

PACS: 62.40.+i

УДК 539.67:539.374

Изучение природы радиационных дефектов в облученных кристаллах LiF

Г.А. Петченко

Харьковский национальный университет городского хозяйства им. А.Н. Бекетова

Украина, 61002, г. Харьков, ул. Революции, 12

gdaeron@ukr.net

Абсорбционным методом в диапазоне длин волн 220-650 нм на кристаллах LiF с величиной предварительной деформации $\varepsilon = 0,8\%$ при $T=300\text{ K}$ изучено влияние облучения в интервале доз 0 - 1057 Р на спектральную зависимость коэффициента пропускания. Определены тип радиационных дефектов и рассчитано их количество по дисперсионному соотношению Смакулы.

Ключевые слова: деформирование, облучение, центры окраски, дефекты радиационного происхождения, коэффициент пропускания.

За абсорбційним методом у діапазоні довжин хвиль 220-650 нм на кристалах LiF з величиною попередньої деформації $\varepsilon = 0,8\%$ при $T=300\text{ K}$ вивчено вплив опромінення в інтервалі доз 0 - 1057 Р на спектральну залежність коефіцієнта пропускання. Визначено тип радіаційних дефектів і розраховано їх кількість за дисперсійним співвідношенням Смакули.

Ключові слова: деформування, опромінення, центри забарвлення, дефекти радіаційного походження, коефіцієнт пропускання.

The effect of irradiation by doses 0 - 1057 R on the wavelength dependence of the transmittance coefficient has been studied in LiF crystals with the value of preliminary deformation $\varepsilon = 0,8\%$ at a room temperature using the absorption technique in the range of wavelength 220-650 nm. The type of the radiation-induced defects has been defined and their quantity calculations by the dispersion Smakula's formula has been fulfilled.

Keywords: straining, irradiation, color centers, radiation-induced defects, transmittance coefficient.

Введение

В недавних работах [1-5] изучалось влияние рентгеновского облучения на динамические и структурные характеристики монокристаллов LiF с различной дислокационной структурой. Расчет величины динамического торможения дислокаций V и изменений эффективной длины дислокационного сегмента L в зависимости от дозы облучения проводился в рамках теории [6], путем анализа частотных спектров для дислокационного декремента $\Delta_d(f)$, измеренного в интервале частот 7,5-232,5 МГц.

С целью выявления начальных стадий смещения дислокационного резонанса по амплитуде и частоте исследуемые кристаллы с величиной остаточной деформации ε 0,3% [1], 0,4% [2] и 0,65% [3] облучали ступенчато (по 15- 20 минут), в течении одного часа, что при используемой мощности дозы облучения 0,11 Р/с соответствовало суммарной дозе облучения 400 Р. При исследовании кристаллов с остаточной

деформацией 1,5% [4] доза облучения составила 660 Р. Кроме того, для образцов с $\varepsilon = 0,4\%$ [5] доза была доведена до 1057 Р. Следует заметить, что все образцы LiF [1-5] были выколоты из одного большого кристалла и принадлежали одной и той же серии (чистота 10^{-4} вес.%). Технология приготовления образцов, контроль качества механической обработки, температурный режим их отжига были для всех образцов идентичны. Для создания остаточной деформации кристаллы в [1-5] деформировались с одинаковой скоростью ($\sim 10^{-5}$ с⁻¹), при которой [7] полосы скольжения не возникают, а ямки травления равномерно распределяются по протравленной поверхности кристалла, что позволяло использовать метод компьютерного подсчета ямок травления с максимальной эффективностью и точностью. В качестве основных результатов, полученных в работах [1-5], можно отметить следующие. Для любой из

величин ε в интервале 0,3-1,5% действие облучения приводило к монотонному смещению кривых $\Delta_d(f)$ в сторону более высоких частот и меньших значений декремента. Опытами обнаружено, что указанное смещение дислокационного резонанса становится вполне заметным уже после облучения в течение 15 минут, что соответствует дозе 100 Р. Поведение параметров резонансного максимума f_m и Δ_m , как показано в [5], хорошо описывается временными соотношениями, предложенными Штерном и Гранато [8]. Было установлено, что увеличение дозы облучения приводит к уменьшению величины L , что качественно объясняется пиннингом дислокаций центрами закрепления радиационного происхождения. Наблюдаемое изменение со временем облучения параметра L объясняет поведение кривых $\Delta_d(f)$ при облучении и хорошо описывается соотношением, полученным в [8]. Особо интересным представляется и тот факт, на кристаллах LiF наблюдается независимость коэффициента динамического торможения B при варьировании плотности дислокаций и времени облучения. Это хорошо согласуется с представлениями [9] о том, что динамическое торможение дислокаций в кристаллах не зависит от параметров дислокационной структуры и определяется только фонон-дислокационным взаимодействием.

