

И. К. Плявинь, М. Ф. Тринклер

*(Рига, Латвия)***ОБРАЗОВАНИЕ ПАР БЛИЗКИХ ДЕФЕКТОВ  
В АКТИВИРОВАННЫХ ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ КРИСТАЛЛАХ  
ПОД ДЕЙСТВИЕМ УФ-СВЕТА ПРИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ**

Сравнивается действие двух спектральных областей УФ-света с точки зрения физики дефектообразования и практического использования созданных дефектов для регистрации изображения. Создается локальное околоактиваторное возбуждение аниона в одной из областей УФ-света в  $D_2$ -полосе поглощения. Это возбуждение на конечном этапе преобразования приводит к созданию пар близких дефектов ( $A^{2+} \dots k_i^0$ ), где активаторный дырочный центр ( $A^{2+}$ ) образуется при ионизации активатора ( $A^+$ ), вблизи которого был поглощен  $D_2$ -квант света. Электронные центры  $k_i^0$  возникают в процессе, когда иницирированные  $A^{2+}$ -центрами мелкие ловушки заполняются электронами от упомянутого ионизованного активатора. В другой области УФ-облучения (полосе поглощения  $1s$  экситона) в регулярной решетке рождается экситонное возбуждение, которое в момент образования не связано ни с активатором, ни с активаторным дырочным центром. Однако в результате перемещения и релаксации и это возбуждение создает пары близких дефектов ( $A^{2+} \dots F$ ) на базе уже имеющихся в кристалле  $A^{2+}$ -центров. За создание пар ( $A^{2+} \dots F$ ) ответственными, вероятно, являются экситонные поляритоны. Пары близких дефектов ( $A^{2+} \dots k_i^0$ ), ( $A^{2+} \dots F$ ) могут быть использованы для обработки изображений методом фотостимулированной люминесценции, каждый тип пар дает отличающиеся характеристики.

**Введение.** Щелочно-галлоидные кристаллы (ЩГК) в качестве радиационно-чувствительных материалов являются предметом многочисленных исследований на протяжении нескольких десятилетий, и массив накопленных знаний о свойствах этих сред представляется весьма внушительным (см., например, [1–7] и цитируемую в них литературу).

В качестве наиболее чувствительного способа детектирования основных радиационных дефектов ( $F$ -центров) в активированных ЩГК в работе [8] впервые был предложен и исследован метод фотостимулированной люминесценции (ФСЛ), который используется и в данной работе. Дальнейшие исследования быстрозатухающей ФСЛ [9–19] показали, что форма спектров создания (распределение величины светосуммы  $S_{\text{ФСЛ}}$  в зависимости от энергии кванта падающего УФ-света при одинаковых дозах УФ-облучения для каждой энергии кванта) в основном определяется концентрационным распределением активаторных дырочных  $A^{2+}$ -центров. Иллюстрацией к сказан-

ному является ряд сильно отличающихся по форме спектров создания, каждый из которых снят в условиях, когда концентрации  $A^{2+}$ -центров по глубине кристалла существенно отличаются, но доза экситонного облучения в каждой точке спектра одна и та же (см. [19], рис. 2).

Результаты исследований [9–19] позволили постепенно развить представления о физике процессов, определяющих  $S_{\text{ФСЛ}}$ , а также о возможностях использования этих процессов для регистрации информации. Было установлено, что  $A^{2+}$ -центры инициируют распад экситонов [11, 19] на классические дефекты ( $F$ ,  $H$ ) [20–22], где созданные  $F$ -центры остаются вблизи уже существующих в кристалле  $A^{2+}$ -центров. В результате этой реакции образуются пространственно коррелированные пары ( $A^{2+} \dots F$ ) – далее «пары близких дефектов» [9, 23]. Фотостимуляция этих пар в  $F$ -полосе поглощения дает быстро затухающую светосумму  $S_{\text{ФСЛ}}$ , время затухания которой определяется лишь интенсивностью стимулирующего света и эффективным сечением поглощения  $F$ -центров [12–14].

Полученные результаты показали, что обнаруженные пары в активированных ЦГК в принципе могут быть использованы в практике для записи информации, поступающей в УФ-свете, а быстро затухающая ФСЛ – для восстановления данной записи [16–18].

Идея о пространственно коррелированных дефектах впоследствии была проверена другим исследовательским коллективом методом магнитного резонанса [24–26].

Пары близких дефектов образуются не только при облучении кристалла УФ-светом из экситонной области поглощения (или ионизирующей радиацией), но создаются также и в более длинноволновой части УФ-спектра –  $D_2$ -полосе поглощения [27, 28].  $D_2$ -полоса связывается с возбуждением аниона вблизи активатора  $A^+$  [27]. В дальнейших исследованиях отмечено, что в  $D_2$ -области спектра создается целый ряд пар близких дефектов с отличающимися расстояниями между компонентами пары. Основным или исходным компонентом этих пар так же, как в предыдущем случае, являются  $A^{2+}$ -центры, а вторым компонентом – электронные центры захвата, инициированные данным дырочным центром в ближайших к нему катионных координационных сферах. Изучением дефектов, созданных в  $D_2$ -полосе поглощения, другие исследовательские коллективы не занимаются.

За исходную позицию в предлагаемой работе принимается представление о существовании пар близких дефектов, которые образуются при облучении активированного ЦГК УФ-светом как в экситонной области поглощения, так и в  $D_2$ -полосе поглощения. В одном случае возбуждаются анионы, не связанные с активаторами, в другом – анионы около активатора.

Задачей данной работы является, во-первых, выработка представлений о механизмах создания пар близких дефектов в каждой из рассматриваемых областей УФ-облучения, во-вторых, выявление общих и отличительных признаков в механизмах «парного дефектообразования».

Пары близких дефектов, созданные экситонами [16–18], могут быть использованы для обработки информации. В связи с этим рассматривается возможность практического использования также пар близких дефектов, созданных  $D_2$ -облучением.

В разд. 1 на основе работ [29–35] обсуждается возможный механизм создания дефектов, когда облучение осуществляется в  $D_2$ -полосе поглощения. В разд. 2 в основном на базе поляритонных представлений [36–39] предло-

жен дальнейший поиск поляритонных эффектов в активированных ЩГК [19, 40–42] в процессах создания пар близких дефектов при экситонном облучении. В разд. 3 обсуждается возможность использования пар близких дефектов, накапливаемых  $D_2$ - или экситонным облучением (также ионизирующей радиацией), для записи информации. Сравниваются некоторые параметры обработки информации, характерные для упомянутых видов облучения.

