

05; 07; 08; 10

РОЛЬ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ ОБЪЕМНОГО ЗАРЯДА В ПРОЦЕССЕ ПРЕОБРАЗОВАНИЯ ЭНЕРГИИ СЭП В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

В. Ф. Штанько, В. И. Олешко

Исследована зависимость пространственного распределения энергии СЭП в ионных кристаллах от плотности энергии пучка в пределах $0.05-1.17$ Дж/см². Установлено, что неомогенное выделение энергии в возбуждаемом объеме монокристаллов при плотностях энергии СЭП ≥ 0.1 Дж/см² связано с развитием стримерных разрядов в электрическом поле объемного заряда, создаваемого СЭП в мишени.

Сильноточный электронный пучок (СЭП) нашел широкое применение в радиационной технологии и для исследования фундаментальных радиационно-стимулированных процессов дефектообразования и люминесценции в высокоомных материалах разных классов соединений. Однако часто анализ результатов радиационного воздействия проводится без учета специфики преобразования энергии СЭП в веществе, что приводит к значительным сложностям при их интерпретации.

В работах [1-4] нами установлено, что при возбуждении высокоомных материалов СЭП создает сильное электрическое поле как внутри, так и вне зоны торможения электронов. Показано, что развитие лавинной ударной ионизации в электрическом поле, создаваемом СЭП, является основным механизмом, определяющим резкую неомогенность выделения энергии в веществе и приводящим к формированию локальных структурных разрушений в виде каналов стримерных разрядов, трещин, плоскостей раскола и периодических структур разрушения (ПСР). Предварительными исследованиями определено [4], что с увеличением плотности энергии пучка (P) доля неомогенно выделяющейся энергии может составлять ~ 0.4 от полной энергии. Тогда, учитывая высокую удельную плотность выделения энергии в зонах развития стримерных разрядов [5], следует ожидать в этих зонах аномалии в дефектообразовании и люминесценции, а также в акустическом излучении, инициируемом СЭП.

В настоящей работе с целью определения эффективности стимулируемых электрическим полем процессов в преобразовании энергии СЭП в высокоомных материалах экспериментально изучены зависимости контура акустического импульса, пространственного распределения радиационных дефектов и люминесценции, а также светосуммы излучения для ионных кристаллов от P возбуждающего электронного пучка. Для исследований использовались монокристаллы KCl, KCl—J, NaCl, CsJ, CsJ—Na, CaF₂, LiF, KBr.

Методика исследований

Для исследования наведенного оптического поглощения, люминесценции и акустического излучения в кристаллах при воздействии СЭП использовалась методика импульсной спектрометрии с наносекундным временным разрешением. Источником СЭП служил импульсный ускоритель электронов с параметрами: средняя энергия электронов $E_{cp} \approx 0.3$ МэВ, длительность импульса

~ 10 нс. Плотность энергии СЭП регулировалась в пределах $0.05-1.17$ Дж/см² путем применения калиброванных металлических диафрагм при сохранении спектрального состава электронов. Измерение энергии СЭП производилось калориметрическим и радиационно-химическим методами. Изучение контура акустического импульса при изменении P осуществлялось поляризационно-оптическим методом с применением поперечной схемы зондирования кристаллов излучением He—Ne лазера. Поперечная схема использовалась также при измерении распределения оптического поглощения и люминесценции вдоль пробега электронов. Пространственное разрешение составляло не хуже 20 мкм. Исследование зависимости светосуммы люминесценции от P выполнялось с применением светоинтегрирующего шара. Измерения проводились при 295 К.

Экспериментальные результаты

Акустическое излучение в кристаллах при воздействии СЭП. В работах [6, 7] показано, что импульсный нагрев вещества при воздействии СЭП приводит к инициированию акустического излучения (АИ). Тогда форма АИ должна определяться пространственным распределением плотности выделяющейся энергии. Нами для изучения пространственного распределения энергии СЭП, расходуемой на нагрев мишени, исследована зависимость контура АИ в KCl, LiF, NaCl, KBr от P в диапазоне $0.09-0.5$ Дж/см². Методика проведения измерений описана в [8]. На рис. 1, а, б представлены характерные контуры АИ

