

12

©1992 г.

О ПАМЯТИ ЭФФЕКТА РОТШТЕЙНА

Е.М. Гуштин, Л.Н. Лебедев, С.В. Сомов, М.К. Тимофеев, Г.И. Типографщик

В рамках модели захвата электронов на мелкие промежуточные уровни рассматривается "память" эффекта увеличения чувствительности бромосеребряных эмульсий в импульсном электрическом поле (эффект Ротштейна). Получены выражения для зависимости чувствительности эмульсии в электрическом поле от задержки между экспозицией и управляющим электрическим импульсом для двух- и трехуровневой систем электронных ловушек. Показано, что двухкомпонентная память эффекта Ротштейна (40 мкс и 3.5 мс) объясняется наличием двух промежуточных центров захвата, предположительно с зарядом $+e/2$; оцененная глубина ловушек составляет 0.2 и 0.4 эВ.

Существование памяти в эффекте увеличения чувствительности бромосеребряных эмульсий в импульсном электрическом поле напряженностью $\sim 10^6$ В/см (эффект Ротштейна) обычно объясняют промежуточным захватом свободных электронов на мелкие электронные ловушки, не являющиеся центрами чувствительности [1]. Под действием внешнего электрического поля происходят понижение потенциального барьера центра захвата, срыв захваченных электронов и их мультипликация посредством ударной ионизации. Предполагается, что электрическое поле не затрагивает электроны, находящиеся на центрах чувствительности, так как электростатическое понижение потенциального барьера при характерных для эффекта Ротштейна напряженностях электрического поля $E < 3$ мВ/см не превышает 0.35 эВ, что мало по сравнению с глубиной центров чувствительности (> 0.8 эВ). В такой модели время памяти должно быть связано с параметрами как мелких, так и глубоких электронных ловушек и иметь более сложный характер, нежели наблюдавшийся до сих пор.

Простейшая схема модели (рис. 1,а) содержит один тип мелких ловушек и глубокие центры чувствительности, число типов которых не ограничивается, поскольку термическое время жизни электронов на этих центрах много больше времени образования скрытого изображения. Так как концентрация электронов, образуемых экспозицией ($\lesssim 10^{16}$ см $^{-3}$), пренебрежима по сравнению с концентрацией мелких ловушек, то уравнения баланса электронов в такой системе имеют вид

$$dN_f/dt = -(1/\tau_s + 1/\tau_d)N_f + 1/\tau_t N_s, \quad (1)$$

$$dN_s/dt = 1/\tau_s N_f - 1/\tau_t N_s, \quad (2)$$

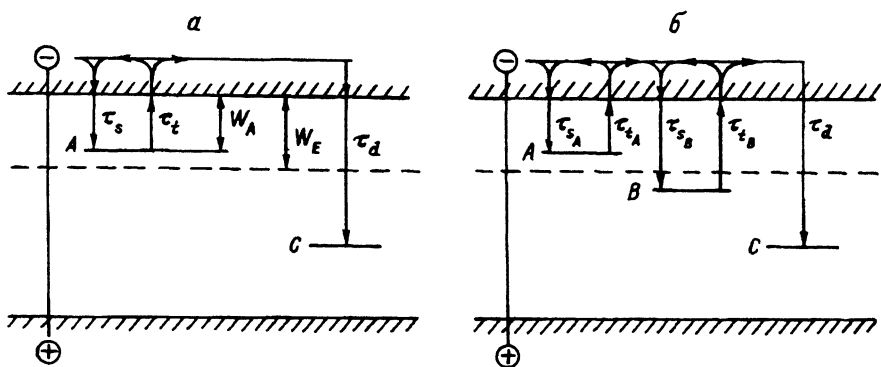


Рис. 1. Ловушечная модель памяти эффекта Ротштейна.

A, B — мелкие уровни захвата свободных электронов. *C* — центр чувствительности. Штриховая линия — электростатическое понижение потенциального барьера (глубина проникновения электрического поля в запрещенную зону), стрелки — пути перераспределения электронов.

$$\frac{dN_d}{dt} = 1/\tau_d N_f \quad (3)$$

с начальными условиями $N_f(0) = N_0$, $N_s(0) = N_d(0) = 0$, где τ_s , τ_d — время захвата электронов на мелкие и глубокие уровни соответственно, τ_t — термическое время жизни электронов на мелких уровнях.

