

Арапов Б., Ташкулов К., Арапов Т.Б.
ОшГУ

ИОННЫЙ МЕХАНИЗМ ОТЖИГА РАДИАЦИОННЫХ ДЕФЕКТОВ В ЩЕЛОЧНО ГАЛЛОИДНЫХ КРИСТАЛЛАХ

Исследование термостимулированных процессов распада радиационно-наведенных центров в щелочно-галлоидных кристаллах, как известно, позволяет получить ценные сведения о наноструктурных характеристиках центров. В этом направлении в последние годы пополнен значительный теоретический и экспериментальный материал. Однако менее значительно изучен вопрос о кинетических характеристиках центров при фотостимулированных процессах, находящихся в фотовозбужденном состоянии. В работах [1-4] показано, что как термическая, так и фототермическая стабильность радиационно-наведенных центров определяется такими факторами, как предыстории образца, наличие в кристалле посторонних примесей, вид и температура возбуждения, условия изготовления исследуемого объекта и др.

В связи с этим можно думать, что как термическая, так и фототермическая стабильность центров окраски обусловлена их разрушением в результате взаимодействия наведенных ионных микродефектов, образующихся в результате термостимулированным или фотостимулированным воздействием на кристалл.

Ионный механизм распада радиационных дефектов в ЩГК можно представить следующим образом. С центрами окраски могут взаимодействовать различные дефекты кристаллической решетки (напр., ионные вакансии, ионы примеси, а также их агрегаты), способные перемещаться по кристаллу. В результате взаимодействия таких подвижных дефектов с центрами окраски они распадаются или превращаются в другие дефекты. Эти вновь образующиеся дефекты могут быть термически нестабильными и становятся промежуточными. Подвижные дефекты могут быть также перехвачены другими типами дефектов, являясь центрами захвата для подвижных дефектов. В работах [5,6.] показано, что стоками для подвижных точечных дефектов могут быть дислокации.

Если полагать, что концентрация ионных центров захвата N и подвижных ионных дефектов n_v в ходе релаксации существенно не изменяется, то можно получить теоретическую кривую процесса чисто термического разрушения центров в следующем виде:

$$-\frac{dn}{dT} = \frac{P_{ov}}{\beta} n_v \frac{\exp\left(-\frac{Q_v}{kT}\right)}{1 + \gamma_0 \frac{N}{n} \exp\left(-\frac{Q_3 - Q_p}{kT}\right)}, \quad (1)$$

где P_{ov} — частота колебания ионов-разрушителей вблизи центров; Q_v — энергия активации прыжкового движения ионных дефектов по решетке; Q_3 — энергия активации процесса захвата подвижного ионного дефекта на ионном центре захвата; Q_p — энергия активации процесса взаимодействия ионного дефекта с центрами; $\gamma_0 = \sigma_{oz}/\sigma_{op}$ — отношение предэкспоненциальных множителей, имеющих смысл сечения захвата подвижных ионных дефектов ионными центрами захвата σ_{oz} и сечения захвата этих ионов центрами σ_{op} ; β - скорость нагрева кристалла; n - концентрация центров.

Практически интересный случай, позволяющий в определенной мере регулировать параметры процесса обесцвечивания, определяется условием:

$$\gamma_0 \frac{N}{n} \exp\left(-\frac{Q_3 - Q_p}{kT}\right) \gg 1. \quad (2)$$

Тогда (1) можно представить в виде:

$$-\frac{dn}{dT} = \frac{P_{ov}}{\beta\gamma_0} n \frac{n_v}{N} \exp\left(-\frac{Q_v + Q_p - Q_3}{\kappa T}\right). \quad (3)$$

Интегрирование выражения (3) приводит к следующей формуле для теоретической кривой термообесцвечивания:

$$n = n_0 \exp\left(-\frac{P_{ov}}{\beta} \frac{n_v}{N\gamma_0} \int_{T_0}^T e^{-\varepsilon/\kappa T} dT\right). \quad (4)$$

Аналогичные рассуждения взаимодействия фотовозбужденных центров с подвижными ионами приводят к следующему кинетическому уравнению:

$$-\frac{dn}{dT} = \frac{P_{ov}^*}{\beta\gamma_0^*} \frac{n_v}{N} n^* \exp\left(-\frac{Q_v + Q_p^* - Q_3}{\kappa T}\right). \quad (5)$$

Здесь $\gamma_0^* = \sigma_{ov}^* / \sigma_{op}^*$, где σ_{op}^* - сечение захвата ионного дефекта возбужденным центром; n^* - квазистационарная концентрация возбужденных центров. Для интегрирования уравнения (5) необходимо выразить n^* через n . Это можно сделать путем решения соответствующего кинетического уравнения, учитывающего процессы оптического возбуждения и спонтанного деовозбуждения. Рассмотрение этого вопроса приводит к следующему результату:

$$n^* = \frac{N_0}{c} 5 \cdot 10^{-16} n \cdot p \cdot \tau, \quad (6)$$

где N_0 - число квантов возбуждающего света из области полосы поглощения, падающих за 1 сек на 1 см^2 кристалла; c — скорость света; p - вероятность поглощения кванта возбуждающего света центром; τ — общая длительность возбужденного состояния центров.

