

05; 07; 12

О КОЭФФИЦИЕНТЕ МУЛЬТИПЛИКАЦИИ В ЭФФЕКТЕ РОТШТЕЙНА

Е. М. Гуцин, А. Н. Лебедев, С. В. Сомов

Рассмотрена лавинная мультипликация электронов в сферических эмульсионных микрокристаллах с учетом немонодисперсности эмульсии. Обсуждаются экспериментальные и теоретические данные по коэффициенту ударной ионизации в AgBr.

В настоящее время наблюдается повышенный интерес исследователей к впервые обнаруженному Ротштейном в 1959 г. эффекту изменения чувствительности светочувствительных эмульсий под действием импульсного электрического поля напряженностью $\sim 10^5$ — 10^6 В/см. Достаточно сказать, что на последние 6 лет приходится свыше половины всех посвященных эффекту Ротштейна работ. При этом акцент в исследованиях смещается в сторону электрических полей напряженностью $\sim 10^6$ В/см, где основным механизмом эффекта Ротштейна является мультипликация электронов посредством ударной ионизации, и все большее внимание обращается не только на практическую ценность этого эффекта как по сути единственного способа существенного улучшения характеристик современных фотографических и ядерных эмульсий. Учитывая универсальность мультипликационного механизма по отношению к фотоувеличиваемым эмульсиям различного качественного состава, отметим значение эффекта Ротштейна как инструмента изучения реальных эмульсионных микрокристаллов, свойства которых зачастую сильно отличаются от свойств модельных макрокристаллов. С помощью этого эффекта возможно исследование таких процессов, как ударная ионизация [1], кинетика захвата и делокализации электронов с электронных ловушек различной природы [2, 3], дрейф междоузельных и поверхностных ионов и вакансий [4, 5], электропоглощение света [6] и т. п.

В подавляющем большинстве этих исследований основным параметром, позволяющим производить количественные расчеты, является коэффициент мультипликации, который показывает, во сколько раз действие электрического поля увеличивает начальное число фотоэлектронов. До последнего времени во всех работах, посвященных эффекту Ротштейна, считается, что коэффициент мультипликации

$$M = \exp(\alpha d_0), \quad (1)$$

где α — коэффициент ударной ионизации, d_0 — средний размер эмульсионных микрокристаллов.

Между тем (1) справедливо только для точечного заряда, проходящего расстояние d_0 , поэтому использование этого выражения ошибочно и приводит к значительным расхождениям в результатах обработки и интерпретации экспериментальных данных. Действительно, точки образования и захвата первичных электронов распределены по объему микрокристалла случайным образом. Поэтому независимо от того, рассматриваем ли мы мультипликацию свободных электронов при совпадении импульса экспозиции и импульса электрического поля или мультипликацию электронов, сорванных полем с мелких

поверхушек при исследовании «памяти» эффекта Ротштейна, коэффициент мультипликации в общем виде

$$M = \frac{1}{V} \int_V \exp[\alpha l(x, y, z)] dV, \quad (2)$$

где l — проекция пути электрона от точки его образования (или срыва) до точки, где заканчивается развитие лавины, на направление вектора электрического поля; V — объем микрокристалла.

Несмотря на то что одна и та же эмульсия может содержать микрокристаллы различной формы, в большинстве эмульсий вследствие произвольной ориентации микрокристаллов относительно силовых линий электрического поля их форма может быть аппроксимирована сферой со средним диаметром d_0 . Особенно хорошо это выполняется в ядерных эмульсиях, где подавляющая часть микрокристаллов имеет форму, очень близкую к сферической. Отметим, что усредненный по ориентации диаметр d_0 получают при обмере электронно-микроскопических фотографий микрокристаллов. Для сферы диаметром d_0

$$M = \frac{3}{2R_0^3} \int_0^{R_0} r dr \int_{-l_0}^{l_0} \exp[\alpha l(r, R, z)] dz, \quad (3)$$

где $R_0 = d_0/2$, $l_0 = (R_0^2 - r^2)^{1/2}$ (рис. 1).

Рассмотрим два возможных варианта мультипликации электронов, движущихся по координатам $r \neq 0$.

