

Взаимодействие мощного рентгеновского излучения с кристаллами сапфира и материалами на основе кварца

© В.И. Барышников, Т.А. Колесникова, С.В. Дорохов

Научно-исследовательский институт прикладной физики при Иркутском государственном университете, 664003 Иркутск, Россия

(Поступила в Редакцию 24 июля 1996 г.)

Исследовано взаимодействие мощного (10^{11} W/cm²) X-излучения мягкого рентгеновского диапазона (1–3 keV) с оксидными неорганическими соединениями (Al₂O₃ и SiO₂). Установлено, что, когда длина волны X-возбуждения соизмерима с постоянной решетки кристалла, помимо генерации высокой концентрации горячих электронов и дырок происходит уширение 2p O²⁻-подзон верхней валентной зоны в результате локального действия сильного поля X-волны на регулярные кислородные узлы. Как следствие в зависимости от интенсивности возбуждающих X-импульсов наблюдается уширение спектров малоинерционной (< 1 ns) остов-валентной рентгенолюминесценции.

Широкополосное излучение (ШИ), возбуждаемое мощными пико- и наносекундными электронными пучками, обнаружено и исследовано в кислородосодержащих соединениях с ионной (Al₂O₃, Y₃Al₅O₁₂, MgO, CaCO₃ и др.), ионно-ковалентной (SiO₂, TiO₂) и ковалентно-электростатической (водородной) связью (H₂O) [1–3]. Уникальные особенности ШИ, такие как широкий спектр (190–1200 nm) малоинерционность (< 10 ps) и температурная стабильность (78–1500 K), обусловлены значительной концентрацией (10^{20} см⁻³) наведенных горячих дырок и высокой вероятностью излучательных электронных переходов (рис. 1) между уширенными вплоть до перекрытия подзонами верхней валентной зоны, образованной главным образом 2p-состоянием ионов кислорода O²⁻ [1–3]. Факт деформации подзон верхней валентной зоны в ходе сверхмощного удара пикосекундным электронным пучком зафиксирован в кристаллах Al₂O₃YAlO₃, SiO₂ и TiO₂ также по короткоживущему (< 10 ps) смещению границы фундаментального поглощения в длинноволновую область оптического спектра [4]. Степень уширения (деформации) 2p O²⁻-подзон валентной зоны определяется напряженностью E короткоживущих локальных полей возмущения в окрестности ионов кислорода, смещенных ударным путем [1]. В свою очередь E зависит от величины ударного смещения O²⁻ и, следовательно, от энергии электронов W_e в пучке [5]

$$E \simeq \frac{4\pi\epsilon\epsilon_0}{e^3} W_e^2 \left(\frac{m_e}{M_{O^{2-}}} \right)^2, \quad W_e < W_0, \quad (1)$$

где m_e и M_{O²⁻} — массы электрона и иона O²⁻, e — заряд электрона. В соответствии с экспериментальными результатами [5,6] пороговая энергия (W₀ = W_{0e}m_e/M_{O²⁻}) создания стабильных F²⁺O²⁻-пар составляет 70 eV для Al₂O₃ 60 eV для SiO₂ и 50 eV для H₂O. На основании равенства W₀ и энергии внутрикристаллического поля возмущения W из (1) найдены предельные значения напряженности локальных внутрикристаллических полей, созданных ударным смещением O²⁻: 4 · 10⁹, 3 · 10⁹ и

2 · 10⁹ V/cm. Для Al₂O₃, SiO₂ и H₂O соответственно. Эти параметры соответствуют сверхсильным полям возмущения и реальны в случае лобового взаимодействия электронов с ионами O²⁻. Анализ результатов, полученных при возбуждении Al₂O₃ пучками с энергией электронов, близкой к пороговому значению (400 keV), показывает, что вероятность лобового столкновения составляет 2–3%. Средняя величина напряженности сильных локальных возмущающих полей соответствует E = 10⁸ V/cm, а при энергии электронов в пучке 150–250 keV в Al₂O₃ — E = (0.7 – 2.5) · 10⁷ V/cm [1,5]. Такой уровень напряженности достигается в полях электромагнитного излучения тераваттной мощности.