Подставляя (6) в (5), получим соотношение:

$$-\frac{dn}{dT} = \frac{P_{ov}^*}{\beta} \frac{n_v}{\gamma_0^* N} 5 \cdot 10^{-16} \frac{N_0}{c} \tau \cdot p \cdot n \exp\left(-\frac{Q_v + Q_p^* - Q_3}{\kappa T}\right), \quad (7)$$

где Q_p^* - энергия активации процесса взаимодействия подвижного ионного дефекта с фотовозбужденными центрами.

Интегрирование (7) дает теоретическую кривую фототермообесцвечивания в виде:

$$n = n_0 \exp\left(-\frac{P_{ov}^*}{\beta} \frac{n_v}{\gamma_0^* N} 5 \cdot 10^{-16} \frac{N_0}{c} p \tau \int_{T_0}^T \exp(-\varepsilon^*/\kappa T) dT\right), \quad (8)$$

где T_0 — температура возбуждения фосфора.

Из уравнения (7) получаем:

$$-\frac{dn}{dt} = P_{ov}^* \frac{n_v}{\gamma_0^* N} 5 \cdot 10^{-16} \frac{N_0}{c} p \tau \exp\left(-\frac{\varepsilon^*}{\kappa T}\right) n. \quad (9)$$

Интегрирование последней формулы дает следующую зависимость концентрации центров от времени t :

$$n = t \cdot n_0 \exp\left(-\frac{P_{ov}^*}{N\gamma_0^*} n_v 5 \cdot 10^{-16} \frac{N_0}{c} p \tau \exp\left(-\frac{\varepsilon^*}{\kappa T}\right) t\right). \quad (10)$$

Теоретические кривые фотообесцвечивания, рассчитанные по формуле (10) при параметрах для различных концентрации n_v подвижных ионных дефектов в интервале $(10^7 \div 10^8) \text{ см}^{-3}$ представлены на рис.1. Кривая (1) фотообесцвечивания при постоянной температуре ($T_0 = 300^0 \text{ К}$) соответствует, например, предельному случаю $n_v = 0$, т. е.

отсутствию в кристалле подвижных ионных дефектов центров окраски, а кривые 2-5 - различным концентрациям таких ионов. Видно, что с ростом концентрации ионов-разрушителей скорость фоторазрушения центров в определенном интервале времени релаксации заметно увеличивается.

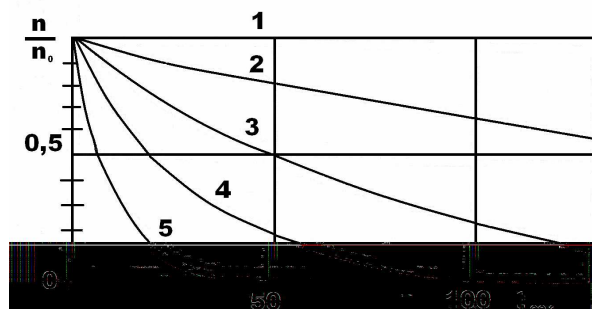


Рис.1. Теоретические кривые фоторазрушения центров окраски при постоянной температуре.

$$p_{ov}^* = 4 \cdot 10^{12} \text{ сек}^{-1}, \quad \varepsilon^* = -0,10 \text{ эВ}, \quad T_0 = 300^0 \text{ К}, \quad N = 10^{10} \text{ см}^{-3}, \quad \gamma_0^* = 10^2, \quad \tau p = 10^{-2},$$

$$N_0 = 10^{16} \text{ см}^{-2} \text{ сек}^{-1}, \quad 1 - n_v = 0; \quad \frac{n_v}{\gamma_0^* N} = 0; \quad 2 - n_v = 10^7 \text{ см}^{-3}; \quad \frac{n_v}{\gamma_0^* N} = 10^{-5}; \quad 3 - n_v = 4 \cdot 10^7 \text{ см}^{-3};$$

$$\frac{n_v}{\gamma_0^* N} = 4 \cdot 10^{-5};$$

$$4 - n_v = 10^8 \text{ см}^{-3}; \quad \frac{n_v}{\gamma_0^* N} = 10^{-4}; \quad 5 - n_v = 3 \cdot 10^8 \text{ см}^{-3}; \quad \frac{n_v}{\gamma_0^* N} = 3 \cdot 10^{-4};$$

