

## ВЛИЯНИЕ РЕНТГЕНОВСКОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА МАГНИТОПЛАСТИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В КРИСТАЛЛАХ NaCl

*В.И.Альшиц, Е.В.Даринская, О.Л.Казакова*

*Институт кристаллографии РАН*

*117333 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 20 июля 1995 г.

Предлагается новый метод исследования влияния рентгеновского облучения на спектр точечных дефектов в кристаллах. В основе метода лежит изучение магнитопластического эффекта в облученных кристаллах. Основная информация заключена в измеренных зависимостях среднего пробега дислокаций от частоты вращения образца в магнитном поле. Проведенные исследования на кристаллах NaCl продемонстрировали уникальную чувствительность метода к малым дозам облучения (начиная с  $10^3$  рад). Оказалось, что измеряемые частотные зависимости дислокационных пробегов реагируют как на изменение состояния существующих примесных центров, так и на создание собственных радиационных дефектов. Проделана кинетика регенерации радиационных дефектов и метастабильных состояний примесных комплексов в результате освещения облученных образцов под вольфрамовой лампой в течение времени  $t_i = 15 - 60$  мин.

О существовании упрочняющего влияния рентгеновского облучения на пластичность кристаллов давно и хорошо известно [1,2]. Механизм такого влияния обычно связывают как с модифицированием уже имеющихся потенциальных барьеров для движения дислокаций, так и с созданием новых точечных дефектов, тормозящих дислокации. Как правило, речь идет о значительных дозах облучения (применительно к ЩГК, начиная с доз порядка  $10^5$  рад). При этом существующие методики обычно не позволяют разделить вклады различных стопоров в дислокационное торможение. Целью настоящей работы является демонстрация нового метода изучения радиационных дефектов в кристаллах, который, как будет показано, с одной стороны обладает высокой чувствительностью к малым дозам рентгеновского облучения (начиная с  $10^3$  рад), а с другой – позволяет отслеживать как изменение состояния примесных центров, так и создание новых радиационных дефектов.

В основе метода лежит исследование влияния рентгеновского облучения на магнитопластический эффект (МПЭ) в немагнитных кристаллах. Указанное явление, впервые обнаруженное на кристаллах NaCl [3], сводится к перемещению дислокаций под действием постоянного магнитного поля в отсутствие механической нагрузки. В последующих исследованиях, выполненных в нашей группе [4–12], тот же эффект был обнаружен на других ЩГК и на металлах Zn и Al. Независимый вклад в теоретическое и экспериментальное изучение МПЭ связан также с работами ряда других авторов [13–17].

Основные черты явления сводятся к следующему. Средний пробег дислокаций  $l$  в магнитном поле пропорционален времени магнитной "обработки" образца  $t_m$  и квадрату магнитной индукции ( $l \propto B^2 t_m$ ). Дислокации, параллельные магнитному полю, к последнему нечувствительны. Пробег  $l$  убывает с ростом концентрации  $C$  парамагнитных примесей ( $l \propto 1/\sqrt{C}$ ). Преобладание в кристалле диамагнитных примесей "убивает" эффект. Температурная зависимость дислокационных пробегов незначительна: при 4,2 К и 77 К величина

$l$  практически одинакова, а с ростом температуры до комнатной пробег увеличивается только на 15–20%. Плотность подвижных дислокаций нарастает с ростом магнитной индукции  $B$  и времени  $t_m$  и может достигать 100% от плотности свежевведенных дислокаций. При высоких значениях  $B^2 t_m$  пробег  $l$  также насыщается – на уровне, отвечающем среднему расстоянию между дислокациями "леса". При вращении образца в магнитном поле обнаружена критическая частота  $\nu_c$  ( $\nu_c \propto B^2$ ), выше которой пробег  $l$  резко падает до фоновых значений, с магнитным полем не связанных.

