

УДК 538.97-405;53.082.5

## ОЦЕНКА РАДИУСА ТРЕКА ТЯЖЕЛЫХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ ПО СПЕКТРАМ НАВЕДЕННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ

В.М. Лисицын, Л.А. Лисицына, М.В. Здоровец\*, А.К. Даулетбекова\*, А.Т. Акилбеков\*

Томский политехнический университет

Томский государственный архитектурно-строительный университет

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

E-mail: lisitsyn@tpu.ru

*Описан новый подход к оценке радиуса трека тяжелой заряженной частицы по результатам исследования соотношения наведенных простых и сложных центров окраски в ионных кристаллах потоками ионов и электронов от мощных сильноточных ускорителей. Проведена оценка радиуса трека ускоренного до 117 МэВ иона  $^{84}\text{Kr}$  в кристалле LiF. Найденная величина трека хорошо соответствует известной из оценок другими методами.*

### Ключевые слова:

Трек, тяжелая заряженная частица, мощный импульсный поток электронов, кристалл LiF.

### Введение

Для установления характеристик треков тяжелых заряженных частиц в материалах обычно используются результаты исследований нелинейных эффектов. С ростом плотности возбуждения (в шлоногалоидных кристаллах и с ростом плотности создания центров окраски) изменяется соотношение между концентрациями накапливаемых простых и сложных центров окраски в пользу последних. Следовательно, из измеренного соотношения накопленных простых и сложных центров окраски можно оценить плотность возбуждения в объеме трека частицы и, соответственно, размеры трека [1]. Однако исследования процессов создания, преобразования, накопления центров окраски при высоких плотностях возбуждения, которые имеют место в области треков, крайне малочисленны.

Единичная тяжелая частица создает в материале трек с высокой плотностью возбуждения за короткое время [2]. Плотность возбуждения в треке частицы  $E_{\text{cp}}$  можно найти по известным величинам энергии налетающей частицы, длине ее пробега  $R_T$  и радиусу трека  $r_T$ . Например для иона криптона с энергией частицы 117 МэВ в кристалле LiF,  $r_T=12,5$  нм (расчеты выполнены по [1]),  $R_T=15$  мкм,  $E_{\text{cp}}=1,6 \cdot 10^{22}$  эВ/см<sup>3</sup>. Время прохождения частицы в веществе, то есть время, за которое формируется трек, имеет величину порядка  $10^{-12}$  с.

При малой плотности флюенса частиц в каждом треке развиваются одинаковые, независимые друг от друга совокупности процессов образования, накопления центров окраски. С повышением флюенса появляется возможность пространственного перекрытия треков. Для рассматриваемого примера облучения ионами криптона перекрытие треков в пространстве может наблюдаться при флюенсах выше  $10^{12}$  ионов/см<sup>2</sup>. В области перекрытия треков характер дефектности будет отличаться от наблюдаемого в отдельном треке.

Известно, что релаксация электронных возбуждений в кристаллах, эволюция дефектности (пре-

образования центров окраски) развиваются от  $10^{-8}$  до  $10^5$  с [3, 4]. Вероятность перекрытия треков с одинаковой степенью релаксации ничтожно мала при любых реальных плотностях облучения. Эволюция дефектности, развитие процессов в области перекрытия для каждой пары треков будут различными.

Таким образом, при облучении кристаллов малыми потоками тяжелых заряженных частиц релаксационные процессы во всех треках будут подобными. При больших флюенсах совокупность релаксационных процессов зависит от того, как треки перекрываются в пространстве и времени.

Моделирование процессов, протекающих в единичном треке тяжелой высокоэнергетической частицы, можно провести с использованием источников импульсной радиации высокой плотности излучения и короткой длительности. Наиболее подходящими для моделирования являются импульсные потоки электронов, генерируемые сильноточными ускорителями электронов, с длительностью около 1 нс. Хотя длительность импульса потока электронов заметно больше, чем время, за которое частица выделяет энергию в треке, использование импульса потока электронов для моделирования возможно. Дело в том, что созданные первичные радиационные дефекты при 300 К сохраняются в неизменном виде до времен порядка  $10 \dots 100$  нс.