1. Электронная лавина, двигаясь по пути «2», доходит до границы микрокристалла, где развитие лавины прекращается и все электронное облако дрейфует без мультипликации вблизи поверхности микрокристалла к области с координатами $z = R_0$, $r = 0$. В этом случае $l = (R_0^2 - r^2)^{1/2} - z$ и

$$M = \frac{3}{(\alpha d_0)^3} \left[(\alpha d_0 - 1) \exp(\alpha d_0) - \frac{(\alpha d_0)^2}{2} + 1 \right]. \quad (4)$$

2. Развитие электронной лавины происходит и при движении электронов вдоль границы микрокристалла. Тогда добавочное увеличение числа электронов описывается членом $\exp[\alpha'(R_0 - l_0)]$ с коэффициентом ударной ионизации α' , отличающимся от коэффициента ударной ионизации α , который характеризует развитие лавины в объеме микрокристалла. Можно предположить, что из-за более эффективного рассеяния электронов на границе кристаллической решетки вследствие «обрыва» периодичности потенциала рассеяния $\alpha' < \alpha$. Подставляя в (3) $l = R_0 - z$, получим верхнюю границу коэффициента мультипликации

$$M = \frac{12}{(\alpha d_0)^3} \left[\left(\frac{\alpha d_0}{2} - 1 \right) \exp(\alpha d_0) + \frac{\alpha d_0}{2} + 1 \right]. \quad (5)$$

Таким образом, зависимость коэффициента мультипликации в эффекте Ротштейна от произведения αd_0 (а следовательно, и от напряженности электрического поля) оказывается более сложной, нежели чисто экспоненциальная зависимость (1). Как видно из рис. 2, коэффициенты мультипликации, рассчитанные из (4), (5), не настолько сильно различаются, как это можно было ожидать, поскольку основной вклад в M вносят электроны, движущиеся вблизи

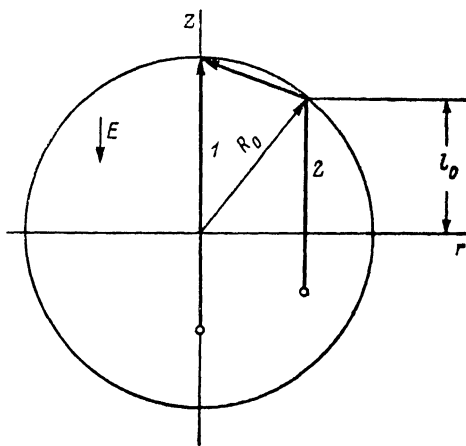
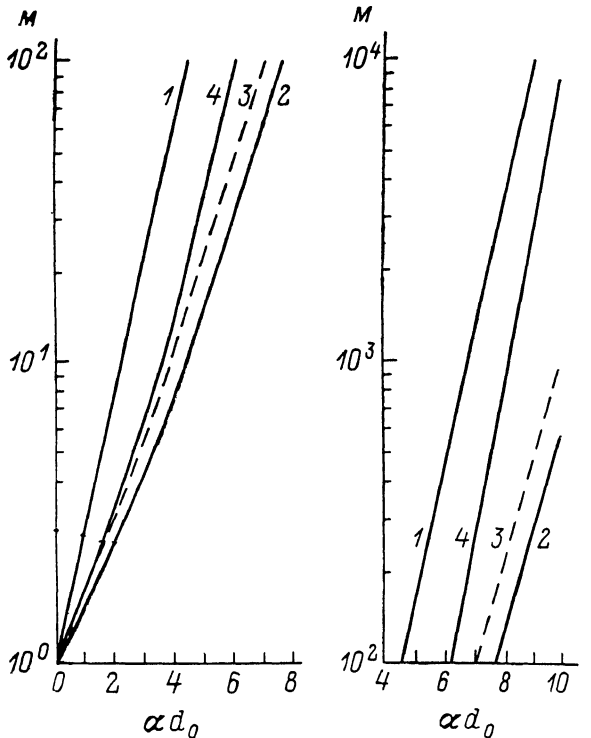


Рис. 1. К расчету коэффициента мультипликации в сферическом микрокристалле.

оси z , для которых член $\exp[\alpha'(R_0 - l_0)]$ невелик.¹ В то же время реальные значения M в обоих случаях при одинаковых αd_0 в несколько раз меньше, чем полученные из соотношения (1).