**1. Механизм образования пар близких дефектов  $D_2$ -облучением.** Спектры поглощения ЩГК, активированные ртутеподобными ионами, содержат активаторные и околоактиваторные полосы. Активаторные полосы поглощения в порядке возрастания энергии обозначаются  $A$ ,  $B$  и  $C$ . Более коротковолновая область поглощения, чем  $A$ ,  $B$  и  $C$ , соответствует возбуждению околоактиваторных анионов. Возбуждение ближайшего к активатору аниона формирует полосу  $D_1$ , а аниона из второй анионной координационной сферы – полосу  $D_2$ , которая расположена на длинноволновом склоне экситонной полосы поглощения.

Результатом возбуждения кристалла в  $C$ - и  $D_2$ -полосах при комнатной температуре является возникновение активаторной люминесценции и частичной ионизации активатора с образованием активаторного дырочного  $A^{2+}$ -центра. При этой температуре генетически связанных пар близких дефектов не образуется, так как «ионизационные» электроны не остаются вблизи активатора, а «уходят» в зону проводимости. Однако картина качественно меняется при низких температурах, что рассмотрено ниже. Нами проведены спектральные и поляризационные исследования при 80 и 10 К ряда кристаллов [27, 29–35], которые показали, что при низких температурах создаются пары близких генетически связанных дефектов, актуальные для быстро затухающей ФСЛ.

Далее приведены принципиальные для этого утверждения экспериментальные результаты для кристалла КJ–Тl.

На рис. 1 показаны спектры возбуждения активаторной люминесценции и спектры создания быстрой ФСЛ с длинами волн 430 нм для 80 К и 336 нм для 10 К соответственно при стимулировании светом лазера 633 нм [30]. Спектр создания светосумм  $S_{\text{фсл}}$  регистрировался с учетом зависимости начальной интенсивности  $I$  быстро затухающей ФСЛ от длины волны УФ-облучения при последующем полном высвечивании запасенной энергии. Из рисунка видно, что спектр возбуждения люминесценции в области 200–240 нм состоит из четырех полос, самая коротковолновая из которых соответствует экситонному поглощению, а две длинноволновые – известным  $C$ - и  $D_1$ -полосам поглощения. Полосы 218 нм при 80 К и 215 нм при 10 К можно сопоставить с околоактиваторной  $D_2$ -полосой поглощения. Максимальный пик в спектре создания светосуммы быстро затухающей ФСЛ при обеих температурах хорошо совпадает по положению максимума и по форме с  $D_2$ -полосой поглощения. Из полученных спектров следует, что при низких температурах происходит эффективное запасание энергии в  $D_2$ -полосе, которую можно высветить в виде быстрой ФСЛ. Установлено также, что предварительное длительное  $D_2$ -облучение с полным последующим высвечиванием накопленных светосумм практически не меняет ни интенсивности, ни формы  $D_2$ -полосы в спектре создания, хотя коренным образом усиливает часть спектра, относящуюся к области экситонного поглощения (рис. 1, а, кривая 3).

В работе [29] проведены измерения спектров стимуляции быстро затухающей ФСЛ после облучения в  $D_2$ - и  $C$ -полосах поглощения. Эти спектры по-

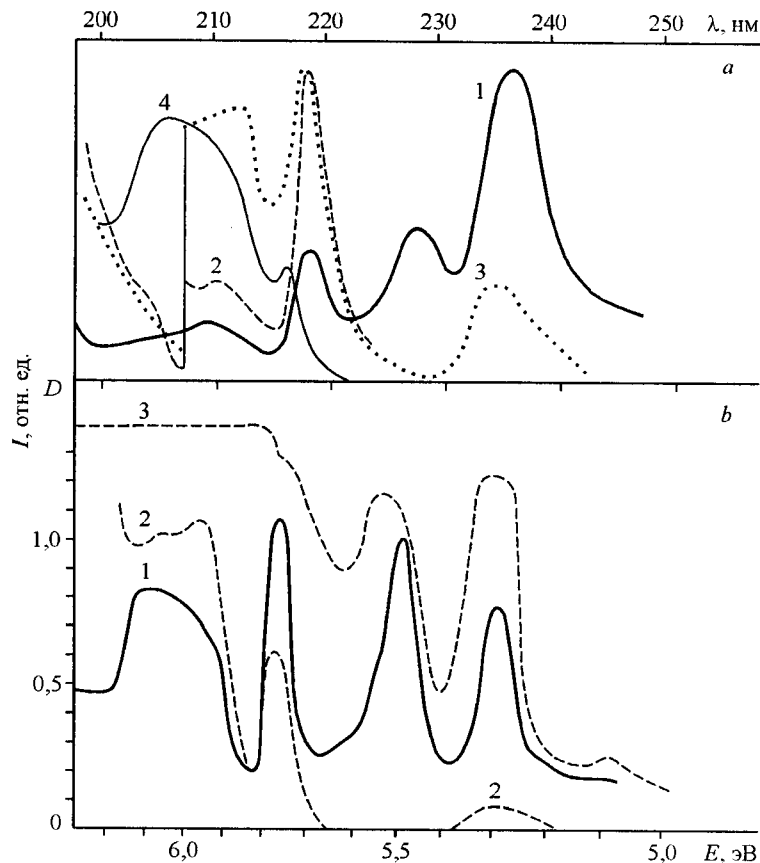


Рис. 1. Спектры возбуждения люминесценции активатора и создания светосумм от пар близких дефектов при облучении кристалла КJ–Тl УФ-светом в  $D_2$ -полосе поглощения или  $1s$  экситона: *a* – спектр возбуждения полосы излучения  $Tl^+$  430 нм (кривая 1), спектры создания светосумм до (кривая 2) и после (кривая 3) предварительного облучения в  $D_2$ -полосе (218 нм) в течение 5 мин и последующего полного высвечивания, спектр возбуждения свечения автолокализованного экситона (375 нм) (кривая 4); *b* – спектр возбуждения полосы излучения  $Tl^+$  336 нм (кривая 1), спектр создания светосумм ФСЛ (кривая 2), спектр поглощения кристалла КJ–Тl с концентрацией активатора 1,85 мол. % и толщиной 0,15 мм (кривая 3)

лучены в виде зависимости начальной интенсивности ФСЛ от длины волны высвечивающего света. После измерения каждой точки спектра накопленная светосумма полностью высвечивалась.

