

ВЛИЯНИЕ ПРЕДВАРИТЕЛЬНОЙ ДЕФОРМАЦИИ И ОБЛУЧЕНИЯ НА ОПТИЧЕСКОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ В КРИСТАЛЛАХ LiF

Г.А. Петченко, С.С. Овчинников

*Харьковский национальный университет городского хозяйства им. А.Н. Бекетова,
Харьков, Украина*

E-mail: gdaeron@ukr.net

Изучено оптическое поглощение излучения на облученных рентгеновскими лучами кристаллах LiF с различными величинами предварительной деформации при комнатной температуре. Определены полуширина полосы поглощения и локализация ее максимума, на основании чего сделан вывод о присутствии F-центров в облученных кристаллах. По формуле Смакулы определена объемная плотность указанных радиационных дефектов.

ВВЕДЕНИЕ

В недавних работах [1-3] изучался процесс взаимодействия подвижных дислокаций с радиационными дефектами в облученных кристаллах LiF. Остаточная деформация образцов составляла 0,4 и 0,65%, а суммарная доза облучения, набираемая поэтапно, была равной приблизительно 10^3 Р. Для каждой промежуточной дозы интервала 0...1000 Р определялась частотная зависимость дислокационного декремента затухания ультразвука $\Delta_d(f)$, на основе которой по теории Гранато-Люкке [4] были определены зависимости от времени облучения средней эффективной длины дислокационного сегмента L и коэффициента динамического торможения В. Было установлено, что при наращивании дозы облучения в кристаллах LiF наблюдается укорочение L, что объяснялось пиннингом дислокаций дефектами радиационного происхождения и соответствовало как качественно, так и количественно теоретическим соотношениям [5]. Полученная независимость коэффициента динамического торможения дислокаций В от дозы облучения дополнительно подтвердила справедливость вывода авторов [6] о том, что величина В является фундаментальной характеристикой кристалла, определяющейся только взаимодействием дислокаций с фоновым газом кристалла и не зависящей от дислокационной структуры последнего.

В работах [1-3] не проводилась идентификация возникших под действием облучения радиационных дефектов. УЗ-прозвучивание кристалла принципиально ориентировано на обнаружение изменений в дефектах, собственная частота колебаний которых близка к частотам сканирования кристалла. В частности, применяемый акустический метод в области частот 37,5...232,5 МГц наиболее подходит для отслеживания тонких изменений, связанных с удлинением или укорочением дислокационных петель, колеблющихся в поле УЗ-волны. Указанным методом весьма удобно фиксировать структурные изменения в кристаллах в процессе нагрева (охлаждения), облучения, деформации (открепление подвижных дислокаций от точечных центров закрепления или их закрепление из-за взаимодействия с «лесными» дислокациями). В силу закона для затухания ($\alpha \sim L^4$) акустический метод считается весьма чувствительным индикатором структурных изменений в кри-

сталле [4]. Однако применяемый измерительный метод, реагируя на появление или исчезновение стопоров на дислокациях, не различает тип этих стопоров. От этого теряется полнота представления процесса закрепления дислокаций дефектами радиационного происхождения. Разумеется, что ценность результатов, полученных в работах [1-3], возрастет, если их дополнить сведениями о природе радиационных дефектов, играющих роль слабых центров закрепления в струнной дислокационной модели Гранато-Люкке [4].

Известно [7], что при воздействии на кристалл рентгеновского излучения большая часть его энергии расходуется на создание электронных возбуждений. При наличии в окрестности этих возбужденных анионных вакансий вследствие локализации на них электронов появляются электронные центры окраски. В простейшем случае это F-центры [8], затем, по мере накопления кристаллом дозы радиации, возможны объединения F-центров в более сложные агрегаты. Например, при наличии двух смежных F-центров появляются $F_2(M)$ -центры, трех – $F_3(R)$ -центры и т. д. Для изучения указанных и других типов радиационных дефектов широко применяется абсорбционный метод [7, 9, 10]. Он основан на измерении зависимостей от длины волны спектрального коэффициента пропускания $\tau_\lambda(\lambda)$ в УФ- и видимой областях спектра. При наличии в кристалле центров окраски на указанных зависимостях прослеживаются области, где пропускание минимально, так называемые полосы поглощения. Из данных о полосе поглощения (в частности, о ее локализации на оси длин волн) получают информацию как о типе дефектов, так и их количестве. Следует также подчеркнуть, что наиболее удобными из ЩГК для оптических исследований являются кристаллы LiF, у которых центры окраски имеют высокую стойкость к фотовозбуждению и сохраняются при комнатной температуре длительное время [7].

