторных центров не является конкурентным по отношению к процессу создания ЦО, поскольку насыщение интенсивности полос ЭКС с ростом поглощенной дозы не сопровождается увеличением скорости накопления ЦО (F_2 -центров, в частности).

Как и в других ЦГК (см., например, [16]), процесс радиационного создания ионов O_2^- оказался термоактивированным и в кристаллах LiF–ОН. Однако присутствие в кристалле LiF–ОН катионного поливалентного соактиватора (иона вольфрама) делает этот процесс не зависящим от температуры. По-видимому, в решетке локальная компенсация избыточного положительного заряда шестивалентного катиона, находящегося в узле решетки, осуществляется стягиванием в область локализации катиона различных видов кислородсодержащих примесей: OH^- , H_2O_2 , OOH^- , O^{2-} , O^- и дефектов кристаллической решетки, тип, количество и соотношение между которыми определяются условиями роста кристаллов. По такому механизму в кристаллической решетке в области поливалентного катиона создается конгломерат с высокой локальной плотностью различных дефектов, новым типом упорядочения, приводящим к локальным искажениям зонной структуры. В недрах такого образования, видимо без участия решетки, имеет место безынерционное создание молекулярных ионов O_2^- в процессе захвата электронных возбуждений с изменением химической связи и зарядового состояния кислород-водородных соединений.

Мы предполагаем, что в кристалле LiF–ОН из-за отсутствия поливалентного соактиватора имеет место достаточно равномерное распределение кислородсодержащей примеси в решетке в процессе роста. При этом образования молекулярных ионов O_2^- под действием радиации, по-видимому, как и в [16], происходит в процессе диффузии создаваемых радиацией O^- -ионов.

Выводы

С использованием техники измерения с высоким временным и спектральным разрешением при исследовании люминесценции кислородсодержащих кристаллов LiF–O, LiF–ОН и LiF–ОН(WO_3) нами установлено присутствие во всех исследованных кристаллах активаторного кислородного центра, представляющего собой ион O^{2-} в узле решетки с излучательным переходом в области 3 эВ, который имеет радиационностойкие спектрально-кинетические параметры со специфической особенностью в виде разгорающегося компонента ИКЛ при $T > 250$ К.

Другой тип активаторных центров в виде водород-кислородных соединений OH^- , OOH^- , H_2O_2 с поглощательными переходами в области 0,45 эВ присутствуют только в двух типах исследуемых кристаллов: LiF–ОН и LiF–ОН(WO_3). Этот тип дефектности, в отличие от описанной выше, под действием радиации претерпевает изменения, приводящие к следующим результатам:

- 1) уменьшение интенсивности полос в области 0,45 эВ в СП;
- 2) возникновение новой широкой полосы в области 0,27 эВ в СП;
- 3) образование молекулярных ионов кислорода O_2^- и появление ЭКС ИКЛ.

Установлено, что в присутствии поливалентного катионного соактиватора – комплексообразователя в недрах катионного комплекса создаются условия для безынерционного радиационного образования молекулярных ионов O_2^- при любой температуре в интервале 15–300 К (кристалл LiF–ОН(WO_3)). При отсутствии в кристалле LiF–ОН поливалентного катиона процесс создания молекулярного иона O_2^- является термоактивированным, как и в других кислородсодержащих ЦГК.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Nikl M., Laguta V., and Vedda A. // Phys. Stat. Sol. (b). – 2008. – V. 245. – No. 9. – P. 1701.
2. Слободин Б.В., Сурат Л.Л., Самигулина Р.Ф. и др. // Неорган. материалы. – 2010. – Т. 46. – № 5. – С. 590.

3. Непомнящих А.И., Раджабов Е.А., Егранов А.В. Центры окраски и люминесценция кристаллов LiF. – Новосибирск: Наука, 1984. – 112 с.
4. Jain V. K. // J. Phys. D: Appl. Phys. – 1986. – V. 19. – No. 9. – P. 1791.
5. Ребане Л.А. // Труды ИФА АН ЭССР. – 1968. – Т. 37. – С. 14.
6. Накамото К. ИК-спектры и спектры КР неорганических и координационных соединений. – М.: Мир, 1991. – 381 с.
7. Stoebe T. G. // J. Phys. Chem. Solid. – 1970. – V. 31. – P. 1291.
8. Wedding V. and Klein M. // Phys. Rev. – 1969. – V. 177. – No. 3. – P. 1274.
9. Архангельская В.А., Гусева Е.В., Зингер Г.М. и др. // Опт. и спектр. – 1986. – Т. 61. – № 3. – С. 542–549.
10. Егранов А.В., Раджабов Е.А. Спектроскопия кислородных и водородных примесных центров в щелочно-галогидных кристаллах. – Новосибирск: Наука, 1992. – 160 с.
11. Лисицына Л.А., Олешко В.И., Путинцева С.Н., Лисицын В.М. // Опт. и спектр. – 2008. – Т. 105. – С. 531–537.
12. Лисицына Л.А., Корепанов В.И., Лисицын В.М., Елисеев А.Е., Тимошенко Н.Н. // Опт. и спектр. – 2011. – Т. 110. – № 4. – С. 568.
13. Kanzig W. // J. Phys. Chem. Solids. – 1962. – V. 23. – P. 479.
14. Meistrich M. L. // J. Phys. Chem. Solids. – 1968. – V. 29. – P. 1111.
15. Ребане К.К. Элементарная теория колебательной структуры спектров примесных центров кристаллов. – М.: Наука, 1968. – 231 с.
16. Meistrich M. L. // J. Phys. Chem. Solids. – 1968. – V. 29. – P. 1119.

Поступила в редакцию 20.10.11.

*Томский государственный архитектурно-строительный университет,
г. Томск, Россия

**Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
г. Томск, Россия

***Институт монокристаллов НАН Украины, г. Харьков, Украина

****Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева,
г. Астана, Республика Казахстан

E-mail: lisitsyna@mail.ru; korepanov@tpu.ru

Лисицына Людмила Александровна д.ф.-м.н., профессор;

Корепанов Владимир Иванович д.ф.-м.н., профессор;

Трефилова Лариса, к.ф.-м.н., ст. науч. сотр.;

Лисицын Виктор Михайлович, д.ф.-м.н., профессор;

Абдрахметова Айнаш Ашимовна, докторант;

Акылбеков Абдираш Ташенович, д.ф.-м.н., профессор;

Даулетбекова Алма Кабденовна, к.ф.-м.н., доцент.