Заметим, что в работах [1-5] не ставилось целью определить природу радиационных центров закрепления подвижных дислокаций. Это не представлялось возможным, поскольку применяемый акустический метод, будучи весьма тонким индикатором появления радиационных дефектов на дислокациях в кристалле при его облучении [3, 6], не позволяет идентифицировать тип возникающих дефектов. Однако для полноты представления физической картины процесса закрепления дислокаций радиационными дефектами безусловно следует изучить тип и количество последних.

Известно [10], что в ЦГК под воздействием радиации создаются центры окраски. При радиационном воздействии на кристалл энергия излучения расходуется преимущественно на электронные возбуждения и лишь в незначительной степени - на взаимодействие с ядрами атомов вещества, благодаря чему появляются F-центры (электроны в анионных вакансиях). При увеличении концентрации F-центров возможно их объединение в более сложные конфигурации (два или три F-центра образуют M-центры и R-центры) [10, 11]. Также известно о F_A -центрах (возникающих при замене части катионов в кристалле катионами другого щелочного металла) и V_K - центров (возникающих при захвате дырок дефектами структуры) [11]. Каждый тип центров окраски имеет характерную для данного кристалла частотную локализацию полос поглощения. Для

установления типа центров окраски, возникших под действием радиации в ЦГК, в основном используют абсорбционный метод [11]. Сравнивая спектры пропускания кристаллов до и после облучения, делают вывод о наличии тех или иных центров окраски, и по форме полосы поглощения (по ее полуширине [10, 11]) достаточно корректно определяют концентрацию последних. Подобные эксперименты также широко используются для прогнозирования пропускающей способности оптических приборов в радиационном поле при проверке радиационной стойкости элементов приборов [11].

С учетом сказанного представляет интерес дополнить результаты акустических экспериментов [1-5] данными, направленными на выяснение природы радиационных дефектов, полученных в рамках оптического абсорбционного метода. Это исследование и стало целью настоящей работы.

Методика эксперимента

Для опытов использовались образцы LiF размером приблизительно $17 \times 15 \times 28$ мм³ и чистотой 10⁻⁴ вес.%, полученные путем выкалывания по плоскостям спайности {100}. Принимая во внимание, что центры окраски чувствительны к условиям предварительной обработки образцов и режиму отжига, а также скорости деформирования, при подготовке образцов к оптическому эксперименту мы строго придерживались технологии, детально описанной в [1-5]. После приготовления образцов, их, как и в [1-5], деформировали сжатием на разрывной машине типа "Инстрон" при скорости деформации $\sim 10^{-5}$ с⁻¹ до получения остаточной деформации $\varepsilon = 0,8$ %. Указанное значение ε в соответствии с [7] интересно тем, что при нем уже завершаются процессы открепления от стопоров "ростовых" и рождения новых дислокаций, но еще не появляются "лесные" дислокации, ограничивающие подвижность дислокаций первичных плоскостей скольжения. Вследствие этого в кристалле формируется такая дислокационная структура, которая содержит максимальное число "легкоподвижных" дислокаций, способных реагировать на появление малых порций радиационных центров, демпфирующих дислокации. Отслеживание величины остаточной деформации, как и ранее, обеспечивалось точной регистрацией предела текучести кристаллов на ленте самописца КСП-4, а изменение длины образцов контролировалось с помощью компаратора ИЗА-2. Облучение кристаллов LiF рентгеновскими лучами выполнялось на той же установке и в том же режиме, что и в работах [1-5]. Применяемая мощность дозы облучения в месте расположения исследуемого кристалла составляла 0,11 Р/с. Суммарное время облучения образца составило

160 минут, что соответствует дозе облучения 1057 Р.

Оптический эксперимент выполнялся на спектрофотометре СФ-26 в интервале длин волн 200-650 нм. В качестве осветителя в спектральном диапазоне 200-350 нм использовалась дейтериевая лампа ДДС-30, а в интервале 350-650 нм лампа накаливания ОП-33-0.3. Во всем интервале измерений в качестве приемника излучения использовался сурьмяно- цезиевый фотоэлемент Ф-17.