Целью настоящей работы является дополнение полученных нами ранее результатов акустических измерений [1-3] качественными и количественными сведениями о радиационных дефектах, играющих роль центров закрепления дислокаций.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКА

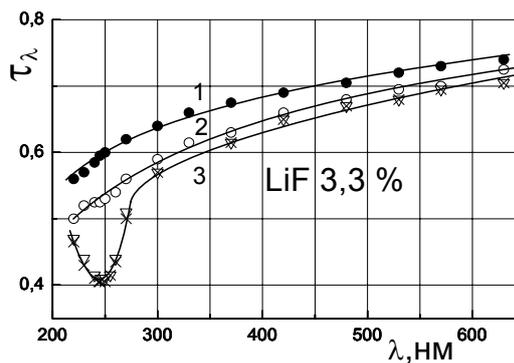
ИССЛЕДОВАНИЯ

Для опытов использовались образцы LiF с остаточными деформациями $\varepsilon = 0,4$ и $0,65\%$, на которых были получены результаты [1-3], и, кроме того, были дополнительно приготовлены кристаллы LiF с $\varepsilon = 3,3\%$, размером приблизительно $18 \times 19 \times 27$ мм, выколотые по плоскостям спайности $\{100\}$ из того же большого кристалла, что и ранее используемые образцы. Чистота кристаллов составляла 10^{-4} вес.%. После выхода на предварительные размеры образцы шлифовались и полировались до достижения уровня плоскопараллельности ± 1 мкм/см, что контролировалось оптиметром типа ИКВ. Для снятия внутренних напряжений, возникших вследствие механической обработки, образцы отжигали ~ 12 ч в муфельной печи МП-2УМ при температуре $\sim 0,8 T_{пл}$ с дальнейшим медленным охлаждением до комнатной температуры. Деформирование кристаллов выполняли сжатием на разрывной машине типа «Инстрон» при значении скорости $\sim 10^{-5} \text{ с}^{-1}$. Для точной регистрации предела текучести кристаллов ход нагружения контролировали по ленте самописца КСП-4. Геометрические размеры образцов до и после нагружения контролировали с помощью компаратора ИЗА-2. Облучение кристаллов рентгеновскими лучами выполнялось на той же установке (УРС-55) и в том же режиме (40 кВ, 10 мА), что и в предыдущих работах. Суммарное время облучения кристаллов составило 160 мин, что при мощности дозы облучения в месте расположения исследуемых кристаллов $0,11 \text{ Р/с}$ соответствовало дозе облучения 1057 Р. Оптический эксперимент выполнялся на спектрофотометре СФ-26 в интервале длин волн 220...650 нм. В спектральном диапазоне 220...350 нм в качестве осветителя использовали дейтериевую лампу ДДС-30, а в интервале 350...650 нм – лампу накаливания ОП-33-0.3. В качестве приемника излучения во всем интервале измерений применяли сурьмяно-цезиевый фотоэлемент Ф-17.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 показаны результаты измерения спектрального коэффициента пропускания τ_λ в диапазоне длин волн 220...650 нм на кристаллах LiF с остаточной деформацией 3,3% в интервале доз облучения 0...1057 Р. Как видно из рисунка, для необлученных кристаллов величина τ_λ монотонно возрастает с увеличением длины волны (кривая 1). В случае облучения кристалла дозой 400 Р ход кривой $\tau_\lambda(\lambda)$ практически не меняется, однако пропускающая способность образцов заметно снижается (кривая 2). При увеличении дозы облучения до 800 Р (кривая 3 – экспериментальные точки обозначены ∇) наблюдается явно выраженная полоса поглощения, отвечающая минимуму на кривой $\tau_\lambda(\lambda)$, лежащему на длине волны приблизительно 248 нм. На других участках длин волн характер зависимости $\tau_\lambda(\lambda)$ не меняется. Указанный характер поведения кривой $\tau_\lambda(\lambda)$ сохраняется и в том случае, если дозу рентгеновского излучения увеличить до 1057 Р (см. кривая 3 – экспериментальные точки обозначены \times).

