

СТАТИСТИЧЕСКОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ F -ЦЕНТРОВ ПО КРАТНЫМ ЦЕНТРАМ

А. Н. КРАВЕЦ

(Представлена научным семинаром лаборатории диэлектриков и полупроводников)

В настоящее время есть основание считать, что электронные центры M , R , и N_2 , образующиеся в щелочно-галогидных кристаллах под действием ионизирующих излучений, состоят из двух, трех и четырех F -центров соответственно, а их концентрации связаны следующими соотношениями [1, 2, 3, 5]:

$$n_M = p_1 n_F^2; n_R = p_2 n_F^3; n_{N_2} = p_3 n_F^4, \quad (1)$$

где p_1 , p_2 и p_3 характеризуют соответственно эффективности радиационных реакций $F \rightarrow M$, $F \rightarrow R$, $F \rightarrow N_2$ и рядом авторов [1, 2, 4] предполагаются независимыми от концентрации F -центров. Однако в работах [3, 6] показано, что при облучении кристалла LiF протонами p_1 увеличивается с ростом дозы, что связывается с протеканием двух необратимых процессов, увеличивающих вероятность близкого расположения электронных центров: 1) статистического распределения электронных центров по кратным центрам и 2) статистического распределения поглощенной энергии по кратностям локализации. Роль каждого из этих процессов зависит от дозы облучения, интенсивности и энергии падающих частиц, температуры и химического состава исследуемого образца. Выяснение этой роли весьма важно для интерпретации экспериментальных данных.

В настоящей работе предпринята попытка установить влияние первого необратимого процесса — статистического распределения электронных центров по кратным центрам — на кинетику их накопления и на эффективность радиационных реакций коагуляции F -центров в сложные центры. С этой целью проведен расчет методом статистических испытаний Монте-Карло, позволяющий установить характер накопления электронных центров в случае их статистического распределения, что, как мы предполагаем, имеет место при равномерном распределении дозы по объему кристалла. Следует отметить, что аналогичным образом поставленная задача недавно решалась в работе [4], однако, только для F - и M -центров и сравнительно небольших участков кинетических кривых, не позволяющих выявить основные закономерности кинетики их накопления. Поэтому оставалась необходимость решения поставленной задачи в более широком плане, что и проделано в данной работе. Генерация электронных центров осуществлялась путем бросания точек, координаты которых брались из таблицы случайных чисел [8], на узлы

простой квадратной решетки, содержащей $N = 10^4$ узлов. В реальном кристалле координатные оси такой решетки соответствуют направлениям $[01\bar{1}]$ и $[0\bar{1}1]$. Таким образом, можно представить узлы рассматриваемой решетки как анионные узлы. Далее предполагается, что два F -центра могут образовать M -центр, если они находятся в соседних узлах решетки. Узлы, на которые выпали точки, будем называть «занятыми», а остальные — «пустыми». «Занятый» узел принимался за F -центр, если четыре окружающих его узла пусты. Два ближайших «занятых» узла принимались за M -центр, если остальные шесть узлов, находящихся с ними в ближайшем соседстве, «пусты». Аналогично, R -центр в данном случае представляет собой три соседних «занятых» узла, а N_2 -центр — четыре соседних «занятых» узла, если ближайшие узлы, окружающие их, пусты. Число ближайших соседних узлов, которые могут окружать данный центр, называемое координационным числом, принималось равным $\chi_1 = 4$, $\chi_2 = 6$, $\chi_3 = 8$, $\chi_4 = 10$ для F -, M -, R - и N_2 -центров соответственно. Результаты каждого бросания заносились в таблицу. Таким образом, можно было проследить историю образования центров, т. е. кинетику их накопления. Если брошенная точка попала в уже «занятый» узел, то число узлов, считалось неизменным. Всего было проделано три серии бросаний с дозой (число брошенных точек) по четыре тысячи каждая. В каждой серии число полученных центров усреднялось на интервале сто точек. Результаты всех серий также усреднялись, а при их сопоставлении определялись ошибки «эксперимента», которые в нашем случае оказались меньше, чем в работе [4], так как усреднение мы проводили на большем интервале точек. При проведении данного «эксперимента», как и в работе [4], считалось, что генерируемые центры разрушаются только при их коагуляции в сложные центры. По-видимому, эти условия могут выполняться в реальном кристалле при достаточно низких температурах, когда можно пренебречь обратными реакциями и радиационным отжигом анионных вакансий.