Плотности возбуждения вещества потоками электронов могут быть очень высокими. Однако при плотности энергии  $W_{\text{инт}}$  выше  $0,5$  Дж/см<sup>2</sup> образцы разрушаются. Поэтому для моделирования придется ограничиться использованием импульса потока не более  $0,5$  Дж/см<sup>2</sup>, что позволит получить плотность возбуждения около  $2 \cdot 10^{20}$  эВ/см<sup>3</sup>, что почти на два порядка величины ниже, чем в треке частицы.

Таким образом, моделирование процессов, протекающих в треке заряженной частицы, посредством возбуждения вещества импульсными потоками электронов возможно в следующем прибли-

жении: процессы релаксации дефектности подобны при изменении плотности поглощенной энергии на два порядка величины. Коррекция полученных представлений может быть сделана на основе анализа (и экстраполяции) плотностных исследований изменений свойств (характеристик) в диапазоне мощностей ниже предельной.

Настоящая работа имеет целью поиск подходов к оценке пространственных характеристик треков частиц на основе анализа результатов исследований накопления центров окраски в кристалле LiF при облучении потоками тяжелых заряженных частиц и импульсами сильноточных потоков электронов.

### Обоснование подхода к оценке радиуса трека тяжелых частиц

Пусть образец облучается потоком с общим флюенсом таким, чтобы вероятность пространственного перекрытия треков была мала. Эта ситуация соответствует реальной при облучении на циклотроне типа DC-60. Плотности потока ионов на выходе ускорителя имеют величину порядка  $10^{10} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$ . При таких плотностях потока можно считать, что в каждом отдельном треке все события, инициированные налетающей частицей, подобны и независимы от процессов, происходящих в других треках.

Представим трек как цилиндр с радиусом  $r_T$ , содержащим F, F<sub>2</sub>-центры и комплементарные к ним дырочные центры окраски. Тогда при малой плотности треков  $N$  (в кристалле LiF при  $N \ll 10^{13} \text{ см}^{-2}$ ,  $r_T \sim 10 \text{ нм}$  вероятность перекрытия треков мала) часть зондирующего излучения при измерении оптической плотности  $D$  (коэффициента пропускания –  $\tau$ ) образца проходит через созданные треки ( $D_T, \tau_T$ ), часть – через область кристалла, не содержащую треки ( $D_0, \tau_0$ ). Установим связь между интегральным коэффициентом пропускания образца  $\tau$ , облученного тяжелыми частицами, с коэффициентами пропускания в области треков  $\tau_T$  и вне трека  $\tau_0$ . Полагая, что  $\tau_T = \text{const}$  и  $\tau_0 = \text{const} = 1$ , и площадь единичного трека  $\pi r_T^2 = \text{const}$  получим:

$$\tau = 1 - \pi r_T^2 \cdot N(1 - \tau_T), \quad (1)$$

В соответствии с (1) интегральный коэффициент пропускания образца связан с коэффициентом пропускания в треке и радиусом трека. Следовательно, по экспериментально измеренному значению интегрального коэффициента пропускания можно найти радиус трека при известном коэффициенте пропускания трека с центрами окраски.

Как уже отмечалось выше прямыми измерениями сделать это невозможно. Но если создать импульсом потока электронов такую же совокупность дефектов (по соотношению и концентрации), которая создается в треке, по измеренному показателю поглощения можно оценить коэффициент пропускания в треке.

Пусть концентрация F-центров, наведенных электронным пучком, равна  $n_{Fe}$ . Если  $n_{Fe} = n_{FT}$  ( $n_{FT}$  – концентрация F-центров в треке частицы), то и

$$\chi_T(F) = \chi_e(F),$$

где  $\chi_T(F), \chi_e(F)$  – показатели поглощения в максимумах F-полос в треке и в облученном электронами кристалла. Тогда коэффициент пропускания  $\tau_T$  связан с оптической плотностью в треке частицы (или в облученном импульсом потока электронов кристалле) соотношением:

$$\tau_T = e^{-D_T} = e^{-\chi_T R_T} = e^{-\frac{D_e R_T}{R_e}}, \quad (2)$$

где  $D_T, R_T$  и  $D_e, R_e$  – оптическая плотность и длина пробега иона и электрона в кристалле, соответственно.

