

А. А. ВОРОБЬЕВ, К. П. АРЕФЬЕВ, С. А. ВОРОБЬЕВ

**ОБРАЗОВАНИЕ И НАКОПЛЕНИЕ ИЗБЫТОЧНОЙ КОНЦЕНТРАЦИИ  
ДЫРОК ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ПОЗИТРОНАМИ И НЕКОТОРЫЕ  
ОБУСЛОВЛЕННЫЕ ИМИ ЯВЛЕНИЯ В ДИЭЛЕКТРИКАХ**

*(Представлено академиком В. И. Спицыным 12 V 1974)*

Возникновение в кристаллах избыточных электронов и дырок, их движение во внешних полях и рекомбинация обуславливают неравновесные электронные явления, которые играют важную роль в физике диэлектриков и полупроводников <sup>(1)</sup>. Свободные электроны и дырки могут образоваться в процессах ионизации атомов в диэлектриках, например при облучении потоками быстрых электронов или  $\gamma$ -квантов. Захват электронов или дырок точечными дефектами решетки приводит к образованию дырочных и электронных центров окраски и изменению оптических свойств диэлектриков <sup>(2)</sup>. Аннигиляция позитронов в кристаллах сопровождается возникновением дырки, а не электронно-дырочной пары, что является новым специфическим эффектом. Избыточная концентрация дырок обусловит особенности в электронно-дырочных переходах и связанных с ними явлениях люминесценции, электропроводности, образования объемного положительного заряда. В ионных кристаллах следует ожидать изменения оптических свойств в области дырочных полос поглощения, а также динамики дырочных и электронных центров окраски.

Ниже сообщаются результаты некоторых исследований оптических свойств щелочногалоидных монокристаллов после их позитронного облучения. Источником позитронов служила радиоактивная соль  $^{22}\text{NaCl}$  активностью 8 мС, выпаренная на подложку из нержавеющей стали. Максимальная энергия позитронов бета-спектра этого источника составляет 540 кэВ. Облучались позитронами монокристаллы  $\text{KCl} - 0,1$  мол. %  $\text{Tl}$ , выращенные методом Киропулоса из солей «ос.ч.», и монокристаллы  $\text{KBr}$ ,  $\text{NaCl}$ , выращенные из солей «х.ч.». Из блоков выкалывались образцы размером  $7 \times 7$  мм<sup>2</sup>. Толщина образцов изменялась в пределах 0,5–1,5 мм, тогда как экстраполированный пробег позитронов примерно равен 0,5 мм. Позитронный распад изотопа  $^{22}\text{Na}$  сопровождается фоновым излучением сопутствующих  $\gamma$ -квантов с энергией 1,28 МэВ и аннигиляционных  $\gamma$ -квантов с энергией 0,51 МэВ, поэтому в контрольном эксперименте такой же образец облучался только сопутствующими  $\gamma$ -квантами и использовался в качестве эталона. Оптические спектры поглощения облученных кристаллов измерялись на спектрофотометре СФР-4А.

На рис. 1, 2 представлены измеренные в сравнимых условиях спектры оптического поглощения монокристаллов  $\text{KCl} - 0,1$  мол. %  $\text{Tl}$  толщиной 0,75 мм, облученных позитронами и  $\gamma$ -квантами и отдельно  $\gamma$ -квантами в течение месяца. Кривые 3, 4 на этом рисунке представляют спектры оптического поглощения монокристаллов  $\text{NaCl}$  толщиной 1,5 мм, облученных в аналогичных условиях.

В монокристаллах  $\text{KCl} - 0,1$  мол. %  $\text{Tl}$  примесь  $\text{Tl}^+$  при комнатной температуре является акцептором дырок, причем дырочная полоса оптического поглощения  $\text{Tl}^{2+}$  лежит в области чувствительности используемого спектрофотометра СФР-4А. Это позволило заметить вероятные осо-

бенности в образовании дырочных или электронных центров окраски в ионных кристаллах, которые могли иметь место при позитронном облучении. Измеренные спектры оптического поглощения показывают, что облучение позитронами приводит к созданию известных центров окраски и возникновению  $F$ - и  $V$ -полос поглощения, максимумы которых расположены при тех же частотах, как и при облучении другими заряженными частицами или  $\gamma$ -квантами. В соответствии с более сильной ионизирующей способностью заряженных частиц, комбинированное облучение позитронами и  $\gamma$ -квантами кристаллов NaCl наводит более высокую концентрацию  $F$ -центров, чем в случае только  $\gamma$ -облучения.