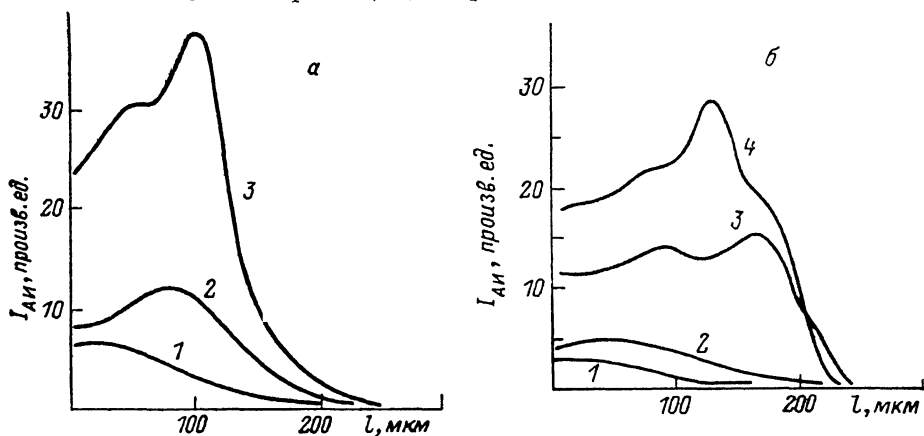


Рис. 1. Профили акустической волны скатия в KCl (а) и NaCl (б) при различных плотностях энергии СЭП.

а: 1 — 0.09, 2 — 0.14, 3 — 0.5 Дж/см²; б: 1 — 0.09, 2 — 0.14, 3 — 0.34, 4 — 0.5 Дж/см².

в KCl и NaCl, генерируемые однократным воздействием СЭП с разной P . С увеличением P наблюдается значительное изменение контура АИ, которое заключается в смещении общего максимума в глубь кристалла и появлении тонкой структуры. Как правило, соотношение амплитуд в максимумах тонкой структуры изменяется в серии последовательных импульсов возбуждения, причем значительная нестабильность контура АИ наблюдалась при предразрушающих P . Подобные закономерности в изменении контура АИ наблюдались и для LiF и KBr. Объяснить пространственное перераспределение и появление тонкой структуры в АИ термоупругими напряжениями, возникающими вследствие ионизационных потерь энергии электронами пучка, не представляется возможным.

Сопоставление расстояний от облучаемой поверхности кристалла до областей формирования тонкой структуры АИ и зон множественного разветвления стримерных разрядов и ПСР [1] показывает их полное согласие. Таким образом, можно сделать заключение, что при увеличении P в KCl, NaCl, KBr, LiF АИ, возникающее на глубинах $70-180$ мкм, обусловлено неомогенным нагревом кристалла в результате развития стримерных разрядов, инициируемых электрическим полем, создаваемым СЭП.

Пространственное распределение оптического поглощения и люминесценции вдоль пробега электронов СЭП. Из экспериментальных данных по зависимости контура АИ от P пучка и механизму разрушения высокоомных материалов следует, что процессы, инициируемые электрическим полем объемного заряда, приводят к значительной неомогенности в распределении плотности энергии, выделяющейся в кристаллах, а следовательно, должны приводить к изменению выхода радиационных дефектов и люминесценции, причем неоднородно по возбуждаемому объему. В связи с этим нами проведено изучение зависимости пространственного распределения радиационных дефектов (F -цен-

