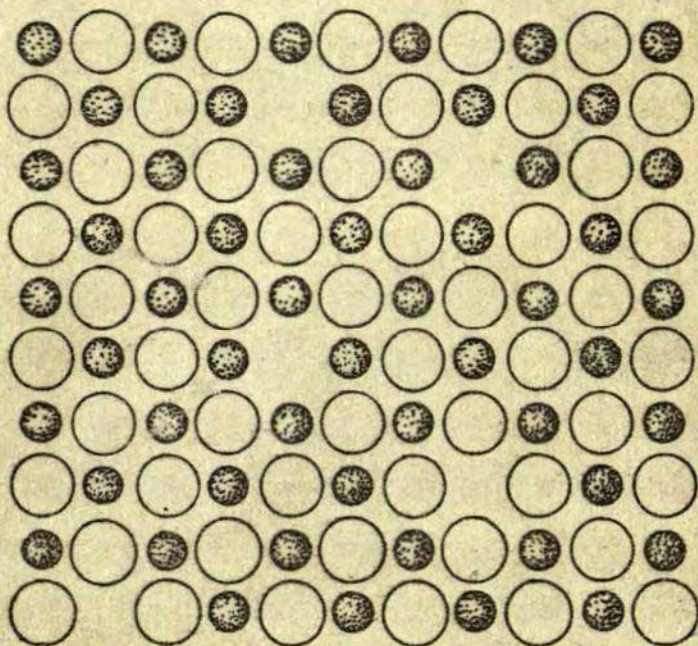
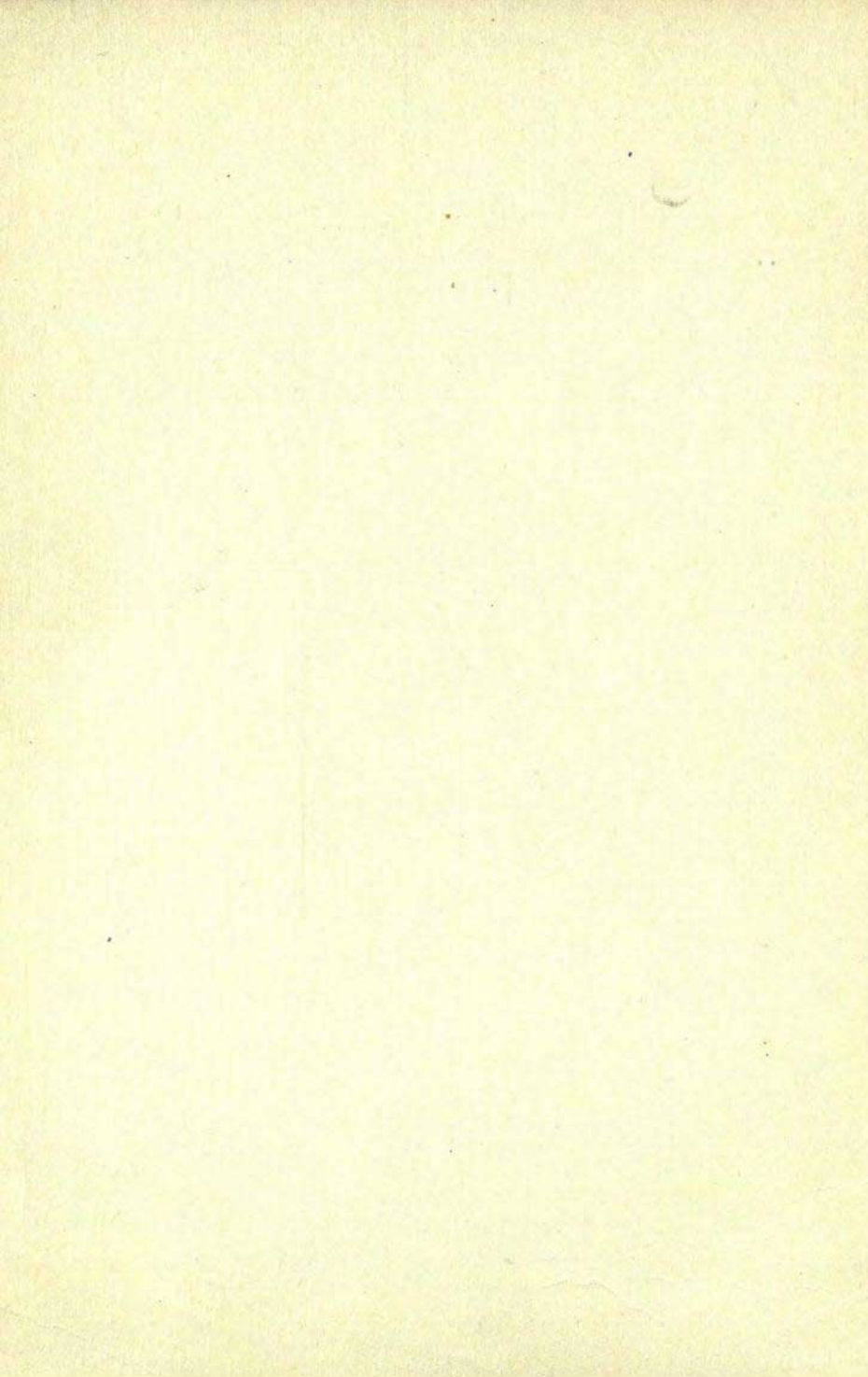


УЧЕНЫЕ ЗАПИСКИ
**ЭЛЕКТРОННЫЕ И ИОННЫЕ
ПРОЦЕССЫ
В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ**

2



1974



Министерство высшего и среднего специального образования
Латвийской ССР

Латвийский ордена Трудового Красного Знамени
государственный университет имени Петра Стучки

Проблемная лаборатория физики полупроводников

Ученые записки
Латвийского государственного университета
имени Петра Стучки
том 208

ЭЛЕКТРОННЫЕ И ИОННЫЕ ПРОЦЕССЫ
В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

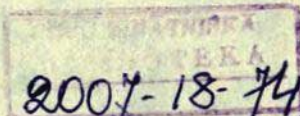
Выпуск 2

Редакционно-издательский отдел ЛПУ им. Петра Стучки
Рига 1974

В сборнике имеются 14 работ теоретического, экспериментального и методического содержания. Обсуждаются механизмы генерации, накопления и рекомбинации радиационных дефектов, проблемы плавления щелочно-галогидных кристаллов; приводится расчет атомных волновых функций. Сборник предназначен для научных работников, аспирантов и студентов старших курсов, занимающихся физикой ионных кристаллов.

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ

Я. Боган, И. Витол, А. Годкалин (ответственный за выпуск),
В. Грабовский, Д. Миллер (главный редактор), В. Полмане.



2000 27/46

© Редакционно-издательский отдел ЛГУ им. П. Стучки, 1974 г.

9 0-2-3-4-115у 295-74
М 812(II)-74

ТУШЕНИЕ ТУННЕЛЬНОЙ ЛУМИНЕСЦЕНЦИИ ФОТОСТИМУЛЯЦИЕЙ

Исследовано тушение туннельной люминесценции (ТЛ) пар $\{F-V_K\}$ в результате фотостимуляции в полосе поглощения F -центров в кристалле KBr , возбужденного рентгеновскими лучами при $80^\circ K$. Кинетика ТЛ при тушении ее туннелированием электрона с возбужденного состояния электронного центра на дырочный центр рассчитана на ЭМ и качественно сравнена с экспериментально измеренной кинетикой ТЛ. Сделан вывод, что разрушение пар $\{F-V_K\}$ F -светом происходит в процессах туннелирования в паре $\{F-V_K\}$ и рекомбинации свободных электронов с V_K -центрами.

Цель настоящей работы - определить процессы, обуславливающие тушение туннельной люминесценции (ТЛ) пар $\{F-V_K\}$ в результате фотостимуляции (ФС) в полосе оптического поглощения F -центров в кристалле KBr .

В ТЛ участвуют близкорасположенные электронные и дырочные центры, образующие в щелочно-галогидных кристаллах во время возбуждения радиацией ионизированные пары центров^X [3,4]. Кинетика ТЛ позволяет непосредственно получить информацию о законе распределения электронных и дырочных центров по расстоянию в парах [9], а также ценные сведения о механизмах взаимодействия центров. Эта информация важна как для оптоэлектроники, так и для изучения процессов, протекающих во время аккумуляции центров окраски.

После ФС в полосах оптического поглощения электронных центров в кинетике ТЛ наблюдаются изменения (тушение, разгорание [5]), другими словами, меняется плотность распределения пар электронных и дырочных центров по расстояниям между их компонентами. Такие изменения кинетики ТЛ после ФС зависят от процессов, протекающих во время ФС, в частности, от электронных и термополевых процессов, а также от туннелирования электрона с возбужденного состояния электронного центра. В настоящей работе теоретически рассчитано,

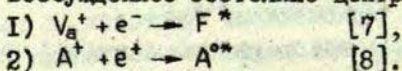
^X См. настоящий сборник, с. 16.

как на кинетику ТЛ влияет перевод в возбужденные состояния электронных центров, входящих в пары; анализируются экспериментальные факты о влиянии ФС в F-полосе поглощения на кинетику ТЛ пар $\{F^-V_k\}$.

Разрушение пар центров окраски при туннелировании электрона с возбужденного состояния электронного центра

Вероятность туннельного перехода электрона между электронным и дырочным центрами, представляющими пару, зависит от степени перекрытия волновых функций центров [6]. В некоторых случаях волновая функция возбужденного состояния электронного центра охватывает более отдаленные области пространства, нежели волновая функция основного состояния [12]. При $r > r_{02}$ (r_{02} - половина радиуса Бора для возбужденного состояния) вероятность туннельной рекомбинации с возбужденного состояния в зависимости от вида волновой функции конкретного возбужденного состояния может оказаться больше, чем с основного состояния (например, известно, что это имеет место для возбужденного состояния F-центра). При достаточно больших концентрациях электронных центров в возбужденном состоянии туннелирование электрона с возбужденных состояний электронных центров на дырочные центры будет играть более существенную роль, чем туннелирование электронов с основных состояний электронных центров на дырочные центры.

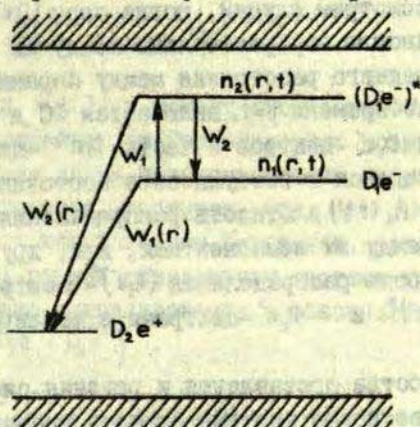
Для перевода электронных центров в возбужденное состояние в ШГК применяется фотостимуляция. В некоторых случаях захват электрона на ионизированный центр может также проходить через возбужденное состояние центра:



Экспериментально разрушение пар в результате ФС наблюдается как уменьшение интенсивности ТЛ. Поэтому будем рассчитывать кинетику ТЛ для пар $\{D_1e^- - D_2e^+\}$ до и после ФС в полосе поглощения D_1e^- -центра (D_1 - это центр захвата для

электронов e^- ; D_2 - это центр захвата для дырок e^+). Сначала необходимо рассчитать изменение плотности распределения $n_1(r,t)$ под влиянием ФС. Модель, для которой выполнены расчеты, имеет следующие характеристики.