Подставляя (2) в (1) получим выражение для определения радиуса трека:

$$r_T^2 = \frac{(1 - \tau)}{\pi N} \left( 1 - e^{-\frac{D_e R_T}{R_e}} \right)^{-1}. \quad (3)$$

В выражении (3)  $D_e$  есть оптическая плотность образца с наведенными импульсом электронов F-центрами, концентрация которых равна концентрации F-центров в треке частицы. Как было сказано выше такую концентрацию дефектов навести единичным импульсом потока электронов невозможно: образец разрушается при плотностях возбуждения почти на два порядка ниже необходимых. Поэтому оценку концентраций F-центров в треке можно сделать только экстраполяцией результатов исследований зависимости концентрации наведенных F-центров от дозы облучения импульсами потока электронов.

Найти величину  $D_e$  можно воспользовавшись следующими положениями.

1. Известно, что при однородном (равномерном по объему) облучении кристалла, между концентрациями F- и F<sub>2</sub>-центров при постоянных условиях облучения и измерения выполняется соотношение:

$$k = n(F_2)/n^2(F) = \text{const}.$$

Отсюда следует, что отношение

$$\frac{D_e(F_2)}{D_e^2(F)} = k^* \quad (4)$$

также есть величина постоянная, которая может быть найдена непосредственно из результатов экспериментальных исследований.

2. При равенстве концентраций F-центров в треке частицы и в облученном импульсами потоков электронов образце должно иметь место и равенство концентраций F<sub>2</sub>-центров. Тогда должно соблюдаться и следующее равенство:

$$\frac{D_e(F)}{D_e(F_2)} = \frac{D_T(F)}{D_T(F_2)} = \frac{D(F)}{D(F_2)} = k_1^*, \quad (5)$$

где  $D(F)$ ,  $D(F_2)$  – оптическая плотность в максимумах F-, F<sub>2</sub>-полос в облученном ионами кристалле. В соответствии с (5) коэффициент  $k_1^*$  определяется непосредственно из результатов исследования спектров поглощения кристаллов, облученных потоком тяжелых частиц.

Совместное решение уравнений (4) и (5) позволяет найти то значение оптической плотности в максимуме F-полосы поглощения в облученном потоком электронов кристалле  $D_e(F)$ , которому соответствует концентрация F-центров, равная концентрации F-центров в треке частицы:

$$D_e(F) = 1/k^*k_1^* \quad (6)$$

Подставив значение (6) в (3), найдем радиус трека.

### Экспериментальное определение радиуса трека

Для оценки возможности и точности определения радиусов треков тяжелых заряженных частиц использовали модельные монокристаллы LiF, выращенные в ВНТЦ (ГОИ им. С.И. Вавилова). Пластинки монокристаллов получали выкалыванием перпендикулярно направлению <100> кристалла.

Для моделирования процессов в треках тяжелых частиц использовался малогабаритный сильноточный ускоритель РАДАН-220. Ускоритель обеспечивает генерацию импульсов потока электронов со средней энергией ускоренных электронов 150 кэВ, длительностью импульса 2 нс, током пучка в импульсе до 1 кА. Облучение проводилось на воздухе при 300 К. Поток электронов выводился через Al-фольгу. Глубина проникновения электронов в кристалл  $R_e$  была измерена по видимой глубине окрашивания скола кристалла и составляла 0,15 мм.

Измерялись спектры наведенного облучением потоком электронов поглощения кристаллов LiF в зависимости от дозы облучения (числа импульсов потока электронов). Спектры имели характерный для этих кристаллов вид с хорошо выраженными F- и F<sub>2</sub>-полосами. Экспериментально измеренные значения оптической плотности в максимумах F- и F<sub>2</sub>-полос в кристаллах LiF представлены в табл. 1.

