

05;12  
©1995

## РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ИОНОВ ХРОМА В $\text{BeAl}_2\text{O}_4$ ПРИ НЕЙТРОННОМ ОБЛУЧЕНИИ

*О.А.Плаксин, В.А.Степанов, П.А.Степанов*

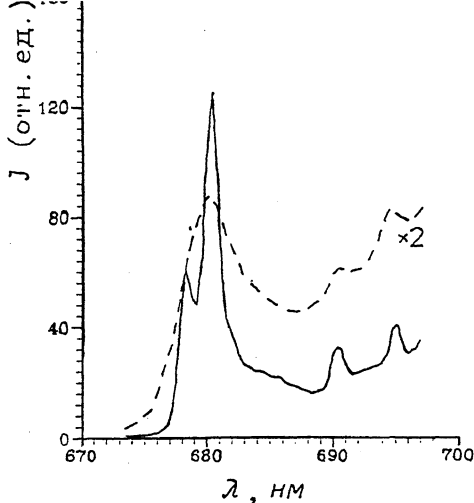
При радиационных воздействиях распределение атомов по различным структурным позициям в кристаллах может оказываться неравновесным. В данной работе показано, что неравновесность такого распределения вызвана не смещениями атомов из узлов кристаллической решетки под действием повреждающей радиации, а микроскопически неравновесным распределением атомов по энергии в процессе облучения.

В кристаллах  $\text{BeAl}_2\text{O}_4 : \text{Cr}^{3+}$  (александрит) ионы  $\text{Cr}^{3+}$  находятся в двух структурно различных состояниях: с зеркальной  $C_s$  и инверсной  $C_i$  позиционной симметрией. В исходном  $\text{BeAl}_2\text{O}_4 : \text{Cr}^{3+}$  в позициях  $C_s$  находится в два раза больше атомов хрома, чем в позициях  $C_i$ . Такое распределение хрома соответствует температуре длительного ( $10^5$  с) гомогенизирующего отжига при 1800 К при выращивании кристаллов [1]. Из соотношения

$$q_B = \frac{Q_s}{Q_i} = \exp \frac{\Delta E}{kT}, \quad (1)$$

в котором  $Q_s$  и  $Q_i$  — количества ионов  $\text{Cr}^{3+}$  в  $C_s$  и  $C_i$  позициях, разность энергий состояний  $\Delta E = 0.1$  эВ.

Монокристаллические пластины  $\text{BeAl}_2\text{O}_4 : \text{Cr}^{3+}$   $5 \times 5 \times 1$  мм (минимальный размер вдоль направления  $\langle 010 \rangle$ ) с содержанием хрома 0.2 ат.%) облучали в реакторе при 690 К и потоке быстрых нейтронов  $I = 8 \cdot 10^{14}$  н/см<sup>2</sup>с. Доза облучения составила  $1.47 \cdot 10^{21}$  н/см<sup>2</sup>. На рисунке представлены спектры люминесценции монокристаллов до и после реакторного облучения, полученные при комнатной температуре при возбуждении излучением ртутной лампы и поляризации вектора электрического поля  $E \parallel c$ . Спектры люминесценции содержат  $R$ -линии на фоне вибронной полосы свечения. Наряду с сильными  $R$ -линиями, соответствующими  $\text{Cr}^{3+}$  в позициях  $C_s$  (677.9 и 679.5 нм), в спектрах имеются также  $R$ -линии для позиций  $C_i$  (689.6 и 695.2 нм) [2]. В исходном спектре отношение интенсивностей люминесценции для  $C_s$  и  $C_i$  позиций хрома, определенных по площадям под соответствующими полосами (для  $C_i$  позиций вычислялась



Спектры люминесценции монокристалла александрита до (сплошная линия) и после (пунктирная линия) реакторного облучения.

интенсивность полосы 695.2 нм), составляет  $I_s/I_i = 17.8$ . С учетом равновесного исходного распределения ионов  $\text{Cr}^{3+}$  отношение квантовых выходов люминесценции  $\eta_s/\eta_i = 8.9$ .

