

УДК 535.37

ОБРАЗОВАНИЕ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ В СИЛЬНОВОЗБУЖДЕННЫХ КРИСТАЛЛАХ KCl

И. П. Денисов, В. А. Кравченко, В. Ю. Яковлев

Методом оптической спектроскопии с временным разрешением изучено влияние плотности потока энергии импульсного электронного пучка (0.25 мэВ; 10 нс) в диапазоне значений $P = (4 \cdot 10^5 \div 8 \cdot 10^7)$ Вт·см⁻² на эффективность образования центров окраски в кристалле KCl. Показано, что при 295 К число создаваемых за импульс F -центров изменяется прямо пропорционально P ; выход F -центров в расчете на одну ($e^- - p^+$) пару определен равным $\eta_F = 0.13 \pm 0.02$. При 80 К обнаружено снижение выхода F -центров с ростом P от 0.06 ± 0.015 при $P = 2 \cdot 10^6$ Вт·см⁻² до 0.027 ± 0.01 при $P = 6 \times 10^7$ Вт·см⁻². Установлено, что спад η_F с ростом P обусловлен подавлением процесса создания коррелированных пар F - и H -центров при некотором увеличении выхода разделенных в пространстве дефектов. Предполагается, что причиной наблюдаемых в KCl при 80 К плотностных эффектов в дефектообразовании является конкуренция между «горячими» и релаксированными двухгалоидными дырками в процессе рекомбинационного создания экситонов.

Целью настоящей работы являлось изучение особенностей образования первичных радиационных дефектов — F - и H -центров окраски в кристалле KCl при высоких уровнях плотности радиации.

Образцы неактивированных кристаллов облучались при 80 и 295 К импульсами электронного пучка (ЭП) длительностью 10^{-8} с. Энергия ускоренных электронов была равной $E = 0.25$ мэВ, плотность потока энергии пучка P регулировалась от $P = 4 \cdot 10^5$ Вт·см⁻² до значений $\sim 10^8$ Вт·см⁻², при которых наблюдались явления хрупкого раскола образцов. Измерения спектрально-кинетических характеристик наводимого импульсами ЭП оптического поглощения проводились на импульсном спектрометре с разрешением во времени 10^{-8} с; необходимые для количественных оценок данные о распределении поглощенной энергии ЭП в объеме образца были взяты из [1]; концентрация центров окраски определялась по формуле Смакулы из результатов оптико-абсорбционных измерений; дозиметрия пучка осуществлялась с помощью калориметрического приемника лазерного излучения ИМО—2Н [2].

Импульсным облучением при 80 К в кристалле генерировались преимущественно F - и H -центры окраски (полосы при 2.23 и 3.7 эВ на рис. 1 соответственно). Релаксация наведенного поглощения в F - и H -полосах после окончания импульса происходила в две выраженные стадии: быструю экспоненциальную с $\tau = 40 \pm 4$ нс и медленную в микро- и миллисекундном диапазоне времен (кривая 2 на рис. 2). Около 3–5 % первоначально созданных дефектов обеспечивали устойчивую окраску образцов. Двухстадийный характер кинетики разрушения центров окраски обусловлен образованием в решетке KCl F - и H -центров двух типов: быстрая стадия отражает динамику аннигиляции пар близкорасположенных, так называемых коррелированных F - и H -центров [3], находящихся в поле взаимного притяжения, медленная — далеко разделенных в пространстве не взаимодействующих между собой F - и H -компонентов первичных пар. По [4] создание пар близких и пространственно разделенных дефектов в KCl происходит по двум различным механизмам: при электронной ре-

комбинации с автолокализованными дырками (V_K -центрами окраски) рождаются преимущественно близкие пары с низкой термической устойчивостью, при распаде оптически созданных экситонов — далеко разделенные более устойчивые F - и H -центры.

