

Ю. И. ШАРАНИН, В. П. ШУБИН, П. И. ДОЛИН

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПОДВИЖНОСТЕЙ И ВЫХОДОВ  
ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ, ВОЗНИКАЮЩИХ ПРИ ИМПУЛЬСНОМ  
РАДИОЛИЗЕ КРИСТАЛЛИЧЕСКОГО ЛЬДА

(Представлено академиком А. Н. Фрунжиным 18 VI 1970)

В работах (1-3) было установлено возникновение полосы оптического поглощения  $e_{aq}^-$  при импульсном облучении кристаллического льда и обсуждались трудности в теоретической интерпретации этого явления. В работе (4) было предложено отождествить наблюдаемые частицы с  $F$ -центрами (или  $e_{tr}^-$ ), возникающими при захвате электрона на вакансиях, образующихся за счет энергии падающего излучения. Оптические свойства полярона и  $F$ -центра имеют много общего (5), однако в кинетических особенностях между  $F$ -центром и поляроном (электроном, локализованным в регулярной решетке) имеется принципиальное различие. Полярон всегда подвижен, тогда как электрон  $F$ -центра способен участвовать в проводимости, только будучи переведен (термически или другим путем) в зону проводимости или поляронное состояние. Естественно поэтому ожидать, что, если гипотеза, выдвинутая в (4), правильна, подвижность отрицательных носителей в твердой фазе должна быть существенно меньше, чем в жидкости, где реализуется модель нелокального образования — полярона.

В работе использована цилиндрическая тефлоновая ячейка, в торцах которой были расположены два металлических титановых электрода, охлаждаемых парами жидкого азота до  $-10^\circ$ . В ходе эксперимента на эти электроды подавалось стабилизированное напряжение величиной от 200 до 4000 в. Толщина слоя льда между электродами составляла 0,5 см и общий объем  $\pi/2$  см<sup>3</sup>. Образец изготовлялся в ячейке замораживанием дважды перегнанной воды, обезгаженной или насыщенной гелием. Количество органических примесей в воде контролировалось по методике, описанной в (4), и составляло  $<10^{-8}$  M.

Облучение производилось 2 мксек импульсами тормозного излучения от ускорителя У-12. Доза за импульс варьировалась в пределах 0,025—0,25 рад.

Эксперименты, выполненные в условиях варьирования доз за импульс и приложенного напряжения, показали, что амплитуда токового сигнала и функциональная зависимость тока от времени определяются концентрацией первичных заряженных частиц, а также их подвижностями и значением напряженности поля. Приближенное решение соответствующей системы дифференциальных уравнений приводит к следующему выражению для амплитуды токового сигнала:

$$I_0 = SEeC_0(U_+ + U_-), \quad (1)$$

где  $U_+$  и  $U_-$  — подвижности соответственно положительного и отрицательного неравновесных носителей,  $C_0$  — их начальная концентрация,  $e$  — заряд электрона,  $E$  — напряженность поля и  $S$  — площадь электрода.

Выражение (1) не изменяется при выводе уравнений в предположении различных конкретных механизмов реакций, что позволяет применять его в случае широкого варьирования доз за импульс (рис. 1). Этот рисунок демонстрирует следующую из (1) линейную зависимость  $I_0$  от приложенного напряжения, наклон прямой дает значение  $C_0(U_+ + U_-)$ .