Если принять всю рассматриваемую решетку за единицу площади, то величину $S = \frac{\chi_1}{N-n}$, где $n = n_F + 2n_M + 3n_R + \dots$ — общее число «занятых» узлов, можно рассматривать как площадь коагуляции F -центра, т. е. площадь, при попадании в которую еще одного F -центра образуется M -центр. Аналогично введем в рассмотрение площади коагуляции $S_2 = \frac{\chi_2}{N-n}$; $S_3 = \frac{\chi_3}{N-n}$; $S_4 = \frac{\chi_4}{N-n}$ для M -, R - и N_2 -центров соответственно. Используя результаты работ [6, 7], можно для данного случая записать кинетические уравнения накопления электронных центров в следующем виде:

$$n_F = ne^{-\bar{n}s}; \quad (2)$$

$$n_M = \frac{n}{\kappa \bar{n} s} e^{-\bar{n}s} (e^{-\bar{n}s} + \kappa \bar{n}s - 1); \quad (3)$$

$$n_R = \frac{n(\kappa + 1)}{\bar{n}s(\kappa_2 - \kappa)} e^{-\bar{n}s} \left[\frac{1}{\kappa} (e^{-\kappa \bar{n}s} + \kappa \bar{n}s - 1) - \frac{1}{\kappa_2} (e^{-\kappa_2 \bar{n}s} + \kappa \bar{n}s - 1) \right]; \quad (4)$$

$$n_{N_2} = n \frac{(\kappa_1 + 1)(\kappa_2 + 1)}{nS(\kappa_2 - \kappa)} e^{-\bar{n}S} \left[\frac{1}{\kappa(\kappa_3 - \kappa)} (e^{-\kappa nS} + \kappa \bar{n}S - 1) - \frac{1}{\kappa_2(\kappa_3 - \kappa_2)} (e^{-\kappa_2 nS} + \kappa_2 \bar{n}S - 1) - \frac{\kappa(\kappa_3 - \kappa) + \kappa_3(\kappa_3 - \kappa_2)}{\kappa\kappa_3(\kappa_3 - \kappa)(\kappa_3 - \kappa_2)} (e^{-\kappa_3 nS} + \kappa_3 \bar{n}S - 1) \right], \quad (5)$$

где

$$\kappa = \frac{S_2}{S} - 1; \quad \kappa_2 = \frac{S_3}{S} - 1; \quad \kappa_3 = \frac{S_4}{S} - 1,$$

а

$$\bar{n}S = \int_0^n s(n) dn = -\ln \left(1 - \frac{n}{N} \right)^{z_1},$$

тогда

$$n_F = n \left(1 - \frac{n}{N} \right)^{z_1}. \quad (6)$$

Выражения для эффективностей $p_1 = \frac{n_M}{n_F^{\frac{1}{2}}}$; $p_2 = \frac{n_R}{n_F^{\frac{1}{3}}}$ и $p_3 = \frac{n_{N_2}}{n_F^{\frac{1}{4}}}$ можно записать, используя формулы (2—5).

Для проверки справедливости этих формул они сравнивались с результатами «эксперимента» по методу Монте—Карло. При этом величина $n = Dn^*$, где D —число брошенных точек, n^* —число повторных попаданий в «занятые» узлы, что также регистрировалось в «эксперименте».

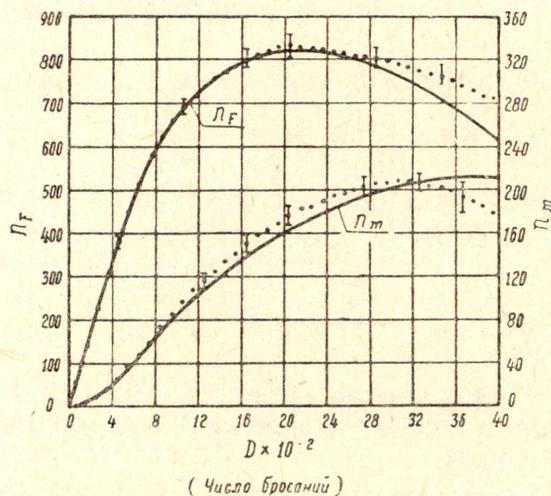


Рис. 1. Концентрации F - и M -центров как функции от дозы, полученные методом статистических испытаний Монте—Карло. Сплошные кривые — теоретические.

На рис. 1—3 представлены результаты «эксперимента» и теоретические кривые, из сопоставления которых видно, что при дозах, близких к числу узлов решетки, уравнения (2—5) предсказывают значения, которые выходят за пределы ошибки «эксперимента». В реальном кристалле это расхождение имело бы место при концентрации n , равной порядка 0,1 концентрации анионных узлов. Наличие этого расхождения можно объяснить тем, что условия, при которых были выделены уравнения (2—5), не являются достаточно строгими. Они не учитывают, что при больших n закон распределения электронных центров по кратным центрам будет носить более сложный характер, а именно: представлять собой неоднородный марковский процесс [9].