Рис. 1. Зависимости спектрального коэффициента



пропускания от длины волны в кристаллах LiF при разных дозах облучения:

кривая 1 – необлученный кристалл;

2 – облучение дозой 400 Р; 3 – облучение дозами 800 Р (точки ∇) и 1057 Р (точки \times)

Отмеченные особенности, наблюдаемые в эксперименте, позволяют сделать некоторые выводы. Наличие полос поглощения свидетельствует о присутствии в кристаллах центров окраски. Так как для ЦГК границы полос достаточно хорошо изучены, можно сразу отметить, что в измеряемых образцах явно присутствуют простейшие по своей конфигурации электронные центры окраски – F-центры, минимум на кривой $\tau_\lambda(\lambda)$ для которых (или максимум показателя ослабления) находится на длине волны $\lambda_{max} \approx 248$ нм [7]. Также можно отметить, что никаких свидетельств в пользу присутствия в образцах F_2 - и F_3 -центров приведенные кривые $\tau_\lambda(\lambda)$ не дают, так как в окрестностях $\lambda_{max} \approx 443$ нм для F_2 -центров и $\lambda_{max} \approx 307$ и 377 нм для разных типов F_3 -центров [10] никаких немонотонностей не обнаружено. Это хорошо соответствует результатам авторов работы [8], которые для LiF использовали малые дозы рентгеновского облучения, получаемые на аналогичной рентгеновской установке в режиме, близком к нашему, и, как и в настоящей работе, наблюдали исключительно F-центры.

Результаты измерения зависимостей $\tau_\lambda(\lambda)$ для кристаллов LiF с деформациями 0,4 и 0,65% приведены на рис. 2.

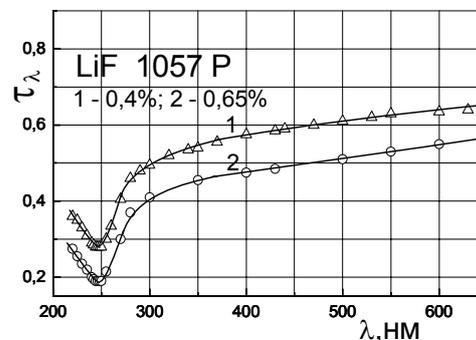


Рис. 2. Зависимости спектрального коэффициента пропускания от длины волны в облученных до дозы 1057 Р кристаллах LiF с величинами предварительной деформации 0,4 и 0,65%

Видно, что для кристаллов с указанными значениями ε в окрестности $\lambda \approx 248$ нм четко прослежи-

ваются полосы поглощения. Можно отметить, что при переходе от малой ε к большей пропускающая способность образцов снижается, причем темпы этого снижения визуально примерно одинаковы во всем рассмотренном спектральном диапазоне. Также видно, что в интервале 300...650 Р спектральный коэффициент пропускания монотонно нарастает с увеличением длины волны.

Следовательно, на основании результатов комплексных акустооптических измерений на одних и тех же образцах, полученных в настоящей работе и [2, 3], можно говорить о том, что радиационные дефекты, играющие роль стопоров на дислокациях в кристаллах LiF с $\varepsilon = 0,4$ и $0,65\%$, по своей физической природе представляют собой F-центры.

Для определения количества возникших под действием радиации центров окраски используют дисперсионное соотношение Смакулы [11], которое по параметрам полосы поглощения позволяет определить концентрацию F-центров. Указанное соотношение широко используется в оптическом радиационном материаловедении, и с его помощью была обработана масса экспериментальных результатов. Теоретическая проверка соотношения Смакулы была предпринята автором работы [12], который, исследуя данную задачу на уровне квантовой электродинамики с учетом рассмотрения разных форм полосы поглощения – лоренцевой и гауссовой, пришел к результату, аналогичному [11].