Принятая физическая модель явления основана на представлении об откреплении дислокаций от примесных парамагнитных центров в результате спин-зависимых электронных переходов в системе примесь – дислокация, стимулированных магнитным полем, роль которого сводится к снятию спиновых запретов на процессы, приводящие к разрушению локальных барьеров. Последующее движение дислокаций происходит в поле дальнодействующих внутренних напряжений от других дислокаций и, естественно, прекращается, когда пробеги достигают значений порядка среднего расстояния между дислокациями.

Явления, обусловленные спин- зависимыми электронными переходами в магнитном поле, широко известны в физике [18]. Это, например, влияние магнитного поля на скорость химических реакций [19], на фототок в полупроводниках [20], на вязкость аморфных сплавов [21]. Во всех случаях роль магнитного поля сводится к снятию спиновых запретов на электронные переходы с последующим изменением конфигурации системы, так что энергия взаимодействия в системе может сильно измениться и даже сменить знак при почти неизменной полной энергии. Необходимым условием существования подобных эффектов является малость времени спин-зависимого перехода по сравнению с временем спин-решеточной релаксации  $\tau_s$ , рассматриваемой системы [18]. Заметим, что величина  $\tau_s$  для системы взаимодействующих дефектов в ЩГК бывает достаточно большой. Так, по данным измерений [22], время спин-решеточной релаксации ассоциации  $F$ -центров в кристалле KCl при  $T = 50$  К в магнитном поле  $B = 0,34$  Тл составляет  $10^{-2}$  с. В наших экспериментах время открепления дислокации от парамагнитного центра, оцениваемое величиной  $\sim 10^{-2} \nu_c^{-1}$ , обычно на порядки меньше.

Критическая частота  $\nu_c$ , будучи фундаментальной характеристикой элементарного акта открепления дислокации от точечного дефекта, не зависит ни от температуры, ни от концентрации дефектов, ни от времени магнитной обработки. Она определяется только уровнем магнитного поля и типом парамагнитных центров [9]. Таким образом, параметр  $\nu_c$  представляется удобной характеристикой для анализа результатов воздействия на кристалл рентгеновского облучения. Это и лежит в основе предлагаемой методики.

Исследования проводились на кристаллах NaCl, выращенных в вакууме, с пределом текучести  $\tau = 15$  Г/мм<sup>2</sup> и концентрацией примеси Ca С = 0,5 прп. Предварительно отожженные и подготовленные образцы облучались на рентгеновской установке ИРИС-М от молибденового источника с длиной волны  $\lambda = 0,7$  Å. Напряжение и ток на трубке составляли соответственно  $U = 45$  кВ и  $I = 35$  м/А. Время облучения  $t_r = 5 - 60$  с. Для исследованных толщин образцов измеренный коэффициент сквозного прохождения рентгеновских лучей составлял 70–80%. Видимого окрашивания кристаллов при столь малых дозах облучения не наблюдалось. Свежие дислокации вводились в образец после облучения, затем кристалл подвергался магнитной обработке в тече-

ние времени  $t_m = 2 - 20$  мин в постоянном однородном поле электромагнита  $B = 0,2 - 0,7$  Тл. Переменное по направлению магнитное поле создавалось вращением образца в постоянном магнитном поле с частотой  $\nu = 0 - 200$  Гц. В экспериментах по разрушению радиационных дефектов облученный образец высвечивался под вольфрамовой лампой накаливания в течение 15-60 мин. Затем в него вводились дислокации, и он подвергался обычной магнитной обработке. Контроль за перемещением дислокаций осуществлялся методом избирательного химического травления. Все эксперименты проводились при комнатной температуре. В облученном кристалле наблюдалось смещение как краевых, так и винтовых дислокаций в магнитном поле. Однако только для краевых дислокаций удалось получить представительные гистограммы для определения среднего статистического пробега дислокаций. Исследования спектров пропускания облученных образцов проводились на фурье-спектрометре IFS-113v для ИК-диапазона ( $\lambda = 2 - 25$  мкм) и на спектрофотометре Hitachi для видимого и УФ-диапазона. При этом использовались для УФ диапазона дейтериевая лампа ( $\lambda = 185 - 360$  нм) и для видимого диапазона вольфрамовая лампа ( $\lambda = 364 - 2500$  нм).