Закономерности нелинейного взаимодействия сверхмощного (10¹²–10¹³ W/cm²) лазерного излучения с Al₂O₃ и SiO₂ исследованы в [7,8]. Авторы этих работ не обнаружили явлений, связанных с деформацией зонной структуры вещества: короткоживущих аномалий ширины запрещенной зоны в ШИ. Действительно, сверхмощные KrF-лазерные фемтосекундные (248 nm, ~ 150 fs) импульсы с высокой напряженностью E электрического поля в световом канале (10⁷ V/cm) создают достаточно высокую концентрацию горячих носителей заряда 10²¹ см⁻³, но при этом поле оптической волны неэквивалентно локальным полям возмущения, наведенным ударным смещением ионов O²⁻ в ходе электронной бомбардировки. Причина заключается в том, что длина волны лазерного излучения (2480 Å) много больше постоянной кристаллической решетки (5–15 Å). Поэтому при лазерном воздействии локальное возмущение регулярных O²⁻ ионов практически невозможно, так как E оптической волны изменяется незначительно в пределах постоянной кристаллической решетки [9].

Необходимым требованиям удовлетворяет излучение рентгеновского диапазона (1–3 keV, X-излучение). Под действием интенсивной X-вспышки (10¹¹–10¹² W/cm²) в кристаллах Al₂O₃ и SiO₂ достигается предельно высокая плотность наведенных горячих дырок (10²² см⁻³) и реально локальное вза-

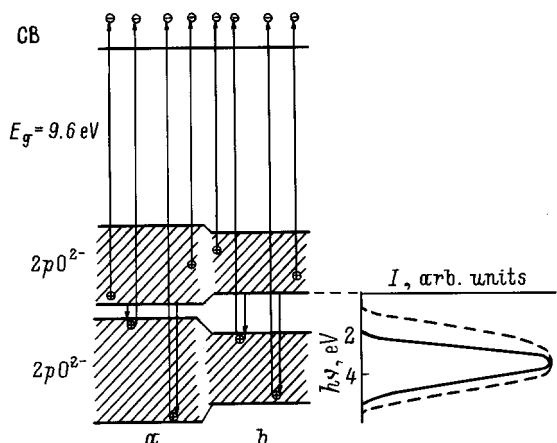


Рис. 1. Схема возбуждения ШИ в Al_2O_3 . W_e (keV): $a - 60, b - 10$.

имодействие сильного X -поля на ионы вещества, так как длина волны рентгеновского возбуждения (5–15 Å) соизмерима с размером постоянной решетки оксидных соединений. Это режим резонансного взаимодействия электромагнитного излучения с решеткой кристалла.

Таким образом, представляет интерес изучение механизмов взаимодействия сверхмощного электромагнитного мягкого рентгеновского диапазона с веществом и в первую очередь процессов, ответственных за кратковременные изменения фундаментальных свойств широко распространенных материалов сапфира (Al_2O_3) и кварца (SiO_2).

1. Объекты и методы исследований

Для решения поставленной задачи разработан малогабаритный пико- и наносекундный (10–1000 ps) генератор сверхмощного (до 1000 TW/cm^2) мягкого рентгеновского излучения (1–3 keV). Принцип его действия основан на использовании излучения горячей плазмы, которая формируется за счет высокого темпа ввода энергии ($>10^{13}\text{ A/s}$) в вакуумный сильноточный разряд [10,11]. При этом электронная температура плазмы достигает 10^7 K (1–3 keV).

Малоиндуктивный вакуумный криостат для исследования образцов коаксиально сочленен с генератором сверхмощного X -излучения. Через MgF_2 -окна криостата ШИ регистрировалось ВУФ-ИК-комплексом, в состав которого входили решеточный вакуумный ВУФ-УФ-монокроматор (ВМС-1), решеточный монокроматор МДР-4 на видимую ИК-область, скоростной ФЭУ (31ЭЛУ-ФМ) с малоинерционным фототрансформатором, широкополосный быстродействующий $p-i-n$ -фотодиод (S1722-01, Hamamatsu) и стробоскопический осциллограф. Погрешность измерения амплитуды и

кинетики рентгенолюминесценции (РЛ) (разрешение 1 ns) в диапазоне 150–1200 nm не превышает 5 %.

ШИ кислородосодержащих кристаллов, возбуждаемое электронным пучком, имеет относительный выход $\sim 10^{-3}$. Этот уровень не позволяет отнести ШИ к разряду интенсивных. Так, например, в номинально чистых кристаллах Al_2O_3 (с примесью Ti $10^{-2} - 10^{-4}\%$) полосы катодолюминесценции (КЛ) при 780 (Ti^{3+}) и 310 nm (Ti^{2+}) нивелируют ШИ [12]. Поэтому для исследований были отобраны кристаллы и материалы особой чистоты (менее $10^{-7}\%$ примесей). Основная часть экспериментов проведена на полированных пластинах ($5 \times 5 \times 0.2\text{ mm}$), выпиленных из монокристаллов Al_2O_3 и SiO_2 . Для более точного измерения спектральной зависимости ШИ от мощности рентгеновских импульсов использовался маломодовый кварцевый световод диаметром $10\text{ }\mu\text{m}$, который в виде кольца располагался вокруг излучения мощных рентгеновских импульсов. Данный световод выполнял также функцию передачи оптического сигнала на регистрирующую систему.

