

Накопление F - и M -центров окраски в монокристаллах KCl при комбинированном облучении электронами и протонами

© М.М. Михайлов, В.М. Ардышев

Томский политехнический университет,
634004 Томск, Россия

(Поступила в Редакцию 8 января 1998 г.
В окончательной редакции 17 марта 1998 г.)

Исследована кинетика накопления F - и M -центров окраски в монокристаллах KCl при комбинированном облучении электронами с энергией 15 и 100 keV и протонами с энергией 100 keV в диапазоне потоков $10^{13} - 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ при плотности потока $3 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Показано, что последовательное облучение электронами, а затем протонами не аддитивно облучению только электронами и только протонами.

Научный и практический интерес представляют исследования деградации оптических свойств твердых тел при комбинированном воздействии электронов и протонов малых и средних энергий, являющихся основными компонентами космического излучения в радиационных поясах Земли и других областях космического пространства. Из-за сложного состава материалов космической техники изучение закономерностей комбинированного действия излучений целесообразно проводить на модельных объектах, в качестве которых полезно использовать щелочно-галогидные кристаллы (ЩГК).

Известно, что при облучении ЩГК протонами дефекты образуются как в результате ионизационных эффектов по "подпороговому" механизму (как и при электронном облучении), так и в результате упругого смещения атомов из узлов в решетке [1,2]. Поэтому при соизмеримых энергетических режимах облучения следует ожидать образования более высоких концентраций центров поглощения в ЩГК по сравнению с облучением электронами.

Целью настоящей работы является исследование кинетики накопления простых (F) и сложных (M) центров окраски в монокристаллах KCl при облучении только электронами и только протонами, а также при последовательном облучении электронами с энергиями 15 и 100 keV и протонами с энергией 100 keV.

1. Методика эксперимента

Исследование проводилось на установке "Спектр" [3], оснащенной дополнительным источником протонов с энергией частиц до 140 keV. Образцы исследуемых кристаллов представляли собой пластины диаметром 15 mm и толщиной от 0.1 до 2,5 mm, на одну из сторон которых методом вакуумного напыления наносился непрозрачный для света слой алюминия. На предметный столик установки "Спектр" устанавливалось одновременно до двадцати исследуемых образцов, которые облучались только электронами с энергиями 15 и 100 keV, только протонами с энергией 100 keV, а также последовательно сначала электронами, а затем протонами с теми же энергиями частиц. Поток частиц составлял

$10^{13} - 10^{15} \text{ cm}^{-2}$, плотность потока — $3 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Облучение проводилось в вакууме не хуже 10^{-5} Pa при комнатной температуре. До и после облучения непосредственно в вакууме измерялась полусферическая отражательная способность (ρ_λ) образцов в диапазоне длин волн 300–900 nm. Значения ρ_λ пересчитывались в значения спектрального пропускания (τ_λ). Для анализа экспериментальных данных мы получали разностные спектры диффузного отражения ($\Delta\rho_\lambda$) или пропускания ($\Delta\tau_\lambda$) вычитанием соответствующих спектров до и после облучения, которые приравнялись к спектрам наведенного поглощения. Из полученных спектров по программе "ORANG", в которой учтены параметры всех известных элементарных полос, выделялись F - и M -полосы поглощения.

Полуширина и положение максимума полос принимались равными 0.35 и 2.23 eV (F -полоса), 0.12 и 1.49 eV (M -полоса) соответственно [4].

2. Экспериментальные результаты и их обсуждение

На рис. 1, a и b приведена кинетика накопления F - и M -центров для образцов, облученных только электронами с энергией 15 и 100 keV, только протонами с энергией 100 keV и последовательно сначала электронами, а затем протонами с теми же энергиями частиц. На рис. 2, a и b дано сравнение суммы концентраций этих центров при облучении только электронами и только протонами с результатами последовательного облучения электронами, а затем протонами. Сила осциллятора f принималась равной 0.8 для F -центров [4], и 2/3 от f для M -центров [5]. В табл. 1 представлены данные для коэффициента аддитивности A , который рассчитывался по формуле

$$A = n_{F,M}^{e \rightarrow p} / (n_{F,M}^e + n_{F,M}^p), \quad (1)$$

где $n_{F,M}^{e \rightarrow p}$ — концентрация F -, M -центров при последовательном облучении электронами, а затем протонами, $n_{F,M}^e$ и $n_{F,M}^p$ — концентрация F -, M -центров при облучении только электронами и только протонами соответственно.