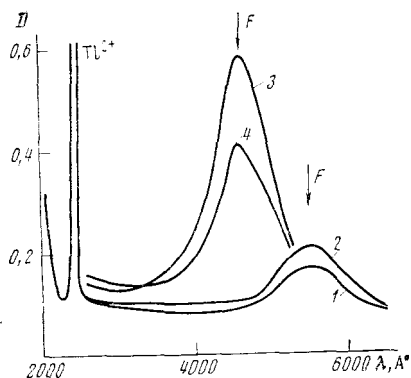


Рис. 1. Спектры оптического поглощения монокристаллов KCl — 0,1 мол. % Tl (1, 2) и NaCl (3, 4), облученных позитронами и  $\gamma$ -квантами (1, 3) и только  $\gamma$ -квантами (2, 4)

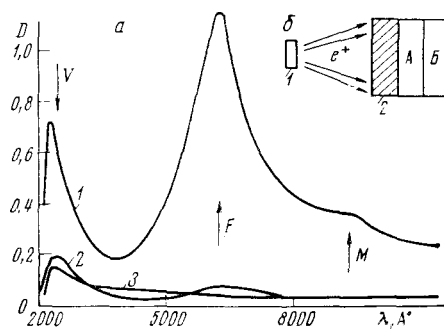


Рис. 2. а — спектры оптического поглощения окрашенного электронами кристалла KBr (1) и спектры оптического поглощения, измеренные для обесцвечивания областей А (2) и Б (3). б — расположение областей А и Б в кристалле KBr

В то же время для кристаллов KCl — 0,1 мол. % Tl в образцах, облученных позитронами и  $\gamma$ -квантами, концентрация  $F$ -центров оказалась меньше, а  $Tl^{2+}$ -центров больше, чем для эталонного образца, облученного только  $\gamma$ -квантами. Меньшая концентрация  $F$ -центров в облучаемых позитронами кристаллах KCl — 0,1 мол. % Tl, возможно, обусловлена их распадом и связана с особенностями поглощения позитронов в веществе. В кристаллах NaCl электроны сильнее связаны в  $F$ -центрах, чем в KCl (2), поэтому эффект обесцвечивания сказывается слабее. Особенность поглощения позитронов заключается в их аннигиляции с электронами вещества, что приводит к созданию неравновесной концентрации дырок. В щелочногалогидных кристаллах дырки входят в состав дырочных центров окраски, представляющих собой устойчивые ковалентные образования (3), и образуют избыточный объемный заряд положительного знака. Такая избыточная концентрация дырок, образовавшаяся при аннигиляции позитронов в диэлектриках, при комнатной температуре сохраняется в течение длительного времени и, как видно, существенно влияет на физико-химические свойства монокристаллов.

Чтобы исследовать влияние позитронного облучения на обесцвечивание монокристаллов, нами были проведены измерения для кристаллов KBr и NaCl, предварительно окрашенных электронным пучком. В кристаллах KBr электронные центры окраски еще более неустойчивы, чем в KCl (2), дырочноакцепторных примесей нет, но дырочная полоса оптического поглощения лежит в области чувствительности прибора СФР-4А. Интенсивность потока электронов при окрашивании составляла на поверхности образца  $0,5 \cdot 10^{-6}$  а/см<sup>2</sup> (поток  $2 \cdot 10^{13}$  электроп/(см<sup>2</sup>·сек)). Энергия электронов 2,0 Мэв, а время облучения 5 мин. При выбранной

толщине образцов окрашивание происходило почти равномерно на всю глубину без поглощения первичных электронов.

На рис. 2а показан спектр оптического поглощения для окрашенного электронами кристалла КВг толщиной 1,5 мм. Этот же образец кристалла

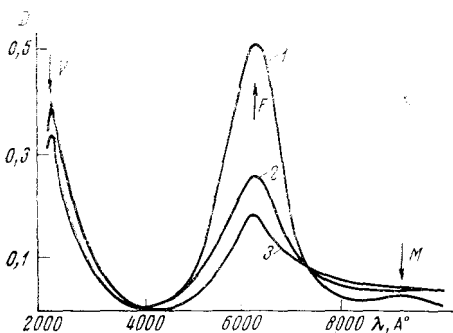


Рис. 3. Спектры оптического поглощения окрашенного протонами кристалла КВг (1), облученного позитронами и  $\gamma$ -квантами в течение 3 суток (2) и выдержанного после этого в темноте в течение двух суток (3)