I. Рассматриваются пары с расстоянием r между их компонентами (электронными и дырочными центрами), превышающим расстояние, на котором волновая функция возбужденного состояния центра имеет максимум. Поэтому волновые функции основного и возбужденного состояний могут аппроксимироваться экспонентами и вероятности туннельных переходов (рис. I) в



Р и с. I. Схематическое изображение электронных переходов в паре $\{D_1e^- - D_2e^+\}$.

паре $\{D_1e^- - D_2e^+\}$ выражаются [6]:

$$w_1(r) = w_{01} e^{-r/r_{01}}; \quad w_2(r) = w_{02} e^{-r/r_{02}},$$

где w_{01}, w_{02} - соответствующие феноменологические постоянные; r_{01}, r_{02} - половина радиуса Бора соответственно для основного и возбужденного состояния D_1e^- -центра.

Кроме переходов с вероятностями $w_1(r), w_2(r)$, в паре $\{D_1e^- - D_2e^+\}$ разрешены переходы с вероятностями W_1 и W_2 (рис. I):

W_1 - вероятность перехода D_1e^- -центра в единицу времени из основного в возбужденное состояние в результате ФС в полосе оптического поглощения D_1e^- -центра; W_2 - вероятность спонтанного перехода в единицу времени с возбужденного на

основное состояние D_1e^- -центра.

2. В момент прекращения процесса создания центров окраски ($t=0$) в кристалле имеется некоторое число пар $\{D_1e^- - D_2e^+\}$, равное n ; плотность распределения пар $\{D_1e^- - D_2e^+\}$ по расстояниям r между их компонентами обозначена $n_1(r, 0)$. При этом в силе:

$$\int_0^{\infty} n_1(r, 0) dr = n,$$

где интегрирование выполняется по координате r (r - расстояние между электронным и дырочным центром, образующим пару). Формула интегрирования по r в пределах от 0 до ∞ корректна, если пары изолированы и $n_1(r, 0)$ будет монотонно спадающей функцией от r . Рассмотрим случай, когда пары $\{D_1e^- - D_2e^+\}$ изолированы, т.е. для большинства пар расстояние между их компонентами намного меньше среднего расстояния между парами.

3. В момент времени $t=t_0$ включается ФС в полосе оптического поглощения D_1e^- -центров и часть D_1e^- -центров с вероятностью w_1 переведется в возбужденное состояние - $(D_1e^-)^*$ центр. Обозначим через $n_2(r, t')$ плотность распределения пар $\{(D_1e^-)^* - D_2e^+\}$ по расстоянию r между их компонентами, или, другими словами, $n_2(r, t')$ - плотность распределения $(D_1e^-)^*$ -центров по расстоянию r между $(D_1e^-)^*$ - и D_2e^+ -центрами в изолированных парах $\{(D_1e^-)^* - D_2e^+\}$.

4. Для удобства составления и решения систем уравнений будут введены две новые системы отсчета времени t' и t'' при условиях: $t'=0$, если $t=t_0$; $t''=0$, если $t=t_0 + \Delta t'_0$, ($t=t_0$ - момент начала ФС, $\Delta t'_0$ - длительность ФС, $t=t_0 + \Delta t'_0$ или $t'= \Delta t'_0$ - момент выключения ФС). Из соотношений между моментами отсчета времени следует выражение для времени t при $t > t_0 + \Delta t'_0$:

$$t = t_0 + \Delta t'_0 + t'' \quad (1)$$

Далее рассчитаем изменение плотности распределения $n_1(r, t)$ под влиянием ФС в полосе оптического поглощения D_1e^- -центра. При отсутствии рекомбинации свободных носителей заряда с парами $\{D_1e^- - D_2e^+\}$ плотность распределения $n_1(r, t)$ изменяется во времени согласно уравнению туннельной рекомбинации [6]:

$$\frac{dn_1(r, t)}{dt} = -n_1(r, t) W_{01} e^{-r/r_{01}} \quad (2)$$

Интенсивность туннельной люминесценции выражается (см. [3,6]):

$$I(t) = - \int_0^{\infty} \frac{dn_1(r,t)}{dt} dr = \int_0^{\infty} n_1(r,0) e^{-W_{01} t} e^{-\gamma_{r01} t} W_{01} e^{-\gamma_{r01} t} dr, \quad (3)$$

что при известной функции $n_1(r,0)$ может быть проинтегрировано (в большинстве случаев только численно).

В момент $t=t_0$, который соответствует началу ФС, распределение $n_1(r,t)$, согласно (2), имеет вид:

$$n_1(r,t_0) = n_1(r,0) e^{-W_{01} t_0} e^{-\gamma_{r01} t_0}. \quad (4)$$

Вид функции $n_1(r,t)$ в момент окончания ФС $t'=\Delta t_0$ определим из системы линейных дифференциальных уравнений (5) (момент $t=t_0$ выберем новым началом отсчета времени: $t'=0$). Система (5) составлена, учитывая, что $n_1(r,t)$ и $n_2(r,t)$ во время ФС меняются под влиянием переходов, показанных на рис. 1. В работе [10] решена аналогичная система уравнений, только в той не учтено туннелирование с основного состояния $D_1 e^-$ центра в паре $\{D_1 e^- - D_2 e^+\}$.

$$\begin{cases} \frac{dn_2(r,t')}{dt'} = -[W_2(r) + W_2] n_2(r,t') + W_1 n_1(r,t'), \\ \frac{dn_1(r,t')}{dt'} = -[W_1(r) + W_1] n_1(r,t') + W_2 n_2(r,t'), \\ n_2(r,0) = 0, \\ n_1(r,0) = n_1(r,t_0). \end{cases} \quad (5)$$

Система уравнений (5) имеет точное, аналитическое решение для $n_1(r,t')$ и $n_2(r,t')$.

$$n_1(r,t') = n_1(r,t_0) \left[\frac{W_1}{g} e^{\frac{-(f_1+f_2)+g}{2} t'} - \frac{W_1}{g} e^{\frac{-(f_1+f_2)-g}{2} t'} \right],$$

$$n_2(r,t') = n_1(r,t_0) \left[\frac{f_2-f_1+g}{2g} e^{\frac{-(f_1+f_2)+g}{2} t'} + \frac{(f_1-f_2)+g}{2g} e^{\frac{-(f_1+f_2)-g}{2} t'} \right],$$

где

$$\begin{aligned} f_1 &= w_1 + w_1(r), \\ f_2 &= w_2 + w_2(r), \\ g &= \sqrt{(f_2 - f_1)^2 + 4w_1w_2}. \end{aligned}$$

После выключения ФС в течение времени $\Delta t \approx w_2^{-1}$ произойдет переход возбужденных электронных центров ($D_1 e^-$)* в основное состояние. Пренебрегая туннельной рекомбинацией в течение столь короткого времени $\Delta t = w_2^{-1}$, функцию распределения $n_i(r, \Delta t'_0 + \Delta t)$ в момент времени $t' = \Delta t'_0 + \Delta t$, непосредственно следующего моменту выключения фотостимуляции, с высокой точностью можно представить суммой $n_1(r, \Delta t'_0) + n_2(r, \Delta t'_0)$ (в системе отсчета времени t'):

$$\begin{aligned} n_i(r, \Delta t'_0 + \Delta t) \Big|_{\Delta t \rightarrow 0} &= n_i(r, t'_0) \left[\frac{2w_1 + (f_2 - f_1) + g}{2g} e^{-\frac{(f_1 + f_2) + g}{2} \Delta t'_0} + \right. \\ &\left. + \frac{-2w_1 + (f_1 - f_2) + g}{2g} e^{-\frac{(f_1 + f_2) - g}{2} \Delta t'_0} \right]. \end{aligned} \quad (6)$$

Дальнейшее изменение распределения после прекращения ФС (при $t > t_0 + \Delta t'_0$) происходит по закону (2) в связи с туннельными переходами электрона с основного состояния $D_1 e^-$ центров на $D_2 e^+$ -центры. Выбрав момент времени $t = t_0 + \Delta t'_0$ началом нового отсчета времени $t'' = 0$, имеем:

$$\begin{cases} \frac{dn_i(r, t'')}{dt} = -n_i(r, t'') w_{01} e^{-\gamma/r_{01}}, \\ n_i(r, 0) = n_i(r, 0) = n_i(r, \Delta t'_0 + \Delta t) \Big|_{\Delta t \rightarrow 0}. \end{cases} \quad (7)$$

Кинетика туннельной люминесценции после прекращения ФС описывается выражением, аналогичным (3):

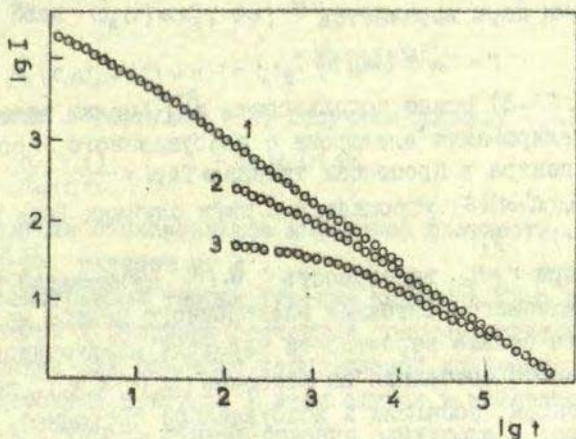
$$I(t'') = \int_0^\infty n_i(r, \Delta t'_0 + \Delta t) \Big|_{\Delta t \rightarrow 0} e^{-w_{01} t''} e^{-\gamma/r_{01} t''} w_{01} e^{-\gamma/r_{01}} dr. \quad (8)$$

Расчет $I(t'')$ ввиду сложности $n_i(r, \Delta t'_0 + \Delta t) \Big|_{\Delta t \rightarrow 0}$ как функции от r может быть выполнен только численно.