Результаты и их обсуждение

Результаты измерения спектрального коэффициента пропускания $\tau_\lambda(\lambda)$ в кристаллах

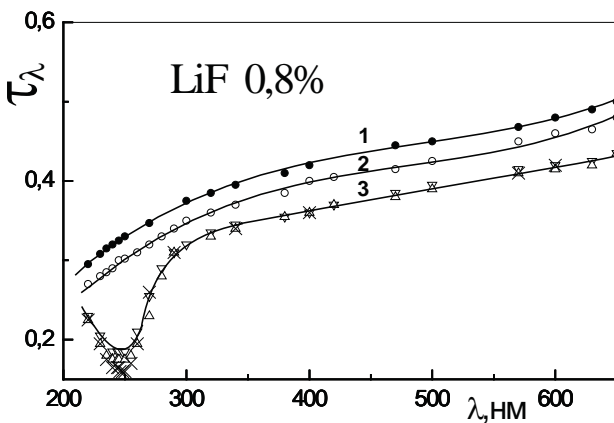


Рис.1. Зависимости спектрального коэффициента пропускания от длины волны в кристаллах LiF при разных дозах облучения. Кривая 1: • - необлученный кристалл, кривые 2, 3: ○, ▽ - для доз 264 и 530 Р соответственно; Δ, × - для доз 800 и 1057 Р соответственно.

с остаточной деформацией 0,8% до и после рентгеновского облучения приведены на рис.1.

Можно видеть, что зависимость $\tau_\lambda(\lambda)$ для необлученного кристалла (рис.1, кривая 1) монотонно возрастает с увеличением λ . При облучении кристаллов дозой рентгеновского излучения в 264 Р пропускающая способность образцов несколько снижается (рис.1, кривая 2). Заметим, что темп снижения кривой $\tau_\lambda(\lambda)$ во всех исследованных диапазонах видимой области спектра и в УФ – области примерно одинаков. При наращивании дозы облучения до 530 Р (Рис.1, кривая 3) становится заметной полоса поглощения с максимумом поглощения, лежащим на длине волны 248 нм. Принципиальных изменений в ходе зависимости $\tau_\lambda(\lambda)$ на других участках длин волн не наблюдается. С увеличении дозы радиации до 800 Р (экспериментальные точки обозначены Δ), и, затем до 1057 Р (экспериментальные точки обозначены ×) глубина полосы поглощения несколько увеличивается. При этом появление полос поглощения в других спектральных областях не наблюдается.

Согласно работам [10-12], ответственными за формирование полосы поглощения в кристаллах LiF, локализирующей вблизи $\lambda_{max}=248$ нм являются самые простые по своей конфигурации центры окраски – F-центры. Из анализа полученных экспериментальных результатов, представленных на рис.1, вытекает, что наши данные хорошо согласуются с выводами авторов [10-12] и свидетельствуют о том, что в кристаллах LiF, с остаточной деформацией 0,8 % в интервале доз рентгеновского облучения 0 - 1057 Р действительно возникают и развиваются вероятней всего F-центры.

Для получения информации о количестве возникших центров окраски мы обработали полученные результаты в рамках теории Смакулы [13], позволяющей по параметрам полосы абсорбционного пропускания определять объемную плотность F-центров.

Следует отметить, что хотя теория [13] была построена в рамках классической электродинамики, ее результат оказался правильным. К такому заключению пришел Д. Декстер [14], который с целью проверки теории [13] исследовал данную задачу в рамках квантовой электродинамики, с учетом рассмотрения как лоренцевой, так и гауссовой форм полосы поглощения.

Согласно [13] количество центров окраски в кристалле может быть определено по следующему дисперсионному соотношению:

$$N_F = \frac{A}{f} \cdot \frac{n}{(n^2 + 2)^2} \cdot K_m \cdot \Delta E \quad (1)$$

где $A=1,31 \times 10^{17}$ - числовой коэффициент, справедливый для лоренцевой формы полосы поглощения, f – сила осциллятора (равная 0,8 для лоренцевой формы полосы), $n=1,42$ [15] для LiF – показатель преломления невозбужденного кристалла в области $\lambda_{max} = 248$ нм, K_m – максимальное значение показателя ослабления, ΔE - полуширина полосы, определяемая шириной линии поглощения на ее полувысоте [16].