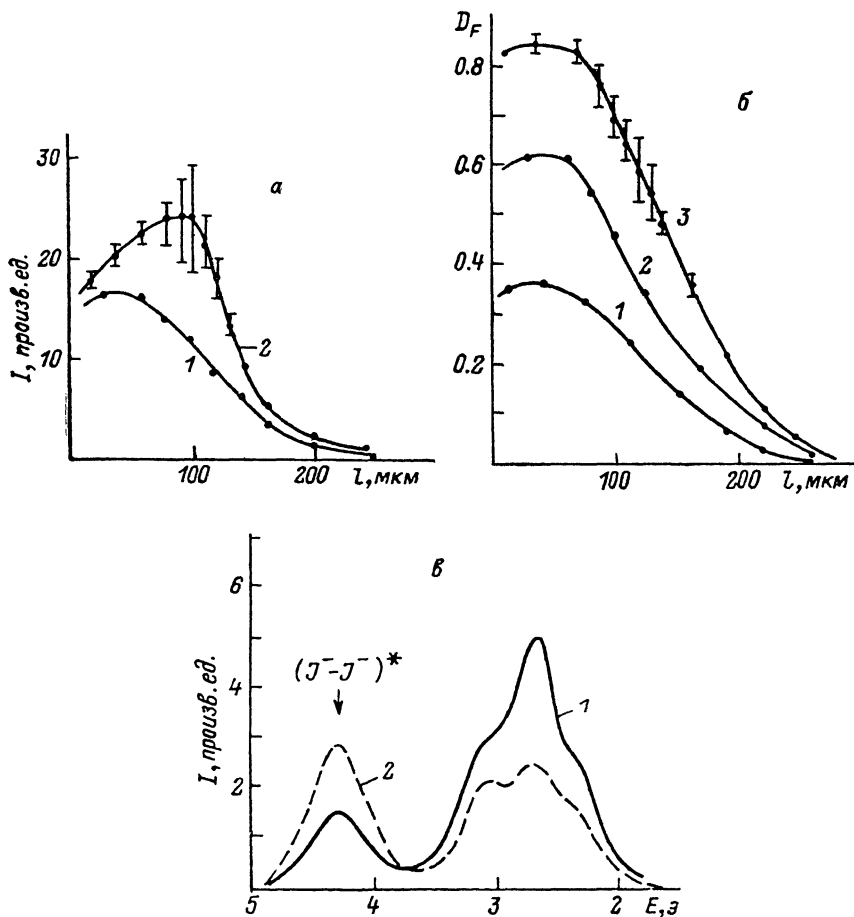


Рис. 2.

а — распределение интенсивности излучения примесных экситонов ($\lambda=280$ нм) в KCl—J (0.2 мол. %) по глубине кристалла при различных плотностях энергии СЭП 0.09 (1) и 0.4 Дж/см² (2); б — пространственное распределение оптической плотности D_F в F -полосе в KCl при плотностях энергии СЭП 0.036 (1), 0.11 (2), 0.193 Дж/см² (3); в — спектры люминесценции монокристалла KCl—J (0.2 мол. %) на глубине 40 (1) и 100 мкм (2) при возбуждении СЭП с плотностью энергии 0.34 Дж/см².

тров) и люминесценции вдоль пробега электронов пучка в KCl и KCl—J в зависимости от P . При измерениях использовалась поперечная схема, при которой регистрация оптического поглощения и люминесценции проводилась в направлении, перпендикулярном направлению падения электронов пучка. Электронный пучок диафрагмировался прямоугольной щелью, размеры которой определялись чувствительностью регистрирующего тракта. Кристаллы KCl—J и KCl выбраны в связи с тем, что введение примеси йода, изовалентно замещающего хлор, приводит к образованию в решетке димеров $J^-—J^-$, которые при возбуждении кристалла ионизирующей радиацией проявляются в люминесценции в виде отдельной полосы около 4.64 эВ при 80 К, обусловленной излучательным распадом экситона, локализованного на димере [9].

На рис. 2, *a*, *б* представлены результаты измерения распределения интенсивности излучения примесного экситона в $\text{KCl}-\text{J}$ (0.2 мол. %) и оптической плотности в F -полосе в KCl ($\lambda=563$ нм) в зависимости от P пучка. Как следует из представленных результатов, увеличение P до 0.4 Дж/см² приводит к изменению профиля распределения интенсивности излучения примесных экситонов и появлению значительной нестабильности в амплитуде на глубинах 70–140 мкм от облучаемой поверхности. Качественно подобная нестабильность обнаружена и при измерении распределения оптической плотности в F -полосе в KCl (рис. 2, *б*). В связи с обнаружением зон нестабильного поглощения и люминесценции нами изучено изменение спектрального состава свечения на глубинах 40 и 100 мкм от облучаемой поверхности в $\text{KCl}-\text{J}$ при изменении P . Установлено, что при $P \leq 0.1$ Дж/см² соотношение между интенсивностями полос спектра излучения практически не меняется. При P выше 0.1 Дж/см² наблюдается относительное увеличение интенсивности полосы примесного экситона (рис. 2, *в*).