На рис. 2 приведены рассчитанные на ЗЕМ по формуле (3) (до фотостимуляции) и по формуле (8) (после фотостимуляции, но в системе отсчета времени t) кинетики туннельной лю-

минесценции $I(t)$ при наборе параметров, по порядку величины соответствующих F-центру в ШГК:

$$r_{01} = 10^{-8} \text{ см [11]}; r_{02} = 3 \cdot 10^{-8} \text{ см [12]}; \\ w_2 = 10^6 \text{ сек}^{-1} \text{ [13, с. 95]}; w_1 = 10^4 \text{ сек}^{-1}; w_{01} = 10^6 \text{ сек}^{-1}; w_{02} = 10^6 \text{ сек}^{-1}.$$



Р и с . 2. Тушение ТЛ при ФС (кинетики ТЛ, рассчитанные на ЭМ).

1 - контрольная кинетика ТЛ (без ФС); 2, 3 - кинетики ТЛ после ФС. Начало ФС при $t = t_0 = 100$ сек, длительность ФС $\Delta t_0 = 10^{-1}$ сек (2), $3 \cdot 10^{-1}$ сек (3).

Точные численные значения параметров w_1, w_{01}, w_{02} неизвестны; эти параметры выбраны из физических соображений. Вероятность перехода электронного центра в возбужденное состояние выбрана $w_1 = 10^4 \text{ сек}^{-1}$, что удовлетворяет соотношению $w_1 \ll w_2$ (ФС слабая). Нас интересует случай, когда при $r = r_{02} w_2(r) > w_1(r)$. Для выполнения этого условия достаточно принять $w_{01} = w_{02}$. Значение $w_{01} = 10^6 \text{ сек}^{-1}$ выбрано произвольно. Распределение пар $n, (r, 0)$ выбрано равномерным: $n, (r, 0) = \text{const}$.

Рассчитанные кинетики ТЛ (см. рис. 2) показывают характерные изменения кинетики ТЛ в результате ФС в полосе поглощения F-центров:

- 1) уменьшение интенсивности ТЛ,
- 2) изменение наклона кинетики ТЛ после ФС,
- 3) более пологая кинетика ТЛ после ФС, если длительность ФС увеличивается (ср. кривые 2 и 3 на рис. 2).

Это указывает на более эффективное разрушение пар с меньшим τ и, соответственно, меньшим t , так как в определенный момент времени t основной вклад в туннельную рекомбинацию дают пары, для которых $\tau = t$ и соответствующее расстояние между компонентами пары выражается ^X:

$$r = r_0 \ln (w_0 t) \quad (9)$$

Признаки 1)-3) можно использовать для оценки вклада механизма туннелирования электрона с возбужденного состояния электронного центра в процессах тушения ТЛ.

Решение $n_1(r, \Delta t'_0 + \Delta t)$ (6) упрощается в двух случаях (при условии, что $w_1(r) \ll w_2(r)$).

I. Если при $r > r_{02}$ вероятность $w_2(r)$ туннельной рекомбинации с возбужденного состояния электронного центра на дырочный центр много больше вероятности перехода электронного центра с возбужденного состояния на основное ($w_2(r) \gg w'_2$), то все электронные центры, попавшие в возбужденное состояние, разрушаются туннелированием электрона с возбужденного состояния электронного центра.

Тогда соотношение плотностей распределения пар в момент начала ФС - $n_1(r, t_0)$ и сразу после выключения ФС - $n_1(r, \Delta t'_0 + \Delta t)$ не зависит от r :

$$\frac{n_1(r, \Delta t'_0 + \Delta t)}{n_1(r, t_0)} = e^{-w_1 \Delta t'_0} \quad (10)$$

Плотность распределения пар $\{D_1 e^- - D_2 e^+\}$ при отсутствии ФС (контрольная кинетика ТЛ) обозначим через $n_{01}(r, t)$. Изменения плотностей распределений $n_1(r, t'')$ - при $t > t_0 + \Delta t'_0$ и $n_1(r, t)$ - происходят по закону (4) в связи с туннельными переходами с основного состояния $D_1 e^-$ -центра на $D_2 e^+$ -центр:

$$n_1(r, t'') = n_1(r, \Delta t'_0 + \Delta t) e^{-w_1(r)t''} \quad (II)$$

$$n_{01}(r, t) = n_1(r, 0) e^{-w_1(r)t} \quad (IIa)$$

^X См. настоящий сборник, с. 16.

Используя формулы (I), (IO), (II), (IIa) и упрощения, вытекающие из условий $w_2(r) \gg w_1$, $w_1(r) \ll w_2(r)$, получим, что относительное изменение плотности распределения пар $\frac{n_1(r,t)}{n_{01}(r,t)}$ в результате ФС не зависит от r :

$$\frac{n_1(r,t)}{n_{01}(r,t)} = \lg e \cdot e^{-w_1 \Delta t_0} \quad (I2)$$

2. Если $w_2(r) \ll w_1$, то

$$n_1(r, \Delta t_0 + \Delta t) = n_1(r, t_0) e^{-\frac{w_1}{w_2} w_2(r) \Delta t_0} \quad (I3)$$

По аналогии с формулой (I2) получаем формулу (I4):

$$\frac{n_1(r,t)}{n_{01}(r,t)} = \lg e \cdot e^{-\frac{w_1}{w_2} w_2(r) \Delta t_0} \quad (I4)$$

В этом случае относительное изменение плотности распределения $\frac{n_1(r,t)}{n_{01}(r,t)}$ зависит от r .

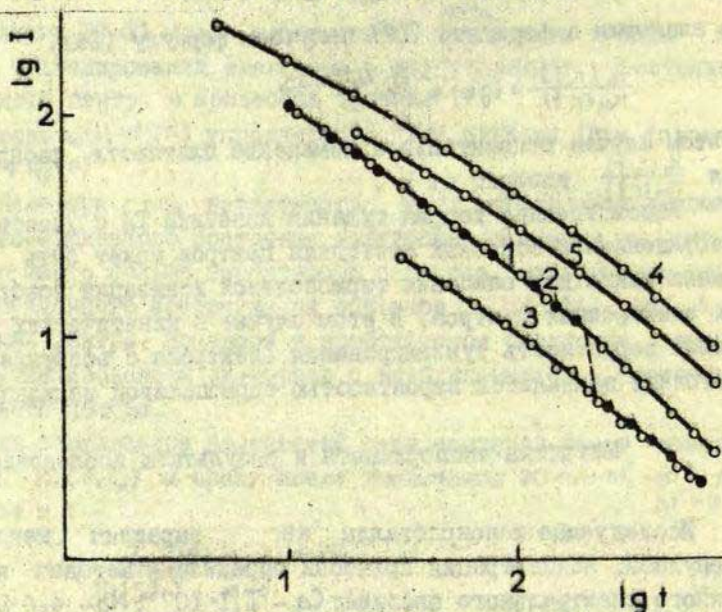
Рассмотренная теория тушения кинетики ТЛ с участием возбужденных и основных состояний центров может быть применена также для описания термополевой ионизации возбужденных электронных центров. В этом случае в кинетических уравнениях вероятность туннелирования электрона с возбужденного состояния заменяется вероятностью термополевой ионизации.

Методика эксперимента и результаты исследований

Исследуемые монокристаллы KBr выращены методом Киропулоса. Концентрация примесей определена методом эмиссионного спектрального анализа: Ca - $1,1 \cdot 10^{-4}$; Na - $4,6 \cdot 10^{-3}$; Mg - 10^{-4} ; $\text{Cu} < 3 \cdot 10^{-5}$ мол.%. Для экспериментов выкалывали образцы размерами $8 \times 8 \times 0,4$ мм³. Образец помещали в криостат для оптических исследований. Температуру образца контролировали вклеенной в него медьконстантановой термопарой. Образцы возбуждали рентгеновскими лучами (трубка ВСВ2-В, напряжение 46 кВ, ток 15 ма). Для выделения полосы ТЛ пар $\{F - \sqrt{K}\}$ (максимум 2,4 эв в KBr) при измерении кинетики ТЛ использовали светофильтр ЖС-12. ТЛ стимулировалась лампой накаливания KI2/90 через монохроматор SPM-I в полосе поглощения F-центра кристалла KBr. Температуру образца во время фотостимуляции и во время всего цикла измерений

поддерживали 80°K , чтобы фототермическая ионизация F-центра была минимальной. Перед каждым рентгеновским возбуждением образец прогревали до 350°K .

В результате ФС произошло разрушение пар $\{F-V_k\}$, на что указывали изменения кинетики ТЛ. Для оценки характера изменений кинетики ТЛ и с целью установления механизма воздействия ФС на туннельные рекомбинационные процессы использовали кинетику ТЛ (см. рис. 2), рассчитанные на ЭВМ для случая тушения ТЛ туннелированием электрона с возбужденного состояния F-центра на V_k -центр во время фотостимуляции.



Р и с. 3. Кинетики ТЛ пар $\{F-V_k\}$ кристалла KBr при 80°K .

Кривые 1, 2, 3 показывают кинетику ТЛ при рентгеновском возбуждении в режиме 1 мин, 46 кв, 15 ма; 4, 5 - в режиме 6 мин, 46 кв, 10 ма.

1, 4 - контрольные кинетики ТЛ (без ФС); 2, 3, 5 - кинетики ТЛ после ФС.

Начало ФС при $t = t_0$ после рентгенизации; $t_0 = 0$ сек (3), (5); $t_0 = 200$ сек (2); длительность ФС $\Delta t_0 = 30$ сек (2), (3); $\Delta t_0 = 15$ сек (5).

Экспериментально измеренная кинетика ТЛ (кривая 3 на рис.3) показывает:

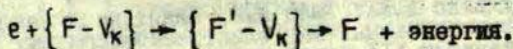
1) после ФС в F-полосе оптического поглощения интенсивность ТЛ уменьшается;

2) после ФС изменяется наклон кинетики ТЛ — кинетика ТЛ становится более пологой, что указывает на более эффективное разрушение во время ФС пар $\{F-V_K\}$ с меньшим r между F- и V_K -центрами. Интервал расстояний соответствует временам жизни τ в интервале от 10 до 10^3 сек, так как кинетики ТЛ после ФС измерялись в интервале времени t от 10 до 10^3 сек (см. условие $t \approx \tau$ при формуле (9)). Разрушение пар, зависящее от расстояния r между компонентами в паре $\{F-V_K\}$, может быть вызвано:

— туннелированием электрона с возбужденного состояния F-центра на V_K -центр в паре $\{F-V_K\}$;

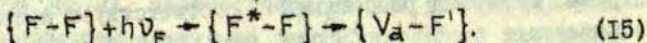
— термополевой ионизацией возбужденного состояния F-центра внутрикристаллическим полем V_K -центра [15].