**Таблица 1.** Экспериментально измеренные значения оптической плотности в максимумах F- и F<sub>2</sub>-полос  $D_e(F)$ ,  $D_e(F_2)$  в кристаллах LiF, облученных электронами на ускорителе РАДАН-220  $i$ -ым числом импульсов

$i$ -число импульсов	$D_e(F)$	$D_e(F_2)$
10	1,514	0,128
20	2,408	0,139
40	3,324	0,128
60	3,817	0,186
70	4,423	0,199
80	4,605	0,186

На основании результатов обработки экспериментальных данных, табл. 1, было найдено, что  $k^*$  равно 0,015.

Тяжелыми заряженными частицами кристаллы облучали на циклотроне DC-60 Евразийского национального университета им. Л.Н. Гумилева. В качестве тяжелых заряженных частиц были выбраны ионы <sup>84</sup>Kr с энергией 117 МэВ. Ток в ионном пучке составлял 23 нА и был постоянным. Облучение проводилось на воздухе при 20 °С.

Спектры поглощения облученных кристаллов LiF имели характерный для этих кристаллов вид с хорошо выраженными F- и F<sub>2</sub>-полосами. Глубина проникновения ионов криптона в кристалл  $R_T$  была измерена по видимой глубине окрашивания скола кристалла и составляла 15 мкм. Результаты измерений оптической плотности в максимумах F- и F<sub>2</sub>-полос, необходимые для определения значений коэффициента  $k_1^*$  по (5), приведены в табл. 2. В этой же таблице приведены результаты расчета радиуса треков и обозначенных в формулах (3,5) значений  $k_1^*$ ,  $D_e(F)$ ,  $\tau$ ,  $r_T$  для различных флюенсов.

**Таблица 2.** Экспериментально измеренные значения оптической плотности в максимумах F- и F<sub>2</sub>-полос  $D(F)$ ,  $D(F_2)$  в кристаллах LiF, облученных различными флюенсами  $\Phi$  ионов <sup>84</sup>Kr с энергией 117 МэВ

$\Phi$ , ион/см <sup>2</sup>	$D(F)$	$D(F_2)$	$k_1^*$	$D_e(F)$	$\tau$	$r_T$ , нм
$6,0 \cdot 10^{10}$	0,55	0,13	4,2	15,8	0,58	13
$1,2 \cdot 10^{11}$	0,81	0,14	6,0	11,1	0,45	9,5
$1,7 \cdot 10^{11}$	1,19	0,32	3,6	18,5	0,31	10
$2,5 \cdot 10^{11}$	1,63	0,43	3,8	17,5	0,20	9

Некоторые отличия и разброс полученных значений можно объяснить недостаточной стабильностью работы ускорителей, которые находятся в стадии настройки.

### Выводы

Трек в соответствии с изложенным подходом представляет собою цилиндр с радиусом  $r_T$ , средняя величина оптического пропускания  $\tau_T$  вдоль которого соответствует критериям (4) и (5). Величина  $r_T$  определяется пространственной плотностью наведенных центров и соотношением простых и сложных центров окраски. Поэтому величина  $r_T$  отражает плотность возбуждения в области передачи энергии частицы кристаллу. Очевидно, что при разных методах оценки величины радиусов должны несколько различаться, поскольку в каждом методе вводятся свои критерии, приближения в определении значений радиусов. Рассчитанные значения радиусов треков близки по величине к найденным использованным в [1] методом. Предложенный метод позволяет делать оценки радиусов треков различных частиц с различными энергиями с использованием простых измерений наведенного оптического поглощения.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Schwartz K., Volkov A.E., Sorokin M.V., Trautman C., Voss K.-J., Neumann R., Lang M. Effect of electronic energy loss and irradiation temperature on color center creation in LiF and NaCl crystals irradiated with heavy ions // *Phys. Rev. B.* – 2008. – V. 78. – P. 024120.
2. Лисицын В.М. Радиационная физика твердого тела. – Томск: Изд-во ТПУ, 2008. – 170 с.
3. Лисицын В.М., Яковлев В.Ю., Корепанов В.И. Кинетика разрушения М-центров после импульсного облучения электронами в кристалле  $MgF_2$  // *Физика твердого тела.* – 1978. – Т. 20. – № 3. – С. 731–733.
4. Лисицына Л.А. Закономерности создания электронных центров окраски в кристаллах LiF при импульсном радиационном воздействии // *Известия вузов. Физика.* – 1996. – № 11. – С. 57–75.