За меру эффективности создания центров окраски был принят, как и в [5], выход F -центров в расчете на одну электронно-дырочную пару, η_F ,

$$\eta_F = \frac{N_F}{N} = N_F \langle \varepsilon \rangle l W^{-1}. \quad (1)$$

Здесь N_F , N (см^{-3}) — концентрация F -центров и электронно-дырочных пар, генерированных импульсом; $\langle \varepsilon \rangle$ — энергия, затрачиваемая на создание одной электронно-дырочной пары; $\langle \varepsilon \rangle = 1.5 E_g \approx 12$ эВ [6]; W (эВ· см^{-2}) — флюенс энергии импульсного пучка; $l = 0.015$ см — эффективная глу-

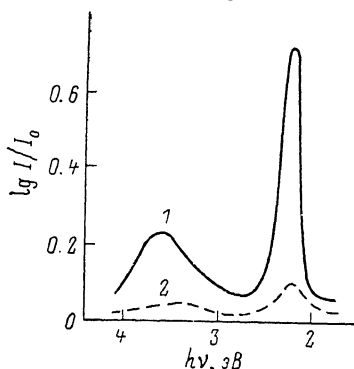


Рис. 1. Спектры оптического поглощения кристалла KCl, измеренные с различной временной задержкой t_3 относительно импульса облучения при 80 К.

1 — $t_3 = 0$, 2 — $t_3 = 0.25$ мкс.

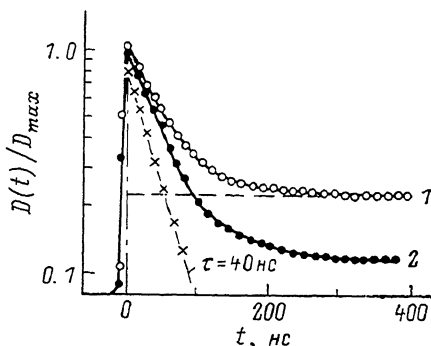


Рис. 2. Изменение оптической плотности в максимуме F -полосы поглощения ($h\nu = 2.23$ эВ) кристалла KCl при плотности потока энергии возбуждающего электронного пучка P , равной 6×10^7 Вт· см^{-2} (1) и $8 \cdot 10^5$ Вт· см^{-2} (2). $T = 80$ К.

Значение $t = 0$ соответствует моменту окончания импульса.

бина проникновения пучка в объем образца. Было установлено, что при комнатной температуре радиационного воздействия выход F -центров равен $\eta_F = 0.13 \pm 0.02$. Величина η_F при 295 К не зависит от плотности ЭП в изученном интервале значений $P = (4 \cdot 10^5 \div 8 \cdot 10^7)$ Вт· см^{-2} .

При 80 К выход F -центров, как обнаружилось в ходе исследования, зависит от мощности возбуждения: при слабых мощностных режимах ($P = (4 \cdot 10^5 \div 2 \cdot 10^6)$ Вт· см^{-2}) он определен равным $\eta_F = 0.06 \pm 0.015$, а с ростом P выше $2 \cdot 10^6$ Вт· см^{-2} наблюдалось снижение выхода F -центров до 0.032 ± 0.01 при $P = 6 \cdot 10^7$ Вт· см^{-2} . Вид зависимости $\eta_F(P)$ показан на рис. 3 кривой 1. В кинетике релаксации F - и H -полос поглощения при 80 К после окончания импульсов по мере роста их мощности наблюдалось перераспределение соотношения вкладов быстрого и медленного компонентов в пользу медленного (сравнить кривые 1 и 2 на рис. 2). Характер перераспределения оказался таким, что выход неустойчивых F -, H -пар, аннигилирующих с $\tau = 40$ нс, резко уменьшался (кривая 2 на рис. 3), а выход относительно устойчивых дефектов несколько увеличивался с ростом P . Этот результат представляется нетривиальным, поскольку он означает, что увеличение плотности возбуждения оказывает различное действие на механизмы создания дефектов, селективно подавляя образование коррелированных F -, H -пар, рождаемых в результате электронной рекомбинации с V_K -центрами. Если учесть, что процесс дырочной двухгалоидной автолокализации протекает с конечной скоростью ($\sim 10^{-11}$ с [7]), логично связать наблюдаемое снижение выхода неустойчивых F -центров при увеличении P с конкурирующими реакциями электронно-