Рассчитанные нами кинетики затухания ТЛ после ФС показывают, что: 1) эффект туннелирования в паре $\{F^*-V_K\}$ способен вызвать тушение ТЛ; 2) изменение кинетики ТЛ после ФС (рис.2) качественно согласуется с экспериментально наблюдаемым изменением кинетики ТЛ (рис.3). Наряду с процессом разрушения пар $\{F^*-V_K\}$ туннелированием электрона с возбужденного состояния F-центра протекает процесс, вызывающий разрушение пар $\{F-V_K\}$, не зависящее от расстояния r . Соотношения эффективности действия обоих процессов зависят от дозы рентгеновского облучения. Увеличивая дозу рентгеновского облучения, можно достичь, что ФС F-светом также вызывает уменьшение интенсивности ТЛ, но кинетика ТЛ после ФС остается параллельной контрольной кинетике ТЛ (кривые 5 и 4 на рис.3). Разрушение пар $\{F-V_K\}$, не зависящее от расстояния r , может быть вызвано рекомбинацией свободных электронов с V_K -центрами, поскольку F-центр, будучи нейтральным, мало влияет на сечение захвата электрона V_K -центром. Также возможен захват электрона F-центром с образованием F' -центра и с последующим туннелированием в паре $\{F'-V_K\}$:



Возникает вопрос о механизмах создания свободных электронов, так как вероятность фототермической ионизации F-центра при температурах жидкого азота мала. Для ионизации F-центра, входящего в пару {F-F}, предложено несколько механизмов:

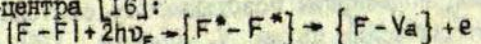
1) туннелирование в паре {F*-F} создаст F'-центры [14]:



Из-за перекрытия F- и F'-полос оптического поглощения возможна ионизация F'-центра F-светом с созданием свободного электрона [14]:



2) теоретически оценивался вероятным механизм автоионизации F-центра [16]:



С увеличением дозы рентгеновского возбуждения возрастает концентрация F-центров, следовательно, концентрация пар {F-F}, что увеличивает вероятность создания свободных электронов при ФС F-светом (реакции (15,16)).

На основе выше сказанного можно сделать вывод, что тушение ТЛ пар {F-V_K} под влиянием ФС в F-полосе кристалла KBr при 80°K происходит в результате:

1) туннелирования электрона с возбужденного состояния F-центра на V_K-центр в паре {F-V_K} ;

2) рекомбинации свободных электронов с V_K-центрами пары {F-V_K} .

ЛИТЕРАТУРА

1. Delbecq C.J., Ghosh A.K., Yuster P.H. Trapping and Annihilation of Electrons and Positive Holes in KCl-Tl-Cl.- "Phys.Rev.", 1966, 151, p.599-609.

2. Богач Я.Р. Туннельная люминесценция чистых и активированных Tl и Ag щелочно-галогидных кристаллов. - "Изв. АН Латв.ССР. Сер. физ. и техн. наук", 1969, 3, с.57-62.

3. Гайлитис А.А., Тале И.А. Кинетика туннельной люминесценции изолированных пар электронно-дырочных центров. - В кн.: "Материалы XIX совещания по люминесценции", гл. I, Рига, 1970, с.179-182.

4. Боган Я.Р., Валдис Я.А., Кандерс У.К., Лейнерте-Нейланде И.Ф., Миллер Д.К., Нагорный А.А., Тале И.А. Туннельная люминесценция чистых и активированных Tl и Au щелочно-галогидных кристаллов. - "Изв.АН СССР. Сер.физ.", 1973, 37, с.741-746.

5. Боган Я.Р., Лейнерте-Нейланде И.Ф., Кандерс У.К.- Процессы генерации и разрушения пар в щелочно-галогидных кристаллах. Уч.зап.ЛГУ, т.193. Электронные и ионные процессы в ионных кристаллах, вып.1. Рига, 1973, с.138-150.

6. Thomas D.G., Hopfield J.J., Augustyniak W.K. Kinetics of Radiative Recombination at Randomly Distributed Donors and Acceptors. - "Phys.Rev.", A, 1965, 140, p.202-220.

7. Fedders H., Hunger M. and Mity F. A Comprehensive Study of a Simple Photoconductive Phosphor. - "J.Phys.Chem. Sol.", 1961, 22, p.299-307.

8. Jaek I., Kink M. Tl⁰, Ga⁰ and In⁰ Centres in KCl Crystals. - "Phys.status solidi (b)", 1973, 56, p.375-351.

9. Гайлитис А.А. Зависимость кинетики туннельной люминесценции от взаимного распределения электронных и дырочных центров. - Уч.зап.ЛГУ, т.193. Электронные и ионные процессы в ионных кристаллах, вып.1. Рига, 1973, с.17-23.

10. Попова М.Н., Калинь Р.А. К вопросу о кинетике активаторного свечения, стимулированного светом из области F-полосы поглощения. - Уч.зап.ЛГУ, т.193. Электронные и ионные процессы в ионных кристаллах, вып.1. Рига, 1973, с.70-93.

11. Grachev V.G., Deigen M.F., Neymark H.I. and Pekar S.I. Determination of Band Structure of Some Alkali Halide Crystals by Electron-Nuclear Double Resonance (ENDOR) Data on F-Centre- "Phys.status solidi (b)", 1971, 43, p. K93-K98.

12. Mollenauer L.F. and Baldacchini G. Empirically Determined Wave Function for the Relaxed Exited State of the F-Center in KI. - "Phys.Rev.Lett.", 1972, 29, p.465-468.

13. Markham J.J., F-Centers in Alkali Halides. New York and London. Academic Press. 1966. 400 p.

14. Porret F., Mity F. Luminescence and F' Formation Involving Spin Polarized F Centers in KCl. - "Phys.Rev.Lett.", 1971, 26, 843-846.

15. Парфианович И.А., Мартынович Е.Ф. Взаимодействие электронных и дырочных центров и кинетика малоинерционной люминесценции. - "Изв. АН Латв.ССР. Сер.физ. и техн. наук", 1972, 1, с.38-45.

16. Березин А.А. Автоматизационный распад в системе возбужденных F-центров окраски. - "Оптика и спектроскопия", 1969, 27, с.536-538.

И.К.Витол, А.А.Гайлитис, В.Я.Грабовский

ЗАКОН БЕККЕРЕЛЯ И ОЦЕНКА РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ИЗОЛИРОВАННЫХ ПАР ЭЛЕКТРОННО-ДЫРОЧНЫХ ЦЕНТРОВ ПО РАССТОЯНИЯМ МЕЖДУ ИХ КОМПОНЕНТАМИ ^X

Приведен краткий обзор некоторых выводов закона Беккереля для кинетики затухания люминесценции при постоянной температуре кристаллофосфора. Рассмотрены случаи, когда теоретически можно вывести асимптотический аналог закона Беккереля. Численным моделированием определены условия, при которых вероятность спонтанного излучательного перехода электрона между состояниями, центрированными на пространственно разделенных дефектах, можно считать экспоненциально зависящей от взаимного расстояния дефектов. Обсуждаются три метода, позволяющие анализом закона затухания туннельной люминесценции оценить плотность вероятности распределения изолированных пар электронно-дырочных центров по расстояниям между их компонентами. Рассмотрен случай оценки плотности распределения электронно-дырочных пар по расстояниям между их компонентами методом парциальных светосумм.

В в е д е н и е

Беккерель ^{XX} и вслед за ним многие авторы установили, что эмпирические данные кинетики затухания люминесценции $I(t)$ - зависимость интенсивности люминесценции I от времени t в чрезвычайно широком классе кристаллофосфоров хорошо аппроксимируется эмпирической формулой

$$I(t) = \frac{I(0)}{(1 + \beta t)^\alpha} \quad (1)$$

или ее асимптотическими аналогами типа

$$I(t) = I(0)t^{-\alpha} \varphi(t), \quad (2)$$

^X Содержание доклада, представленного на Международной конференции люминесценции в Ленинграде, 1972.

^{XX} Becquerel E. - "Ann. chim. et phys.", 1861, 62, p.5.

где $\varphi(t)$ — медленно меняющаяся функция времени t , при этом $\varphi(t)$ в разных системах может иметь различное аналитическое выражение. Функция $\varphi(t)$ во всех случаях, независимо от ее аналитического выражения, запрещает появление бесконечных значений интенсивности люминесценции при $t=0$, т.е. величины $I(0)$.

Ниже приводится краткий обзор случаев, когда оказывается возможным теоретически вывести закон Беккереля или его асимптотические аналоги. Рассматривается модель Шёна-Классенса (рекомбинационные явления, включающие делокализацию электронов с ловушек; пребывание электрона в зоне проводимости; рекомбинация электрона с ионизированными центрами излучения одного сорта) и модель, при которой рекомбинация происходит без пребывания электрона в зоне проводимости. Если рекомбинация происходит без пребывания электрона в зоне проводимости, то осуществляется спонтанный излучательный переход электрона между пространственно разделенными локализованными состояниями (туннельная или межпримесная рекомбинация). Строго говоря, между динамическим процессом рекомбинации электронов с локализованными центрами излучения, включая кратковременное пребывание электрона в зоне проводимости, и спонтанными излучательными переходами между пространственно разделенными локализованными состояниями четко определенной границы нет. В специфических режимах эксперимента один процесс плавно переходит в другой (режим фракционного высвечивания). В данной работе рекомбинация с участием зонных состояний и туннельная рекомбинация рассматривается отдельно.

Модель Шёна-Классенса

В рамках зонной модели кристаллофосфора для кинетики затухания люминесценции выражение (I) получается только в специальных случаях, из которых можно отметить два.

I. Закон (I) формально следует из кинетического уравнения (см. [1])

$$\begin{cases} \frac{dn}{dt} = -\rho n^{\frac{\alpha}{\alpha-1}}, \\ n(0) = n_0; \alpha > 1, \end{cases} \quad (3)$$

2007-18-74

где n — концентрация ионизированных центров излучения, α и ρ — параметры. Для согласия с выражением (1) следует положить, что

$$b = \frac{\rho n_0}{\alpha - 1}.$$

При произвольных значениях параметра α ($\alpha \neq 2$ и $\alpha \neq \infty$) теоретическим путем получить (3) невозможно. Уравнение (3) было использовано несколькими авторами [2-5], несмотря на то, что аналитический вывод (3) при произвольных значениях α невозможен. Строгий вывод (3) в рамках достаточно общей модели при $\alpha = 2$ получен в работах [6-8]. Точно также аппроксимация закона затухания люминесценции в рамках зонной модели кристаллофосфора выполнима лишь приближенно [6-12].

В принципе доказательство закона (1) выполнимо при $\psi \neq \text{const}$ [13], однако необходимо учитывать функцию взаимного пространственного распределения рекомбинирующих партнеров [6, 14].