2. Результаты и их обсуждение

На рис. 2 представлены спектры излучения монокристаллов Al_2O_3 в зависимости от интенсивности возбуждающих X -импульсов. В ВУФ-УФ-области при 78 K наблюдаются две полосы РЛ: 7.5 eV ($\tau = 22\text{ ns}$) и 3.3 eV ($\tau < 1\text{ ns}$). РЛ с максимумом на 7.5 eV (22 ns, 78 K) соответствует свечению автолокализованных экситонов (рис. 2) [13]. Излучение в полосе 3.3 eV малоинерционно ($\tau < 1\text{ ns}$), его спектральные параметры, энергетический выход η и τ не зависят от температуры (78–1270 K) (рис. 2). В SiO_2 идентичными свойствами обладает полоса РЛ 3.4 eV (рис. 3), а сопутствующий при 78 K миллисекундный УФ-компонент РЛ (1 ms, 2.5 eV) обусловлен излучательной релаксацией собственных дефектов [14].

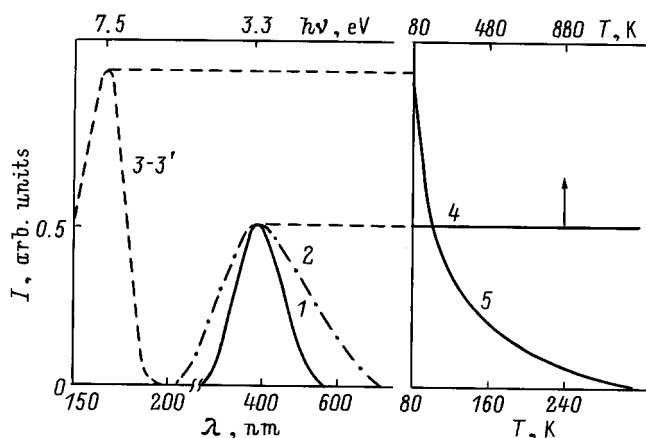


Рис. 2. Нормированные спектры РЛ Al_2O_3 (1–3, 3') и зависимость интенсивности РЛ от температуры (4, 5). Возбуждение X -импульсами (W/cm^2): 1, 3 — $3 \cdot 10^8$, 2, 3' — $2 \cdot 10^9$.

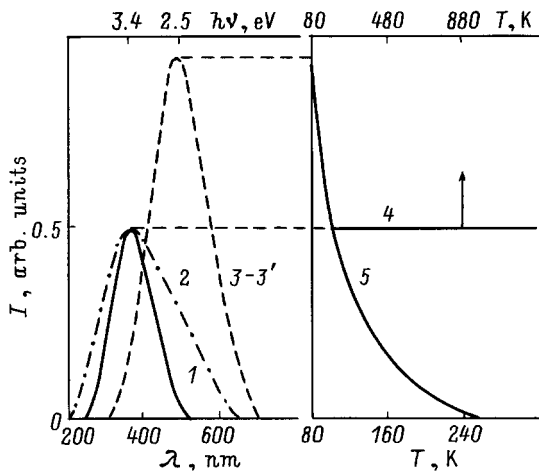


Рис. 3. Нормированные спектры РЛ SiO_2 (1-3, 3') и зависимость интенсивности РЛ от температуры (4, 5). Возбуждение X -импульсами (W/cm^2): 1, 3 — $3 \cdot 10^8$, 2, 3' — $2 \cdot 10^9$.

Малоинерционное УФ-излучение 3.3 eV в Al_2O_3 и 3.4 eV в SiO_2 ранее обнаружено при электронной (10 keV) бомбардировке и идентифицировано в [1-3] как остов-валентная (кросс) люминесценция [15]. В температурном интервале 78-1270 K спектральные и кинетические характеристики УФ РЛ и КЛ близки (рис. 2, 3) (см. также [1-3]). Это позволяет объяснить УФ РЛ ($\tau < 1$ ns) Al_2O_3 и SiO_2 электронными излучательными переходами в $2p$ O^{2-} -подзонах верхней валентной зоны (рис. 1). Дополнительным подтверждением данного механизма является соответствие спектров РЛ 3.3 и 3.4 eV энергетической структуре $2p$ O^{2-} -валентных подзон Al_2O_3 [16,17] и SiO_2 [14].