Здесь мы рассматриваем область комнатных температур, когда можно пренебречь рекомбинационными процессами.

Если длительность экспозиции меньше длительности эффективно действующего импульса электрического поля, то при совпадении момента экспозиции и вершины электрического импульса конечное число электронов в эмульсионном микрокристалле $N_E = MN_0$, где N_0 — число электронов, образованных экспозицией; M — коэффициент мультипликации, сложным образом зависящий от коэффициента ударной ионизации и размера микрокристалла [2]. Для идеального прямоугольного импульса электрического поля, прикладываемого к эмульсии с задержкой t относительно момента экспозиции,

$$N_E(t) = MN_f(t) + \gamma MN_s(t) + (1 - \gamma)N_s(t) + N_d(t), \quad (4)$$

где N_f , N_s и N_d — соответственно число свободных и захваченных на мелкие и глубокие ловушки электронов; γ — вероятность срыва, зависящая от напряженности электрического поля, глубины ловушки, и, возможно, от длительности электрического импульса.

Реальные импульсы электрического поля имеют постоянную времени переднего фронта, много большую времени дрейфа электронов по микрокристаллу ($\lesssim 10^{-10}$ с). Поэтому свободные электроны уносятся фронтом электрического импульса на границу микрокристалла. Эти электроны не участвуют в мультипликации, но вносят соответствующий вклад в образование скрытого изображения. Следовательно, для реальных электрических импульсов

$$N_E(t) = N_f(t) + \gamma MN_s(t) + (1 - \gamma)N_s(t) + N_d(t) = \gamma(M - 1)N_s(t) + N_0. \quad (5)$$

Таким образом, конечное число электронов, а следовательно, и чувствительность эмульсии в импульсном электрическом поле определяют

я электронами, находящимися к моменту времени t на мелких промежуточных уровнях. Решение системы (1)–(3) для этих электронов

$$N_s(t) = \frac{N_0}{\tau_s(1/\tau_1 - 1/\tau_2)} [\exp(-t/\tau_2) - \exp(-t/\tau_1)], \quad (6)$$

где τ_1 и τ_2 являются корнями уравнения

$$(1/\tau)^2 + (1/\tau_s + 1/\tau_t + 1/\tau_d)1/\tau + 1/\tau_d\tau_t = 0. \quad (7)$$

Концентрация мелких электронных ловушек (дислокации, точечные дефекты решетки, ионизованные примеси и т.д.) в эмульсионных микрокристаллах много больше концентрации центров чувствительности, т.е. $\tau_s \ll \tau_d$. Тогда из (7) $\tau_2 \approx \tau_d(1 + \tau_t/\tau_s)$, $\tau_1 \approx \tau_s\tau_t/(\tau_s + \tau_t)$. причем $\tau_2 \gg \tau_1$. Если вероятность проявления микрокристалла φ пропорциональна числу электронов, то при $t \gg \tau_1$ из (5), (6)

$$\begin{aligned} \varphi_e(t) &\approx \frac{\tau_t}{\tau_s + \tau_t} \gamma(M - 1) \varphi_0 \exp(-t/\tau_2) + \varphi = \\ &= \frac{\tau_t}{\tau_s + \tau_t} \gamma[\varphi_E(0) - \varphi_0] \exp(-t/\tau_2) + \varphi_0, \end{aligned} \quad (8)$$

где φ_E, φ_0 — соответственно вероятность проявления с электрическим полем и без него, $\varphi_E(0) = M\varphi_0$.

Экспериментальное подтверждение зависимости (8) обнаружено в [3,4], причем в полулогарифмических координатах спрямляется именно величина $\varphi_E(t) - \varphi_0$ [3].