2. Было высказано предположение [15], что сложные законы затухания порождены распадом центров излучения с разными временами жизни τ . Э.И. Адирович показал [11], что выражение (1) получается, если в момент прекращения возбуждения кристаллофосфора сформировано следующее исходное распределение центров излучения по τ :

$$n(\tau, 0) = \frac{\exp(-\frac{1}{\beta\tau})}{\tau^\alpha}. \quad (4)$$

Выше упомянутое распределение, однако, постулировано без вывода. В работе [9] рассмотрен закон затухания, который реализуется при термическом опустошении сложного спектра ловушек (плотность распределения ловушек по энергиям термической активации экспоненциально зависит от энергии), и получен асимптотический аналог закона Беккереля. В пределе больших времен t получено выражение

$$I(t) = \frac{kT}{t + \beta kT}, \quad (5)$$

где β — параметр, входящий в выражение для плотности распределения ловушек по энергиям термической активации.

Следует отметить, что экспериментальные данные (кинети-

ка затухания люминесценции в изотермическом режиме) часто недостаточны для проверки исходных гипотез. Исходными гипотезами понимаются предельные случаи, приводящие к кинетике второго порядка (гиперболический закон затухания типа (1) с $\alpha = 2$), к кинетике первого порядка (экспоненциальный закон затухания) или к кинетике, при которой можно говорить лишь о мгновенном порядке кинетики, меняющемся во время опустошения ловушек.

Для проверки исходных гипотез более пригодны неизотермические методы, использующие специфические режимы нагрева кристаллофосфора [17-20].

Туннельная рекомбинация

Кинетика затухания туннельной люминесценции определяется начальным распределением туннелирующих пар электронно-дырочных центров по расстояниям между их компонентами r - функцией $n(r, 0)$, а также вероятностью спонтанного междоимесного перехода $\omega(r)$. Величина $\omega(r)$ в случае, если волновые функции партнеров сильно отличаются по радиусам, имеет вид [21-24]:

$$\omega(r) = \frac{1}{\tau(r)} = \omega_0 \exp\left(-\frac{r}{r_0}\right), \quad (6)$$

где ω_0 и r_0 - постоянные, расчет которых в принципе должен следовать из квантовомеханических предположений.

Рассмотрим примеры реализации различных начальных распределений $n(r, 0)$ и соответствующие этим распределениям законы затухания туннельной люминесценции $I(t)$.

В частном случае, который является предельным случаем более сложных выражений $n(r, 0)$, положим

$$n(r, 0) = n_0 = \text{const}. \quad (7)$$

Выдержим время t_0 кристаллофосфор, в котором туннелирующие пары созданы так, что распределение их компонентов по расстояниям соответствует функции (7). Тогда распределение $n(r, t_0)$, как это легко проверить решением кинетического урав-

дення

$$\frac{dn(r,t)}{dt} = -n(r,t) W_0 \exp\left(-\frac{r}{f_0}\right),$$

будет иметь вид:

$$n(r,t_0) = n_0 \exp\left\{-W_0 t_0 \exp\left(-\frac{r}{f_0}\right)\right\}. \quad (8)$$

Считая момент $t = t_0$ за новое начало отсчета времени, дальнейшее изменение $n(r,t)$ следует закону

$$n(r,t) = n_0 \exp\left\{-W_0 (t+t_0) \exp\left(-\frac{r}{f_0}\right)\right\}, \quad (9)$$

что дает закон затухания

$$I(t) = - \int_0^{\infty} \frac{dn(r,t)}{dt} dr = \frac{I(0)}{1+t_0^{-1}t}, \quad (10)$$

Сравнением формулы (10) с формулой (1) можно установить, что постоянная b в (1) определена продолжительностью выдержки кристаллофосфора t_0 .

При хаотическом распределении электронных и дырочных центров по объему кристаллофосфора получаем модель, рассмотренную в работах [22-25]. Закон затухания в пределе низкой концентрации электронных и дырочных центров не сводится к выражениям типа (1) и (2). Асимптотически (для больших времен) в силе закон затухания

$$I(t) \sim \frac{\ln^2(W_0 t)}{t}. \quad (11)$$

Тот же результат легко получить при хаотическом распределении электронных и дырочных центров, рассматривая распад распределения пар, определяемого плотностью вероятности нахождения ближайшего соседа на расстоянии r

$$p(r) = 4\pi r^2 n \exp\left(-\frac{4}{3}\pi r^3 n\right),$$

если ограничиваться интервалом времен, в котором еще применимо приближение изолированных пар. Для больших времен в рассмотрение должны быть включены тройки центров, четверки, и т.д. и в силе модель, рассмотренная в работах [22, 25, 26].

При оптической ионизации центров люминесценции и высо-

кой концентрации центров захвата может реализоваться следующий случай: электрон (или дырка, H-центр) может быть захвачен в окрестности своего партнера.

В частном случае, когда электрон захватывается после прямолинейного пробега, вероятность локализации его на ловушке, расположенной на расстоянии r от ионизированного центра излучения, имеет вид

$$p(r) = \frac{1}{R_0} \exp(-r/R_0), \quad (12)$$

где R_0 — среднее по ансамблю расстояние между компонентами пар ионизированный центр излучения-захваченный на ловушке электрон. Использование формулы (6) кинетического уравнения, учитывающего образование и распад пар и плотность (12), получаем исходное распределение электронно-дырочных центров по расстояниям между их компонентами

$$n(r, t) = \frac{CE \exp(-r/R_0)}{R_0 W_0 \exp(-r/R_0)} \left\{ 1 - \exp[-W_0 t_0 \exp(r/R_0)] \right\}, \quad (13)$$

где C — постоянная, t_0 — продолжительность возбуждения, E — интенсивность возбуждающего света. Закон распада данного распределения рассмотрен в работе [27].

Существенно, что форма кривой затухания в основном определена продолжительностью возбуждения. Закон затухания для времен $t \gg t_0$ имеет вид

$$I(t) \sim t^{-(1+r/R_0)} \quad (14)$$

Асимптотический аналог закона Беккереля получается также при замене экспоненциальной плотности вероятностей (12) на плотность

$$p(r) = \alpha^2 r \exp(-\alpha r). \quad (15)$$

Данный случай реализуется, когда электрон не захватывается в конце прямолинейного пробега относительно ионизированного центра рекомбинации, но совершает случайное блуждание (типа движения броуновской частицы) в окрестности центра излучения, от которого он оторван при возбуждении; лишь после этого электрон захватывается на ловушке в окрестности центра излучения [6].

Для $t \gg 1/W_0$ закон затухания в этом случае имеет вид:

$$I(t) \sim \frac{1 + \ln(W_0 t)}{(W_0 t)^{1 + \alpha/\tau_0}} \quad (16)$$

Закон Беккереля или его асимптотический аналог, возможно, получается и в случае, когда одна из компонент туннелирующей пары является подвижной и диффундирует, подобно V_K -центру, выше температуры автолокализации. Этот вопрос обсуждается в работе [26].

Все же нельзя утверждать, что физические причины реализации закона Беккереля и его асимптотических аналогов поняты до конца. Есть основание предполагать, что реализуются и другие ситуации, теоретический анализ которых приведет к этому закону.

Метод парциальных светосумм и метод интегрального уравнения

Нетрудно показать, что на основе экспериментальных данных кинетики затухания туннельной люминесценции можно приближенно восстановить вид исходной функции распределения пар по расстояниям между их компонентами - величины $n(r, 0)$. Для этого на опыте можно измерить ряд светосумм $S_a(t)$ в следующих друг другу интервалах времени Δt_a , где Δt_a - интервал времени, начальной точкой которого является t/a , а конечной - at . Здесь a - произвольно выбранное положительное число, причем выполнено условие $a > 1$. При обработке экс-

периментально полученного закона затухания постоянная α не меняется, переходя от одного временного интервала к другому. Из формулы (6) следует

$$n(r, t) = n(r, 0) \exp \left\{ -W_0 t \exp(-r/r_0) \right\}. \quad (17)$$

Считая, что в центрах излучения все электронные переходы являются только излучательными, имеем

$$\begin{aligned} S_a(t) &= \int_0^{\infty} [n(r, t/a - n(r, at)] dr = \\ &= \int_0^{\infty} n(r, 0) \left[\exp \left\{ -\frac{W_0 t}{a} \exp(-r/r_0) \right\} - \right. \\ &\quad \left. - \exp \left\{ -W_0 at \exp(-r/r_0) \right\} \right] dr. \end{aligned} \quad (18)$$

Разность двух экспонент в выражении (18) отличается от нуля в окрестности расстояний между компонентами пар $r = \bar{r}$, в которой функция $n(r, 0)$ будем считать приближенно постоянной (независимой от r). Тогда, интегрируя выражение (18) при этом дополнительном упрощении, получаем:

$$S_a(t) \approx n(\bar{r}, 0) 2r_0 \ln a, \quad (19)$$

где величина $\bar{r}(t)$ — расстояние между элементами пар, при котором в данный момент времени t скорость распада туннелирующих пар максимальна. Нетрудно показать, что

$$\bar{r}(t) = r_0 \ln(W_0 t). \quad (20)$$

Формулу (20) получим при требовании, чтобы

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(-\frac{\partial n(r, t)}{\partial t} \right) = 0, \quad (21)$$

причем здесь принято дополнительное ограничение на функцию $n(r, 0)$:

$$\frac{1}{n(r, 0)} \frac{dn(r, 0)}{dr} \cdot r_0 \ll 1. \quad (22)$$

Последнее условие означает, что в интервале расстояний между компонентами пар, равном r_0 , функцию $n(r, 0)$ можно считать слабо зависящей от r .

Рассмотрим второй метод - метод интегрального уравнения. Для этого, используя экспериментальные данные кинетики затухания туннельной люминесценции, следует искусственно оформить величину $I(t) \cdot t$. На основе соотношений (17) и (20) и формулы

$$I(t) = - \int_0^{\infty} \frac{dn(r,t)}{dt} dr$$

получим интегральное уравнение Фредгольма I рода с несимметричным ядром:

$$I(t) \cdot t = \int_0^{\infty} n(r,0) \exp\left(-\frac{r-\bar{r}}{r_0}\right) \exp\left\{-\exp\left(-\frac{r-\bar{r}}{r_0}\right)\right\} dr. \quad (23)$$

Видно, что $I(t) \cdot t$ является искаженным отображением неизвестной функции $n(r,0)$. Чтобы решить интегральное уравнение (23), каждому моменту времени необходимо сопоставить $\bar{r} = r_0 \ln(W_0 t)$, т.е. знать численные величины постоянных r_0 и W_0 . Приняв опять, как и выше, что в окрестности $\bar{r} = r_0 \ln(W_0 t)$ величина $n(r,0)$ приближенно равна $n(\bar{r},0)$, можно проинтегрировать (23) и получить соотношение

$$I(t) \cdot t \approx n(\bar{r},0) \cdot r_0 \left[1 - \exp\left\{-\exp\left(\bar{r}/r_0\right)\right\}\right]. \quad (24)$$

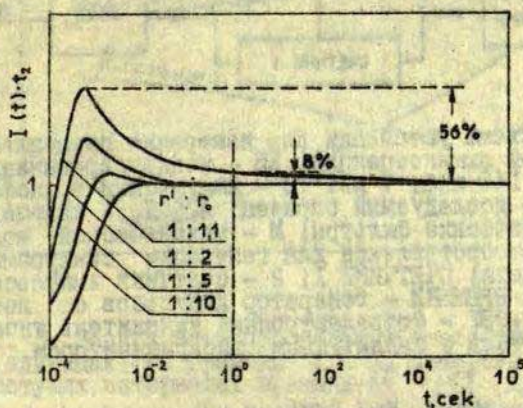
Видно, что $n(r,0)$ можно оценить с помощью $I(t) \cdot t$ (третий метод). Строго говоря, все выше сказанное в силе лишь при выполнении соотношения (6): вероятность спонтанного излучательного перехода электрона между состояниями, центрированными на разных узлах или междоузлиях решетки, экспоненциально зависит от расстояния r между компонентами пары.