Результаты измерений представлены в виде кривых на рис. 2 для 80 и 10 К. При 80 К для сравнения были измерены также спектры стимуляции при возбуждении в областях экситонного поглощения (212 нм) и зона – зона (200 нм), контуры которых совпадают с полосой поглощения  $F$ -центра (см. рис. 2, кривые 3 и 2). Из рисунка следуют выводы: спектр стимуляции состоит из нескольких полос, причем число полос увеличивается с понижением температуры (при 80 К две полосы и при 10 К четыре). Ни одна из этих полос не совпадает с  $F$ -полосой поглощения. Вид спектров стимуляции не зависит

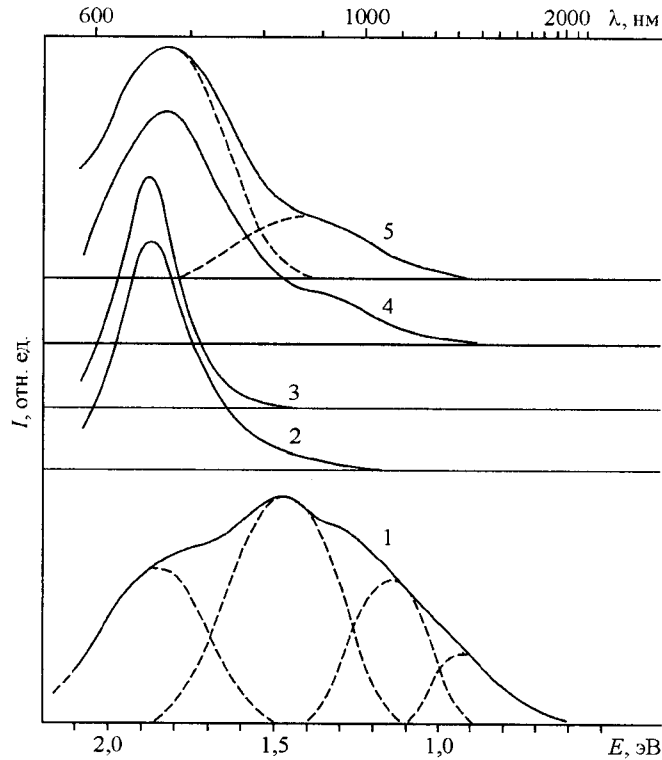


Рис. 2. Спектры стимуляции светосумм ФСЛ в кристалле КJ–Тl (температура кристалла 80 К), запасенной УФ-светом в разных областях поглощения кристалла: в  $D_2$ - (215 нм) или  $C$ -полосе (233 нм) поглощения при 10 К (кривая 1); в спектральной области переходов зона – зона (200 нм), экситонной (212 нм),  $D_2$ - (218 нм) и  $C$ -полосах (233 нм) поглощения (кривые 2–5 соответственно)

от выделенной спектральной области ФСЛ и полностью совпадает для облучения в  $D_2$ - и  $C$ -полосах поглощения.

В работе [29] измерены также спектры стимулированной люминесценции. Форма спектров не зависит от области высвечивания и почти совпадает для  $D_2$ - и  $C$ -облучения. Спектр ФСЛ состоит из полос 425, 400 и 335 нм, которые являются полосами активаторного излучения [35].

Совокупность приведенных фактов указывает на то, что три составные части (запасание, стимуляция и излучение ФСЛ) процесса, связанного с облучением в  $D_2$ - и  $C$ -полосах поглощения, происходят в целом ряде близко расположенных элементов кристалла в окрестности активатора, причем  $D_2$ -возбуждение связано с возбуждением аниона из второй анионной сферы в направлении оси кристалла [111].

Возможно предположить несколько вариантов механизма запасания пар близких дефектов при  $D_2$ -облучении, которые отличаются интерпретацией дырочного компонента пары (атом йода [30, 32],  $v_k$ - и  $A^{2+}$ -центры). Однако экспериментальный факт совпадения спектров излучения и стимуляции при  $D_2$ - и  $C$ -облучении заставляет отдать предпочтение механизму, где дырочным компонентом пары является активаторный дырочный  $A^{2+}$ -центр. Упомянутое совпадение свидетельствует о том, что в процессе высвечивания в

обоих случаях облучения принимают участие одинаковые пары близких дефектов.

Одна часть возбужденных в  $D_2$ -полосе околоактиваторных анионов резонансно передает энергию активатору, что приводит к активаторной люминесценции (см. рис. 1, кривые 1). Другая часть возбужденных анионов ионизируется с образованием электронов и дырочных атомов йода. Дырка моментально пересаживается на активатор  $A^+$ , образуя дырочный  $A^{2+}$ -центр, а зарядность аниона восстанавливается. Дырочный активаторный  $A^{2+}$ -центр индуцирует понижение энергетических уровней целого ряда катионов, близких к возникшему  $A^{2+}$ -центру. В результате на ближайших к  $A^{2+}$ -центру катионах создаются мелкие ловушки для электронов (далее  $k_i^+$ ). Электроны, оторванные от активатора (возбуждение в  $C$ -полосе) или от возбужденного аниона ( $D_2$ -облучение), при низких температурах захватываются этими ловушками, создавая электронный центр  $k_i^0$ . В итоге образуются близкие пары ( $A^{2+} \dots k_i^0$ ) (дырочный и электронный центры) как при  $C$ -, так и  $D_2$ -облучении. Эти пары могут быть высвечены в виде быстро затухающей ФСЛ. Спектры стимуляции ФСЛ связаны с возбуждением электронов в центрах  $k_i^0$  и соответствуют переходам их на дырочный  $A^{2+}$ -центр с последующим возбуждением и излучением активатора  $A^+$ . Как показывают измерения, число полос стимуляции, а следовательно, и число стабильных типов электронных околоактиваторных центров увеличивается при понижении температуры кристалла. По мере понижения температуры центрами электронов становятся все более и более удаленные околоактиваторные катионы.