Для экспериментального исследования процессов фототермообесцвечивания центров в щелочно-галогидных кристаллах была собрана специальная установка с непрерывной записью кривых, позволяющая изучать не только концентрацию центров окраски, но и одновременно с этим интенсивность свечения в ходе указанных процессов. Установка давала возможность исследовать также процесс временной релаксации концентрации центров окраски при фототермическом разрушении ($T = \text{const}$) последних.

Для оптического возбуждения центров были использованы лазерное излучение и свет из области полосы поглощения исследуемых центров.

В данной работе нами было изучено фотообесцвечивание центров окраски в кристаллах КС1 под действием света из области F – полосы поглощения и лазерного излучения с длиной волны 632,8 нм.

Рассмотрим как изменяется оптическая стабильность этих центров окраски при возбуждении светом, соответствующей максимуму полосы поглощения. На рис.2 приведены кривые фотообесцвечивания F – центров окраски при возбуждении F – светом (а) и F – и V_2 – центров окраски при возбуждении лазерным лучом с длиной волны 632,8 нм (кривая 1 и 2, рис. 2 б). Как видно из этих данных, при возбуждении F- светом оптическая стабильность F – центров уменьшается по кинетике, близкой к экспоненциальному закону.

Характер изменения оптической стабильности этих центров при облучении кристалла КС1 лазерным лучом приведен на рис.2 б). Кривая 1 характеризует концентрацию F – центров окраски в различные моменты времени лазерного облучения; кривая 2 характеризует изменение концентрации V_2 – центров в кристаллах. Как видно из этих данных, концентрация электронных F – центров и дырочных V_2 – центров в ходе лазерного облучения изменяется по одинаковому закону и аналогично, как при действии F- светом. Сравнение полученных экспериментальных данных с теоретическими результатами приведенной на рис.1 кривой 5 показывает, по крайней мере, качественное соответствие между собой. По формуле (10) для первой стадии процесса

фототермообесцвечивания было определено значение энергии $\epsilon^* = -0,15$ эв, а также множителя $n_v / \gamma_0^* N = 3,8 \cdot 10^{-4}$.

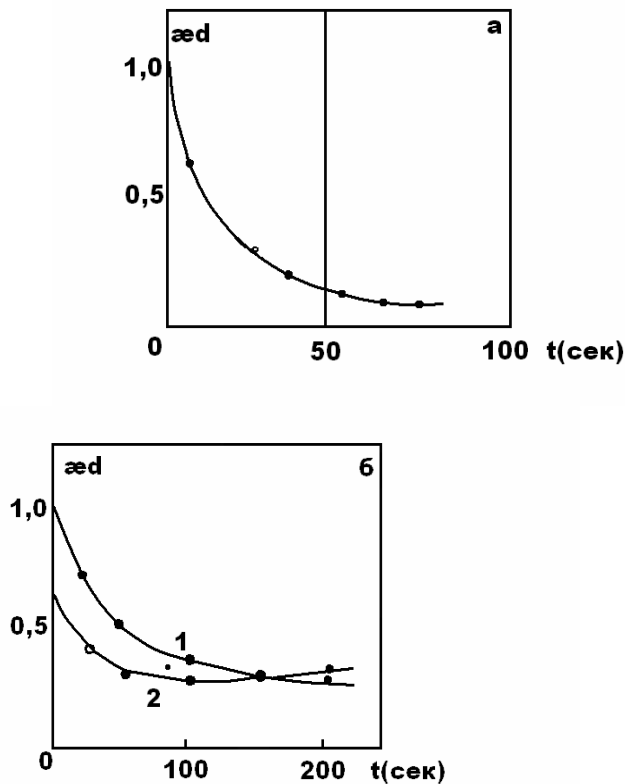


Рис. 2 Кривая (а) фотообесцвечивание при облучении светом в области F полосы поглощения, кривые (б) фотообесцвечивания F — центров (1) и V_2 — центров (2) под действием лазерного излучения (632,8 нм.).