Для определения параметров K_m и ΔE из данных рис.1 необходимо воспользоваться соотношениями, справедливыми для случая прохождения света через плоскопараллельный слой вещества [17].

Пусть Φ_0 – первичный поток, падающий на поверхность кристалла (см. рис. 2). Тогда поток, отраженный от передней грани образца составит $\Phi_{p1} = \rho \cdot \Phi_0$. Поток, вошедший в кристалл через переднюю грань, составит $\Phi_1 = \Phi_0 - \rho \cdot \Phi_0 = \Phi_0(1 - \rho)$. Поток, прошедший толщу образца, подходя к задней грани, ослабнет по закону Бугера $\Phi_2 = \Phi_1 \cdot e^{-k\ell} = \Phi_0(1 - \rho) \cdot e^{-k\ell}$. Поток, отраженный от 2-й границы раздела составит

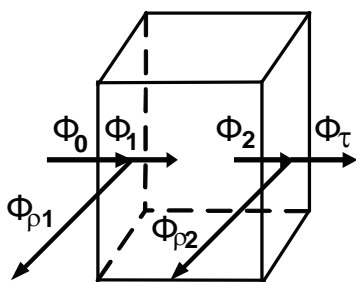


Рис.2. Схема прохождения света через кристалл [17].

$\Phi_{\rho_2} = \rho \cdot \Phi_2 = \Phi_0 \cdot \rho \cdot (1 - \rho) \cdot e^{-k\ell}$. Наконец, поток, выходящий из кристалла, составит $\Phi_{\tau} = \Phi_2 - \Phi_{\rho_2} = \Phi_0(1 - \rho)^2 \cdot e^{-k\ell}$. Коэффициент пропускания кристалла при этом составляет $\tau = \frac{\Phi_{\tau}}{\Phi_0} = (1 - \rho)^2 \cdot e^{-k\ell}$. Здесь $\rho = \left(\frac{n-1}{n+1}\right)^2$

- коэффициент отражения, K – показатель ослабления, $\Delta\ell$ - оптический путь света в веществе. С учетом френелевских потерь на отражение $(1 - \rho)^2 = 0,94$, в результате получаем

$$\tau = 0,94 \cdot e^{-k\ell} \Rightarrow \log\left(\frac{0,94}{\tau}\right) = 2,3 \cdot \log\left(\frac{0,94}{\tau}\right) = K \cdot \ell \cdot \log e \Rightarrow K = \frac{2,3 \cdot \log\left(\frac{0,94}{\tau}\right)}{\ell}$$

Таким образом, зная $\tau_{\lambda}(\lambda)$ и толщину кристалла, находим $K_{\lambda}(\lambda)$.

Результаты расчета спектральных зависимостей показателя ослабления от длины волны для доз облучения 530 и 1057 Р приведены на рис. 3 а и 3 б соответственно. Для граничных значений λ_1 и λ_2 по формуле $\Delta E = 1241 \cdot \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2}\right)$ [17] была определена полуширина полос для указанных доз,

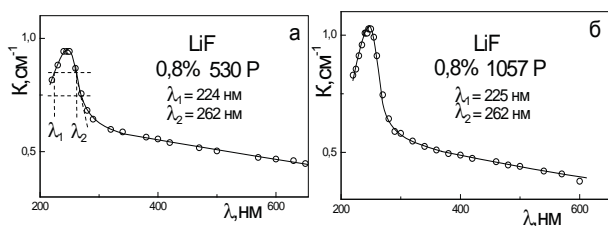


Рис.3. Зависимости показателя ослабления от длины волны в кристаллах LiF: а – доза облучения 530 Р (пунктирные линии указывают на способ определения граничных значений λ_1 и λ_2), б – доза облучения 1057 Р.

которая составила приблизительно 0,8 эВ. С учетом полученной нами величины $E_{\max} = 5$ эВ (для $\lambda = 248$ нм), можно отметить, что наши результаты находятся в хорошем согласии с литературными данными для LiF при 300 К [10].

По значениям K_m и ΔE мы, воспользовавшись соотношением (1), определили количество центров окраски, появившихся в LiF. Для доз облучения 530 и 1057 Р значения N_F составили $1,09 \times 10^{16}$ и $1,15 \times 10^{16}$ см⁻³ соответственно.