Когда термическое время жизни электронов на мелких уровнях мало по сравнению с временем захвата на эти уровни, то $\tau_2 \approx \tau_d$, а $\tau_1 \approx \tau_t$. Обычно $M \gg 1$, $\varphi_E(0) \gg \varphi_0$; для ловушек с глубиной свыше 0.02 эВ $\tau_t \gg \tau_s$ [5], так что $\tau_1 \approx \tau_s$, а время памяти эффекта Ротштейна¹

$$\tau_2 \approx \tau_d\tau_t/\tau_s \quad (9)$$

значительно превышает как время захвата электронов на центры чувствительности, так и термическое время жизни электронов на промежуточных мелких ловушках, которое в свою очередь может быть оценено из соотношения

$$\tau_t = \frac{1}{N_c v \sigma} \exp(W_A/kT), \quad (10)$$

где $N_c = 2(m_e^*kT/2\pi\hbar^2)^{3/2}$ — эффективная плотность состояний в зоне проводимости; $v = (8kT/\pi m_e^*)^{1/2}$ — средняя электронная скорость; σ — электронное сечение захвата, близкое к πa_0^2 , $a_0 \approx e^2/8\pi\epsilon\epsilon_0 W_A$ — эффективный борковский радиус; m_e^* — эффективная масса электрона; \hbar — постоянная Планка; k — постоянная Больцмана, T — абсолютная температура.

Для $A_g B_r$ $m_e^* \approx 0.2m_e$ (m_e — масса свободного электрона) [6], $\epsilon = 12.5$, так что

$$\tau_t \approx 1.2 \cdot 10^{-13} (W_A/kT)^2 \exp(W_A/kT). \quad (11)$$

¹ При исследованиях эффекта Ротштейна под временем памяти T_m обычно понимают время между экспозицией и электрическим импульсом, при котором $\varphi_E(T_m) = \varphi_E(0)/2$, т.е. $T_m \approx \tau_2 \ln 2$.

Как следует из (9), выражение (11) дает температурную зависимость времени памяти, поскольку отношение τ_d/τ_s от температуры не зависит. Так, при $W_A < 0.35$ эВ охлаждение эмульсии с 20°C до 0 должно увеличивать время памяти не более чем в 3 раза, что и наблюдалось в [4,7]. Однако если число центров чувствительности невелико по сравнению с числом электронов в зоне проводимости, а τ_d много меньше времени нейтрализации захваченного центром чувствительности электрона межзельным ионом серебра τ_0 , то $\varphi_E(t)$ описывается выражением более сложным, нежели (8), а время памяти

$$T_m \gtrsim \tau_0 \tau_i / \tau_s \sim T^{-n} \exp[(W_A + W_0)/kT], \quad (12)$$

где $W_0 = 0.42$ эВ, $n = 3/2$ для нейтрального или имеющего заряд $+e/2$ центра чувствительности ($\tau_0 \sim 10^{-6}$ с) и $n = 5/2$ для центра чувствительности с зарядом $+e$ ($\tau_0 \sim 10^{-3}$ с). В этом случае охлаждение эмульсии на 20°C увеличивает время памяти более чем в 20 раз. Приведенные соображения в значительной степени объясняют наблюдавшееся в [8] возрастание времени памяти почти на 3 порядка при охлаждении эмульсии от комнатной температуры до -10°C . С этим также может быть связано резкое различие измеренных значений времен памяти в эмульсиях различных типов — $T_m \approx 10 - 20$ мкс [7,9] либо $T_m \sim 1$ мс [1,8]. В любом случае эти значения, как и предполагалось выше, много больше экспериментальных значений $\tau_1 \approx 0.1$ мкс [10-12] и, если учесть соотношение $\tau_2 \gg \tau_i$, соответствуют из (11) предельной глубине промежуточного уровня $W_A < 0.3$ эВ.

Также было обнаружено, что при $t \sim \tau_1$ $\varphi_E(t) \approx \varphi_E(0)$. Согласно (8), это означает, что вероятность срыва электронов с мелких уровней близка к единице. Следовательно, электрическое поле либо полностью нейтрализует потенциальный барьер на мелких уровнях, либо понижает его настолько, что все или почти все захваченные электроны покидают эти уровни за время действия эффективного внутреннего электрического поля в результате термических флуктуаций (термополевой эффект). Эффективное внутреннее поле из-за дрейфа межзельных ионов серебра, вообще говоря, отличается от прикладываемого к эмульсии внешнего поля; скорость его изменения определяется временем ионной релаксации τ_r и формой электрического импульса [13]. Вследствие порогового характера эффекта Ротштейна и узкого диапазона изменения напряженности электрического поля от порога до максимального значения (менее 30%) “время жизни” электронов на уровне A при действии электрического поля должно быть $\lesssim 0.1 \min(\tau_r, T_E)$, где T_E — длительность электрического импульса; обычно $T_E \gtrsim 0.1$ мкс. Время ионной релаксации в ядерных эмульсиях $\tau_r \approx 100 - 200$ нс [4], в фотографических эмульсиях $\tau_r \sim 1$ мкс [14]. Отсюда из (11) $\Delta W_E = W_A - W_E \approx 0.2 - 0.25$ эВ.