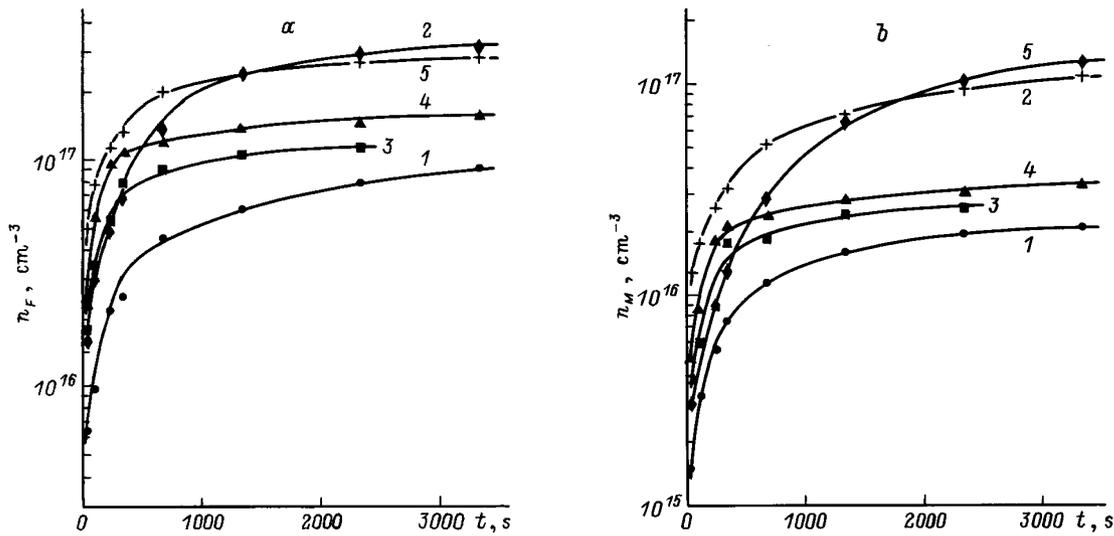


Рис. 1. Зависимость концентрации F -центров (a) и M -центров (b) от времени (потока) облучения кристаллов KCl электронами с энергией 15 keV (1), электронами с энергией 100 keV (2), протонами с энергией 100 keV (3) и последовательно сначала электронами с энергией 15 keV, а затем протонами с энергией 100 keV (4), последовательно сначала электронами с энергией 100 keV, а затем протонами с энергией 100 keV (5).

