

К ВОПРОСУ О ВЛИЯНИИ ПЛАСТИЧЕСКОЙ ДЕФОРМАЦИИ НА РАДИАЦИОННУЮ ГЕНЕРАЦИЮ ВАКАНСИЙ В ЩЕЛОЧНО- ГАЛОИДНЫХ КРИСТАЛЛАХ

И. Я. МЕЛИК-ГАЙКАЗЯН, С. У. ГОЛЬДЕНБЕРГ

В ряде работ показано, что образование наиболее массовых радиационных дефектов— F -центров в щелочно-галогидных кристаллах происходит в результате локализации электронов как на одиночных анионных вакансиях, существовавших в кристалле до облучения, так и на генерируемых излучением (радиационных) вакансиях. При значительных поглощенных дозах количество локализованных на радиационных вакансиях электронов может превышать количество F -центров, образованных на первичных вакансиях, на два—три порядка [1—3]. Таким образом, вклад генерируемых излучением вакансий в общую дефектность кристалла может быть весьма существенным.

Вопрос о механизме радиационного образования вакансий является одним из центральных вопросов современной радиационной физики. Показано, что образование вакансий за счет непосредственных смещений ионов из узлов кристаллической решетки при действии высокоэнергетических частиц и фотонов маловероятно [4]. В связи с этим предложен ряд механизмов косвенного образования вакансий, которые могут быть разделены на два класса:

1. Образование анионных вакансий за счет многократной ионизации иона галогена, находящегося в регулярной решетке. Эта идея была впервые предложена Варли [5] и развита в работах [6, 7].

2. Механизмы, требующие наличия в кристалле дислокаций, предложенные впервые Зейтцем [8, 9] и Маркгамом [10].

По общепринятому мнению одним из способов выяснения роли дислокаций в процессе радиационного образования вакансий является сопоставление скорости накопления F -центров на второй стадии (стадии медленного окрашивания), связанной с захватом электронов генерируемыми вакансиями, в кристаллах с различием в плотности геометрических микродефектов, создаваемым пластической деформацией. При этом разные авторы получают прямо противоположные экспериментальные результаты о связи плотности дислокаций и скорости медленного окрашивания.

Так, по Брону [11] и Новiku [12] увеличение плотности дислокаций повышает скорость генерации вакансий, по Митчеллу и др. [13] понижает, а по Абрамсону и Каспару [14] не изменяет вообще.

В работе Дэвиджа и Пратта [15] делается заключение о том, что при облучении мягкими рентгеновскими лучами деформация не изменяет скорости радиационной генерации вакансий, при облучении жестким рентгеновским излучением наблюдается весьма заметное увеличение этого параметра.

В настоящей статье делается попытка на основе анализа кинетики накопления F -центров показать, что ввиду недостаточной чистоты кристаллов, используемых во всех перечисленных работах, результаты опытов по влиянию деформации на окрашиваемость щелочно-галоидных кристаллов не могут являться однозначным критерием роли дислокаций в процессе генерации вакансий. Одновременно делается попытка показать, что упомянутые выше противоречия являются в некоторых случаях кажущимися и связаны лишь с различием в интенсивностях использованных потоков радиации.

В самом деле, о скорости генерации вакансий принято судить по наклону линейной части кривой накопления F -центров— a^* . Как показано Митчеллом с соавторами [3], величина a^* определяется следующим выражением:

$$a^* = \frac{a \cdot c}{c + \beta}, \quad (1)$$

где a^* — скорость накопления F -центров на медленной стадии окрашивания, a — скорость генерации вакансий, c — скорость превращения генерируемых вакансий в F -центры, β — скорость радиационного обесцвечивания F -центров. Из выражения (1) видно, что изменение наклона кривой накопления на второй стадии $|a^*|$ не определяет однозначно изменения скорости генерации вакансий, так как деформация, как будет показано ниже, может вызвать изменение параметров c и β . Действительно, деформация одновременно с изменением плотности дислокаций изменяет и состояние примеси в кристалле. В работе [16] убедительно показано, что деформация „чистых“ кристаллов приводит к введению примеси, преципитировавшей на дислокациях в процессе роста и хранения кристалла, в кристаллическую решетку. В том случае, если в решетку встраивается примесь, обладающая высокими акцепторными свойствами по отношению к электронам, уменьшается скорость захвата электронов анионными вакансиями [16], т. е. уменьшается параметр c . При повышении в решетке концентрации примесей, улучшающих условия локализации дырок, уменьшается скорость радиационного разрушения F -центров, т. е. параметр β [17].