Последнее обстоятельство может иметь важное практическое значение. Действительно, если бы все электронные лавины, инициированные первичными электронами, проходили одинаковое расстояние $l = d_0$, то чувствительность фотоэмульсии еще более возросла бы при неизменном значении действующего потенциала электрического поля, который всегда ограничен пробоем или спонтанным вуалированием эмульсии. Такая возможность реализуется, если во время экспозиции к эмульсии прикладывается импульс электрического поля, длительность которого превышает время захвата электронов на мелкие ловушки,



но меньше времени ионной релаксации поля. Действие такого импульса (его амплитуда в принципе может быть и недостаточной для эффективной мультипликации) сводится к смещению всех первичных фотоэлектронов в область с координатами $z = R_0$ ($z = -R_0$), $r = 0$ с последующим их захватом на неглубокие поверхностные ловушки. Если же теперь после окончания этого импульса к эмульсии приложить импульс электрического поля противоположной полярности, то сорванные с поверхностных ловушек электроны пройдут полный ди-

Рис. 2. Зависимость коэффициента мультипликации от αd_0 .

1, 2, 3 — для соотношений (1), (4), (5) соответственно; 4 — для (5) с учетом немонодисперсности с относительной шириной $\sigma/d_0 = 0.25$.

аметр микрокристалла и коэффициент мультипликации будет иметь величину, близкую к предельно возможной [7].

В последнее время при изучении эффекта Ротштейна в качестве источника экспозиции все шире используют N_2 лазеры, монохроматичность, малая длительность (8 нс) и высокая плотность энергии излучения которых (до 5 МДж/см² в нефокусированном пучке) дают возможность проводить очень точные временные и денситометрические измерения на эмульсиях различной чувствительности. Между тем длина волны генерации N_2 лазеров (337 нм) в эмульсионных микрокристаллах характеризуется относительно высоким коэффициентом поглощения k . Это относится и к традиционной методике экспозиции излучением искрового разряда, в спектре которого неизбежно присутствуют линии с $k \geq 1/d_0$. Тогда при совпадении импульса экспозиции и импульса электрического поля распределение первичных фотоэлектронов по объему микрокристалла уже не является равномерным, а коэффициент мультипликации зависит не только от произведения αd_0 , но и от произведения $k d_0$, k и α , а также от взаимной ориентации направления светового потока и направления дрейфа электронов. Так, для случая, соответствующего соотношению (4),

¹ Из этого, в частности, следует, что величина эффекта Ротштейна не должна сильно зависеть от степени поверхностной химической или оптической сенсibilизации, если только сенсibilизирующий центр не является донором и чувствительность эмульсии не очень высока.

$$M_{\uparrow\uparrow} = \frac{k^3}{\alpha + k} \frac{\frac{1}{\alpha^2} [(ad_0 - 1) \exp(ad_0) + 1] + \frac{1}{k^2} [(kd_0 + 1) \exp(-kd_0) - 1]}{(kd_0 + 1) \exp(-kd_0) + \frac{(kd_0)^2}{2} - 1}, \quad (6)$$

когда эти направления параллельны, и

$$M_{\uparrow\downarrow} = \frac{k^3}{(\alpha - k)^3} \frac{[(\alpha - k) d_0 - 1] \exp [(\alpha - k) d_0] - \frac{[(\alpha - k) d_0]^2}{2} + 1}{(kd_0 + 1) \exp(-kd_0) + \frac{(kd_0)^2}{2} - 1}, \quad (7)$$

когда они антипараллельны. Не анализируя детально (6), (7), отметим, что при одинаковом d_0 (6) приводит к большим, а (7) — к меньшим значениям коэффициента мультипликации по сравнению с (4). Для очень сильного поглощения ($kd_0 \gg 1$) $M_{\uparrow\downarrow} \rightarrow 1$, а $M_{\uparrow\uparrow} \rightarrow 2/(ad_0)^2 [(ad_0 - 1) \exp(ad_0) + 1]$; при $kd_0 \ll 1$ выражения (6), (7), очевидно, переходят в (4). В то же время, если импульс экспозиции опережает импульс электрического поля, диффузия первичных электронов выравнивает электронную концентрацию за времена $\sim 10^{-9}$ с, что много меньше характерного времени захвата электронов на мелкие ловушки ($\sim 10^{-7}$ с). В этом случае и для сильного поглощения справедливо соотношение (4), (5).