Дисперсионное соотношение Смакулы, позволяющее определить концентрацию центров окраски N_F в кристалле, имеет вид [11]:

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

где $A = 1,31 \cdot 10^{17}$ – числовой коэффициент, справедливый для лоренцевой формы полосы поглощения; f – сила осциллятора (равная 0,8 для лоренцевой формы полосы); $n = 1,42$ для LiF [13] – 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 [14].

Для определения параметров K_m и ΔE из данных рис. 1 необходимо воспользоваться соотношением [15], справедливым для случая прохождения света через плоскопараллельный слой вещества (рис. 3) и учитывающим потери на отражение от двух граней образца ($\Phi_{p1} + \Phi_{p2}$):

$$\tau = (1 - \rho)^2 \cdot e^{-k\ell}, \quad (2)$$

где τ – коэффициент пропускания кристалла; $\rho = \left(\frac{n-1}{n+1}\right)^2$ – коэффициент отражения; K – пока-

затель ослабления; ℓ – оптический путь света в веществе. Следует отметить, что соотношение (2) не учитывает многократных переотражений в образцах. Однако, принимая во внимание, что для кристаллов LiF отражение не превышает 3%, учета дополнительных вкладов в общее пропускание образ-

ца от прошедших на фотоприемник переотраженных сигналов не требуется, и наши оценки подтвердили, что строгий учет всего ряда прошедших сигналов изменяет величину τ на доли процента, что не выводит уточненный результат по пропусканию за рамки погрешности измерений на спектрофотометре СФ-26.

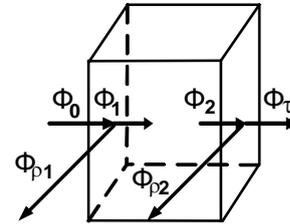


Рис. 3. Прохождение света через образец

С учетом $(1 - \rho)^2 = 0,94$ показатель ослабления для кристаллов может быть рассчитан по формуле:

$$K = [2,3 \cdot \log(0,94/\tau)]/\ell, \quad (3)$$

где $\log(0,94/\tau)$ – оптическая плотность образца. Таким образом, при наличии зависимости $\tau_\lambda(\lambda)$ и известном значении ℓ можно определить зависимость $K_\lambda(\lambda)$.

Результаты расчета зависимости спектрального показателя ослабления от длины волны для кристаллов LiF с величиной остаточной деформации 3,3% и дозами облучения 800 и 1057 Р приведены на рис. 4.

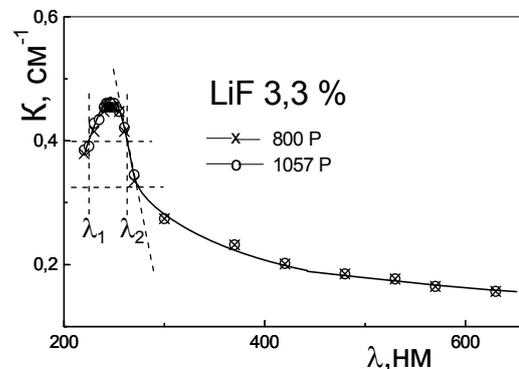


Рис. 4. Зависимости показателя ослабления от длины волны в кристаллах LiF с $\varepsilon = 3,3\%$ для доз облучения 800 и 1057 Р. Пунктирные линии демонстрируют способ определения границ полуширины полосы поглощения

На данном рисунке хорошо прослеживается полоса поглощения, вызванная наличием F-центров с четко выраженным максимумом на длине волны $\lambda \approx 248$ нм. На этом же рисунке пунктирными линиями показано, как определялись границы λ_1 и λ_2 полуширины полосы. Сама полуширина полосы ΔE , необходимая для расчета по соотношению (1) величины N_F , была определена по известной формуле $\Delta E = 1241 \cdot \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2}\right)$ [15] и составила при-

близительно 0,8 эВ, что хорошо согласуется с литературными данными для LiF при 300 К [7].

Расчет концентрации центров окраски N_F для кристаллов LiF с $\varepsilon = 3,3\%$ и дозами облучения 800 и 1057 P дал значения $5,21 \cdot 10^{15}$ и $5,28 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ соответственно.