Электростатическое понижение потенциального барьера для дипольной ловушки с размером диполя l

$$W_E = \frac{3}{2} e E^{2/3} (el/2\pi\epsilon\epsilon_0)^{1/3} \quad (13)$$

и для кулоновской ловушки с зарядом (до захвата электрона) $+Q$

$$W_E = e(eEQ/\pi\epsilon\epsilon_0)^{1/2} \quad (14)$$

$W_E, \text{эВ}$	$E \text{ МВ/см}$				
	1.0	1.5	2.0	2.5	3.0
Дипольный центр $l = 0.58 \text{ нм}$	0.17	0.22	0.26	0.30	0.34
Кулоновский центр $Q = +1/2$	0.15	0.18	0.21	0.24	0.26
Кулоновский центр $Q = +1$	0.22	0.26	0.30	0.34	0.37

приведено в таблице, из которой видно, что в случае термополевого эффекта глубина ловушек, формирующих память эффекта Ротштейна, может достигать до 0.6 эВ. Следовательно, как и предполагалось ранее, электрическое поле не затрагивает электроны, находящиеся на центрах чувствительности. Вместе с тем для таких ловушек $\tau_t \sim 0.1 \text{ с}$, что не соответствует экспериментальным значениям времени памяти. С другой стороны, величина $T_m = 5 - 20 \text{ мкс}$, полученная на примитивных несенсибилизированных бромосеребряных эмульсиях при $E = 2.0 - 2.5 \text{ МВ/см}$ [9] и низкочувствительной фотоэмульсии ФТ-СК [7], как и температурные измерения [4,7], хорошо согласуется с $W_A < 0.3 \text{ эВ}$, чему отвечает электронейтральный дипольный центр или кулоновский центр с зарядом $+e/2$. Таким образом, в примитивных эмульсиях, содержащих относительно чистые микрокристаллы AgBr, промежуточными центрами захвата в эффекте Ротштейна являются, по-видимому, ступеньки краевых дислокаций.

С другой стороны, глубина уровня A не должна быть менее $0.8W_E$, в противном случае сорванные электрическим полем электроны, как и свободные, уносятся фронтом электрического импульса без мультипликации и $\varphi_E(t) \equiv \varphi_0$. В зависимости от типа центра захвата и напряженности электрического поля $W_A^{\min} \approx 0.12 - 0.3 \text{ эВ}$.

Вместе с тем маловероятно, что эмульсионные микрокристаллы содержат мелкие ловушки только одного типа. Наличие ловушек различной глубины должно, вообще говоря, приводить к многокомпонентной памяти эффекта Ротштейна. До настоящего времени наблюдалась только однокомпонентная память. При исследовании управляемого режима регистрации быстрых заряженных частиц в примитивных ядерных эмульсиях недавно было обнаружено одновременно две компоненты памяти: быстрая и медленная (рис. 2) [14].

В рамках ловушечной модели памяти такая зависимость $\varphi_E(t)$ соответствует системе уровней, показанной на рис. 1,б, причем срыв электронов возможен только с уровня A , а для уровня B $\gamma_B \ll 1$. Действительно, уравнения баланса электронов в такой системе имеют вид

$$dN_f/dt = -(1/\tau_{s_A} + 1/\tau_{s_B} + 1/\tau_d)N_f + 1/\tau_{t_A}N_{s_A} + 1/\tau_{t_B}N_{s_B}, \quad (15)$$

