

АННИГИЛЯЦИЯ ПОЗИТРОНОВ В ГАММА-ОБЛУЧЕННЫХ КРИСТАЛЛАХ ТИПА KDP

А. И. Кононенко, М. Ю. Дубов, В. И. Гонченков, Б. Г. Лященко

Единственным результативным методом определения структуры радиационных дефектов в кристаллах типа KDP до настоящего времени был метод ЭПР. Установлено, что облучение гамма-квантами приводит к образованию в кристалле фосфатных радикалов, которые вследствие большой подвижности протонов быстро отжигаются при температурах больше 130 К. Роль примесей, согласно [1], заключается в основном в стабилизации радикалов при комнатной температуре.

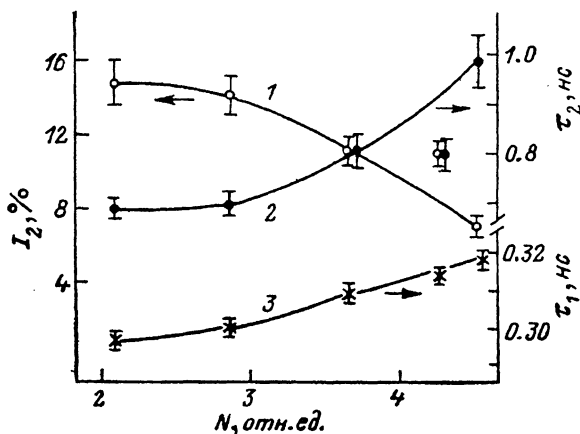


Рис. 1. Зависимости аннигиляционных характеристик позитронов от концентрации примесных трехвалентных ионов N .

1 — интенсивность второй компоненты; 2, 3 — среднее время жизни второй и первой компонент соответственно.

В данной работе процесс дефектообразования в кристаллах KD_2PO_4 , KN_2PO_4 , $NH_4N_2PO_4$ при комнатной температуре изучали методом электронно-позитронной аннигиляции. Образцы размером $20 \times 13 \times 3$ мм вырезали из монокристалла перпендикулярно его сегнетоэлектрической оси. Измерение аннигиляционных характеристик позитронов проводили на временном спектрометре с разрешением 480 пс по изотопу Co^{60} (γ ; γ). Двухкомпонентный анализ спектров времени жизни (ВЖ) проводили по программе «Positronfit» [2]

Облучение кристаллов проводили гамма-квантами источника в диапазоне 10^2 — $5 \cdot 10^5$ Гр, мощность дозы 0.25 Гр/с.

В дефектных ионных кристаллах первая компонента в спектрах ВЖ $\tau_1 \sim 300$ пс обусловлена аннигиляцией пара-квазипозитрония, образованного позитроном, захваченным катионной вакансией и внешним электроном аниона, а также свободной электронно-позитронной аннигиляцией, причем скорости протекания этих процессов близки по величине. Pick-off аннигиляция орто-квазипозитрония ведет к появлению в спектре ВЖ компоненты τ_2 длительностью 0.5—2.0 нс, величина которой пропорциональна объему позитрониево-чувствительных дефектов, а интенсивность I_2 — количеству таких дефектов [3]. Изменение среднего времени жизни первой компоненты определяется кулоновским экранированием между позитроном и электроном в пара-квазипозитронии, т. е. числом примесных ионов, локализованных в месте образования пара-состояния.

Позитрониево-чувствительными дефектами в кристаллах KDP являются вакансии калия, которые компенсируют локальный заряд примесных

ионов; их количество пропорционально концентрации трехвалентных ионов $[^4]$ (локальная компенсация заряда осуществляется и за счет динамического смещения протона $[^4]$).

Измерение спектров ВЖ для пяти партий кристаллов KD_2PO_4 с разной концентрацией трехвалентных примесных ионов Fe^{3+} , Cr^{3+} , Al^{3+} (в качестве меры суммарной концентрации названных трехвалентных ионов использовали площадь под кривой ультрафиолетового поглощения в области 200—350 нм $[^5]$) показало, что увеличение количества примесных ионов ведет к агрегатизации дефектов примесно-вакансионной природы, так как наблюдаемое на рис. 1 уменьшение интенсивности I_2 сопровождается увеличением величин τ_1 и τ_2 . Для кристаллов, выращенных по скоростной технологии, параметры аннигиляции τ_2 , I_2 «не укладываются» в зависимости на рис. 1. Из сопоставления полученных характеристик

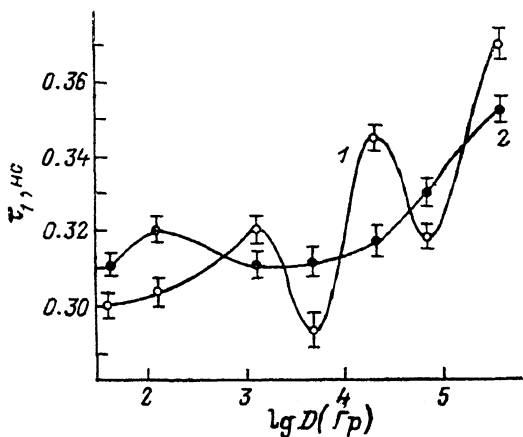


Рис. 2. Дозная зависимость среднего времени жизни первой компоненты для кристалла с наименьшей концентрацией примесных ионов (1) и кристалла, выращенного по скоростной технологии (2).