В облученном образце  $\text{BtAl}_2\text{O}_4:\text{Cr}^{3+}$  R-линии уширены по сравнению с исходным состоянием. При этом отношение интенсивностей люминесценции для  $C_s$  и  $C_i$  позиций хрома оказывается меньше  $I_s/I_i = 12.0$ . Из выражения

$$q = \frac{\eta_i}{\eta_s} \cdot \frac{I_s}{I_i} \quad (2)$$

получим распределение хрома по позициям в облученном кристалле  $q = 1.35$ .

Если положить, что  $q_d$  — распределение, возникающее в процессе смещений атомов из узлов кристаллической решетки, то изменение распределения  $q$  в процессе облучения можно описать уравнением

$$\frac{dq}{dt} = \frac{(q_0 - q)}{\tau} + (q_d - q) \cdot \nu \quad (3)$$

с начальным условием  $q(0) = q_i$ ;  $\tau$  — характерное время релаксации к распределению  $q_0$ , которое в равновесных условиях, очевидно, определяется из (1). Время  $\tau$  связано с диффузией ионов хрома в кристаллической решетке. Величина  $\nu$  — частота смещений ионов в процессе облучения,  $\nu \sim I_\sigma = 2.4 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$ , где  $\sigma$  — сечение упругого взаимодействия хрома с нейтронами. Оценка частоты смещений

с учетом образования каскадов смещений не превысит приведенного значения из-за малой концентрации ионов хрома. Поскольку время облучения  $t = 1.8 \cdot 10^6$  с, в решении уравнения (3) можно пренебречь величинами  $t\nu$ . Также не может быть  $\tau \gg t$ , поскольку получим  $q \cong q_i$ , что не соответствует эксперименту. Так как  $\tau$  сравнимо с  $t$  или меньше, то  $t\nu \ll 1$  и

$$q = q_0 \left( 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right) + q_i \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right). \quad (4)$$

Используя выражение (4), можно получить оценку для коэффициента диффузии хрома при реакторном облучении. Поскольку все значения  $q$ ,  $q_0$ ,  $q_i$  положительны, выполняется условие  $\exp(t/\tau) \geq q_i/q$ , из которого, полагая коэффициент диффузии  $D \sim a^2/\tau$  ( $a$  — межатомное расстояние) и подставляя экспериментальные значения  $q$ ,  $q_i$  и  $t$ ,  $D \geq 2 \cdot 10^{-17}$  см<sup>2</sup>/с.

Покажем, что  $q_0$  не может быть определено как  $q_B$  из соотношения (1). При  $q < q_i$  из (4) следует, что  $q_0 < q$ , в то время как из соотношения (1) при температуре облучения получаем противоположный результат  $q_0 = q_b(5.3) > q(1.35)$ . С другой стороны, при  $q_0 = q_b < q$  в предположении повышенной при облучении эффективной температуры структурных перестроек из (1) получим оценку для такой температуры  $T^* > 2170$  К, которая превышает температуру плавления кристалла (2140 К). Отсюда следует, что  $q_0$  не подчиняется равновесному распределению Больцмана (1).

Таким образом, в твердых телах может реализовываться состояние микроскопической неравновесности с существенно неравновесным распределением атомов по энергии. Можно полагать, что такая неравновесность наряду с дефектами структуры, образующимися в условиях повреждающих радиационных воздействий, является причиной изменений фазовых равновесий и кинетики различных активационных процессов в твердых телах.

Авторы выражают благодарность Ж.И. Иевлевой и А.А. Плохих за предоставленные монокристаллы алмаза.

#### Список литературы

- [1] Гусаров В.В., Суворов С.А. // Деп. ОНИИТЭХИМ, № 787-ХП88. 1988. 105 с.
- [2] Елисеев А.П., Юркин А.М., Федорова Е.Н., Самойлова Е.Г. // ЖПС. 1985. Т. 42. С. 491-494.

Физико-энергетический  
институт  
Обнинск

Поступило в Редакцию  
23 февраля 1995 г.