$$dN_{s_A}/dt = 1/\tau_{s_A}N_f - 1/\tau_{t_A}N_{s_A}, \quad (16)$$

$$dN_{s_B}/dt = 1/\tau_{s_B}N_f - 1/\tau_{t_B}N_{s_B}, \quad (17)$$

$$dN_d/dt = 1/\tau_dN_f \quad (18)$$

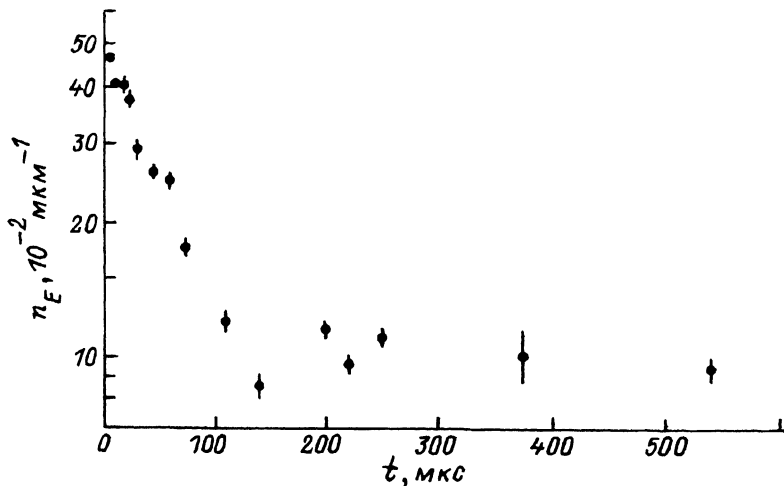


Рис. 2. Зависимость трековой чувствительности $n_E = N\varphi_E$ примитивной ядерной эмульсии РОК ($N = 50 \cdot 10^{-2}$) мкм⁻¹ от задержки между моментом прохождения протона с энергией 200 МэВ и вершиной импульса электрического поля.

$n_0 = N\varphi_0 < 1 \cdot 10^{-2}$ мкм⁻¹, $E = 2.05$ мВ/см.

с начальными условиями $N_f(0) = N_0$, $N_{s_A}(0) = N_{s_B}(0) = N_d(0) = 0$, а конечное число электронов в микрокристалле

$$N_E(t) = (M - 1)(\gamma_A N_{s_A} + \gamma_B N_{s_B}) + N_0. \quad (19)$$

Решения системы (15)–(18) представляют собой сумму трех экспонент, показатели которых являются корнями кубического уравнения с громоздкими коэффициентами. Однако вполне очевидно, что при $t \gg \max(\tau_{s_A}, \tau_{s_B})$ суммарное число электронов на уровнях A и B изменяется по закону, аналогичному (8), но с постоянной времени, зависящей от параметров всех трех уровней. Тогда, если $\gamma_A \approx \gamma_B$, память носила бы однокомпонентный характер.

Постоянные времени решений системы (15)–(18) можно получить в удобном виде, если считать, что установление равновесия на уровне A происходит гораздо быстрее, нежели на уровне B , т.е. положить $\tau_{s_A} \ll \tau_{s_B} \ll \tau_d$, $\tau_{s_A} \ll \tau_{t_A} \ll \tau_{t_B}$, $\tau_{s_B} \ll \tau_{t_B}$. Рассматривая сначала захват электронов на уровне A и B , а затем перераспределение электронов с уровня B на центр чувствительности и сшивая оба решения, получаем

$$\varphi_E(t) \approx \gamma_A [\varphi_E(0) - \varphi_0] \left\{ \frac{1}{1 + \alpha} \exp(-t/\tau_3) + \frac{\alpha}{1 + \alpha} \exp(-t/\tau_2) - \exp(-t/\tau_1) \right\} + \varphi_0, \quad (20)$$

где $\tau_1 \approx \tau_{s_A}$, $\tau_2 \approx \tau_{t_B}/(1 + \alpha)$, $\tau_3 \approx \tau_d \tau_{t_A} (1 + \alpha) / \tau_{s_A}$, $\alpha = \tau_{s_A} \tau_{t_B} / \tau_{s_B} \tau_{t_A}$, причем $\tau_1 \ll \tau_2 \ll \tau_3$.