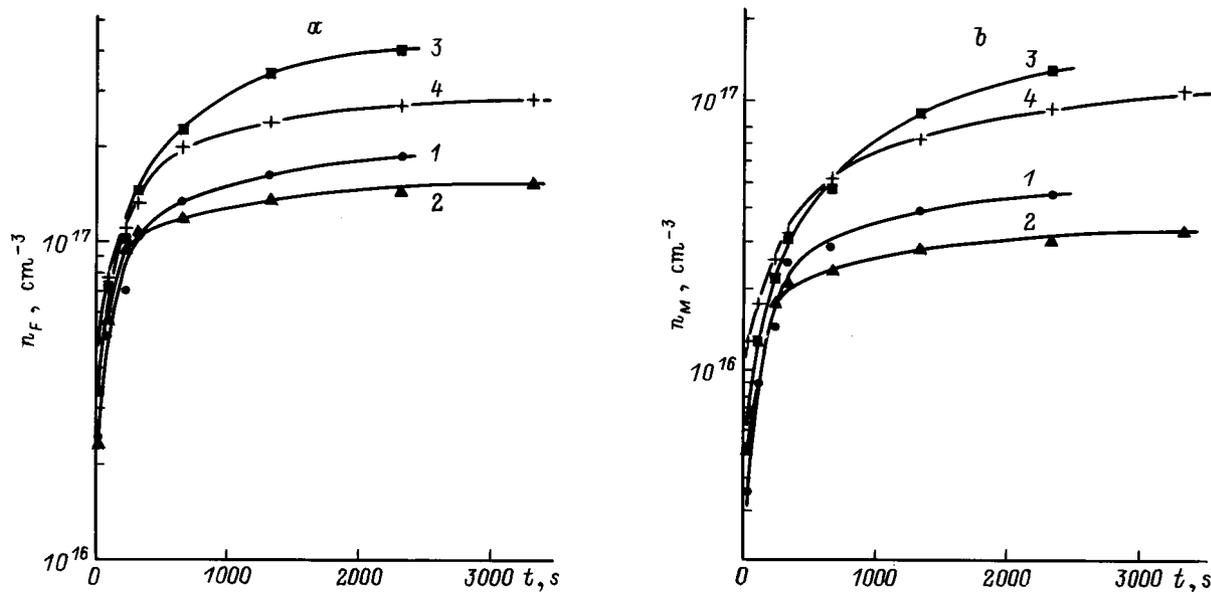


Рис. 2. Зависимость суммы концентраций F -центров (a) и суммы концентраций M -центров (b) от времени (потока) облучения кристаллов KCl электронами с энергией 15 keV и протонами с энергией 100 keV (1), электронами с энергией 100 keV и протонами с энергией 100 keV (3), и концентрации F -центров (a) и M -центров (b) при последовательном облучении сначала электронами с энергией 15 keV, а затем протонами с энергией 100 keV (2), при последовательном облучении сначала электронами с энергией 100 keV, а затем протонами с энергией 100 keV (4).

Из приведенных данных видно следующее.

1) При потоках $\Phi \leq 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ ($t \leq 330 \text{ s}$) концентрация F - и M -центров при облучении протонами выше, чем при облучении электронами. С увеличением Φ квазистационарные концентрации n_F и n_M этих центров больше, чем при облучении электронами с энергией 15 keV, но меньше, чем при облучении электронами с энергией 100 keV (кривые 1–3 на рис. 1, a, b).

2) При последовательном облучении электронами (15 keV), а затем протонами концентрации F - и M -центров в исследуемом диапазоне потоков больше, чем при облучении только электронами и только протонами (кривые 1, 3, 4 на рис. 1, a, b).

3) При потоках $\Phi \leq 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ сумма концентраций F -центров ($\sum n_F$) при облучении только электронами (15 keV) и только протонами меньше n_F при последова-

Таблица 1. Значения коэффициентов аддитивности *A* при комбинированном облучении кристаллов *KCl* электронами и протонами

Режим облучения	Центры	Φ, cm^{-2}							
		$1 \cdot 10^{13}$	$3 \cdot 10^{13}$	$7 \cdot 10^{13}$	$1 \cdot 10^{14}$	$2 \cdot 10^{14}$	$4 \cdot 10^{14}$	$7 \cdot 10^{14}$	$1 \cdot 10^{15}$
Электроны 15 keV	<i>F</i> -центры	1.20	1.06	1.02	1.00	0.88	0.83	0.76	0.7
Протоны 100 keV	<i>M</i> -центры	0.70	0.80	0.84	0.82	0.79	0.70	0.67	—
Электроны 100 keV	<i>F</i> -центры	—	1.34	1.12	0.98	0.84	0.69	0.66	—
Протоны 100 keV	<i>M</i> -центры	—	1.60	1.25	1.12	1.10	0.80	0.72	—

Таблица 2. Значения параметров торможения при облучении кристаллов *KCl* электронами и протонами

Параметр	Электроны		Протоны	Метод расчета
	15 keV	100 keV	100 keV	
R_p, cm	$2.8 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$1.4 \cdot 10^{-4}$	[6,7]
$\Delta R_p, \text{cm}$	$9.4 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-3}$	$1.9 \cdot 10^{-5}$	[6,7]
$(dE/dx)_i, \text{eV/cm}$	$2.1 \cdot 10^7$	$4.6 \cdot 10^6$	$1.8 \cdot 10^9$	[8]
$(dE/dx)_d, \text{eV/cm}$	—	—	$2.4 \cdot 10^6$	[6,7]
σ_i, cm^2	$2.7 \cdot 10^{-18}$	$5.9 \cdot 10^{-19}$	$2.3 \cdot 10^{-16}$	[8]
σ_d, cm^2	—	—	$5.8 \cdot 10^{-16}$	По Линдхарду [1,2]
			$2.1 \cdot 10^{-16}$	По Фирсову [1,2]
N_i, cm^{-3}	$8.8 \cdot 10^4 \Phi$	$1.9 \cdot 10^4 \Phi$	$5.6 \cdot 10^{-19}$	По Резерфорду [1,2]
			$7.6 \cdot 10^{-18}$	[6,7]
N_d, cm^{-3}	—	—	$6.7 \cdot 10^6 \Phi$	По Фирсову [1,2]
			$1.9 \cdot 10^7 \Phi$	По Линдхарду [1,2]
ν	—	—	$7.4 \cdot 10^6 \Phi$	[8]
			$6.2 \cdot 10^4 \Phi$	По Резерфорду [1,2]
			$8.4 \cdot 10^5 \Phi$	[6,7]
			3.46	[9]