нации с дырками до их полной автолокализации аналогично тому, как это сделано в [8] для объяснения спада выхода собственного свечения с ростом P в кристаллах CsI. Наиболее вероятными конкурентами для релаксированных V_K -центров по отношению к электронному захвату в неактивированных кристаллах представляются дырки на ранних стадиях двухгалоидной автолокализации — «горячие» V_K -центры, находящиеся в состоянии колебательной релаксации в решетке.

При низких уровнях возбуждения в кристалле генерируются преимущественно изолированные пары генетически связанных зонных электронов и дырок [6]. При увеличении плотности выше некоторой критической начинают осуществляться перекрестные рекомбинации e^- и p^+ из разных генетических пар, что приводит к возрастанию выхода рекомбинации электронов с «горячими» V_K -центрами и соответственно к уменьшению эффективности создания неустойчивых F - H -пар.

Критическое значение плотности ЭП ($p_{кр}$ на рис. 3) в таком рассмотрении имеет конкретный смысл, характеризуя объемную плотность электронно-дырочных пар $N_{кр}$, при которой начинают осуществляться перекрестные рекомбинации

$$N_{кр} = \frac{3}{4\pi} r^{-3}, \quad (2)$$

где r — радиус разлета компонентов пар лимитируется пробегом свободных электронов (для ЩГК $\sim 10^{-5}$ см [9]). Тогда среднее время жизни τ «горячих» V_K -центров до электронного захвата с образованием долгоживущих F - и H -центров определится из данных эксперимента как

$$\tau = \frac{N_{кр}}{g} = \frac{3}{4\pi} r^{-3} p_{кр}^{-1} l \langle \epsilon \rangle, \quad (3)$$

где g — скорость генерации электронно-дырочных пар ($\text{см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$) при критической плотности пучка.

Определенное из (3) значение τ оказалось равным $4 \cdot 10^{-12}$ с, что согласуется с имеющимися данными о времени образования F -центров в КС1 ($\sim 9 \cdot 10^{-12}$ с при 295 К [5]). Столь большое время колебательной релаксации V_K -центра может быть обусловлено, по-видимому, лишь колебаниями центра масс молекулярного иона Cl_2^- , наиболее сильно разделенными по частотам с собственным фононным спектром кристалла.

Возвращаясь к представленным на рис. 3 зависимостям $\eta(P)$, можно отметить следующее. Формально взаимосвязь выходов коррелированных и разделенных в пространстве F -, H -пар (η_K и η_p на рис. 3) устанавливается соотношением

$$\eta_p(P) = a (1 - \eta_K(P) b^{-1}). \quad (4)$$

С позиции излагаемых представлений коэффициенты a и b в (4) характеризуют вероятности создания дефектов при электронной рекомбинации с «горячими» (a) и релаксированными (b) V_K -центрами. Из данных рис. 3 a и b определены равными $(1.5 \pm 0.03) \cdot 10^{-2}$ и 0.5 ± 0.1 соответственно.

Произведение ($\eta_K b^{-1}$) дает важную характеристику — выход релаксированных V_K -центров из общего числа генерированных радиацией зонных дырок. Нами получено, что даже в режимах относительно слабого возбуж-

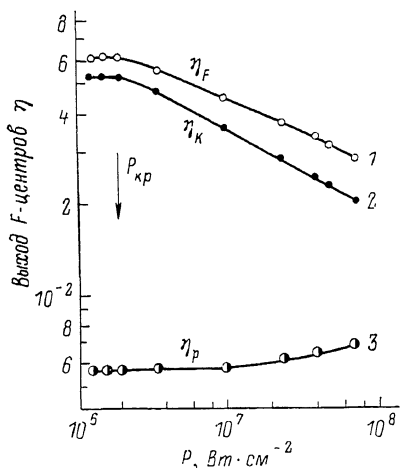


Рис. 3. Зависимость выхода F -центров от плотности потока энергии, падающего на кристалл КС1 электронного пучка при 80 К.