Из представленных на рис. 2 экспериментальных результатов τ по крайней мере не более 2 мкс, $\alpha \approx 3$; разделяя, согласно (20), быструю и

медленную компоненту, мы получили $\tau_2 \approx 40$ мкс, $\tau_3 \approx 3.5$ мс. Отсюда $\tau_d/\tau_{s_B} = \alpha\tau_3/(1 + \alpha)^2\tau_2 \approx 16$, а термическое время жизни электронов на уровне B $\tau_{t_B} \approx 160$ мкс. Последней величине соответствует $W_B \approx 0.4$ эВ, поскольку $\gamma_B \ll 1$, то должно быть $W_E = W_B - \Delta W_E \approx 0.2$ эВ. Таким образом, уровень B также образует кулоновский центр захвата с дробным зарядом.

Так как $\alpha \sim \exp[(W_B - W_A)/kT]$, то относительный вклад медленной компоненты уменьшается с охлаждением эмульсии; пренебрегая единицей по сравнению с α , получаем $\tau_2 \approx \tau_{t_A}\tau_{s_b}/\tau_{s_A}$, $\tau_3 \approx \tau_{t_B}\tau_d/\tau_{s_B}$. Следовательно, температурные зависимости времени памяти обеих компонент определяются соотношением, аналогичным (11), причем более сильно изменение температуры должно влиять на медленную компоненту.

Обнаружение двух компонент памяти эффекта Ротштейна является подтверждением правильности ловушечной модели и, с другой стороны, расширяет возможности практического использования эффекта Ротштейна, например в управляемом эмульсионном трековом детекторе [3]. В зависимости от условий физического эксперимента такой детектор, имея резко различающиеся компоненты памяти, может управляться "мягким" быстрым триггером либо "жестким" медленным триггером. В первом случае задержка между полезным событием и управляющим импульсом мала, трековая чувствительность высока и детектор допускает предельные загрузки $\sim 10^{-8}$ частиц/см². Во втором случае предельные загрузки на порядок меньше, но зарегистрированная детектором информация обогащена полезными событиями. При необходимости длинная компонента памяти может быть подавлена путем охлаждения эмульсии.

Список литературы

- [1] Картужанский А.Л., Уланов В.М. // ФТП. 1981. Т. 15. Вып. 2. С. 1000-1002.
- [2] Гуцин Е.М., Лебедев А.Н., Сомов С.В. // ЖТФ. 1989. Т. 59. Вып. 4. С. 96-101.
- [3] Гуцин Е.М., Лебедев А.Н., Лопырев А.Ю. и др. // ПТЭ. 1988. № 1. С. 28-31.
- [4] Гуцин Е.М., Лебедев А.Н., Сомов С.В., Типографщик Г.И. // ЖТФ. 1988. Т. 58. Вып. 5. С. 922-924.
- [5] Harada T., Iijima T., Koitabashi T. // Photogr. Sci. Eng. 1982. Vol. 26. N 3. P. 137-142.
- [6] Мейкляр П.В. // Физические процессы при образовании скрытого фотографического изображения. М.: Наука, 1972. С. 138.
- [7] Диденко А.Я., Калашников Н.П., Лемешко Б.Д. // ЖНиПФик. 1986. Т. 31. № 3. С. 166-173.
- [8] Диденко А.Я., Лемешко Б.Д., Мороз И.Н. // ЖНиПФик. 1986. Т. 31. № 1. С. 53-55.
- [9] Гуцин Е.М., Лебедев А.Н., Мыльцева В.А. и др. // ЖНиПФик. 1991. Т. 36. № 2. С. 147-151.
- [10] Гуцин Е.М., Жуков В.В., Лебедев А.Н., Сомов С.В. // ЖНиПФик. 1984. Т. 29. № 4. С. 285-289.
- [11] Gushchin E.M., Lebedev A.N., Lopryev A.Yu., Somov S.V. // Nucl. Instr. Meth. 1986. Vol. B16. N 6. P. 515-522.
- [12] Диденко А.Я., Мороз И.Н., Горбаченко Г.М. // ЖНиПФик. 1987. № 32. С. 456-457.
- [13] Диденко А.Я. // ЖТФ. 1985. Т. 55. Вып. 4. С. 714-716.
- [14] Джеймс Т.Х. // Теория фотографического процесса. Л.: Химия, 1980. С. 125.
- [15] Гуцин Е.М., Лебедев А.Н., Сомов С.В. и др. // Тез. докл. III Всесоюз. школы-семинара по твердотельным трековым детекторам и автордиографии. Одесса, 1991. С. 62.