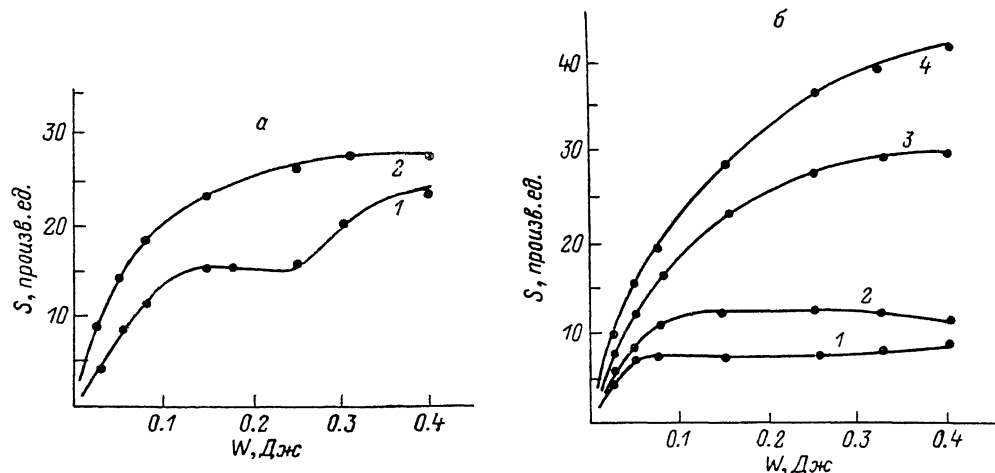


Рис. 3.

a — зависимости светосуммы люминесценции примесных экситонов в $\text{KCl}-\text{J}$ (0.2 мол. %) (1) и CaF_2 (2) от энергии СЭП; *б* — зависимости светосуммы излучения полосы 420 нм в $\text{CsJ}-\text{Na}$ (0.05 мол. %) (1), $\text{CsJ}-\text{Na}$ (0.25 мол. %) (2) и излучения экситонов в $\text{CsJ}-\text{Na}$ (0.25 мол. %) (3), CsJ (4) от энергии СЭП.

Сопоставление результатов измерения пространственного распределения F -центров в KCl , люминесценции примесного экситона в $\text{KCl}-\text{J}$ и контура АИ в KCl показывает хорошее совпадение пространственной области формирования тонкой структуры АИ и областей нестабильных люминесценции и оптического поглощения, что прямо указывает на общую природу процессов, вызывающих данные аномалии.

Зависимость светосуммы люминесценции от плотности возбуждения. Как показано выше, увеличение P приводит к значительной неомогенности выделения энергии в кристалле, что вызывает аномальные изменения в контуре АИ, пространственном распределении оптически активных дефектов и люминесценции. Поскольку наблюдаемые эффекты значительны, то следует ожидать их проявление в зависимости светосуммы люминесценции кристаллов от энергии возбуждающего СЭП. Измерения светосуммы люминесценции $\text{CsJ}-\text{Na}$, CsJ , $\text{KCl}-\text{J}$, CaF_2 проводились с использованием светоинтегрирующего шара и методики импульсной спектрометрии.

На рис. 3, *a*, *б* представлены зависимости светосуммы люминесценции от энергии возбуждающего пучка для ряда кристаллов. Используемый диапазон энергий в импульсе соответствует диапазону средних плотностей энергий $0.05-1.17$ Дж/см².

Как следует из представленных результатов, светосумма излучения, обусловленного излучательной аннигиляцией автолокализованных экситонов в CaF_2 , CsJ и $\text{CsJ}-\text{Na}$, растет с увеличением энергии возбуждающего импульса сублинейно, т. е. относительный энергетический выход излучения умень-

пается. При этом, например, в CaF_2 уменьшение относительного энергетического выхода излучения экситонов согласуется с уменьшением количества экситонов, создаваемых за импульс возбуждения и регистрируемых по оптическому поглощению. Более сложная зависимость обнаружена для излучения экситонов, локализованных на димерах йода, в $\text{KCl}-\text{J}$, которая имеет в области до 0.15 Дж вид кривой с насыщением, а при энергиях больше 0.2 Дж — вторую стадию роста. Аналогичный, но менее выраженный эффект возрастания светосуммы наблюдается и для примесной полосы излучения ($\lambda = 420$ нм) в $\text{CsJ}-\text{Na}$ (0.05 мас. %). В $\text{CsJ}-\text{Na}$ (0.25 мол. %) при энергиях возбуждающего импульса больше 0.2 Дж происходит незначительное уменьшение светосуммы полосы 420 нм. В области низких энергий СЭП зависимости светосуммы полосы 420 нм для $\text{CsJ}-\text{Na}$ имеют вид характерных кривых с насыщением, причем энергия возбуждения, соответствующая насыщению светосуммы, согласуется с содержанием активатора.