КВг был подвергнут комбинированному облучению позитронами и  $\gamma$ -квантами в течение трех суток и выдержан в темноте в течение четырех суток. Такая выдержка образца привела к его последовательному обесцвечиванию со стороны, противоположной облученной позитронами поверхности (4). Этот факт иллюстрируют спектры оптического поглощения, измеренные для обесцвечивания областей А и Б (толщиной 0,5 мм каждая) кристалла КВг. В аналогичных опытах, проведенных на окрашенных при облучении электронами кристаллах NaCl, эффект обесцвечивания не обнаружен. Полученные результаты согласуются с обсуждаемым предположением, что явление распада в кристаллах неустойчивых электронных центров окраски обусловлено последствиями позитронной аннигиляции и созданием дырочного объемного заряда. Значительное влияние эффектов зарядки на физико-химические свойства диэлектриков было рассмотрено в работе (3).

Можно предложить два механизма обесцвечивания: на основе близкого действия и дальнего действия поля созданного заряда в кристаллах, например в виде «виртуального катода» (6). Для определения роли этих механизмов предварительно окрашенные протонами на глубину 0,5 мм монокристаллы КВг толщиной 1,5 мм были подвергнуты комбинированному облучению позитронами и  $\gamma$ -квантами с неокрашенной стороны. Интенсивность потока протонов на поверхности образцов составляла  $0,05 \cdot 10^{-6}$  а/см<sup>2</sup> (поток  $2 \cdot 10^{12}$  протон/(см<sup>2</sup>·сек)). Энергия протонов была 9,5 Мэв, время облучения 15 мин. На рис. 3 приведены спектры оптического поглощения для окрашенного протонами кристалла КВг, для этого же образца, облученного позитронами и  $\gamma$ -квантами в течение трех суток, и после этого выдержанного в темноте в течение двух суток (3). Результаты измерений показывают постепенное обесцвечивание образцов, сопровождаемое частичным переходом F-центров в более сложные центры окраски, что согласуется с представлением о дальнедействующем механизме обесцвечивания в поле, создаваемым избыточным зарядом дырок в приповерхностной области кристалла. Для кристаллов КВг, толщина которых сравнима с пробегом поглощаемых позитронов, процесс обесцвечивания выражен значительно слабее.

Согласно обсуждаемому механизму, величина и распределение по глубине кристалла избыточного заряда дырок должны влиять на эффект обесцвечивания. С этой целью предварительно окрашенный электронами кристалл КВг толщиной 1,5 мм был подвергнут комбинированному облучению позитронами и  $\gamma$ -квантами в течение двух суток. Глубина полностью обесцвеченного слоя получена меньше, чем в случае облучения в течение трех суток, что объясняется меньшей концентрацией генерированных дырок. Двухмесячное комбинированное облучение позитронами и  $\gamma$ -квантами кристалла КВг, предварительно окрашенного при облучении электронами, показало более слабое обесцвечивание, чем в случае кратковременного трехсуточного облучения этого кристалла. Эти результаты

согласуются с приведенными на рис. 1 экспериментальными данными для комбинированного облучения чистых образцов позитронами и  $\gamma$ -квантами и показывают, что при долговременном облучении позитронами щелочно-галлоидных кристаллов окрашивание происходит в основном так же, как и другими заряженными частицами, а процесс обесцвечивания в этом случае сказывается незначительно.

Научно-исследовательский институт  
ядерной физики, электроники и автоматики  
при Томском политехническом институте  
им. С. М. Кирова

Поступило  
18 IV 1974

#### ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

- <sup>1</sup> М. Ламперт, П. Марк, Инжекционные токи в твердых телах, 1973. <sup>2</sup> А. А. Воробьев, Центры окраски в щелочногаллоидных кристаллах, Томск, 1968. <sup>3</sup> Ч. Б. Луцкий, Е. А. Васильченко и др., Тр. Инст. физики и астрономии АН ЭССР, Тарту, № 39, 3 (1972). <sup>4</sup> К. Р. Arejiev, S. A. Vorobiev, Phys. Letters, v. 44A, 439 (1973). <sup>5</sup> В. И. Спицын, В. В. Громов, Физико-химические свойства радиоактивных тел, 1973. <sup>6</sup> О. Б. Евдокимов, Н. П. Тубалов, ФТТ, т. 15, 603 (1973).