Обнаружено (рис. 2, 3), что ширина спектров РЛ Al_2O_3 (3.3 eV) и SiO_2 (3.4 eV) зависит от интенсивности импульсов X -возбуждения. Этот результат имеет значение принципиальной важности, поскольку подобные особенности отмечены в поведении спектров КЛ [1-3]. Зависящее от энергии электронов в пучке ($W_e > 50$ keV) аномальное уширение спектров КЛ в кристаллах оксидной группы обусловлено деформацией $2p\text{O}^{2-}$ -подзон верхней валентной зоны сильными локальными внутрикристаллическими полями возмущения, наведенными ударным смещением O^{2-} [1-3]. Следовательно, при сверхмощном (1-3 keV) рентгеновском облучении Al_2O_3 и SiO_2 возможна деформация $2p\text{O}^{2-}$ валентных подзон.

Если данное предположение верно, то должна наблюдаться единая закономерность уширения УФ-спектров КЛ и РЛ. Действительно (см. таблицу), в Al_2O_3 измерение величины уширения спектров РЛ в зависимости от напряженности E X -волны (рис. 2) и спектров КЛ в зависимости от W_e хорошо согласуются с результатами по деформации плотности $2p$ -состояний O^{2-} , полученными расчетным путем [1] на базе независимых данных [16,17]. В эксперименте

величина E определялась по формуле

$$E = \sqrt{\frac{2I}{n(\omega)\epsilon_0 c}}, \quad (2)$$

где c — скорость света, $n(\omega)$ — показатель преломления, I — плотность мощности (интенсивность) X -возбуждения, измеренная калориметрическим методом при синхронном контроле длительности X -импульсов. Результаты, приведенные в таблице, подтверждают правильность выводов в отношении природы уширения РЛ Al_2O_3 .

Особенности возбуждения малоинерционной РЛ в SiO_2 изучались следующим образом. На основании (1) и результатов измерений построена калибровочная кривая уширения спектра КЛ SiO_2 в зависимости от напряженности короткоживущих локальных полей возмущения, наведенных при ударном смещении O^{2-} (рис. 4). Затем для сравнения представлена зависимость уширения спектров РЛ от напряженности возбуждающей X -волны. Начальные точки этой зависимости определены по данным рис. 3 и по формуле (2), недостающие получены в дополнительных экспериментах. В качестве объекта использовался кварцевый световод. Кольца из SiO_2 -волокна (радиусом 2.5, 5 и 10 mm) поочередно устанавливались коаксиально в плоскости плазменного X -излучателя. Интенсивность I_0 X -импульсов на расстоянии $R_0 = 10$ mm от излучателя до световода равна $0.8 \cdot 10^{10}$ W/cm^2 . Для $R = 5$ и 2.5 mm, согласно выражению $I = I_0(R_0/R)^2$, имеем соответственно $3.2 \cdot 10^{10}$ и $1.3 \cdot 10^{11}$ W/cm^2 . Далее по формуле (2) и измеренным спектральным параметрам излучения SiO_2 -колец были определены недостающие точки зависимости уширения ($\Delta h\nu/\Delta h\nu_0$) полосы РЛ при 3.4 eV от напряженности X -поля (рис. 4). Кривые $\Delta h\nu/\Delta h\nu_0$ РЛ и КЛ SiO_2 достаточно хорошо согласуются. Это свидетельствует о том, что при воздействии сильного поля X -волны (1-3 keV) в SiO_2 имеет место деформация плотности $2p$ -состояний O^{2-} , ответственных за структуру верхней валентной зоны.

Следует отметить, что при облучении Al_2O_3 и SiO_2 пучками электронов с энергией 150-250 keV наблюдается более значительное уширение спектров малоинерционного свечения [1-3]. Это согласуется с тем, что напряженность локальных внутрикристаллических полей возмущения ($2.5 \cdot 10^7$ V/cm), наведенных

Ширина $2p$ O^{2-} -верхней валентной подзоны ϵ в Al_2O_3

Напряженность поля возмущения в окрестности $\text{O}_2(E, \text{MV}/\text{cm})$	ϵ, eV	
	расчет	эксперимент
$E \rightarrow 0$	3.1 [16]	3.1 [17]
0.1	3.4 [1]	3.2
0.3	3.8 [1]	3.7