Обсуждение результатов

Представленные выше результаты изучения контура АИ, пространственного распределения оптического поглощения и люминесценции и зависимости светосуммы экситонного и активаторного излучения от энергии возбуждающего СЭП в совокупности с данными по механизму разрушения высокоомных материалов позволяют объяснить наблюдающиеся закономерности с позиций механизма преобразования энергии интенсивного электронного пучка в вещество. Как показано нами в работах [1-4], воздействие СЭП приводит к созданию в облучаемом образце сильного электрического поля, достаточного для развития ударной ионизации в высокоомных материалах разных классов соединений (окислах, сложных кислородсодержащих солях, ионных соединениях, широкозонных полупроводниках). Тогда следует, что энергия СЭП выделяется в высокоомных материалах по двум основным каналам. Часть энергии выделяется в результате ионизации среды (ионизационные потери), а часть преобразуется в энергию электрического поля объемного заряда, создаваемого инжектированными электронами и разделенными зарядами вещества. Энергия электрического поля выделяется при развитии стримерных разрядов и нагрева термализующихся электронов и дырок в области пробега электронов пучка. Определенная доля энергии запасается в электрическом поле разделенных и локализовавшихся электронов и дырок вещества. Ясно, что относительные доли энергии СЭП, выделяющиеся по двум основным каналам, должны определяться, с одной стороны, параметрами пучка, а с другой — собственными свойствами материала мишени. Указанные каналы преобразования энергии должны существенно отличаться по эффективности генерации свободных электронов и дырок в высокоомном материале. Эти отличия в первую очередь должны проявляться в пространственном распределении плотности энергии, выделяющейся в материале. Действительно, выделение энергии вследствие ионизационных потерь достаточно гомогенно даже при учете изменения профиля ионизационных потерь во времени при усилении тормозящего действия электрического поля объемного заряда [10]. Выделение энергии электрического поля при развитии стримерных разрядов негомогенно и пространственно связано с распределением объемного заряда. С другой стороны, затраты энергии на создание свободной электронно-дырочной пары при развитии ударной ионизации должны зависеть от эффективности электрон-решеточного взаимодействия и, в частности, для ионных кристаллов быть значительно выше, чем средняя энергия образования той же пары при размене энергии высокоэнергетических электронов. Учитывая, что с увеличением плотности энергии (или плотности тока) пучка доля энергии, выделяющаяся в результате процессов, инициируемых электрическим полем, возрастает, для ионных кристаллов следует ожидать уменьшение эффективности генерации свободных электронов и дырок и увеличение доли энергии, расходуемой на нагрев ионной подсистемы. Вследствие этого независимо от последующего процесса рекомбинации неравновесных электронов и дырок выход собственных радиационных дефектов и люминесценции должен закономерно уменьшаться с увеличением P .

Зависимость энергетического выхода активаторного излучения от P должна в значительной мере определяться возможностью реализации ударного механизма возбуждения центров свечения при рассеянии электронов, ускоренных электрическим полем (или в общем случае соотношением эффективностей ударного, электронно-дырочного и экситонного механизмов).

Основные закономерности преобразования энергии СЭП удовлетворительно согласуются с приведенными выше экспериментальными результатами. Прямым доказательством неомогенности распределения энергии в кристаллах при воздействии СЭП с $P \sim 0.1$ Дж/см², обусловленной развитием стримерных разрядов, является появление пространственно согласованных тонкой структуры в контуре АИ и аномалий в распределении оптического поглощения и люминесценции вдоль пробега электронов в KCl и KCl—J (рис. 1, а, 2, а, б). Увеличение относительной доли энергии СЭП, выделяющейся в пространственной области 70—140 мкм, приводит к росту в этой области интенсивности излучения примесных экситонов в KCl—J и определяет вторую стадию роста светосуммы (рис. 3, а). Непропорциональное увеличение интенсивности излучения в полосе примесных экситонов по отношению к длинноволновому рекомбинационному свечению (рис. 2, в) дает основание сделать заключение о селективном ударном возбуждении димеров йода. Более высокая эффективность процесса ударного возбуждения димеров йода, чем собственных ионов решетки, обусловлена более низким потенциалом возбуждения димеров [11]. Следует отметить, что ударный механизм возбуждения определяет часть светосуммы излучения примесных экситонов и в области низких (≤ 0.2 Дж) энергий СЭП, поскольку при ионизационном размножении электронов все они при термализации проходят диапазон энергий, необходимых для реализации ударного механизма.