Обращает на себя внимание тот факт, что при облучении кристалла в  $D_1$ -полосе при низких температурах наблюдается только люминесценция активатора, но отсутствует запасание светосуммы (см. рис. 1). Этому явлению можно дать следующее краткое объяснение. Свечение активатора при возбуждении околоактиваторных анионов в  $D_1$ - и  $D_2$ -полосах происходит благодаря резонансной передаче энергии от анионов активатору, чему благоприятствует близкое расположение анионов к активатору. Запасание светосуммы  $S_{\text{ФСЛ}}$  связано с другим процессом: отрывом электрона от возбужденного аниона и захватом его на катионной ловушке. Вероятность этого процесса напрямую зависит от близости энергетических уровней возбужденных анионов и ловушки. Очевидно, энергия возбуждения в  $D_1$ -полосе (5,5 эВ) не достаточна для осуществления этого процесса.

**2. Механизм создания экситонами пар близких дефектов и свойства их фотостимулирования.** Облучение УФ-светом активированных щелочно-галоидных кристаллов в полосе поглощения  $1s$  экситонов приводит к эффективному созданию пар близких дефектов ( $A^{2+} \dots F$ ), если в кристалле заранее (до облучения) создана или уже имелась некая концентрация активаторных дырочных  $A^{2+}$ -центров. Эти пары дефектов образуются в широком интервале температур: от комнатных до жидкого гелия. Подтверждение существования такого типа пар довольно подробно изложено в обзорной работе [23].

Пары ( $A^{2+} \dots F$ ) выявляются в процессе фотостимулирования светом в  $F$ -полосе поглощения. При этом электрон с возбужденного  $F$ -центра туннелирует на «свой»  $A^{2+}$ -центр, превращая его в возбужденный активатор. Испущенный возбужденным активатором квант света является ответом существовавшей в кристалле пары. При получении ответа уничтожается данная

пара, а также входящий в ее состав  $A^{2+}$ -центр [9, 23], который в этом процессе превращается в активатор  $A^+$ . Следует обратить внимание на неизбежное уменьшение концентрации  $A^{2+}$ -центров при фотостимуляции пар ( $A^{2+} \dots F$ ), что снижает эффективность их образования на последующих этапах экситонного облучения.

Более подробно вопрос о роли  $A^{2+}$ -центров в формировании спектров создания пар близких дефектов и связанной с ними ФСЛ будет обсуждаться далее.

Экситоны в начальный момент создания, являясь возбуждениями основной решетки, непосредственно не связаны ни с активатором  $A^+$  (в отличие от  $D_2$ -облучения), ни с  $A^{2+}$ -центром. Однако на завершающем этапе миграции подвижные экситоны (экситонные поляритоны) свою энергию реализуют преимущественно в процессе дефектообразования около  $A^{2+}$ -центров.

Концентрация  $A^{2+}$ -центров, как правило, существенно меньше, чем концентрация активатора  $A^+$ . Оптимальная концентрация активатора в ЩГК для эффективного создания пар ( $A^{2+} \dots F$ ) составляет  $10^{17} - 10^{18} \text{ см}^{-3}$  [43]. При этом специально созданная максимальная концентрация  $A^{2+}$ -центров не превышает 0,1–0,01 доли от концентрации активатора. При максимальной концентрации  $A^{2+}$ -центров величина среднего расстояния между этими центрами составляет около 100 постоянных решетки, а квантовый выход  $S_{\text{ФСЛ}}$  достигает значения 0,15 [44]. Время создания  $F$ -центров в чистых ЩГК не превышает 10 пс [45]. Вероятно, что в активированных ЩГК за такое же короткое время образуются  $F$ -центры в парах ( $A^{2+} \dots F$ ). Упомянутые факты и предположения говорят в пользу больших скоростей распространения экситонов (близких к световым для рассматриваемой спектральной области поглощения кристалла) и не исключают их поляритонную природу (хотя бы для части экситонов).

В чистых ЩГК в области температуры жидкого гелия существование экситонных поляритонов доказано экспериментально [38, 39]. Для активированных ЩГК (например, для КВг : In) действие экситонных поляритонов при комнатной температуре по результатам работы [41] можно считать вероятным. В этом кристалле было проведено сравнение светосумм  $S_{\text{ФСЛ}}$  от пар ( $A^{2+} \dots F$ ) в зависимости от концентрации активатора при двух видах облучения: электронами и УФ-светом в полосе поглощения  $1s$  экситона. Результаты сравнения подтвердили идею о существовании резонансного излучения в узком спектральном интервале максимума полосы поглощения  $1s$  экситона. Подобное излучение является доводом в пользу того, что экситон может существовать как поляритон в активированных ЩГК при комнатной температуре. Кроме того, этот результат показывает, что предполагаемый экситонный поляритон может участвовать в создании пар близких дефектов ( $A^{2+} \dots F$ ), так как методикой исследований служила фотостимулированная люминесценция.

Ниже будут рассмотрены экспериментальные данные о спектрах создания светосумм  $S_{\text{ФСЛ}}$  в кристалле КJ–Tl при низких температурах с учетом вышеупомянутых неизбежных уменьшений концентрации  $A^{2+}$ -центров в ходе получения спектра создания – при повторении актов облучения – фотостимулирование, когда концентрация  $A^{2+}$ -центров не обновляется.