В работе [21] приведено общее выражение для $W(r)$, причем здесь эффективные радиусы волновых функций (в водородоподобном приближении) для электронных и дырочных центров (обозначим их r_0 и r_0') могут иметь произвольные значения. Выражение для $W(r)$ в этом, более общем случае имеет вид [21]

$$W(r) = C_0 \frac{8}{\sqrt{r_0^3 r_0'^3}} \left\{ \frac{r_0^3 \cdot r_0'^3}{(r_0^2 - r_0'^2)^3} (r_0 e^{-r/r_0} + r_0' e^{-r/r_0'}) - \frac{4 r_0^5 r_0'^5}{(r_0^2 - r_0'^2)^3} \cdot \frac{1}{r} (e^{-r/r_0} - e^{-r/r_0'}) \right\}. \quad (24a)$$

Для проверки, возможно ли вместо (24а) использовать выражение (6), нами численно рассчитывалась величина $I(t) \cdot t$, являющаяся искаженным изображением (согласно (23) функции $n(r,0)$ при дополнительном предположении $n(r,0) = \text{const}$. При этом были взяты различные соотношения между величинами r_0 и r_0' .

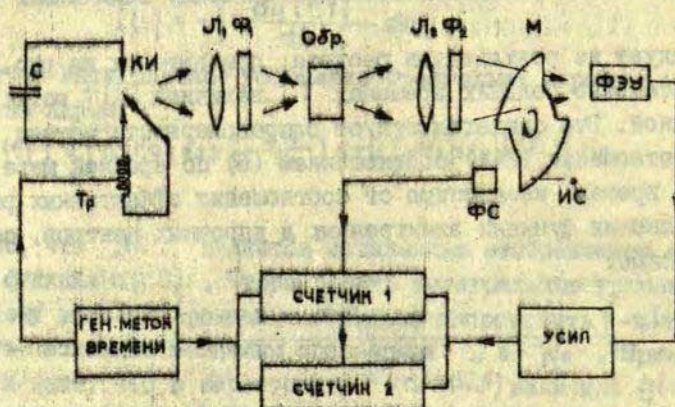
Как следует из результатов расчета, приведенных на рис. I, при достаточно больших временах t величина $I(t) \cdot t$ остается постоянной. Это свидетельствует о правомерности замены общего соотношения (24а) соотношением (6) по крайней мере для больших времен, независимо от соотношения эффективных радиусов волновых функций электронных и дырочных центров, образующих пары.



Р и с. I. Зависимость $I(t) \cdot t$ от t для туннельной рекомбинации пар с постоянной плотностью распределения компонентов по расстояниям при разных отношениях радиусов волновых функций компонентов r_0' / r_0 .

Метод парциальных светосумм был использован для изучения распределения радиационных дефектов в паре по расстояниям $n(r,0)$ в KBr и KBr-KJ . В образцах KBr при азотных температурах наблюдается туннельная люминесценция, связанная с электронными переходами в паре $\{F-V_K\}$ [30, 31, 32], а в KBr-KJ — еще и туннельная люминесценция, связанная с элект-

ронными переходами в паре $\{F-(BrJ)\}$ и $\{F-(J_2)\}$. x



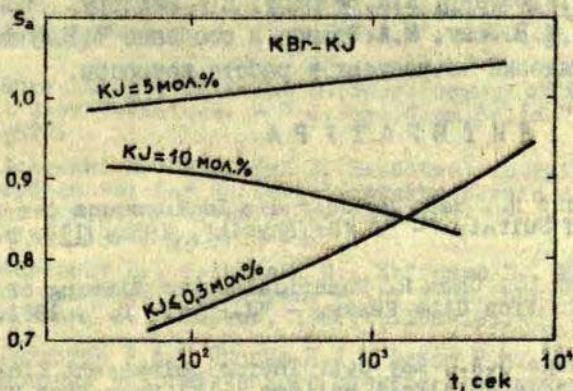
Р и с. 2. Схема установки для измерения парциальной светосуммы туннельной люминесценции; КИ - конденсированная искра; С - конденсатор 140 мкф, 7 кв; Тр - импульсный трансформатор зажигания; Обр - исследуемый образец; Л₁, Л₂ - кварцевые линзы; Ф₁, Ф₂ - оптические фильтры; М - механический модулятор света; ФС - фотосопротивление для генерации синхроимпульсов; ИС - источник света; СЧЕТЧИКИ 1; 2 - счетчики импульсов типа ЧЗ-22; ГЕН. МЕТОК ВРЕМЕНИ - генератор импульсов с логарифмическим периодом; ФЭУ - фотоелектронный умножитель типа ФЭУ-39 УСИЛ - усилитель с амплитудным дискриминатором.

Наилучшим условием, при котором определить $n(r, t)$ по измеренным значениям $S_d(t)$, следует считать создание изолированных пар дефектов. Экспериментально это наиболее точно выполнимо возбуждением образца слабо поглощающимся светом на спаде экситонного поглощения. Такое возбуждение вызывает малоинтенсивную туннельную люминесценцию. Регистрируется это слабое свечение методом счета фотонов (см. рис. 2).

Образцы KBr и KBr-KJ выращены методом Киропулоса из

x См. настоящий сборник, с. 31.

расплава, содержащего 0,3; 5 и 10 мол.% иода. Перед экспериментом изучаемые образцы прогревают до температуры 500°K . Их возбуждают светом из конденсированной искры в области длин волн $\lambda > 190 \text{ нм}$. Температура возбуждения 150°K ; температура измерения — 77°K . Светосуммы $S_a(t)$ измеряют в интервале времени от 30 до 6000 сек, а входящий в формулу (19) параметр a равен $\sqrt{2}$. Спектральный диапазон измерения туннельной люминесценции 200–600 нм. Светосумма в данной экспериментальной установке определяется как разность показаний двух счетчиков импульсов, вычитающих темновой фон.



Р и с. 3. Зависимость парциальных светосумм S_a (в относительных единицах) от времени t . S_a измерены в логарифмически растущих интервалах времени от $t/\sqrt{2}$ до $\sqrt{2}t$.

Результаты измерений показывают (см. рис.3), что в KBr и KBr-KJ с концентрацией иода до 0,3 мол.% большая часть радиационных дефектов в паре удалены на расстояниях, превышающих радиус эффективных туннельных переходов с постоянной времени $10-10^3$ сек. В образце с более высокой концентрацией иода расстояние между дефектами уменьшается. При концентрации иода 10 мол.% расстояние между дефектами становится таким, что происходят эффективные туннельные переходы с постоянной времени $10-10^3$ сек.

Механизм уменьшения расстояний между радиационными дефектами в паре может быть объяснен и захватом одной ком-

поненты пары ионами мода и рассеиванием фокусона ионами мода.

Таким уменьшением расстояния между радиационными дефектами в паре объясняется уменьшение эффективности создания стабильных радиационных дефектов при увеличении концентрации мода [34], так как большая часть дефектов в паре находится на расстоянии эффективного туннелирования с постоянной времени, которая меньше или равна 10 сек.

Приведенные выше результаты согласуются с существующими [33] представлениями о механизмах генерации радиационных дефектов в щелочно-галогидных кристаллах.

Авторы приносят глубокую благодарность В.В.Антонову-Романовскому, Я.Р.Богану, Я.А.Валбису, Д.К.Миллеру, И.А.Тале, Н.А.Толстому, М.В.Фоку, М.А.Эланго и особенно Ч.Б.Лушику за полезное обсуждение затронутых в работе вопросов.

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. Gobrecht H., Hahn D. Über die Lumineszenz der Alkalisulfide und Sulfate. - "Z.für Physik", 1952, 132, p.123-128.
2. Shenker D., Chen R. Numerical Curve Fitting of General Order Kinetics Glow Peaks. - "J.Phys., D.", 1971, 4, p.287-291.
3. Partridge J.A., May C.E. Thermoluminescent Kinetics of Alpha - Irradiated Alkali Halides. - "J.Chem.Phys.", 1964, 40, p.1401-1409.
4. Cappaletti R., Benedetti E. Aggregation of Divalent Impurities in Sodium Chloride Doped with Cadmium. - "Phys. Rev.", 1968, 165, p.981-985.
5. Nihoul J., Stals L. On the Reaction Order of Bimolecular Recovery Processes in Solids. - "Phys.status solidi", 1966, 17, p.295-305.
6. Антонов-Романовский В.В. Кинетика фотолуминесценции кристаллофосфоров. М., "Наука", 1966. 324 с.
7. Фок М.В. Введение в кинетику люминесценции кристаллофосфоров. М., "Наука", 1964. 283 с.
8. Адирович Э.И. Некоторые вопросы теории люминесценции кристаллов. М.-Л., 1951.
9. Randall J.T., Wilkins M.H.F. - Phosphorescence and Electron Traps. - "Proc.Roy.Soc.", 1945, A 184, p.366-389.
10. Адирович Э.И. Приведенный закон затухания флуоресценции кристаллов. - "Ж.эксперим. и теор. физ.", 1948, 18, с.58-73.