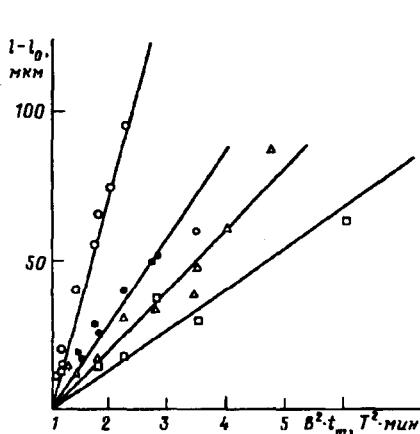


Рис.1. Зависимости среднего пробега дислокаций, отсчитанного от фонового значения  $l_0$  (при  $B = 0$ ), от времени выдержки в магнитном поле  $t_m$  и квадрата индукции поля  $B^2$  для различных времен облучения  $t_r$ .  $\circ - t_r = 0$ ;  $\blacksquare - t_r = 5$  с;  $\Delta - t_r = 10$  с;  $\blacksquare \times - t_r = 20$  с

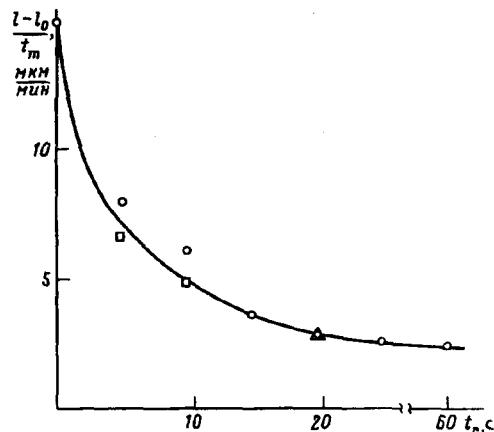


Рис.2. Зависимость эффективной скорости дислокаций  $(l - l_0)/t_m$  в магнитном поле  $B = 0,5$  Тл от времени облучения образцов  $t_r$  для различных времен магнитной обработки  $t_m$ :  $\circ - t_m = 5$  мин;  $\blacksquare - t_m = 10$  мин;  $\Delta - t_m = 20$  мин

В ходе экспериментов было получено, что в облученных кристаллах NaCl сохраняется линейная зависимость пробега краевых дислокаций от времени магнитной обработки образца и от квадрата индукции магнитного поля (рис.1). На этом и последующих рисунках пробег дислокаций отсчитывается от фонового пробега  $l_0$ , наблюдаемого в отсутствие магнитного поля. Величина  $l_0 \sim (20 - 30)$  мкм определяется слабой релаксацией дислокационной структуры в результате вытравливания приповерхностных стопоров [23]. Как видно из рис.1, пробеги в облученных образцах существенно меньше, чем в необлученных, что естественным образом связано с увеличением концентрации точечных

дефектов [24,25]. Эффективная скорость дислокаций  $(l - l_0)/t_m$  в магнитном поле монотонно уменьшается с ростом времени облучения  $t_r$  (рис.2).

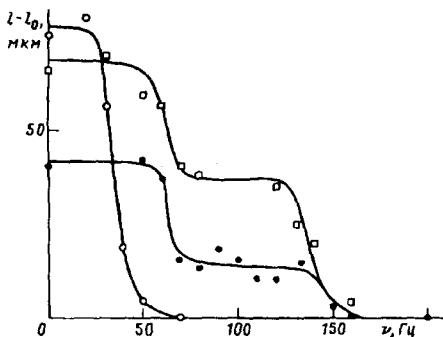


Рис.3. Зависимости пробегов дислокаций  $l - l_0$  от частоты  $\nu$  вращения образца в магнитном поле  $B = 0,5 \text{ Тл}$  при различных временах облучения и магнитной обработки.  $\circ - t_r = 0, t_m = 5 \text{ мин}; \bullet - t_r = 5 \text{ с}, t_m = 5 \text{ мин}; \square - t_r = 5 \text{ с}, t_m = 10 \text{ мин}$