Исследуемый кристалл КJ–Г1 подвергался экситонному облучению и последующему высвечиванию накопленных светосумм на ( $A^{2+} \dots F$ )-центрах (см. рис. 1, *a*, кривая 2 или 3 в коротковолновой части спектра). Спектр создания  $S_{\text{ФСЛ}}$  в данной работе снимался по точкам в направлении от длинноволнового «хвоста» экситонной полосы в сторону максимума. При длине волны 229 нм для данной толщины кристалла (1 мм) наступает полное поглощение УФ-света в полосе поглощения  $1s$  экситона. Коэффициент поглощения для этой длины волны  $10^2 \text{ см}^{-1}$  [46], и средняя глубина проникновения света в кристалле  $10^{-2}$  см. При осуществлении фотостимулирования  $A^{2+}$ -центры в данном случае истощаются приблизительно равномерно по всему объему облученного кристалла. Однако при переходе к более коротковолновому экситонному облучению поглощение УФ-света осуществляется во все более и более тонком приповерхностном слое кристалла. Последующее фотостимулирование уничтожает  $A^{2+}$ -центры преимущественно из этого слоя. Предварительные подсчеты показывают, что при реально применяемых дозах УФ-облучения истощенный от  $A^{2+}$ -центров приповерхностный слой кристалла в ходе снятия спектра может достичь 10 мкм. В максимуме экситонной полосы (212 нм) коэффициент принимает значение  $7 \cdot 10^5 \text{ см}^{-1}$  [46], а средняя глубина проникновения УФ-света в кристалле уменьшается до  $1,4 \cdot 10^{-6}$  см. В этих условиях глубина в кристалле, где непосредственно образуются экситоны, и начало области с сохраняющимися  $A^{2+}$ -центрами в исследуемом образце друг от друга отделены упомянутым выше мертвым слоем (без  $A^{2+}$ -центров) около 10 мкм или  $1,5 \cdot 10^4$  постоянных решетки. Если экситоны малоподвижны, то значения ФСЛ при данном распределении активаторных дырочных центров по глубине кристалла должны были бы уменьшиться. Однако эксперимент показывает обратное: приближаясь к максимуму экситонной полосы, значение  $S_{\text{ФСЛ}}$  растет как для кривой 2, так и для кривой 3 (см. рис. 1, *a*). В экспериментах при 80 К возможное объяснение эффекта возрастания  $S_{\text{ФСЛ}}$  по мере создания экситонов ближе к максимуму полосы поглощения, очевидно, следующее. Экситоны приобретают все большую эффективность взаимодействия с  $A^{2+}$ -центрами, что может быть связано с увеличением их подвижности. Вероятно, что такое поведение экситонов можно связать с их поляритонной природой. Подобное объяснение спектров создания светосумм, измеренных при комнатной температуре [42], предложено и для кристалла КВг–In.

Большие значения  $S_{\text{ФСЛ}}$  для кривой 3 по сравнению с кривой 2 (см. рис. 1, *a*) объясняются тем, что длительным предварительным облучением в  $D_2$ -полосе часть активатора ионизована (см. разд. 1) и увеличена концентрация  $A^{2+}$ -центров в кристалле. Вследствие этого значение  $S_{\text{ФСЛ}}$  больше, и в ходе эксперимента происходит более медленное истощение  $A^{2+}$ -центров.

При 10 К (рис. 1, *b*) возрастание ФСЛ наиболее вероятно можно связать с действием экситонных поляритонов, так как при этой температуре их участие в процессах переноса энергии определено теоретическими исследованиями и подтверждено экспериментальными данными [36–39].

Возрастание  $S_{\text{ФСЛ}}$  на коротковолновом спаде экситонной полосы, где в кристалле КJ эта полоса перекрывается с областью переходов зона – зона, и дальнейшее увеличение  $S_{\text{ФСЛ}}$  в «чистой» области зона – зона (см. рис. 1, *b*, кривая 2) не противоречат изложенным выше представлениям об определяющей роли концентрации  $A^{2+}$ -центров и иницирующим действиям этих



центров для распада экситонного возбуждения при образовании пар близких дефектов. Переходами в области зона – зона генерируются в кристалле электроны и дырки, а при взаимодействии последних появляется и некоторое число экситонов [1, 4]. Созданные дырки весьма эффективно захватываются активатором, дополняя истощенный запас приповерхностного слоя предшествующими действиями (экситонное облучение – фотостимулирование) от  $A^{2+}$ -центров. В результате этого наблюдается возрастание  $S_{\text{фсл}}$  на коротковолновом спаде экситонной полосы и в области переходов зона – зона. Эти закономерности вовсе не исключают экситонные поляритоны как один из возможных видов возбуждений, ответственный за изменения  $S_{\text{фсл}}$  за пределами экситонной полосы поглощения.

**3. Возможность использования пар близких дефектов для обработки информации.** С практической точки зрения каждая пара близких дефектов ( $A^{2+} \dots k_i^0$ ) или ( $A^{2+} \dots F$ ) может представлять единичный элемент записи латентного изображения. Ответом или проявлением этого элемента служит квант света активатора  $A^+$ , создаваемый путем фотостимулирования в электронном центре пары [17, 19].

Концентрационное распределение пар близких дефектов по облученной площади кристалла представляет скрытое (латентное) изображение. Оно восстанавливается путем фотостимуляций, которая дает число квантов люминесценции активатора, адекватное распределению числа пар близких дефектов.

Запись и ее проявление (считывание) характеризуются рядом технических параметров. Рассмотрим некоторые из них и проведем сравнение параметров двух вышеописанных типов пар близких дефектов.

*Термическая стабильность записи.* В парах ( $A^{2+} \dots k_i^0$ ) и ( $A^{2+} \dots F$ ) содержатся три типа дефектов:  $k_i^0$ ,  $A^{2+}$  и  $F$ , каждый из которых имеет свою термическую стабильность.  $k_i^0$ -центры стабильны при «азотных» и «гелиевых» температурах,  $A^{2+}$ -центры – от низких до комнатных, а  $F$ -центры стабильны в температурном диапазоне от нескольких сот градусов по Кельвину до гелиевых температур.

Стабильность пары в целом определяется центром с наименьшей термической стабильностью. Таким образом, пары ( $A^{2+} \dots k_i^0$ ) стабильны только при достаточно низких температурах и информация на этих парах может быть записана в интервале температур от азотной до гелиевой. Пары ( $A^{2+} \dots F$ ) для записи могут быть использованы в более широком температурном интервале: от комнатной температуры до гелиевой.

*Динамический диапазон записи.* Процессы создания пар ( $A^{2+} \dots k_i^0$ ) и ( $A^{2+} \dots F$ ) отличаются типами и концентрациями тех центров, которые служат «затравкой» (инициатором) для их образования. Для ( $A^{2+} \dots k_i^0$ ) таким центром является активатор  $A^+$ , а для ( $A^{2+} \dots F$ ) – активаторный дырочный  $A^{2+}$ -центр. Концентрация активатора, как уже отмечалось ранее, хотя бы на порядок больше, чем максимально возможная концентрация  $A^{2+}$ -центров. Отсюда следует, что максимальное число записываемых пар дефектов (и соответствующая величина ответа) для ( $A^{2+} \dots k_i^0$ ) может быть, по крайней мере, на порядок больше, чем для пар ( $A^{2+} \dots F$ ). Максимальное число создаваемых пар близких дефектов определяет величину динамического диапазона записи.