11. Адирович Э.Н. Элементарный закон затухания кристаллического свечения. - "Изв.АН СССР. Сер. физ.", 1946, 10, с. 467-487.
12. Элиашберг Г.М. О законе затухания для зонных моделей кристаллофосфоров. - "Оптика и спектроскопия", 1956, 1, с.230-239.
13. Антонов-Романовский В.В. О кинетике фосфоресценции. - "ДАН СССР. Новая серия", 1952, 85, 3, с.517-520.
14. Антонов-Романовский В.В. О диффузионной кинетике рекомбинационной люминесценции. - "Изв.АН СССР. Сер. физ.", 1971, 35, с.1290-1298.
15. Niggli P. Krystallographische und strukturtheoretische Grundbegriffe. - In: Handbuch der Experimentalphysik, 7. I. Teil. Leipzig, Akademische Verlagsgesellschaft M.V.B., 1928. 317 S.
16. Fang P.H. Reaction Rate Kinetics and Distribution of Activation Energies. - "Phys.Rev., B", 1970, 1, p.932-933.
17. Gobrecht H., Hoffmann D. Spectroscopy of Traps by Fractional Glow Technique. - "J.Phys.Chem.Solids", 1966, 27, p.509-522.
18. Gobrecht H., Hoffmann D. Erhöhtes Energie. - Auflösungsvermögen bei der Haftstellenspektroskopie durch Anwendung der "fraktionierten Glow-Technik". - "Phys.der kondens.Materie", 1966, 5, S.39-49.
19. Gobrecht H., Nelkowski H., Hoffmann D., Müller B. Analyse von Haftstellenspektren. - In: Proc.Intern. Conf. on Luminescence, 2. Budapest, 1966, p.188-195.
20. Гайлитис А.А., Янсонс Я.Л., Витол И.К. Новый метод исследования энергетического спектра электронных состояний в кристаллофосфорах. - "Изв.АН СССР. Сер. физ.", 1969, 33, с.977-979.
21. Curie D. Excitation et recombinaison dans les centres luminogenes en voisinage de la limite d'absorption fondamentale. - "J.Phys., Colloque C3, Suppl. au Nr.5-6, 28, p. C3-105.
22. Thomas D.G., Hopfield J.J., Augustyniak W.M. Kinetics of Radiative Recombination at Randomly Distributed Donors and Acceptors. - "Phys.Rev., A", 1965, 140, p.202-220.
23. Thomas D.G., Hopfield J.J., Colbow K. Light from Distant Pairs. - In: Intern.Conf. on The Phys. Semiconductors. Radiative Recombination. Paris; Dunod Cie., 1964, p. 67.
24. Меркам Л., Вильямс Ф. Конфигурационное взаимодействие и корреляционные эффекты в спектрах донорно-акцепторных пар. - "Изв.АН СССР. Сер. физ.", 1973, 37, с.803-809.
25. Döhler G.H. The Kinetics of Donor-Acceptor Transitions in ZnS Type Phosphors. - "Phys.status solidi (b)", 1971, 45, p.705-719.

26. Гайлитис А.А., Витол И.К. Моделирование рекомбинационных явлений в научного эксперимента. - "Изв. АН СССР. Сер. физ.", 1971, 35, с.1301-1304.

27. Тале И.А., Гайлитис А.А. Изучение диффузии и туннельной рекомбинации возбуждений в кристаллофосфорах активизированными методами. - "Изв. АН СССР. Сер. физ.", 1971, 35, с.1336-1339.

28. Garlick G.F.J. Recombination Emission in Inorganic Solids. - In: Luminescent Materials. London, Oxford University Press, 1949.

29. Riehl N. Neue Ergebnisse über Elektronentraps und "Tunnel-Nachleuchten" in ZnS. - "Festkörperprobleme", Berlin, 1968, Bd8, S.232-253.

30. Delbecq C.J., Gnoosh A.K., Yuster P.H. Trapping and Annihilation of Electrons and Positive Holes in KCl-TlCl. - "Phys.Rev.", 1966, 151, p.599-609.

31. Боган Я.Р. Туннельная люминесценция чистых и активированных Tl и Ag щелочно-галогидных кристаллов. - "Изв. АН Латв.ССР. Сер. физ. и техн. наук", 1969, 3, с.57-62.

32. Боган Я.Р., Валюс Я.А., Кандерс У.А., Лейнерте-Нейланде И.Ф., Миллер Д.К., Нагорный А.А., Тале И.А. Туннельная люминесценция чистых и активированных Tl и Ag щелочно-галогидных кристаллов. - "Изв. АН СССР. Сер. физ.", 1973, 35, с.741-746.

33. Душак Ч.Б., Витол И.К., Эланго М.А. Экситонный механизм создания F-центров в бездефектных участках ионных кристаллов. - "Физ. твердого тела", 1968, 10, с.2753-2759.

34. Hirai M. The Yield of Color Center Formation in KBr Doped with KJ. - "Solid State Comm.", 1972, 10, p.493-495.

В.Я.Грабовский, И.К.Витол

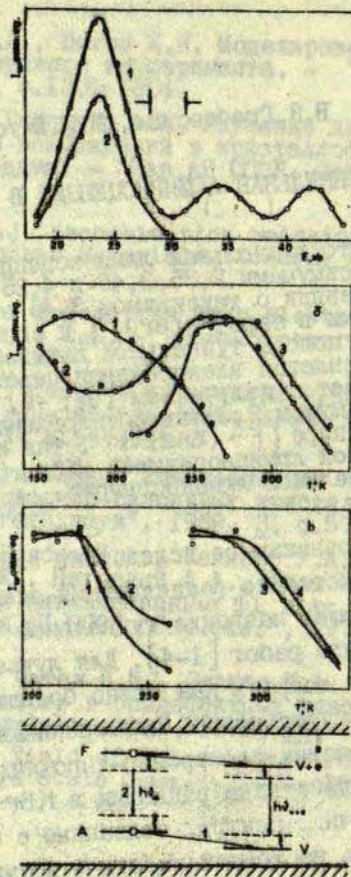
ТУННЕЛЬНАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ В KBr-KJ

Показано, что туннельная люминесценция в KBr-KJ имеет три полосы с максимумами 2,35, 3,45 и 4,25 эв. Полоса туннельной люминесценции с максимумом 3,45 эв связана с электронными переходами в паре $\{F-(BrJ)^-\}$ и совпадает с излучением $(BrJ)^{\cdot e}$, а полоса туннельной люминесценции с максимумом 4,25 эв объясняется электронными переходами в паре $\{F-(J_2)^-\}$ и совпадает с излучением $(J_2)^{\cdot e}$. Туннельная люминесценция с максимумом 2,35 эв обусловлена электронными переходами как в паре $\{F-(BrJ)^-\}$, так и $\{F-(J_2)^-\}$ и совпадает с туннельной люминесценцией KBr. Обсуждается возможный механизм туннельной люминесценции.

Излучение, возникающее вследствие электронных переходов между пространственно разделенными электронно-дырочными центрами и получившее название туннельной люминесценции (ТЛ), изучено в ряде работ [1-4]. Для лучшего понимания механизма ТЛ полезно собрать как можно больше экспериментальных данных о ТЛ, обусловленной электронными переходами в паре, состоящем из разных электронно-дырочных центров. Известно [6,7], что под действием радиации в KBr-KJ образуются F-центры и дырочные центры, связанные с примесью иода $(BrJ)^{\cdot -}$ и $(J_2)^{\cdot -}$. Цель настоящей работы - изучить ТЛ в парах $\{F-(BrJ)^-\}$ и $\{F-(J_2)^-\}$.

Исследовали образцы KBr-KJ, выращенные методом Киропулоса и содержащие 1 мол. % KJ в расплаве. Источником возбуждающей радиации служила рентгеновская трубка БСВ2-W. Режим облучения 50 кв, 15 ма. Спектральные характеристики снимали и отдельные полосы ТЛ выделяли монохроматором SPM -I, укомплектованным кварцевой призмой. Интенсивность ТЛ измеряли при помощи фотоэлектронного умножителя ФЭУ-39А и синхронного детектора. Коррекцию спектров на чувствительность ФЭУ и дисперсию монохроматора не проводили.

При изучении эффективности аккумуляции туннельной лю-



Р и с.

а - спектр ТЛ в KBr-KI с концентрацией KI 1 мол.% в расплаве при температуре возбуждения 200°K (1); спектр ТЛ в KBr при температуре возбуждения 150°K (2);

б - ЗАТЛ в зависимости от температуры возбуждения полос с максимумами 3,45 (1), 2,35 (2), и 4,25 эв (3);

в - зависимость ТЛ от температуры отжига в полосе с максимумом 3,45 (1) и 2,35 (2) при возбуждении в температуре 200°K и в полосе с максимумом 2,35 (3) и 4,25 эв (4) при возбуждении в температуре 270°K .

г - схема электронных переходов.

Прерывистыми линиями показаны возможные энергетические уровни, возникшие вследствие релаксации после электронного перехода между центрами.

минесценции (ЭАТЛ) в зависимости от температуры возбуждения образцы рентгенизировали 5 мин при заданной температуре, выдерживали 30 сек при этой же температуре и немедленно охлаждали до 100°K . Для определения зависимости интенсивности ТЛ от температуры отжига возбужденные при заданной температуре образцы нагревали и 30 сек выдерживали при температуре отжига, затем образцы охлаждали до 100°K . Интенсивность ТЛ всегда измеряли через 300 сек после прекращения возбуждения и при 100°K .

В возбужденных образцах появляются три полосы ТЛ с максимумами 2,35, 3,45 и 4,25 эв (см. рис.а, кривая 1).

Известно [8,10], что излучение с максимумом 3,45 эв возникает вследствие рекомбинации электрона с $(\text{BrJ})^{-}$ -центром, а излучение с максимумом 4,25 эв может быть связано с рекомбинацией электрона с $(\text{J}_2)^{-}$ -центром.

Кривые, показывающие зависимость ЭАТЛ от температуры возбуждения, для полосы с максимумом 3,45 эв согласуются с кривыми образования $(\text{BrJ})^{-}$ -центров, а для полосы с максимумом 4,25 эв - с кривой образования $(\text{J}_2)^{-}$ -центров [6]. Изменение ЭАТЛ в зависимости от температуры возбуждения для полосы излучения с максимумом 2,35 эв в KBr-KJ более сложное (кривая 2 на рис.б), чем в KBr [3]. Результаты измерения интенсивности ТЛ в зависимости от температуры отжига показывают, что интенсивность полосы с максимумом 3,45 эв падает при 235°K , а интенсивность полосы с максимумом 4,25 эв - при 310°K (см. рис.в). Эти температуры близки к температурам делокализации $(\text{BrJ})^{-}$ и $(\text{J}_2)^{-}$ -центров [6,7].

За ТЛ в полосе с максимумом 3,45 эв ответственны электронные переходы в паре $\{\text{F}-(\text{BrJ})^{-}\}$, а за ТЛ в полосе с максимумом 4,25 эв ответственны электронные переходы в паре $\{\text{F}-(\text{J}_2)^{-}\}$. ТЛ этих пар совпадает по спектру с излучением при рекомбинации электрона с $(\text{BrJ})^{-}$ и $(\text{J}_2)^{-}$ -центрами соответственно. ТЛ в полосе с максимумом 2,35 эв совпадает по спектру с ТЛ в KBr (рис.а, кривая 2), которая связана с электронным переходом в паре $\{\text{F}-\text{V}_\text{K}\}$. Спектр такого излучения совпадает с излучением возбужденного электронного сос-

тояния около анионной вакансии (α -полоса излучения) [3,5,7,9]. В KBr ТЛ в α -полоса излучения исчезает после нагрева образца выше температур делокализации V_K -центров [3]. В KBr-KJ ТЛ в α -полоса излучения связана также с электронными переходами в паре $\{F-(BrJ)^-\}$ и $\{F-(J_2)^-\}$ и интенсивность этой люминесценции опадает при делокализации $(BrJ)^-$ и $(J_2)^-$ -центров (см. рис.в).