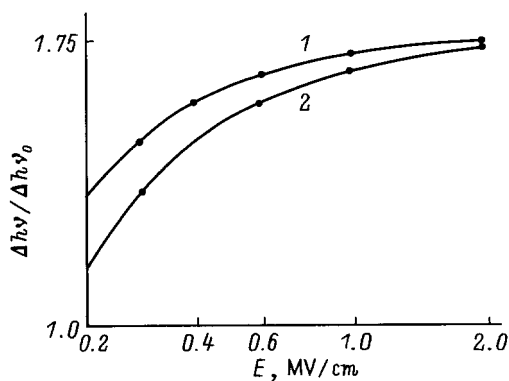


Рис. 4. Зависимость относительного уширения полосы КЛ (1) и РЛ (2) при 3.4 eV в SiO₂ от напряженности E локальных полей возмущения.

ударным смещением O²⁻, на порядок превышает достигнутый в экспериментах уровень напряженности X-импульсов.

Таким образом, при резонансном взаимодействии сверхмощного электромагнитного излучения с Al₂O₃ и SiO₂, когда длина возбуждающей волны соизмерима с постоянной решетки, помимо генерации высокой концентрации горячих носителей заряда (электронов и дырок) происходит уширение 2p O²⁻-подзон верхней валентной зоны как результат воздействия сильного поля волн на регулярные кислородные узлы кристаллической решетки. Вследствие этого наблюдается уширение спектров РЛ Al₂O₃ и SiO₂ в зависимости от интенсивности облучения импульсами мягкого рентгеновского диапазона.

На основании полученных результатов и данных [1–5] предполагается, что широкополосное свечение с $\tau < 1$ ns должно проявляться и в других кислородсодержащих матрицах, структура валентной зоны которых подобна Al₂O₃ и SiO₂, а постоянная решетки (5–15 Å) соизмерима с длиной волны возбуждающих X-импульсов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (96-02-16319-а).

Список литературы

- [1] В.И. Барышников, Л.И. Щепина, Т.А. Колесникова, Е.Ф. Мартынович. ФТТ **32**, 6, 1888 (1990).
- [2] V.I. Baryshnikov, T.A. Kolesnikova, L.I. Schepina. Digest Int. Conf. on Luminescence (ICL'93). USA, Storrs (1993). P. Tu4-109.
- [3] V.I. Baryshnikov, T.A. Kolesnikova, S.V. Dorohov. Digest 8 Int. Conf. on Radiation Effects in Insulators (REI-8). Italy, Catania (1995). P. P-2.5.
- [4] V.I. Baryshnikov, T.A. Kolesnikova. Digest 9 Int. Conf. on Radiation Phys. and Chem. Inorganic Materials. Russia, Tomsk (1996). С. 44.
- [5] V.I. Baryshnikov, T.A. Kolesnikova. Digest 3 Int. Seminar on New Materials. Russia, Irkutsk (1996). С. 51.
- [6] G.P. Pells, D.C. Phillips. J. Nucl. Mater. **80**, 207 (1979).
- [7] S. Watanabe, A. Endoh, M. Watanabe, N. Sarukura, K.J. Hata. Opt. Soc. Am. **B6**, 1870 (1989).
- [8] N. Sarukura, Y. Ishida. IEEE J. Quantum Electron **28**, 10, 2134 (1992).
- [9] Ю.А. Ильинский, Л.В. Келдыш. Взаимодействие электромагнитного излучения с веществом. МГУ (1989). 46 с.
- [10] В.И. Барышников, В.Л. Паперный. Письма в ЖТФ **21**, 10, 40 (1995).
- [11] V.I. Baryshnikov, V.L. Paperny. J. Appl. Phys. **D28**, 2519 (1995).
- [12] В.И. Барышников, Т.А. Колесникова, И. Квапил. ФТТ **36**, 9, 2788 (1994).
- [13] А.И. Кузнецов, И.Л. Куусманн, М.И. Мусатов. Письма в ЖТФ **3**, 2, 60 (1977).
- [14] А.Р. Силинь, А.Н. Трухин. Точечные дефекты и элементарные возбуждения в кристаллическом и стеклообразном SiO₂. "Зинате", Рига (1985). 166 с.
- [15] А.В. Головин, Н.Г. Захаров, А.П. Родный. Опт. и спектр. **65**, 1, 176 (1988).
- [16] J.A. Tossell. J. Phys. Chem. Sol. **36**, 11, 1273 (1975).
- [17] A. Balsarotti, A. Bianconi. Phys. Stat. Sol. (b) **76**, 3, 689 (1976).