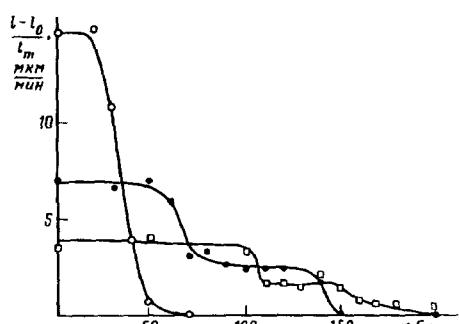


Рис.4. Зависимости эффективной скорости  $(l - l_0)/t_m$  от частоты  $\nu$  вращения образца в магнитном поле  $B = 0,5 \text{ Тл}$  для различных доз облучения.  $\circ - t_r = 0; \bullet - t_r = 5 \text{ с}; \square - t_r = 20 \text{ с}$

На рис.3. представлена зависимость средней линии пробега дислокаций от частоты вращения образца в магнитном поле. Как следует из рисунка, в облученных кристаллах существенно изменяется вид кривой  $l(\nu)$ : из одноступенчатой она превращается в двухступенчатую. Таким образом, вместо одной критической частоты  $\nu_c$  появляются две частоты  $\nu_{c1}$  и  $\nu_{c2}$  ( $\nu_c < \nu_{c1} < \nu_{c2}$ ), причем пробег дислокаций падает до нуля только выше  $\nu_{c2}$ . Простое увеличение времени выдержки образцов в магнитном поле приводит лишь к общему увеличению пробегов на полочках без изменения критических частот. Наличие двух критических частот свидетельствует о существовании двух типов парамагнитных стопоров для дислокаций в облученных кристаллах. Мы будем называть их стопорами первого и второго типов.

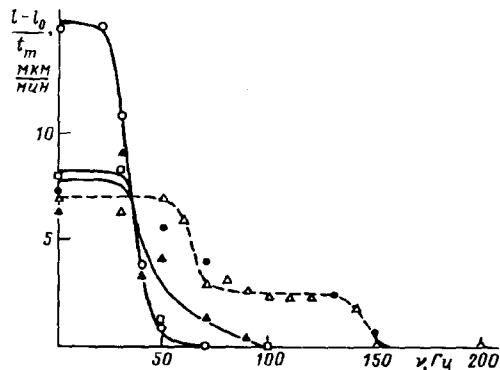


Рис.5. Зависимости эффективной скорости  $(l - l_0)/t_m$  от частоты  $\nu$  вращения образца в течение  $t_m = 10 \text{ мин}$  в магнитном поле  $B = 0,5 \text{ Тл}$  для различных времен высвечивания  $t_l$ .  $\circ - t_r = 0, t_l = 0; \square - t_r = 5 \text{ с}, t_l = 0; \bullet - t_r = 5 \text{ с}, t_l = 15 \text{ мин}; \Delta - t_r = 5 \text{ с}, t_l = 30 \text{ мин}; \square - t_r = 5 \text{ с}, t_l = 60 \text{ мин}$

Существенно, что первая и вторая ступеньки на кривой  $l(\nu)$  по-разному реагируют на увеличение дозы облучения. Как видно из рис.4, изменение времени облучения с  $t_r = 5 \text{ с}$  до  $t_r = 20 \text{ с}$  приводит к значительному росту

частоты  $\nu_{c1}$  без заметного изменения частоты  $\nu_c$ . Промежуточная доза, отвечающая времени облучения  $t_r = 10$  с, уширяет первую ступеньку, как бы "размазывая" ее между положениями, характерными для  $t_r = 5$  с и  $t_r = 20$  с, но сохраняет вторую ступеньку практически на том же месте (с точностью до экспериментальных погрешностей).

В ходе эксперимента по высвечиванию было показано (рис.5), что 15-минутное освещение облученных образцов под вольфрамовой лампой не вызывает сколько-нибудь заметного изменения зависимости  $I(\nu)$ . Однако уже высвечивание в течение 30 мин приводит к исчезновению второй ступеньки. При этом первая ступенька размывается между положениями  $\nu_c$  и  $\nu_{c1}$ . Наконец, освещение образцов в течение одного часа приводит к восстановлению критической частоты  $\nu_c$ , характерной для необлученного кристалла. Однако пробег дислокаций на полочке (при  $\nu < \nu_c$ ) не возвращается до уровня, соответствующего пробегу в необлученном кристалле.