1 — суммарный выход F -центров η_F в расчете на одну электронно-дырочную пару; 2 — выход η_K пар близкорасположенных F - и H -центров, аннигилирующих с $\tau = 40$ нс; 3 — выход η_p пространственно разделенных F - и H -центров.

дения ($P=5 \cdot 10^5$ Вт·см⁻²), соответствующих созданию изолированных ($e^- - p^+$)-пар, выход V_K -центров не превышает 15 %. По-видимому, большинство генетически связанных электронов и дырок успевают прорекомбинировать до полной колебательной релаксации V_K -центра.

Обобщая изложенные результаты, можно сделать следующее заключение. Наблюдаемые при 80 К плотностные эффекты в KCl — снижение выхода коррелированных и рост выхода пространственно разделенных (F , H)-пар дефектов с ростом P — удовлетворительно описываются в рамках представлений о существовании конкуренции между «горячими» и релаксированными V_K -центрами в процессе рекомбинационного создания экситонов. При захвате электрона проводимости «горячими» V_K -центрами создается двухгалоидный экситон с сильно смещенным относительно равновесного положения дырочным ядром. Такой экситон обладает начальным запасом колебательной энергии, обеспечивающим разделение F - и H -компонентов первичной пар на более далекие расстояния, чем в случае электронной рекомбинации с релаксированным V_K -центром.

Колебательная релаксация центра масс дырки V_K -типа происходит за времена около 10^{-11} с. Искусственно задерживая акты рекомбинации электронно-дырочных пар относительно момента их создания, можно, следовательно, изменять радиационную стойкость KCl при $T \leq 80$ К. Увеличение стойкости ожидается, например, после введения в кристалл электронных ловушек глубиной $\sim kT$, а также при увеличении энергии фотонов в опытах по зона-зонному возбуждению неактивированных кристаллов. Напротив, оптически созданные экситоны, являясь компактными образованиями, имеют повышенную вероятность распада на ранних стадиях преобразования их дырочного ядра из одно- в двухгалоидное состояние с рождением стабильных пар дефектов.

Л и т е р а т у р а

- [1] Куликов В. Д., Лисицын В. М. Деп. в ВИНТИ 23.03.87, № 2044-B87. 37 с.
- [2] Шпак В. Г. ПТЭ, 1980, № 3, с. 165—167.
- [3] Гаврилов В. В., Нестерова С. Н., Чернов С. А., Яковлев В. Ю. ФТТ, 1981, т. 23, № 7, с. 2180—2182.
- [4] Луцкий А. Ч., Луцкий Ч. Б. ФТТ, 1986, т. 28, № 5, с. 1360—1367.
- [5] Williams R. T., Bradford J. N., Faust W. L. Phys. Rev. B, 1978, vol. 18, N 12, p. 7038—7057.
- [6] Алукер Э. Д., Лусис Д. Ю., Чернов С. А. Электронные возбуждения и радиолуминесценция щелочно-галоидных кристаллов. Рига: Зинатне, 1979. 250 с.
- [7] Suzuki Y., Ohtani H., Takagi Sh., Hirai M. J. Phys. Soc. Japan, 1981, vol. 50, N 11, p. 3537—3538.
- [8] Краченко В. А., Яковлев В. Ю. В сб.: Состояние и перспективы разработки и применения сцинтилляторов и сцинтилляционных детекторов в XII пятилетке. Тез. докл. IX Всесоюз. конф. Черкассы: ВНИИ монокристаллов, 1986. 18 с.
- [9] Аусмез А. Х., Кикас А. Х., Лооритс В. А., Пруулам Я. Я., Эланго М. А. Тр. ИФ АН ЭССР, 1985, т. 57, с. 129—145.

Томский политехнический
институт им. С. М. Кирова
Томск

Поступило в Редакцию
4 декабря 1987 г.