си и считывания, где соблюдается прямая пропорциональность между энергиями записываемого и регистрируемого света. Если динамический диапазон для пар  $(A^{2+} \dots F)$  распространяется на девять порядков [17], то для пар  $(A^{2+} \dots k_i^0)$  он мог бы достичь десяти порядков. Таким образом, пары  $(A^{2+} \dots k_i^0)$  в отношении динамического диапазона имеют преимущество перед парами  $(A^{2+} \dots F)$ .

*Эффективность образования пар близких дефектов УФ-светом или ионизирующей радиацией.* Ответные сигналы  $S_{\text{ФСЛ}}$  для пар  $(A^{2+} \dots k_i^0)$  и  $(A^{2+} \dots F)$  при одинаковых дозах облучения УФ-светом близки [30], в то время как концентрация иницирующих  $A^+$ -центров хотя бы на порядок больше, чем  $A^{2+}$ -центров. Отсюда следует, что эффективность образования пар  $(A^{2+} \dots F)$  при экситонном облучении при 80 К может быть, по крайней мере, на порядок больше, чем эффективность создания пар  $(A^{2+} \dots k_i^0)$  при  $D_2$ -облучении.

Здесь уместно рассмотреть запись ионизирующей радиацией. В этом случае при равных дозах облучения эффективность создания пар  $(A^{2+} \dots k_i^0)$  может превысить эффективность образования пар  $(A^{2+} \dots F)$ . Известно, что конечным результатом релаксации высокоэнергетических квантов или частиц в различных веществах, в том числе и в ШГК, являются зонные электроны, дырки и экситоны. Для создания пар близких дефектов  $(A^{2+} \dots F)$  ответственным возбуждением кристалла являются экситоны (см. разд. 2), число которых среди элементарных возбуждений кристалла гораздо меньше, чем электронов и дырок. Для создания пар  $(A^{2+} \dots k_i^0)$  под действием ионизирующей радиации ответственными возбуждениями, вероятно, являются более многочисленные дырки и электроны. Поэтому можно ожидать, что изодозной ионизирующей радиацией пар  $(A^{2+} \dots k_i^0)$  будет создаваться больше, чем пар  $(A^{2+} \dots F)$ .

Ионизирующая радиация при низкой температуре одновременно будет создавать пары обоих типов:  $(A^{2+} \dots k_i^0)$  и  $(A^{2+} \dots F)$ . Распределение этих пар представляет идентичное изображение. Запрос или проявление этой информации могут быть осуществлены селективно для каждого типа пар путем фотостимулирования в полосах поглощения  $k_i^0$ - или  $F$ -центров. Кроме того, может быть снята одновременно суммарная информация, записанная на  $(A^{2+} \dots k_i^0)$  и  $(A^{2+} \dots F)$ , при фотостимулировании в широкой области спектра, охватывающей полосы поглощения  $k_i^0$ - и  $F$ -центров. Последний случай характеризуется максимальным числом ответных квантов и наибольшим отношением сигнал/шум в ответном сигнале ФСЛ.

*Состояние решетки вокруг пар близких дефектов после снятия информации.* Весьма существенным преимуществом  $D_2$ -облучения в качестве записываемой радиации является тот факт, что после снятия информации кристалл возвращается в исходное состояние (см. разд. 1): активатор  $A^+$  и регулярная решетка вокруг него. Это справедливо как при записи УФ-светом, так и ионизирующей радиацией. После цикла запись–считывание среда без дополнительных процедур готова к осуществлению следующей записи с прежней чувствительностью.

Иная и довольно сложная картина имеет место для экситонного облучения, когда возбуждение создает  $F$ -центр вблизи  $A^{2+}$ -центра. В этом случае после снятия информации в кристалле образуются вторичные пары ( $A^+ \dots v_a^+$ ), которые под действием ионизирующей радиации могут восстановить прежнюю запись [23]. Кроме того, в среде, где осуществлена запись, уменьшается концентрация  $A^{2+}$ -центров. Таким образом, после снятия одной записи кристалл не является полноценным объектом для осуществления следующей записи с прежней чувствительностью, поэтому необходимо обновить концентрацию  $A^{2+}$ -центров. Однако уменьшение числа  $A^{2+}$ -центров и появление вторичных пар может быть использовано для получения прежней записи в другом виде. Во-первых, от такого кристалла можно при считывании  $F$ -светом получить «негатив» прежней записи, если подвергать его экситонному облучению равномерной интенсивности. Во-вторых, при равномерном освещении кристалла УФ-светом из спектральной области переходов зона – зона (или ионизирующей радиацией) при считывании можно вернуться к позитивному изображению, но уже более зашумленному.

*О пространственном разрешении элементов записанного изображения.* Если создание близких дефектов (латентного изображения) при экситонном облучении, действительно, осуществляется экситонными поляритонами (по крайней мере в максимуме полосы), то пространственное разрешение элементов изображения (уже в латентной форме) будет хуже для экситонного, чем для  $D_2$ -облучения. Эта разница обусловлена тем, что записывающий свет при  $D_2$ -облучении «не покидает места» поглощения – пара близких дефектов образуется в непосредственной близости от места поглощения. Однако при экситонном облучении созданное возбуждение – экситонный поляритон – «ищет»  $A^{2+}$ -центры и место поглощения от места создания элемента латентного изображения отдалено. Этот эффект может усиливаться, когда записывающий свет приближается к максимуму экситонной полосы поглощения. Усиление естественно связать с удлинением пути, который проходит экситонное возбуждение. Последнее может отрицательно сказываться на разрешении деталей как в латентном, так и в проявленном изображении. При записи информации экситонным облучением следует избегать спектральной области максимума полосы, по крайней мере тогда, когда предшествующими действиями на этой приповерхностной области кристалла исчерпаны  $A^{2+}$ -центры.

**Заключение.** На базе ранее полученных экспериментальных данных в предлагаемой работе проведено сравнение результатов облучения кристалла КЖ–Т1 в двух спектральных областях УФ-света:  $D_2$ - и экситонной полосах поглощения.