Приведенные данные позволяют говорить о разном времени жизни стопоров, что находится в качественном соответствии с работами [26-29]. Стопоры второго типа являются короткоживущими. Время их жизни при наших условиях освещения порядка 15-30 мин. Этот факт, а также то, что они появляются в результате облучения и не изменяют своего состояния со временем облучения, позволяет предположить, что этими стопорами являются собственные радиационные дефекты. Заметим, что выдержка облученных образцов в течение одних суток в черной бумаге не влияет на процесс взаимодействия дислокации с этими стопорами в магнитном поле.

Дефекты первого типа – долгоживущие. Они разрушаются в течение одного часа. Процесс распада начинается примерно через 30 мин после начала высвечивания. Естественно предположить, что стопоры первого типа – это видоизмененная в процессе облучения примесь Ca. Зафиксированные в наших экспериментах три частоты, отвечающие первой ступеньке на зависимости  $I(\nu)$ :  $\nu_c = 35$  Гц ( $t_r = 0$ ),  $\nu_{c1} = 65$  Гц ( $t_r = 5$  с) и  $\nu_{c1} = 105$  Гц ( $t_r = 20$  с), по-видимому, отражают три состояния примесных комплексов Ca – основное и два радиационно-стимулированных. Последние образуются, вероятно, в результате захвата электронов на метастабильные уровни и, естественно, распадаются на свету, возвращая комплекс в основное состояние. Любопытно, что облучение делает примесь более магниточувствительной, сокращая время спин-зависимых переходов ( $\nu_{c1} > \nu_c$ ) и, соответственно, увеличивая вероятность отрыва дислокации от соответствующих комплексов.

При использованном нами спектральном составе света, отвечающем вольфрамовой лампе, не все радиационные дефекты высвечиваются за один час. Об этом свидетельствует заниженное, по сравнению с необлученным кристаллом, положение полочки. Про оставшиеся дефекты можно сказать, что они не являются парамагнитными, так как не влияют на критическую частоту.

Оптические исследования образцов, проведенные в широком диапазоне длин волн (от ИК до УФ), показали нечувствительность приборов к использованным нами малым дозам облучения. И только увеличение дозы облучения образца на два порядка позволило обнаружить полосы поглощения, соответствующие F-центрам, и некоторое увеличение пропускания (на 5–20%) в ИК области. В то же время, даже при использованных нами малых дозах облучения и, следовательно, малых структурных изменениях, вызванных этим облучением, МПЭ оказывается чувствительным к ним. Таким образом, в наших опытах

дислокация выступает как очень тонкий и очень чувствительный инструмент, реагирующий на малейшие изменения структуры кристалла.

Для окончательной "расшифровки" радиационных дефектов, возникающих в наших экспериментах, обещающей представляется комбинация предлагаемой методики с известным методом деформационной люминесценции [30-35].

Авторы благодарны В.Л.Инденбому, А.Ф.Константиновой, Я.М.Сойферу, В.Б.Тимофееву за полезное обсуждение результатов, а также А.В.Баженову, В.П.Киселю, Л.А.Коростель, Е.Б.Рудневой, И.Л.Смольскому, В.М.Чернову за методическую помощь в работе. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Международного научного фонда (грант M19300) и Российского фонда фундаментальных исследований (грант 95-02-03920-а).