Поступила 26.01.2009 г.

УДК 539.21

## ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ПОВЕРХНОСТИ ТВЕРДЫХ ТЕЛ, ИНИЦИИРУЕМАЯ ПРЕАДСОРБИРОВАННЫМИ АТОМАМИ КИСЛОРОДА

Ю.И. Тюрин, С.Х. Шигалугов\*, В.Н. Емельянов\*, А.Н. Катаев\*, Ю.В. Маловичко\*, Е.Ю. Плотникова

Томский политехнический университет

E-mail: tyurin@tpu.ru

\*Норильский индустриальный институт

E-mail: fizika@norvuz.ru

*Приводятся результаты изучения люминесценции, возбуждаемой при напуске молекулярных газов  $O_2$ ,  $N_2O$  и  $CO$  на поверхность кристаллофосфора  $Zn_2SiO_4:Mn$ , предварительно заполненную атомами кислорода. Дана интерпретация этого явления в модели ускорения поверхностной гетерогенной рекомбинации атомов кислорода в образующемся адсорбционном слое кислородсодержащих молекул  $O_2$ ,  $N_2O$ ,  $CO$  по обменно-ассоциативному механизму.*

### Ключевые слова:

*Поверхность, люминесценция, твердые тела, адсорбция атомов, рекомбинация атомов.*

### Введение

При каталитическом взаимодействии газовых частиц, в том числе атомарных и молекулярных, на поверхности твердого тела – кристаллофосфора  $Zn_2SiO_4:Mn$  возникает неравновесное оптическое излучение с характерным для данного образца спектральным составом [1, 2]. По наблюдениям [1–5] это явление носит общий характер, может быть реализовано в экспериментах различными способами и содержит в себе уникальную информацию о физико-химических процессах взаимодействия и энергообмена на границе газ-твердое тело.

Рассматриваются особенности неравновесного свечения виллемита, возникающего при взаимодействии налетающих из газовой фазы нейтральных невозбужденных молекул  $O_2$ ,  $CO$ ,  $N_2O$  с преадресорбированными на поверхности кристаллофосфора атомами кислорода.

### Экспериментальные и теоретические результаты

Исследования проводили на высоковакуумной автоматизированной установке, подробно описанной в [6]. Использовали газы:  $O_2$  (99,999 %),  $CO$  (99,998 %),  $N_2O$  (99,995 %), газ-носитель – аргон (99,999 %).

Свободные атомы кислорода  $O$  получали тремя независимыми методами: электрическим – из кислородной плазмы ВЧ-разряда; фотолитическим –

при облучении кислорода коротковолновым ( $\lambda < 300$  нм) УФ-излучением; пиролитическим – на нагретой в кислороде металлической поверхности.

В пиролитическом методе получения атомов  $O$  использовали эффект катализа диссоциации кислорода поверхностью металлов платиновой группы [7], в частности, поверхностью родия (Rh) – ввиду его высокой каталитической активности и термостойкости. Применялась родиевая лента ( $10 \times 2 \times 0,05$  мм), нагреваемая током до 1800 К.

Исследуемый образец  $\alpha$ -виллемит «о.с.ч.» ( $Zn_2SiO_4:Mn^{2+}$ ) слоем толщиной до 0,1 мм наносили из суспензии в изопропиловом спирте на специальную микрочашку-подложку, позволявшую поддерживать с высокой точностью (до 1 К) и быстродействием ( $\sim 0,5$  с) постоянство температуры образца при помощи специального автоматического терморегулятора [3]. Это позволило избежать побочных тепловых эффектов (термостимулированной люминесценции за счёт выделения тепла в процессах адсорбции и рекомбинации, гашения люминесценции за счёт охлаждения образца при напуске газа и т. п.).

Преадресорбция атомов кислорода  $O$  на поверхности образца продолжалась 15 мин. из смеси  $O_2+O$  при  $P_{O+O_2}=2,6$  Па: 13 мин. при постоянной для всех опытов температуре образца 400 К и 2 мин. при установлении рабочей температуры (379, 400,