Качественно подобная, но менее выраженная вторая стадия роста светосуммы от энергии СЭП наблюдается и для полосы 420 нм в CsJ—Na (0.05 мол. %), которая обусловлена рекомбинацией подвижных V_K -центров с электроном захваченным на примесном ионе натрия (Na^0 -центром) [12]. Некоторое снижение светосуммы полосы 420 нм в CsJ—Na (0.25 мол. %) при энергиях СЭП выше 0.2 Дж может быть связано как с ионизацией Na^0 -центров при развитии стримерных разрядов, так и с условиями развития самих стримерных разрядов, что определяется ориентацией кристаллографических направлений их распространения относительно электрического поля (в нашем случае относительная ориентация была случайной). Таким образом, значительное отличие в относительном изменении светосуммы активаторного излучения в KCl—J и CsJ—Na при энергиях СЭП выше 0.2 Дж прямо связано с возможностью реализации в первом ударного механизма возбуждения.

С позиций механизма преобразования энергии интенсивных электронных пучков представляется закономерной тенденция к снижению энергетического выхода люминесценции сцинтилляторов на основе ионных кристаллов с преимущественно электронно-дырочным механизмом передачи энергии при увеличении плотности возбуждения, которая до настоящего времени не имеет надежной интерпретации [13].

Установленные закономерности преобразования энергии СЭП в ионных кристаллах с участием процессов, стимулированных электрическим полем объемного заряда, являются принципиально важными для разработки высокоэффективных сцинтилляторов, работающих в условиях мощного электронного возбуждения.

Литература

- [1] Олешко В. И., Штанько В. Ф. // ФТТ. 1987. Т. 29. Вып. 2. С. 320—324.
- [2] Лисицын В. М., Олешко В. И., Штанько В. Ф. // Письма в ЖТФ. 1985. Т. 11. Вып. 24. С. 1478—1481.
- [3] Олешко В. И., Штанько В. Ф. // ЖТФ. 1986. Т. 56. Вып. 6. С. 1235—1236.
- [4] Штанько В. Ф., Олешко В. И. // Тез. докл. IV Всесоюз. совещ. «Воздействие ионизирующего излучения и света на гетерогенные системы». Кемерово, 1986. Ч. II. С. 64—65.
- [5] Лисицын В. М., Олешко В. И., Штанько В. Ф. // ЖТФ. 1985. Т. 55. Вып. 9. С. 1881.
- [6] Perry F. // Appl. Phys. Lett. 1970. Vol. 17. P. 478—480.
- [7] Oswald R. B., McLean F. B., Schallhorn D. R., Buxton L. D. // J. Appl. Phys. 1971. Vol. 42. N 9. P. 3463—3473.

- [8] Олешко В. И., Штанько В. Ф. // ЖТФ. 1987. Т. 57. Вып. 9. С. 1857—1858.
[9] Toyoda K., Nakamura K., Nakai I. // J. Phys. Soc. Jap. 1975. Vol. 39. P. 994—998.
[10] Яловец А. П. // Изв. вузов. Физика. 1979. № 9. С. 67—74.
[11] Nagasawa N., Nagasawa H., Nakai I. // J. Phys. Soc. Jap. 1969. Vol. 27. N 6. P. 1535—1548.
[12] Дейч Р. Г. // Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук. 1981. № 2. С. 48—50.
[13] Алукер Э. Д., Лусис Д. Ю., Чернов С. А. Электронные возбуждения и радиолюминесценция щелочно-галогидных кристаллов. Рига: Зинатне, 1979. 251 с.

Томский
политехнический институт
им. С. М. Кирова

Поступило в Редакцию
2 октября 1987 г.

В окончательной редакции
15 марта 1988 г.