Аналогичным образом были построены и обработаны зависимости $K_\lambda(\lambda)$ для кристаллов LiF с $\varepsilon = 0,4$ и $0,65\%$, облученных до дозы 1057 P (рис. 5).

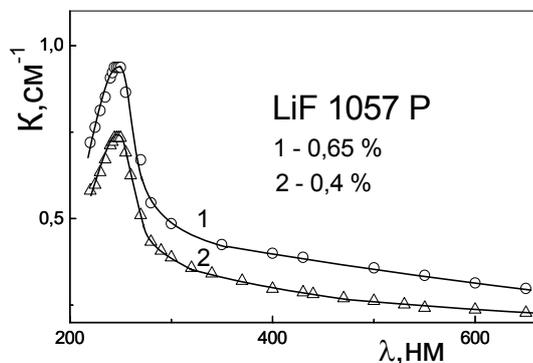


Рис. 5. Зависимости показателя ослабления от длины волны в облученных до дозы 1057 P кристаллах LiF с величинами предварительной деформации 0,4 и 0,65%

Проводя расчет N_F , получаем значения $8,49 \cdot 10^{15}$ и $10,85 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ для образцов LiF с $\varepsilon = 0,4$ и $0,65\%$ соответственно. Можно сделать вывод, что отличия в дислокационной структуре образцов при одинаковой дозе их облучения в данных экспериментальных условиях не влияют на тип наблюдаемых центров окраски, но количественные результаты при этом изменяются.

Результаты данной работы позволяют дополнить физическую картину процессов, изученных в [1-3]. В интервале доз облучения 0...1057 P в кристаллах LiF возникают и развиваются исключительно F-центры. Их концентрация немонотонно зависит от дислокационной структуры образцов. Установление функциональной связи $N_F(\varepsilon)$ представляется весьма интересной и полезной задачей, и будет рассматриваться нами в дальнейшем. В отличие от акустических измерений, где увеличение дозы облучения уже от 0 до 100 P не только надежно регистрируется, но и позволяет фиксировать изменения динамических и структурных характеристик кристаллов, в оптических измерениях ситуация несколько иная. Оптический эксперимент тоже достаточно чувствительный, и снижение кривых $\tau_\lambda(\lambda)$ по высоте с ростом дозы облучения (см. рис. 1, кривые 1, 2) наглядно демонстрирует этот факт. Однако для выполнения расчетов на основе оптических измерений, когда полоса поглощения для F-центров не сформирована, применить экспериментальные наработки не представляется возможным. Тем не менее ценность оптического абсорбционного метода состоит в надежном индировании радиационных дефектов, что акустика сделать не позволяет. Комплексное применение обоих методов на одних и тех же облученных образцах представляется весьма мощным аналитическим инструментом.

ВЫВОДЫ

1. Изучено влияние рентгеновского облучения на зависимость спектрального коэффициента пропускания $\tau_\lambda(\lambda)$ от длины волны в интервале 220...650 нм в кристаллах LiF с остаточной деформацией 3,3% в интервале доз облучения 0...1057 P. Обнаружено, что при дозе рентгеновского облучения в 400 P пропускающая способность образцов снижается, а в интервале доз 800...1057 P – четко наблюдается полоса поглощения с максимумом на длине волны 248 нм, сформировавшаяся в связи с появлением F-центров в кристаллах.

2. На основании изученных спектров $\tau_\lambda(\lambda)$ в интервале 220...650 нм для кристаллов LiF с величинами остаточной деформации 0,4 и 0,65%, облученных рентгеновскими лучами до дозы 1057 P, сделан вывод о том, что радиационные дефекты, изучаемые ранее в качестве дислокационных центров закрепления, по своей физической природе представляют собой F-центры.