Предполагая для вышеуказанного расчета характеристик релаксационных процессов ($N=10^{16} \text{ см}^{-2} \text{ сек}^{-1}$, $p\tau = 10^{-2}$, $p_{0v} = 3,2 \cdot 10^{12} \text{ сек}^{-1}$, $p_{0v}^* = 4,2 \cdot 10^{12} \text{ сек}^{-1}$), результаты экспериментального исследования фототермического разрушения F -центров окраски КС1 при постоянной температуре представлены на рис.3. Кривая 1 характеризует изменение со временем концентрации центров, кривая 2 — изменение скорости разрушения этих центров со временем, кривая 3 — изменение интенсивности фотостимулированной люминесценции со временем при фототермическом разрушении центров. Скорость уменьшения F - центров (кривая 2) и уменьшения интенсивности фотостимулированной люминесценции так же происходит по экспоненциальному закону.

Сравнение полученного экспериментального значения параметра процесса, $n_v / \gamma_0^* N = 3,8 \cdot 10^{-4}$ полученным независимым путем при обработке кривых фотообесцвечивания с данными теоретического расчета, приведенной выше со значением $n_v / \gamma_0^* N = 3,0 \cdot 10^{-4}$, удовлетворительно согласуется между собой.

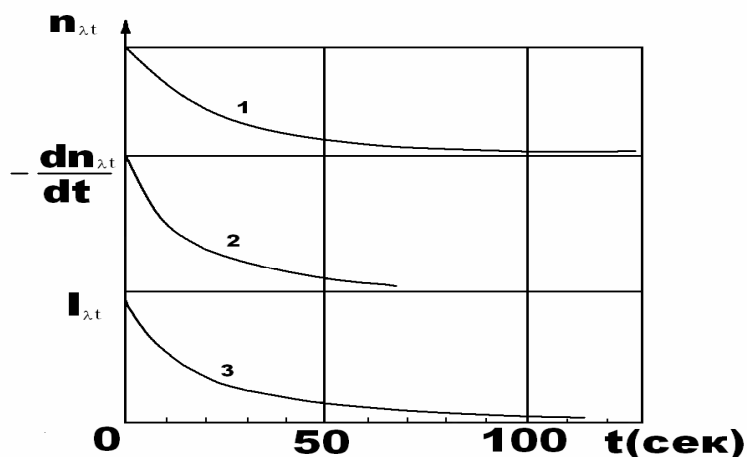


Рис.3. Кривые фототермической релаксации F- центров окраски KCl

кристалла: $1 - n_{F\lambda} = f(t); \quad 2 - \frac{dn_{F\lambda}}{dt} = f(t) \quad 3 - I_{\lambda} = f(t).$

Полученные результаты свидетельствуют о плодотворности применения представлений о протекании ионных процессов для объяснения явлений релаксации в щелочно-галлоидных кристаллофосфорах.

Литература:

1. Арапов Б., Осмонбаев М.Ч., Камалов С. М., Люминесценция и ионно-дырочные процессы в кристаллах NaCl. ФТТ – 1991, Т 33. №11 С. 3158 – 3162.
2. Арапов Б. Ионные ионно-дырочные и ионно-электронные процессы распада и взаимопревращения радиационных дефектов в щелочно-галлоидных кристаллах. Автореф. на соиск. уч. ст. док. н., Бишкек – 1993.
3. Алтымышов А. Ионно-диффузионный механизм и кинетика термического распада радиационных центров окраски в ЩГК. Автореф. дисс. на соис. уч. ст. кан. н. , Ош – 2004.
4. Садырова М. Исследование групп преобразований и состав радиационно-наведенных электронных дефектов в ЩГК. Автореф. дисс. на соис. уч. ст. кан. н., Ош – 2009
5. Арапов Т. Б. Механизмы и кинетика тушения свечения радиационно наведенных центров окраски в ЩГК . Автореф. дисс. на соис. уч. ст. кан. н. , Ош – 2004.
6. Арапов Т.Б., Арапов Б. Механизм и кинетика тушения свечения центров в ионных кристаллах. Монография, Бишкек – 2007. 158 С .
7. Садырова М., Ташкулов К. Фото и термостимулированная люминесценция наведено-активаторных центров в NaCl – Ag. //Поиск, Сер.естест.и техн.наук, Алма-Ата. 2008г. №1, С.7-11.
8. Ташкулов К., Камалов К., Арапов Б. Фототермическое обесцвечивание центров окраски в кристаллах KCl и NaCl при лазерному обучении. /Радиационная физика. Труды международной научной конференции. Бишкек – Каракол 2003г. С 72-73.
9. Камалов К., Ташкулов К., Арапов Б. Влияние примесей на лазерное обесцвечивание центров окраски в ЩГК. /Радиационная физика. Труды международной научной конференции. Бишкек – Каракол 2003г. С 73-74