Следует отметить, что результаты данной работы, полученные на кристаллах LiF с величиной остаточной деформации 0,8%, позволяют предположить, что во всем интервале деформаций 0,3 -1,5% [1-5] радиационными центрами являлись именно F-центры. Однако для получения окончательного ответа на этот вопрос следует дополнить результаты акустических измерений [1-5] оптическими данными, касающиеся выяснения природы радиационных дефектов, ограничивающих подвижность дислокаций в кристаллах LiF, что может быть целью наших последующих работ.

В заключение хочу выразить благодарность А.М. Петченко и С.С. Овчинникову за помощь и консультации при подготовке оптического эксперимента, Д.В. Рохмистрову за помощь в поэтапном облучении образцов и Л.Н. Трефиловой за ценные советы и предоставленную возможность исследования образцов на спектрофотометре СФ-26.

Выводы

1. Изучено влияние рентгеновского облучения на зависимость спектрального коэффициента пропускания $\tau_{\lambda}(\lambda)$ от длины волны в кристаллах LiF с остаточной деформацией 0,8% в интервале доз облучения 0 -1057 Р.

2. Обнаружено, что при дозе рентгеновского облучения в 264 Р пропускающая способность образцов несколько снижается, приблизительно равномерно во всех исследованных диапазонах видимой области спектра и в УФ-области, а в интервале доз 530 -1057 Р наблюдается полоса поглощения с максимумом на длине волны 248 нм.

3. На основе анализа полученных результатов сделан вывод о том, что при вышеуказанных дозах рентгеновского облучения появление полосы поглощения в LiF действительно связано с возникновением F-центров.

4. Производя расчет по дисперсионному соотношению Смакулы с учетом экспериментально полученных значений параметров K_m и ΔE было найдено, что объемная плотность F-центров в кристаллах LiF, облученных дозами 530 и 1057 Р составляет $1,09 \times 10^{16}$ и $1,15 \times 10^{16}$ см⁻³ соответственно.

1. G.A. Petchenko, A.M. Petchenko. *Functional Materials*, **17**, 421 (2010).
2. Г.А. Петченко. *Вопросы атомной науки и техники*, **2 (99)**, 36 (2012).
3. Г.А. Петченко. *Вісник ХНУ імені В.Н. Каразіна*, **1019**, 57 (2012).
4. G.A. Petchenko. *Ukr. Journ. Phys.*, **49**, 339 (2011).
5. G.A. Petchenko. *Functional Materials*, **19**, 473 (2012).
6. Гранато А., Люкке К. Струнная модель дислокации и дислокационное поглощение ультразвука. Физическая акустика Ч. А., Мир, Москва (1969).
7. А.М. Петченко, Г.А. Петченко. *імені В.Н. Каразіна*, **865**, 39 (2009).
8. Р.М.Штерн, А.В.Гранато, в сб. Внутреннее трение и дефекты в металлах: под ред. В.С.Постникова, Металлургия, Москва (1965) [in Russian].
9. В.И.Альшиц, В.Л.Инденбом. *УФН*, **115**, 3 (1975).
10. В.М. Лисицын. Радиационная физика твердого тела, Издательство томского политехнического университета, Томск (2008).
11. В.И. Арбузов. Основы радиационного оптического материаловедения, Санкт-Петербургский государственный университет информационных технологий, механики и оптики, Санкт-Петербург (2008).
12. И.А. Парфианович, Э.Э. Пензина. Электронные центры окраски в ионных кристаллах, Восточно-Сибирское книжное издательство, Иркутск (1977).
13. A. Smakula. *Z. Physik.*, **59**, 603 (1930).
14. D.L. Dexter. *Phys. Rev.*, **101**, 48 (1956).
15. А.А. Блистанов, В.С. Бондаренко, Н.В. Переломова, Ф.Н. Стрижевская, В.В. Чкалова, М.П. Шаскольская. Акустические кристаллы, Наука, Москва (1982).
16. Н.В. Васильева, В.В. Рандошкин, В.Н. Колобанов, Е.Б. Крюкова, В.В. Михайлин, Н.Н. Петровнин, Ю.Н. Пырков, Д.А. Спасский, Н.Н. Сысоев. *ФТТ*, **3(49)**, 460 (2007).
17. В.В. Мешков. Основы светотехники, Энергия, Москва (1979).