Значение  $C_0$  определялось из величины площади под токовой кривой, которая по смыслу представляет заряд, собранный на электродах —  $Q_{\text{собр}}$ . При достаточно высокой напряженности поля (значение которой зависело от дозы за импульс) кривая  $Q_{\text{собр}} = f(E)$  выходит на плато (рис. 2). Это означает, по-видимому, что при достаточно высоких полях имеет место полное вытягивание образующихся носителей на электроды. Подобный

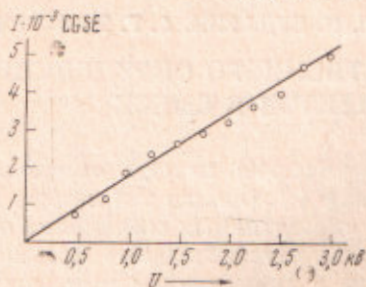


Рис. 1

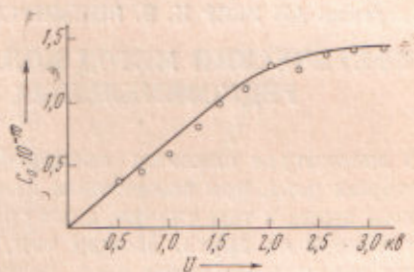


Рис. 2

вывод согласуется с результатами анализа выражения для полного собранного заряда, которое было получено интегрированием зависимости  $I = \varphi(t)$ . Выражение для  $Q_{\text{собр}}$  имеет различный вид для случая больших и малых доз за импульс, однако при достаточно больших полях полный собранный заряд стремится к величине

$$Q_{\text{собр}}/E \rightarrow \infty = 2eC_0V \text{ и } C_0 = \frac{Q_{\text{собр}}/E \rightarrow \infty}{2eV},$$

где  $V$  — объем облучаемого образца. Проведенная дозиметрия позволила из данных рис. 2 рассчитать также и выход заряженных частиц, который оказался равным:

$$Ge_+ = Ge_- = 0,8 \pm 0,15 \text{ ионов/100 эв.}$$

Это хорошо совпадает с результатами расчетов, проведенных в (9) на основании оптических измерений.

Значение суммы подвижностей было рассчитано из результатов, представленных на рис. 1 и 2, и равно:

$$U_+ + U_- = 0,1 \pm 0,02 \text{ см}^2/\text{в} \cdot \text{сек.}$$

Опыты, производимые при очень малых дозах за импульс, позволили оценить отношение подвижностей положительных и отрицательных зарядов:  $U_+/U_- = 5$ . Это приводит к следующим значениям подвижностей отдельных носителей:

$$U_+ = 8,3 \cdot 10^{-2} \text{ см}^2/\text{в} \cdot \text{сек; } U_- = 1,7 \cdot 10^{-2} \text{ см}^2/\text{в} \cdot \text{сек.}$$

Как видно, подвижность положительного заряда близка к экспериментально найденной (10) подвижности протона во льду  $7,5 \cdot 10^{-2} \text{ см}^2/\text{в} \cdot \text{сек}$ . Подвижность отрицательного носителя на порядок выше, чем  $e_{\text{aq}}^-$  в жидкой воде (11, 12) и приближается к подвижностям H и OH в кристаллическом льду (10). Полученные результаты ставят под сомнение правильность гипотезы о локализации электрона на вакансии с образованием малоподвижного  $e_{\text{tr}}^-$ -модель F-центра.

Институт электрохимии  
Академии наук СССР  
Москва

Поступило  
27 V 1970

#### ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- <sup>1</sup> I. Taub, K. Eiben, J. Chem. Phys., 49, 2499 (1968). <sup>2</sup> В. Н. Шубин, В. А. Жигунов и др., ДАН, 174, 416 (1967). <sup>3</sup> G. Nilsson, H. Christeansson et al., And. in Chem. Ser., 81, 71 (1968). <sup>4</sup> K. Eiben, J. Taub, Nature, 216, 5117 (1967). <sup>5</sup> W. N. Shubin, W. A. Zhigunov et al., Nature, 212, № 5066, 1002 (1966). <sup>6</sup> J. Weiss, Philosop. Mag., 20, № 164, 259 (1969). <sup>7</sup> J. Jortner, Radiation Res. Suppl., 4, 24 (1964). <sup>8</sup> Н. П. Березина, Н. В. Николаева, Электрохимия, 3, 1 (1967). <sup>9</sup> В. Н. Шубин, Докторская диссертация, М., 1970.