Дальнейшее уточнение коэффициента мультипликации связано с тем, что реальные эмульсии не являются моодисперсными, а имеют конечное, иногда довольно широкое распределение микрокристаллов по размерам $\varphi(d_0, \sigma)$. Тогда усредненный коэффициент мультипликации

$$M = \int_0^{\infty} M(d) \varphi(d, d_0, \sigma) d(d). \quad (8)$$

Обычно дисперсность эмульсий описывают гауссовским (нормальным) или лог-нормальным распределениями [8]. В практических расчетах нормальное распределение

$$\varphi(d) = \frac{1}{\sigma \sqrt{2\pi}} \exp \left[-\frac{(d - d_0)^2}{2\sigma^2} \right] \quad (9)$$

является достаточно точным, если только относительная ширина действительного распределения невелика. Удобное аналитическое выражение для M можно получить, если аппроксимировать (4), (5) соотношением

$$M = A \exp(\alpha k d_0), \quad (10)$$

где A и k — константы в некоторой области изменения M .

В ядерных и большей части фотографических эмульсий $\sigma/d_0 < 0.4$, т. е. распределение достаточно узкое и доля микрокристаллов с размером $d \ll d_0$ мала. Тогда, подставляя (9), (10) в (8) и заменяя нижний предел интегрирования на $(-\infty)$, получаем

$$M \simeq M \exp \left\{ \frac{[k(\sigma/d_0)(ad_0)]^2}{2} \right\}. \quad (11)$$

Как следует из (11), учет распределения микрокристаллов по размерам приводит к большему, чем моодисперсной эмульсии, коэффициенту мультипликации, причем это увеличение возрастает с ростом ширины распределения, напряженности электрического поля и среднего размера микрокристаллов и может быть довольно значительным. Так, для $ad_0 = 6$, $\sigma/d_0 = 0.4$ отношение $M/M \approx 4$ и еще больше для лог-нормального распределения.

В работе [9] мы использовали пороговое приближение для коэффициента ударной ионизации в AgBr

$$\alpha = \alpha_0 (E/E_* - 1) \quad (12)$$

и, обработав экспериментальные данные по эффекту Ротштейна в полях $(0.7 - 1.0) \cdot 10^6$ В/см, получили численные значения параметров $\alpha_0 \approx 1.3 \cdot 10^5$ см $^{-1}$,

$E_n \approx 0.66$ МВ/см. Приведенный выше анализ позволяет уточнить эти результаты. Для (5), (11) расчет дает $\alpha_0 \approx 0.9 \cdot 10^5$ см⁻¹, $E_n \approx 0.65$ МВ/см, т. е. не меняя пороговой напряженности электрического поля, учет мультипликации электронов при дрейфе вдоль границы микрокристалла и немонодисперсности эмульсии снижает абсолютные значения коэффициента ударной ионизации на 30 %.

В связи с тем, что коэффициент ударной ионизации является основным физическим параметром эффекта Ротштейна в полях $\sim 10^6$ В/см, нельзя не упомянуть о единственной на сегодняшний день работе [10], посвященной теоретическому анализу рассеяния движущегося в сильном электрическом поле электрона в AgBr. Решая кинетическое уравнение в предположении рассеяния только на оптических фононах, авторы получили для коэффициента ударной ионизации в AgBr выражение

$$\alpha = \alpha'_0 E \exp[-(E_0/E)^2], \quad (13)$$

где α'_0 и E_0 — константы.

Такая зависимость, вообще говоря, не противоречит (12) при $E \gg E_0$, $E \gg E_n$ и не является неожиданной; она характерна, если не обращать внимания на линейный множитель, для многих полупроводников, например GaAs и GaP. Однако приводимые в [10] значения констант $\alpha'_0 \approx 7$ В⁻¹, $E_0 \approx 3 \cdot 10^5$ В/см явно неверны.

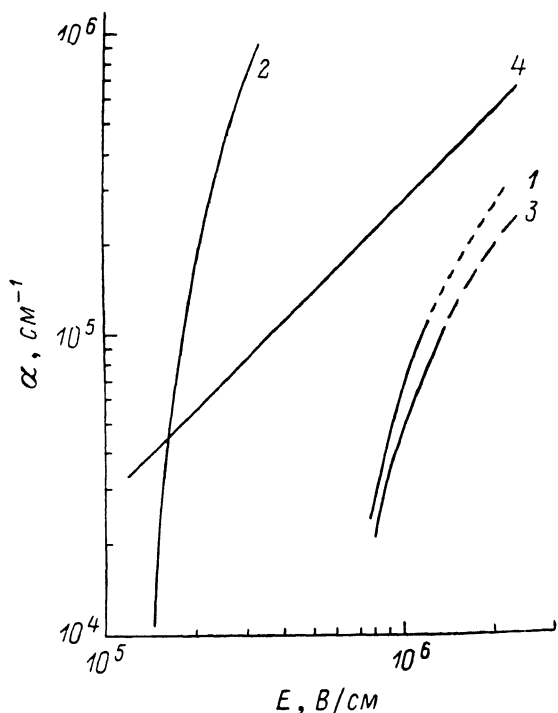


Рис. 3. Зависимость коэффициента ударной ионизации в AgBr от напряженности электрического поля по данным разных работ.