тельном облучении сначала электронами, а затем протонами с теми же энергиями. С увеличением потока $\sum n_F$ становится больше значения n_F при последовательном облучении частицами (кривые 1, 2 на рис. 2, *a*).

4) Сумма концентраций *M*-центров ($\sum n_M$) при облучении только электронами (15 keV) и только протонами в исследуемом диапазоне Φ больше, чем при последовательном облучении этими частицами (кривые 3, 4 на рис. 2, *b*).

5) Коэффициент аддитивности *A* для *F*-центров с ростом потока от 10^{13} до 10^{15}cm^{-2} уменьшается от 1.2 до 0.7 соответственно. Для *M*-центров значение $A < 1$ (табл. 1).

6) При последовательном облучении электронами (100 keV), а затем протонами концентрация *F*-центров при $\Phi \leq 10^{14} \text{cm}^{-2}$ и *M*-центров при $\Phi < 5 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2}$ больше, чем при облучении только электронами и только протонами (кривые 2, 3, 5 на рис. 1, *a, b*). Однако при $\Phi > 5 \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2}$ значения n_F и n_M практически совпадают с концентрацией *F*- и *M*-центров при облучении электронами с энергией 100 keV (кривые 2, 5 на рис. 1, *a, b*).

7) Сумма концентраций $\sum n_F$ и $\sum n_M$ при облучении только электронами (100 keV) и только протонами вначале при $\Phi < (1-2) \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2}$ меньше концентрации *F*- и *M*-центров при последовательном облучении

электронами и протонами с той же энергией частиц, а затем с увеличением Φ становится больше (кривые 3, 4 на рис. 2, *a, b*).

8) Коэффициент аддитивности для *F*- и *M*-центров с ростом потока облучения уменьшается, принимая значения, близкие к единице при $\Phi = (1-2) \cdot 10^{14} \text{cm}^{-2}$ (табл. 1).

9) Образование *M*-центров начинается уже при малых потоках ($\sim 10^{13} \text{cm}^{-2}$) как при облучении только электронами и только протонами, так и при последовательном облучении частицами.

Отмеченные особенности образования дефектов при облучении только электронами и только протонами, а также при последовательном облучении сначала электронами, а затем протонами кристаллов *KCl*, очевидно, обусловлены различием параметров торможения этих частиц в твердом теле. В табл. 2 приведены результаты расчета первых двух моментов распределения удельных потерь энергии R_p и ΔR_p , интегральных потерь энергии на ионизацию $(dE/dx)_i$ и смещения $(dE/dx)_d$ атомов *KCl*, интегральных значений сечений ионизации σ_i и смещения σ_d атомов, а также интегральных концентраций ионизованных N_i и упругосмещенных N_d атомов с учетом среднего числа смещений ν , приходящихся на каждый первично смещенный атом.

Значения σ_i вычислялись по формуле

$$\sigma_i = (N_0 Z I)^{-1} (dE/dx)_i, \quad (2)$$

где N_0 — концентрация атомов ($3.2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$), Z — эффективный заряд ядра атомов (18), I — потенциал ионизации атома водорода.

Из табл. 2 следует, что при облучении протонами (100 keV) толщина слоя a ($a = R_p + \Delta R_p$) практически совпадает с величиной a при облучении электронами с энергией 15 keV и значительно меньше значения a при энергии электронов 100 keV. Значения σ_i и N_i при облучении протонами, рассчитанные с использованием различных приближений, различаются между собой не более чем в 3 раза. Однако эти величины на два-три порядка больше соответствующих значений при облучении электронами с энергиями 15 и 100 keV.