Таким образом, деформация щелочно-галоидных кристаллов, содержащих, как правило, около 10^{17} примесных дефектов в 1 см^3 [14], может значительно изменить величину a^* даже в том случае, если дислокации не принимают никакого участия в радиационной генерации вакансий. Важно отметить, что влияние того или иного эффекта, связанного с вхождением примеси в раствор при деформации, существенно зависит от условий облучения, а именно от мощности поглощенной дозы. (К сожалению, эта очень важная характеристика взаимодействия излучения с веществом, как правило, не указывается в большинстве отечественных и зарубежных работ).

Подтвердим вышеизложенное следующим анализом. В работе Абрамсона и Каспари [14] показано, что параметр c может быть выражен следующим образом: $c = \kappa I$, где κ — некоторая константа, зависящая от природы кристалла, его чистоты и температуры облучения, I — мощность поглощенной дозы.

Если принять, что $a = gI$ [14] и g не зависит от плотности дислокаций, что получено в той же работе из опытов по радиационному расширению кристаллов, то a^* можно записать

$$a^* = \frac{\kappa g I^2}{\kappa I + \beta} \quad \text{или} \quad a^* = \frac{g I^2}{I + \beta/\kappa}.$$

При $I \gg \beta/\kappa$, т. е. при больших мощностях поглощенной дозы, изменение параметров β или c ($c = \kappa I$) за счет введения примесей в раствор не может существенно изменить скорость накопления F -центров. Этот случай реализуется, по-видимому, в опытах Абрамсона и Каспари, применивших большие, по сравнению с другими экспериментаторами, интенсивности облучения, а также в той части опытов Дэвиджа и Пратта [15], в которой использовались мягкие рентгеновские лучи.

При I , сравнимом с β/κ , изменение этих параметров должно вызывать и заметное изменение a^* , причем знак эффекта определится свойствами примеси. Увеличение β приведет к уменьшению a^* в деформированных кристаллах (результат Митчелла и его соавторов), уменьшение — к возрастанию этой величины (результат Новика [12], Гордона и Новика [18], Брона [11]). Следует отметить, что в работах последних авторов вызывает сомнение правильность заключения об изменении величины a^* в результате деформации, так как ими изучался наклон кривой накопления, соответствующий дозам, недостаточным для проявления строго линейного накопления F -центров на второй стадии. Это, возможно, является также причиной многих недоразумений в оценке влияния деформации на кинетику накопления F -центров.

Например, из сопоставления кривых, приведенных в работах Брона [11], Митчелла [14], с учетом условий облучения видно, что в работе первого использовались интенсивности и дозы, не позволявшие

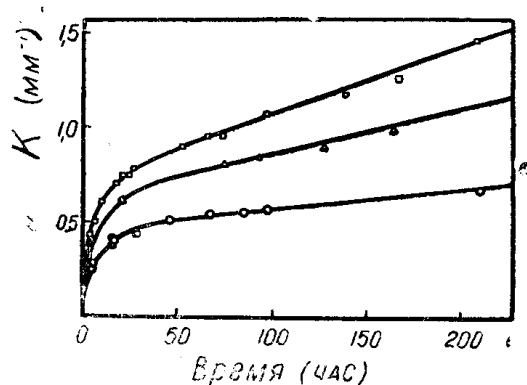


Рис. 1. Данные Н.Е. Брон [11] по влиянию пластической деформации на рост коэффициента поглощения в максимуме F -полосы в KCl , облученном мягкими рентгеновскими лучами.

наблюдать линейный участок второй стадии в чистом виде, в то время как во второй работе, несомненно, наблюдался рост плотности F -центров за счет локализации электронов на радиационных вакансиях, а параметр a^* определялся не только по наклону линейного участка кривой накопления, но и по методу наименьших квадратов. Результаты Митчелла свидетельствуют о повышении (а не о понижении) скорости окрашивания в деформированных кристаллах на участке кривой накопления, соответствующем изученному Броном (рис. 1 и 2).

Из приведенного анализа следует, что необходимо:

1. Весьма осторожно подходить к оценке параметра a^* по наклону кривой накопления. Наиболее корректно эта величина может быть найдена методом наименьших квадратов.