3. На основе дисперсионного соотношения Смакулы выполнен расчет объемной плотности F-центров N_F в кристаллах LiF. Для образцов LiF с $\varepsilon = 3,3\%$ значения N_F составили $5,21 \cdot 10^{15}$ и $5,28 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ для доз 800 и 1057 P соответственно, а для кристаллов LiF с деформациями 0,4 и 0,65% при дозах рентгеновского облучения 1057 P значения N_F оказались равными соответственно $8,49 \cdot 10^{15}$ и $10,85 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

- Г.А. Петченко. Исследование дислокационных потерь ультразвука в облученных монокристаллах LiF в интервале доз облучения 0...400 P // *ВАНТ. Серия ФПП и РМ*. 2012, №2(78), с. 36-39.
- Г.А. Петченко. Изучение динамических и структурных характеристик в облученных кристаллах LiF // *ВАНТ. Серия ФПП и РМ*. 2013, №2(84), с. 55-59.
- G.A. Petchenko. Dynamic damping of dislocations in the irradiated LiF crystals // *Functional Materials*. 2012, №4(19), p. 473-477.
- А. Гранато, К. Люкке. Струнная модель дислокации и дислокационное поглощение ультразвука // *Физическая акустика*. М.: «Мир», 1969, т. 4, ч. А, с. 261-321.
- Р.М. Штерн, А.В. Гранато. Задемпфированный дислокационный резонанс в меди // *Внутреннее трение и дефекты в металлах*. М.: «Металлургия», 1965, с. 149-191.
- Н.П. Кобелев, Я.М. Сойфер, В.И. Альшиц. О соотношении между вязкой и релаксационной компонентами дислокационного затухания высокочастотного ультразвука в меди // *ФТТ*. 1979, №4(21), с. 1172-1179.
- В.М. Лисицын. *Радиационная физика твердого тела*. Томск: Изд-во Томского политехнического университета, 2008, 172 с.
- М.В. Галусташвили, М.Г. Абрамишвили, Д.Г. Дриаев, В.Г. Квачадзе. Влияние магнитного поля на радиационное упрочнение кристаллов LiF // *ФТТ*. 2011, №53(7), с. 1340-1342.

9. В.И. Арбузов. *Основы радиационного оптического материаловедения*. Санкт-Петербург: Изд-во Санкт-Петербургского государственного университета информационных технологий, механики и оптики, 2008, 284 с.

10. И.А. Парфианович, Э.Э. Пензина. *Электронные центры окраски в ионных кристаллах*. Иркутск: «Восточно-Сибирское книжное издательство», 1977, 208 с.

11. A. Smakula. *Über Erregung und Entfärbung lichtelektrisch leitender Alkalihalogenide // Z. Physik*. 1930, №9-10(59), p. 603-614.

12. D.L. Dexter. *Absorption of light by atoms in solids // Phys. Rev.* 1956, №101, p. 48-55.

13. А.А. Блистанов, В.С. Бондаренко, Н.В. Переломова, Ф.Н. Стрижевская, В.В. Чкалова, М.П. Шаскольска. *Акустические кристаллы*. М.: «Наука», 1982, 632 с.

14. 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. *Спектрально-люминесцентные свойства эпитаксиальных пленок гадолиний-галлиевого граната, легированных тербием // ФТТ*. 2007, №3(49), с. 460-464.

15. В.В. Мешко. *Основы светотехники*. М.: «Энергия», 1979, 368 с.

Статья поступила в редакцию 10.10.2013 г.

ВПЛИВ ПОПЕРЕДНЬОЇ ДЕФОРМАЦІЇ ТА ОПРОМІНЕННЯ НА ОПТИЧНЕ ПОГЛИНАННЯ В КРИСТАЛАХ LiF

Г.О. Петченко, С.С. Овчинников

Вивчено оптичне поглинання випромінювання на опроміненіх рентгенівськими променями кристалах LiF з різними величинами попередньої деформації при кімнатній температурі. Визначено напівширину смуги поглинання та локалізацію її максимуму, на підставі чого зроблено висновок щодо наявності F-центрів в опроміненіх кристалах. За формулою Смакули визначено об'ємну густину вказаних радіаційних дефектів.

THE EFFECT OF PRELIMINARY DEFORMATION AND IRRADIATION ON THE OPTICAL ABSORPTION IN LiF CRYSTALS

G.A. Petchenko, S.S. Ovchinnikov

The optical absorption in the irradiated by x-ray LiF crystals with the various values of the preliminary deformation at a room temperature is investigated. The wavelength localization and the value of the absorption band width is defined on the base of F-centres presence in irradiated crystals is concluded. In the frame of Smakula's formula the volume density of the above-mentioned irradiation defects is defined.