Значения σ_d и N_d при облучении протонами различаются между собой примерно на порядок и на два-три порядка меньше этих величин при ионизации. Из этого следует, что при облучении KCl протонами (100 keV) интегральные потери энергии обусловлены в основном ионизационными эффектами.

Исходя из данных табл. 2, экспериментальные результаты можно объяснить в предположении существования дополнительных каналов рекомбинации на поверхностных локальных уровнях, а также на дефектах, которые образованы в результате упругого смещения атомов при облучении протонами. Поверхностная рекомбинация более эффективна при облучении электронами (15 keV) и протонами (100 keV), так как в этих случаях электронные возбуждения (ЭВ) и связанные с ними дефекты располагаются вблизи поверхности. По этой причине образуется меньшая концентрация F - и M -центров, чем при облучении электронами с энергией 100 keV.

При малых потоках облучения протонами концентрация дефектов сравнительно мала и будет доминировать поверхностная рекомбинация. При этом высокая концентрация ЭВ по сравнению с облучением электронами (15 keV) способствует образованию более высоких концентраций F - и M -центров. С ростом потока протонов темп рекомбинации на дефектах увеличивается. Однако при наличии высокого уровня ЭВ концентрация F - и M -центров будет оставаться выше, чем при облучении электронами с энергией 15 keV.

Уменьшение коэффициента аддитивности A с ростом потока облучения можно объяснить рекомбинационно-стимулированным "разрушением" дефектов. При безызлучательной рекомбинации на дефектах выделяемая энергия непосредственно превращается в энергию колебаний атомов кристаллической решетки. Эта колебательная энергия вначале локализована вблизи центра рекомбинации, а затем рассеивается в форме многих фононов. Увеличение колебательной энергии может привести к "разрушению" сложных M -центров, а также к аннигиляции вакансий и межузельных атомов ("разрушению" F -центров).

Данный механизм более эффективен при соизмеримых толщинах дефектных слоев при облучении электронами (15 keV) и протонами (100 keV), что подтверждается экспериментом.

Таким образом, в настоящей работе получены следующие основные результаты.

1) При последовательном облучении кристаллов KCl электронами, а затем протонами концентрация F - и M -центров не соответствует сумме концентраций этих центров при облучении только электронами и только протонами.

2) При Φ , равном $1 \cdot 10^{13} - (1-2) \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2}$, коэффициент аддитивности A для F - и M -центров (электроны с энергиями 15 и 100 keV и протоны с энергией 100 keV), а также для M -центров (электроны и протоны с энергией 100 keV) больше единицы, а при Φ , равном $(1-2) \cdot 10^{14} - 10^{15} \text{ см}^{-2}$, он меньше единицы. Для M -центров (электроны с энергией 15 keV, протоны с энергией 100 keV) $A < 1$ во всем исследованном диапазоне потоков.

Авторы выражают благодарность М.И. Дворецкому и Е.В. Комарову за помощь в проведении экспериментов, М.В. Белякову за проведение расчетов спектров поглощения.

Список литературы

- [1] И.А. Аброян, А.Н. Андронов, А.И. Титов. Физические основы электронной и ионной технологии. Высш. шк. М. (1984). 319 с.
- [2] В.Л. Винецкий, Г.А. Холодарь. Радиационная физика полупроводников. Наук. думка, Киев (1979). 332 с.
- [3] Л.Г. Косицын, М.М. Михайлов, Н.Я. Кузнецов. ПТЭ, 4, 176 (1985).
- [4] А.А. Воробьев. Центры окраски в щелочно-галогидных кристаллах. Изд-во Том. ун-та, Томск (1968). 387 с.
- [5] Van Doorn. Phys. Rev. Lett., 3, 236 (1960).
- [6] В.В. Юдин. К теории пробегов Линдхарда-Шарфа-Шиотта. В кн.: Физические основы ионно-лучевого легирования. Горький (1972). С. 10.
- [7] В.В. Юдин. Электрон. техника. Сер. 2: Полупроводниковые приборы, 2(84), 3 (1974).
- [7] В.В. Юдин. Электрон. техника. Сер. 2: Полупроводниковые приборы, 4(177), 15 (1985).
- [9] J.F. Gibbons. IEEE 60, 9, 53 (1972).