1 — [1], 2 — [10], 3 — результаты этой работы, 4 — «идеальный» коэффициент ударной ионизации α_{\max} .

При $E = 1 \cdot 10^6$ В/см, $d_0 = 1$ мкм $\alpha d_0 \approx 630$, что, очевидно, нереально. Авторы объясняют это несоответствие наличием ионной релаксации, снижающей напряженность внешнего поля в объеме микрокристалла. Такое объяснение может быть удовлетворительным, только если принять время ионной релаксации $\tau_p \sim 10^{-8}$ с, что на 1—2 порядка меньше измеренных до сих пор [8]. Легко также оценить предельное значение «идеального» коэффициента ударной ионизации, предположив полное отсутствие любых, кроме ионизационных, потерь энергии движущегося электрона. Такой электрон на пути d_0 совершает в среднем $d_0 E/E_i$ актов ионизации, где E_i — порог энергии ионизации, для AgBr, по данным [10], равный $4/3 E_g$ (E_g — ширина запрещенной зоны). Следовательно, $\alpha_{\max} = 3/4 E/E_g$. Как видно из рис. 3, численные значения коэффициента ударной ионизации в [10] сильно завышены.

В настоящее время максимальное увеличение чувствительности фотоэмульсии в эффекте Ротштейна не превышает 300, чему соответствует (рис. 2) $\alpha d_0 < < 7-7.5$. В частности, на бромосеребряной эмульсии с $d_0 \approx 1$ мкм мы получили $M \leq 25$ [4] ($\alpha d_0 \leq 5$) при $E = 1$ МВ/см. Следовательно, для отдельного электрона средняя частота актов ионизации 5 мкм⁻¹. При этом дрейфующий электрон теряет на ионизацию около 20 эВ/мкм, получая от электрического поля энергию 100 эВ/мкм. Таким образом, для AgBr в таких полях ионизационные потери составляют приблизительно 20 % от потерь на все виды рассеяния. Если в ка-

честве средней энергии дрейфующего электрона взять ширину запрещенной зоны $E_g \approx 2.7$ эВ, а скорость дрейфа принять равной $(0.5-1) \cdot 10^7$ см/с, то средняя длина свободного пробега электрона относительно ионизации составит 3.5—7 мкм.

Литература

- [1] *Картужанский А. Л., Уланов В. М.* // ФТП. 1982. Т. 16. Вып. 2. С. 337—339.
- [2] *Гуцин Е. М., Жуков В. В., Лебедев А. Н.* и др. // ЖТФ. 1985. Т. 55. Вып. 7. С. 1362—1369.
- [3] *Gushchin E. M., Lebedev A. N., Lopurev A. Yu., Somov S. V.* // Nucl. Instr. and Meth. 1986. Vol. B16. N 6. P. 515—522.
- [4] *Гуцин Е. М., Жуков В. В., Лебедев А. Н.* и др. // ЖНиПФиК. 1984. Т. 29. № 4. С. 285—289.
- [5] *Картужанский А. Л., Уланов В. М.* // ЖНиПФиК. 1983. Т. 28. № 3. С. 212—214.
- [6] *Уланов В. М.* // ЖТФ. 1982. Т. 52. Вып. 3. С. 545—547.
- [7] *Гуцин Е. М., Лебедев А. Н., Сомов С. В.* // А. С. 1171745 (СССР). БИ. 1985. № 29.
- [8] *Джеймс Т. Х.* // Теория фотографического процесса. Л.: Химия, 1980. С. 106, 125.
- [9] *Гуцин Е. М., Лебедев А. Н., Сомов С. В.* // ЖТФ. 1986. Т. 56. Вып. 10. С. 1973—1979.
- [10] *Диденко А. Я., Добродеев Н. А.* // Кинетические явления в полупроводниках и диэлектриках. М.: Энергоатомиздат, 1985. С. 90—94.

Московский
инженерно-физический институт

Поступило в Редакцию
25 августа 1986 г.