- 
1. C.D.Clark, *Advances in physics* **22**, 117 (1973).
  2. А.А.Ботаки, А.А.Воробьев, В.Л.Ульянов. *Радиационная физика ионных кристаллов*. М.: Атомиздат, 1980.
  3. В.И.Альшиц, Е.В.Даринская, Т.М.Перекалина, А.А.Урусовская, ФТТ **29**, 467 (1987).
  4. В.И.Альшиц, Е.В.Даринская, Е.А.Петржик, Изв. вузов. Черн. металлургия **10**, 85 (1990).
  5. В.И.Альшиц, Е.В.Даринская, И.В.Гектина, Ф.Ф.Лаврентьев, Кристаллография **35**, 1014 (1990).
  6. В.И.Альшиц, Е.В.Даринская, Е.А.Петржик, ФТТ **33**, 3001 (1991).
  7. В.И.Альшиц, Е.В.Даринская, Е.А.Петржик, ФТТ **34**, 155 (1992).
  8. В.И.Альшиц, Р.Воска, Е.В.Даринская, Е.А.Петржик, ФТТ **35**, 70 (1993).
  9. В.И.Альшиц, Е.В.Даринская, Е.А.Петржик, ФТТ **35**, 320 (1993).
  10. В.И.Альшиц, Е.В.Даринская, О.Л.Казакова и др., Изв. РАН, серия физ. **57**, 2 (1993).
  11. V.I.Alshits, E.V.Darinskaya, E.A.Petrzhik, Mat., Sci. and Eng. A**164**, 322 (1993).
  12. V.I.Alshits, E.V.Darinskaya, O.L. Kazakova et al., J. of Alloys and Compounds **211/212**, 548 (1994).
  13. Ю.И.Головин, Р.Б.Моргунов, Письма в ЖЭТФ **58**, 189 (1993).
  14. Ю.И.Головин, Р.Б.Моргунов, ФТТ **35**, 2582 (1993).
  15. Ю.И.Головин, Р.Б.Моргунов, ФТТ **37**, 1239 (1993).
  16. М.И.Молоцкий, ФТТ **33**, 3112 (1991).
  17. М.И.Молоцкий, ФТТ **35**, 11 (1993).
  18. Я.Б.Зельдович, А.А.Бучаченко, Е.Л.Франкевич, УФН **155**, 3 (1988).
  19. А.А.Бучаченко, Р.З.Сагдеев, К.З.Салихов. *Магнитные и спиновые эффекты в химических реакциях*. Новосибирск: Наука, 1978.
  20. В.В.Кведер, Ю.А.Осипьян, А.И.Шалынин, ЖЭТФ **83**, 699 (1988).
  21. С.А.Дембовский, Е.А.Чечеткина, С.А.Козюхин, Письма в ЖЭТФ **41**, 74 (1985).
  22. P.A.Schnegg, C.Jaccard, and M.Aegerter, Phys. Stat. Sol. (b)**63**, 587 (1974).
  23. В.Б.Парийский, А.И.Ландау, В.И.Старцев, ФТТ **5**, 1377 (1963).
  24. Н.Мотт, Р.Герни, *Электронные процессы в ионных кристаллах*, М.: ИИЛ, 1950.
  25. Ч.Б.Лущик, А.Ч.Лущик, *Распад электронных возбуждений с образованием дефектов в твердых телах*, М.: Наука, 1989.
  26. Ya.M.Soyer, Phys. stat. sol.(a) **4**, 333 (1971).
  27. Г.А.Ермаков, Е.В.Коровин, Я.М.Сойфер, ФТТ **16**, 697 (1974).
  28. Г.А.Ермаков, Е.В.Коровин, Я.М.Сойфер, ФТТ **16**, 1756 (1974).
  29. М.А.Голосовский, Я.М.Сойфер, ЖЭТФ **80**, 2068 (1981).
  30. С.З.Шмурак, ФТТ **10**, 934 (1968).
  31. Ф.Д.Сенчуков, С.З.Шмурак, ФТТ **12**, 9 (1970).
  32. А.В.Полетаев, С.З.Шмурак, ФТТ **26**, 3567 (1984).
  33. В.А.Закревский, А.В.Шульдинер, Письма в ЖТФ **10**, 139 (1984).
  34. В.А.Закревский, А.В.Шульдинер, ФТТ **27**, 3042 (1985).
  35. В.А.Закревский, Т.С.Орлова, А.В.Шульдинер, ФТТ **37**, 675 (1995).