1. УФ-свет из  $D_2$ -полосы поглощения создает локальное околоактиваторное возбуждение аниона, которое на конечном этапе преобразований и релаксаций приводит к образованию пар близких дефектов ( $A^{2+} \dots k^0$ ). Механизм создания этих дефектов предположительно следующий. Часть возбужденных анионов распадается на электрон и дырочный центр, причем «дырка» с аниона моментально пересаживается на активатор  $A^+$ , образуя дырочный компонент пары  $A^{2+}$ . Последний индуцирует в ближайших окружающих катионных координационных сферах понижение энергии, в результате чего образуются мелкие уровни захвата для электронов ( $k^+$ ). При низких температурах на этих уровнях и захватываются электроны ионизованного активато-

ра, образуя стабильные пары близких дефектов ( $A^{2+} \dots \kappa_i^0$ ). При высоких температурах, когда уровни захвата пусты, с ними взаимодействуют экситоны, создавая другой тип пар – ( $A^{2+} \dots F$ ).

2. При экситонном облучении возбуждаются анионы в узлах регулярной решетки, практически не связанные ни с активатором, ни с активаторным дырочным центром. В результате перемещения и релаксации экситонное возбуждение создает близкую пару дефектов ( $A^{2+} \dots F$ ). Для создания этих пар обязательным требованием является существование  $A^{2+}$ -центров в кристалле. Как показано выше, с дырочным центром неизбежно связан ряд мелких уровней захвата для электронов ( $\kappa_i^+$ ). Последние, вероятно, являются местом распада экситонов на традиционные дефекты ( $F, H$ ). Экситоны до окрестностей  $A^{2+}$ -центров и связанных с ними электронных уровней захвата, по всей вероятности, доходят в форме поляритонов. После отхода  $H$ -центра от места распада вблизи  $A^{2+}$ -центра остается  $F$ -центр, т. е. образуется пара ( $A^{2+} \dots F$ ).

3. Оба типа пар ( $(A^{2+} \dots \kappa_i^0)$  и  $(A^{2+} \dots F)$ ) могут иметь практическое применение при записи и восстановлении изображения методом фотостимулированной люминесценции. Для обработки информации эти пары имеют отличия в целом ряде параметров: динамическом диапазоне, квантовой эффективности записи, ее температурной стабильности, пространственном разрешении и готовности среды для следующей записи, когда восстановлена предыдущая, и других.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Lushchik С., Lushchik А., Vasilchenko Е. Excitons and point defect creation in alkali halides // Proc. of the Intern. Conf. Riga, 1981. P. 323.
2. Itoh N. Primary process of defect formation in alkali halides // Ibid. P. 343.
3. Алукер Э. Д., Лусис Д. Ю., Чернов А. С. Электронные возбуждения и радиоломинесценция щелочно-галогидных кристаллов. Рига: Зинатне, 1979.
4. Лушчик Ч. Б., Лушчик А. Ч. Распад электронных возбуждений с образованием дефектов в твердых телах. М.: Наука, 1989.
5. Александров А. А., Алукер Э. Д., Васильев И. А. и др. Введение в радиационную физикохимию поверхности щелочно-галогидных кристаллов. Рига: Зинатне, 1989.
6. Лушчик Ч. Б., Гаврилов Ф. Ф., Завт Г. С. и др. Электронные возбуждения и дефекты в кристаллах гидроксида лития. М.: Наука, 1985.
7. Song K. S., Williams R. T. Self-trapped Excitons /Ed. M. Cardona. Berlin: Springer Verlag, 1993.
8. Лийдья Г. Г., Як И. В. Создание  $F$ -центров в щелочно-галогидных фосфорах ультрафиолетовой радиацией // Тр. ИФА АН ЭССР. 1961. № 14. С. 212.
9. Брацлавец П. Ф., Калнинь А. Э., Плявинь И. К. и др. Экспериментальное доказательство образования пар типа  $F, In^{2+}$  при распаде анионных экситонов в  $KBr-In$  // Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук. 1990. № 4. С. 38.
10. Калнинь А. Э., Плявинь И. К., Попов А. И., Тале А. К. Проявление различных электронных центров окраски в светосуммах, накапливаемых экситонами в  $KBr-Tl$  при комнатной температуре // Там же. С. 31.
11. Плявинь И. К. Закономерности экситонного дефектообразования в кристалле  $KBr-Tl$  при комнатной температуре // Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук. 1986. № 4. С. 25.