аннигиляции позитронов следует, что при одинаковой концентрации примесных ионов в кристаллах скоростной партии больше агрегатов из примесных ионов, но каждый такой агрегат окружен меньшим числом калиевых вакансий на один ион, чем в кристаллах, выращенных по обычной технологии.

При облучении кристаллов обнаружено, что с ростом поглощенной дозы происходит как увеличение, так и уменьшение интенсивности I_2 , сопровождаемое соответственно уменьшением и увеличением τ_2 ; при этом среднее время жизни компоненты увеличивается, но это увеличение «промодулировано» изменением величины τ_2 . Следовательно, в поле ионизирующего излучения в кристаллах происходит периодический процесс: распад и образование агрегатов из дефектов примесно-вакансионной природы; одновременно происходит рост агрегатов с дозой за счет локализации на них дополнительных примесных ионов. Такими ионами могут быть и дейтоны (протоны), т. е. возможно образование фосфатных радикалов при комнатной температуре.

Из полученных данных следует, что скорость перестройки агрегатов понижается с ростом концентрации примесных ионов, но наименьшее изменение параметров аннигиляции по величине и скорости с ростом дозы происходит для кристаллов скоростной партии (рис. 2), для которой характерно уменьшенное число калиевых вакансий в агрегате примесно-вакансионной природы. Следовательно, наблюдаемая своего рода радиационно-стимулируемая диффузия примесных ионов идет по калиевым вакансиям.

Как правило, ионизирующее излучение ведет к агрегатизации одноступенчатых дефектов; распад агрегатов, по-видимому, связан с изменением зарядового состояния примесных ионов. Это подтверждается совпадением первого максимального значения I_2 для всех партий кристаллов KD_2PO_4 ,

при дозе $5 \cdot 10^3$ Гр с достижением максимального значения поглощения в районе 260 нм оптического спектра, т. е. с образованием максимального количества ионов Fe^{3+} при ионизации Fe^{2+} [5]. Это ведет к увеличению кулоновского отталкивания между ионами в агрегате и способствует их распаду.

Отметим, что в кристаллах $NH_4H_2PO_4$ и KH_2PO_4 параметры аннигиляции с ростом дозы менялись аналогично.

Л и т е р а т у р а

- [1] Dalal N. S., Hebden J. A., McDowell C. A. // J. Chem. Phys. 1975. V. 62. N 11, P. 4404—4410.
- [2] Kirkegaard P., Eldrup M. // Comput. Phys. Comm. 1974. N 7. P. 401—409.
- [3] Арефьев К. П., Воробьев С. А., Прокопьев Е. П. Позитроника в радиационном материаловедении ионных структур и полупроводников. М., 1983. 88 с.
- [4] Gouzza L. V., Samraio J. F. // J. Phys. Soc. Jap. 1982. V. 51. N 2. P. 540—544.
- [5] Бредихин В. И., Киселева Н. В., Королихин В. В. // Изв. АН СССР, неорг. матер. 1986. Т. 22. № 1. С. 112—114.

Поступило в Редакцию
10 мая 1988 г.

В окончательной редакции
28 октября 1988 г.

УДК 537.311.38

Физика твердого тела, том 31, в. 3, 1989
Solid State Physics, vol. 31, № 3, 1989

ЗАВИСИМОСТЬ ЭФФЕКТИВНОСТИ АННИГИЛЯЦИИ ГОМОГЕННЫХ ПАР ФРЕНКЕЛЯ В КРИСТАЛЛАХ ОТ ИНТЕНСИВНОСТИ ОБЛУЧЕНИЯ

В. В. Мизнович, В. В. Емцев, Т. В. Машовец, Н. А. Витовский

Компоненты пары Френкеля — вакансия V и межузельный атом I , — создаваемые в твердом теле при его облучении ядерными частицами или квантами, либо разделяются, либо аннигилируют, если оказываются в пределах радиуса захвата, обусловленного их упругим и кулоновским взаимодействиями. Разделившиеся «свободные» V и I могут мигрировать по кристаллу и, взаимодействуя с примесными атомами или дефектами других типов, образовывать более сложные вторичные дефекты. Последние чаще всего и определяют экспериментально регистрируемые изменения макроскопических параметров материала при облучении.

Оставшиеся в пределах радиуса взаимодействия V и I аннигилируют — либо спонтанно [I^{-4}], либо в результате диффузии или дрейфа [I^{-4-7}]. Размер «зоны неустойчивости», т. е. той области, из которой не могут выйти межузельные атомы, зависит от условий облучения (температуры и темпа генерации электронно-дырочных пар) и в свою очередь определяет долю разделившихся пар Френкеля, т. е. скорость образования экспериментально наблюдаемых дефектов.

Большой интерес представляет характер зависимости скорости дефектообразования от интенсивности облучения (само существование этой зависимости не является очевидным). В ряде случаев, однако, такая зависимость наблюдалась экспериментально [I^{-8-11}]. Целью настоящей работы явилось выяснение причин существования и определение характера зависимости вероятности разделения пар Френкеля от интенсивности и температуры облучения при условии однородного распределения пар Френкеля в объеме кристалла и достаточно малой их концентрации, когда каждая пара может рассматриваться как изолированная.