Сравнение полученных результатов с экспериментальными данными может быть осуществлено путем сопоставления концентрации электронных центров и анионных узлов. Однако такое сопоставление затруд-

нено тем, что в реальном кристалле процесс статистического распределения центров не проявляется в чистом виде, а, по-видимому, сопровождается другим необратимым процессом—статистическим распределением

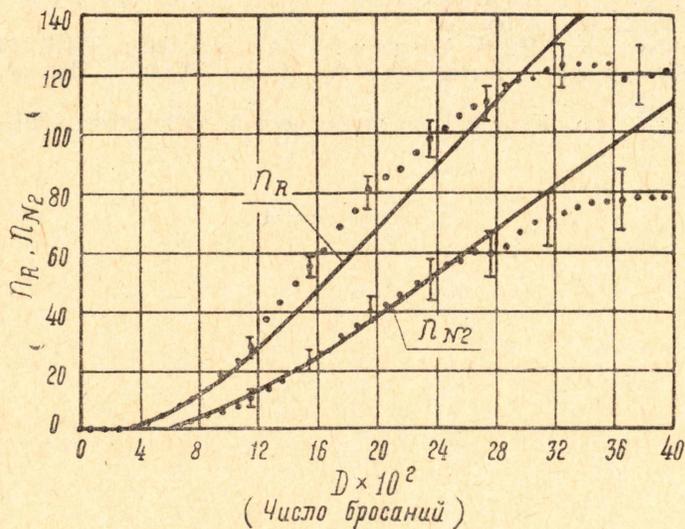


Рис. 2. Концентрации R - и N_2 -центров как функции от дозы, полученные методом статистических испытаний Монте-Карло. Сплошные кривые — теоретические.

энергии по кратностям локализации [3]. Выяснить вклад этого процесса в кинетику накопления электронных центров можно экспериментально,

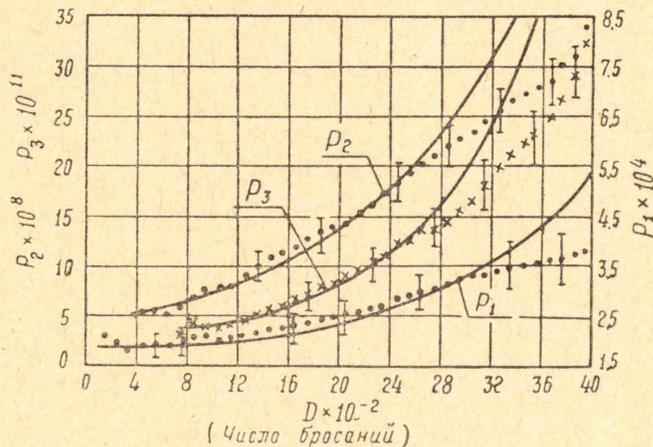


Рис. 3. Эффективности радиационно-химических реакций $F \rightarrow M(\rho_1)$, $F \rightarrow R(\rho_2)$, $F \rightarrow N_2(\rho_3)$, полученные по данным, приведенным на рис. 1 и 2. Сплошные кривые — теоретические.

варьируя величину элементарного объема локализации энергии, то есть один из параметров: энергию протонов, их интенсивность или тормозную способность (химический состав) исследуемых образцов, фиксируя остальные параметры.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. J. Faraday, H. Ranin, W. D. Compton. Phys. Rea. 7, 57, 433, 1961.
2. E. Sonder, W. A. Sibley. Phys. Rev. 129, 1578, 1963. W. A. Sibley, E. Sonder. Phys. Rev. 128, 540, 1962.



3. Д. И. Вайсбурд, И. Я. Мелик-Гайказян. Изв. АН СССР, сер. физич. 1965 (в печати).
 4. R. F. Wallis, B. J. Faraday. Phys. Rev. 133A. A 1360, 1964.
 5. S. Schnatterley, W. D. Compton. Phys. Rev. 135, A227, 1964.
 6. Д. И. Вайсбурд, И. Я. Мелик-Гайказян. Теоретическая и экспериментальная химия, № 2, 190, 1965.
 7. Д. И. Вайсбурд, И. Я. Мелик-Гайказян. Изв. ТПИ, 138, 3, 1965.
 8. Метод статистических испытаний (метод Монте—Карло). Под ред. Ю. А. Шрейдера, Физматгиз, 1962.
 9. Б. В. Гнеденко. Курс теории вероятностей, Физматгиз, 1961.
-