12. Калнинь А. Э., Плявинь И. К., Тале А. К. Определение эффективности сечения поглощения  $F$ -центров методом фотостимулированной люминесценции // Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук. 1989. № 5. С. 3.
13. Калнинь А. Э., Плявинь И. К., Попов А. И., Тале А. К. Определение силы осциллятора  $F$ -центров в кристалле  $KBr-Tl$  люминесцентным методом // Там же. С. 18.
14. Калнинь А. Э., Плявинь И. К., Тале А. К. Высвечивание немонахроматическим светом из спектральной области  $F$ -полосы поглощения светосумм в  $KBr-Tl$ , созданных экситонами // Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук. 1988. № 2. С. 21.
15. Калнинь А. Э., Плявинь И. К., Тале А. К. Увеличение эффективности низкоэнергетического экситонного создания  $F$ -,  $In^{++}$ -центров в  $KBr-In$  при облучении в  $C$ -полосе поглощения // Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук. 1987. № 1. С. 47.
16. Брацлавец П. Ф., Калнинь А. Э., Плявинь И. К. и др. Сравнение энергетических и динамических характеристик преобразователей различных классов // Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук. 1990. № 3. С. 13.
17. Брацлавец П. Ф., Калнинь А. Э., Плявинь И. К. и др. Определение отношения сигнал/шум и абсолютной квантовой эффективности преобразования для оптоэлектронного преобразователя с памятью на основе активированных щелочно-галлоидных кристаллов // Там же. С. 27.
18. Брацлавец П. Ф., Калнинь А. Э., Плявинь И. К. и др. Разработка преобразователя для ультрафиолетовой части спектра на основе активированных щелочно-галлоидных кристаллов. Ч. 2. Сложение световых потоков. Саласпилс, 1989. (Препр. /АН ЛатвССР. Ин-т физики: ЛАФИ-152).
19. Kalnins A. E., Plavina I. K., Popov A. I., Tale A. K. Induced decay of anion excitons in alkali halide crystals in the vicinity of positively charged defects // Latv. Journ. of Phys. Techn. Sci. 1992. N 3. P. 3.
20. Hersh H. H. Proposed exciton mechanism of color center formation in alkali-halides // Phys. Rev. 1966. 148, N 4. P. 928.
21. Pooley D.  $F$ -centre production in alkali halides by electron-hole recombination and subsequent  $\langle 110 \rangle$  replacement sequences: a discussion of the electron-hole recombination // Proc. Phys. Soc. 1966. 87, N 2. P. 245.
22. Лущик Ч. Б., Витол И. К., Эланго М. А. Распад электронных возбуждений на радиационные дефекты в ионных кристаллах // УФН. 1977. 122, вып. 2. С. 223.
23. Плявинь И. К., Тале А. К. Пространственное распределение дефектов в фотостимулируемых щелочно-галлоидных кристаллах // Автометрия. 2001. № 6. С. 3.
24. Rogulis U., Spaeth I.-M., Tale I., Ruza E. ODEPR of indium colour centres in the X-irradiation storage phosphor  $KBr-In$  // Radiation Effects and Defects in Solids. 1995. 134. P. 471.
25. Rogulis U., Tale I., Hangleiter Th., Spaeth I.-M. The photostimulation process in the X-ray storage phosphor  $KBr-Tl$  // Journ. Phys.: Condens. Matter. 1995. 7. P. 3129.
26. Rogulis U., Dietze C., Pavlik Th. et al. Hole-trapping sites and the mechanism of the photo-stimulated luminescence of the X-ray storage phosphor  $RbJ: Tl^+$  // Journ. Appl. Phys. 1996. 80, N 3. P. 1.
27. Тринклер Л. Э., Тринклер М. Ф. Полосы поглощения, обусловленные околоактиваторными экситонами, в кристаллах  $KJ$  с примесями рутепоподобных ионов // Оптика и спектроскопия. 1987. 63, вып. 6. С. 1280.
28. Plavina I., Popov A. I. The observation of a new  $D$ -absorption band in  $KBr-In$  crystals // Phys. Stat. Sol. (b). 1993. 176. P. 255.
29. Тринклер М. Ф., Тринклер Л. Э. Низкотемпературная оптическая вспышка в  $KJ-Tl$ , созданная облучением в  $D_2$ - и  $C$ -полосах поглощения // Оптика и спектроскопия. 1987. 63, вып. 2. С. 307.

30. **Плявинь И. К., Тринклер М. Ф.** Роль околоактиваторных экситонов в формировании спектров возбуждения активаторной люминесценции и спектров создания активаторной светосуммы в кристалле КJ–Tl при низких температурах // Оптика и спектроскопия. 1985. **59**, вып. 5. С. 1070.
31. **Тринклер М. Ф., Тринклер Л. Э.** Поляризационные исследования стимулированной активаторной люминесценции в кристалле КJ–Tl при низких температурах // Тез. докл. 6-й Всесоюз. конф. по радиационной физике и химии ионных кристаллов. Рига, 1986. С. 337.
32. **Тринклер М. Ф., Тринклер Л. Э.** Низкотемпературная оптическая вспышка в кристалле КJ–Sn, созданная облучением в  $D_2$ -области поглощения // Оптика и спектроскопия. 1989. **67**, вып. 1. С. 78.
33. **Тринклер Л. Э., Тринклер М. Ф.** Низкотемпературная вспышка КJ–Sn, запасенная в  $D_2$ -области поглощения // Тез. докл. 7-й Всесоюз. конф. по радиационной физике и химии неорганических кристаллов. Рига, 1989. С. 296.
34. **Тринклер Л. Э., Тринклер М. Ф.** Термостимулированная люминесценция кристалла КJ–Sn, облученного в  $D_2$ -области активаторного поглощения // Оптика и спектроскопия. 1989. **67**, вып. 2. С. 346.
35. **Edgerton R., Teegarden K.** Emission spectra of KJ–Tl at 12 °K // Phys. Rev. A. 1964. **136**. P. 1091.
36. **Пекар С. И.** Кристаллооптика и добавочные световые волны. Киев: Наук. думка, 1982.
37. **Агранович В. М.** Теория экситонов. М.: Наука, 1968.
38. **Itoh M.** Exciton luminescence and polariton effects in alkali iodide crystals // Phys. Rev. B. 1987. **35**, N 14. P. 7652.
39. **Itoh M., Ohno N.** Exciton-polariton dispersion of alkali bromides observed with interference method // Journ. Phys. Soc. Japan. 1999. **58**, N 8. P. 2857.
40. **Plavina I., Popov A. I., Tale A., Kalnins A.** Possible mechanism of energy storage in the optically stimulated materials – doped alkali halides // Proc. SPIE. 1997. **2967**. P. 52.
41. **Плявинь И. К., Тале А. К.** Возможные механизмы создания фотостимулируемых дефектов и возбуждения люминесценции активатора при облучении щелочно-галогенидных кристаллов ионизирующей радиацией // Автометрия. 2002. **38**, № 5. С. 102.
42. **Plavina I., Tale A.** Possible exciton polariton effects in the creation of spatially-correlated defects in doped alkali halides // The 3rd Intern. Conf. Advanced Optical Materials and Devices. Riga, 2002. P. 137.
43. **Kalnins A., Plavina I., Tale A.** Powdered KBr–In as an X-radiation material with a wide dynamic range // Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. B. 1994. **84**. P. 95.
44. **Калныньш Р. А., Плявиня И. К., Тале А. К.** Генерация дефектов Френкеля в щелочно-галогенидных кристаллах при комнатной температуре // Тез. докл. 5-й Всесоюз. конф. по радиационной физике и химии ионных кристаллов. Рига, 1983. С. 80.
45. **Sugiyama T., Fujiwara H., Suzuki T., Tanimura K.** Femtosecond time-resolved spectroscopy of self-trapping processes of holes and electron-hole pairs in alkali bromide crystals // Phys. Rev. B. 1996. **54**, N 21. P. 15109.
46. **Tomiki T., Miyata T., Tsukamoto H.** The Urbach rule for the sodium- and potassium-halides // Z. Naturforsch. 1974. **29a**. P. 145.

*Институт физики твердого тела  
Латвийского университета,  
E-mail: trinkler@latnet.lv*

*Поступила в редакцию  
24 января 2003 г.*