2. Учитывать, что при сравнительно малых мощностях поглощенной дозы влияние перераспределения примесей в кристалле в резуль-

тате деформации может дать существенный вклад в изменение величины скорости накопления F -центров на медленной стадии.

3. Строго различать изменение скорости накопления F -центров на второй стадии (a^*) и скорость генерации вакансий (a), которая непосредственно из опытов по радиационному окрашиванию не определяется.

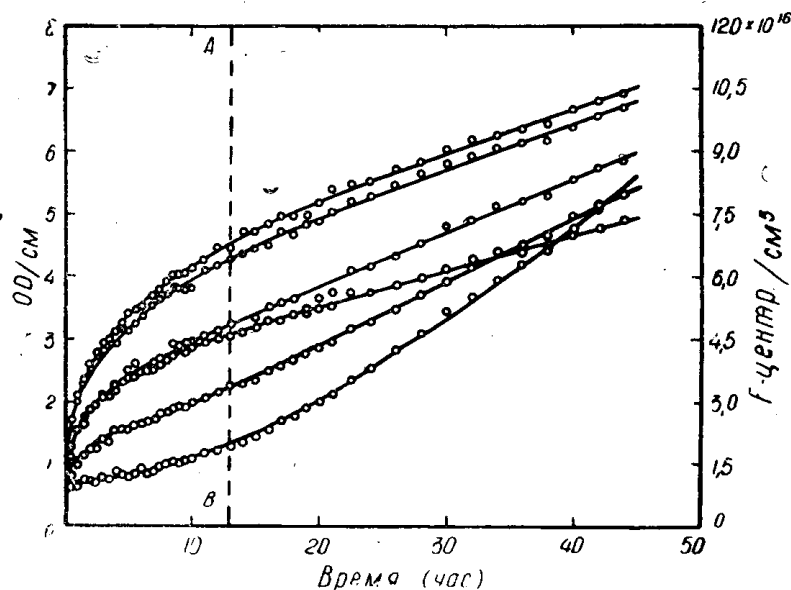


Рис. 2. Данные Р. V. Mitchell'а и др. [13] по влиянию пластической деформации на рост коэффициента поглощения в максимуме F -полосы в KCl, облученном рентгеновскими лучами. Пунктирная линия АВ выделяет участок графика, на котором деформация приводит к увеличению скорости генерации F -центров.

На основе приведенного анализа можно заключить, что современное состояние вопроса о влиянии деформации на кинетику накопления F -центров не позволяет однозначно решить вопрос в пользу одного из вышеупомянутых механизмов генерации вакансий.

ЛИТЕРАТУРА

1. F. Seitz, Revs. Modern Phys. 18, 384, 1946.
2. Д. И. Вайсбурд, И. Я. Мелик-Гайказян (в печати).
3. D. A. Wiegand and R. Smoluchowski, Phys. Rev. 110, 991, 1958.
4. F. Seitz and J. Koehler. Solid state Physick New-Jork, 1956.
5. J. H. O. Varley. Nature 174, 886, 1954.
6. C. C. Klick. Phys. Rev. 120, 760, 1960.
7. F. E. Williams, Phys. Rev. 126, 70, 1962.
8. F. Seitz, Phys. Rev. 80, 249, 1950.
9. F. Seitz, Revs. Modern Phys., 23, 328, 1952.
10. J. J. Markham, Phys. Rev. 88, 500, 1952.
11. N. E. Bron, Phys. Rev. 119, 1853, 1960.
12. A. S. Nowick, Phys. Rev. 111, 16, 1958.
13. P. V. Mitchell, D. A. Wiegand and R. Smoluchowski. Phys. Rev. 121, 484, 1961.
14. E. Abramson and M. E. Caspari, Phys. Rev. 129, 2, 1963.
15. R. W. Davidge and P. L. Pratt, Phys. Stat. Solid. 3, 665, 1963.
16. И. А. Парфианович, Е. И. Шуралева, В. Г. Кронгауз. Тезисы докладов, XII Совещания по люминесценции, Львов, 1964, с. 75.
17. И. Я. Мелик-Гайказян, там же, стр. 60.
18. R. B. Gordon, A. S. Nowick. Phys. Rev. 101, 997, 1956.