Известно [3,4], что электронные переходы в парах $\{F-V_K\}$, $\{F-V_{KA}\}$, $\{F-A^{++}\}$ в KJ, а также в паре $\{F-V_K\}$ в KCl и KBr дают излучение возбужденного электронного состояния около анионной вакансии (α -полоса излучения). Это указывает на то, что излучательные электронные переходы обусловлены одной из компонент пары, т.е. F-центром.

Вероятной кажется модель, предложенная авторами работ [1,4]. Анионная вакансия с электроном (F-центр), взаимодействуя с Zr^{6+} -электронами соседних анионов, изменяет их энергию. Возмущение F-центром валентных электронов, окружающих анионов, может быть столь сильным, что возникает индуцированные локальные уровни, которые находятся в запрещенной зоне (уровень А на рис.г).

Расчет подобных индуцированных уровней для KCl-Tl показывает, что возмущающее действие Tl на окружающие анионы настолько сильно, что отщепление индуцированного уровня от валентной зоны составляет около 0,7 эв [11]. Если в случае F-центра энергия индуцированного уровня А выше основного состояния дырочного центра V, может произойти туннельный переход электрона из уровня А на основной уровень дырочного центра V (см. рис.г, переход 1). В результате этого перехода получается возбужденное состояние электрона около анионной вакансии, которое дает характерную α -полосу излучения (см. рис.г, переход 2).

Авторы благодарят Д.К.Миллера и М.Е.Спрингиса за полезные дискуссии.

ЛИТЕРАТУРА

1. Delbecq C.J., Ghosh A.K., Yuster P.H. Trapping and Annihilation of Electrons and Positive Holes in $KCl-TlCl$. - "Phys.Rev.", 1966, 151, p.599-609; "Bull.Am.Phys.Soc.", 1964, 6, p.629.
2. Keller P.J., Murray R.B. Thermal Motion of Holes in Potassium Iodide. - "Phys.Rev.", 1966, 150, p.670-679.
3. Боган Я.П. Туннельная люминесценция чистых и активированных Tl и Ag щелочно-галогидных кристаллов. - "Изв. АН Латв.ССР. Сер. физ. и техн. наук", 1969, 3, с.57-62; Знак и кинетика рекомбинационной люминесценции щелочно-галогидных кристаллов. Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Рига, 1969.
4. Боганс Я.Р., Валбис Я.А., Кандерс У.А., Лейнерге-Нейланде И.Ф., Миллер Д.К., Нагорный А.А., Тале И.А. Туннельная люминесценция чистых и активированных Tl и Ag щелочно-галогидных кристаллов. - "Изв.АН СССР. Сер. физ.", 1973, 37, с.741-746.
5. Bogans J., Vitols I. Условия появления люминесценции локализованных экситоноподобных возбуждений и природа центров прилипания V_k -дефектонов в KBr. - In: Proc. Conf. Luminescence. Hung. Acad. Science, 1966, p.136-141.
6. Schoemaker D. Spin Hamiltonian of Two Equivalent Nuclei: Application to the I_2^+ Centers. - "Phys.Rev.", 1968, 174, p.1060-1068.
7. Валбис Я.А. Люминесценция щелочно-галогидных кристаллов, обусловленная излучательной ангильацией локализованных экситоноподобных возбуждений. Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Рига, 1966.
8. Kamejima T., Shionoya S., Eukuda A. Investigation of Luminescence from Bound Excitons in KBr:I by Using Polarized Light. - "J.Phys.Soc.Japan", 1972, 32, p.729-735.
9. Vitols I. Излучательная рекомбинация точечных микродефектов (дефектонов) в щелочно-галогидных кристаллах. In: Proc. Int. Conf. Luminescence. Hung. Acad. Science, 1966, p.142-147.
10. Wakita S. Luminescence of KBr-KI Solid Solutions, under X-Ray Irradiation at Liquid Helium Temperature. - "J. Phys. Soc. Japan", 1971, 31, p.1505-1512.
11. Кристофель Н.Н. Применение микротемории примесных центров малых радиусов к щелочно-галогидным кристаллофосфорам с угнетодобными активаторами. - "Тр. Ин-та физ. и астрон. АН ЭССР", 1970, 38, с.125-143.

Д.К.Миллерс, И.А.Тале

ОПРЕДЕЛЕНИЕ НЕКОТОРЫХ ПАРАМЕТРОВ ТУННЕЛЬНОЙ РЕКОМБИНАЦИИ

Используя феноменологическую теорию туннельной люминесценции [1], проведен расчет расстояния \bar{r} между центрами окраски, участвующими в туннельной рекомбинации, и половины боровского радиуса r , волновой функции наиболее диффузного центра. По экспериментальным данным определено, что в KCl через $6 \cdot 10^3$ сек после прекращения возбуждения $\bar{r} = 9a$ (a - постоянная кристаллической решетки) и соответствующий F-центру $r_c = 0,35 a$. Полученное значение \bar{r} позволяет делать заключение об образовании вследствие туннельной рекомбинации скоплений F-центров (и дырочных центров). Предполагается, что скопления центров могут быть зародышами коллоидов.

В в е д е н и е

Существенную роль в туннельной рекомбинации играет пространственное распределение центров. Однако исследования туннельной рекомбинации в щелочно-галогенных кристаллах проведены главным образом люминесцентными методами, исключаящими учет роли безызлучательных переходов и не позволяющими установить абсолютные значения расстояний между центрами, участвующими в туннельной рекомбинации.

В настоящей работе предлагаются выражения для определения расстояний между центрами, участвующими в туннельной рекомбинации, и для определения половины боровского радиуса волновой функции наиболее диффузного центра в такой форме, которая позволяет использовать экспериментальные результаты по измерению поглощения. Таким образом получена возможность определить численные значения расстояний между центрами и половину боровского радиуса для более диффузного центра.

На основе экспериментальных результатов по изучению изотермической релаксации F-полосы поглощения в кристалле

КСI определено расстояние между F-центрами и дырочными центрами, участвующими в туннельной рекомбинации, и половина боровского радиуса F-центра.

Расчет расстояния между центрами, участвующими
в туннельной рекомбинации

Рассмотрим следующую модель. (1) В кристалле мгновенно создается совокупность F-центров и дырочных центров. (2) Число F-центров и дырочных центров одинаково в любой момент времени. (3) Совокупность центров рассматривается как некоторый набор пар, состоящих из F-центров и дырочных центров. Исходная функция распределения по расстояниям между компонентами пар равна $n(r, 0)$ и соответствует хаотическому распределению центров. Согласно [1] плотность вероятности найти ближайший центр на расстоянии

$$p(r) = 4\pi N_0 r^2 \exp\left(-\frac{3}{4}\pi r^3 N_0\right), \quad (1)$$

где N_0 - исходная концентрация или F- или дырочных центров. (4) Изменение функции распределения $n(r, t)$ происходит вследствие туннельной рекомбинации электронных и дырочных центров и описывается уравнением (см. [1]):

$$\frac{dn(r, t)}{dt} = -W_0 \cdot n(r, t) \exp(-r/r_0), \quad (2)$$

где W_0 - частотный фактор вероятности туннельной рекомбинации, r_0 - половина боровского радиуса волновой функции наиболее диффузного центра.

Интегрированием выражения (2) получаем

$$n(r, t) = n(r, 0) \exp[-W_0 t \exp(-r/r_0)]. \quad (3)$$

Введем \bar{r} - расстояние между компонентами пар, при котором в рассматриваемый момент времени t происходит наиболее эффективная туннельная рекомбинация, т.е. $\frac{dn(r, t)}{dt}$ имеет максимальное значение, следовательно:

$$\frac{d}{dr} \left(\frac{dn(r, t)}{dt} \right) = 0. \quad (4)$$

Подставив в формулу (2) значение функции распределения $n(r,t)$ (3), согласно (4) находим:

$$r_0 \frac{\frac{dn(r,0)}{dr}}{n(r,0)} + W_0 t \exp(-\bar{r}/r_0) - 1 = 0, \quad (5)$$

и при медленном изменении $n(r,0)$ первым членом в выражении (5) можно пренебречь

$$W_0 t \exp(-\bar{r}/r_0) - 1 = 0 \quad \text{или} \quad \bar{r} = r_0 \ln W_0 t. \quad (6)$$

Коэффициент поглощения света κ пропорционален концентрации имеющихся центров. Согласно формуле (1) концентрация центров $N(t)$ для момента времени t :

$$\begin{aligned} N(t) &= \int_{r_0 \ln W_0 t}^{\infty} N_0 4\pi N_0 r^2 \exp(-\frac{4}{3}\pi N_0 r^3) dr = \\ &= N_0 \exp(-\frac{4}{3}\pi N_0 r_0^3 \ln^3 W_0 t). \end{aligned}$$

Отношение концентрации центров в момент времени t_1 к концентрации центров в момент времени t_2 :

$$\frac{N(t_1)}{N(t_2)} = \exp\left[-\frac{4}{3}\pi r_0^3 (\ln^3 W_0 t_1 - \ln^3 W_0 t_2)\right],$$

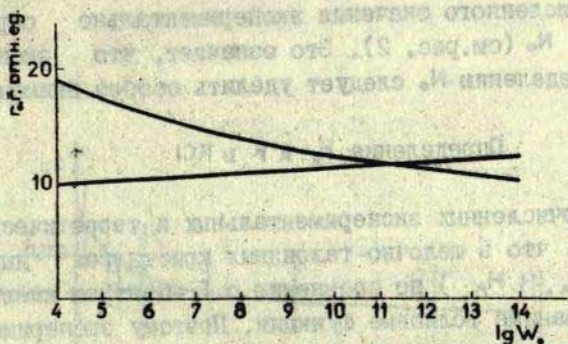
откуда

$$r_0 = \left[\frac{3 \ln \frac{N(t_1)}{N(t_2)}}{4\pi N_0 (\ln^3 W_0 t_2 - \ln^3 W_0 t_1)} \right]^{1/3}. \quad (7)$$

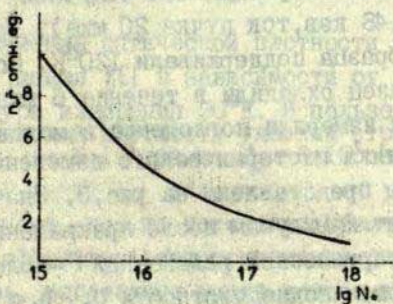
Подставив выражение для r_0 в выражение (6), для момента времени t_2 получаем:

$$\bar{r} = \left[\frac{3 \ln \frac{N(t_1)}{N(t_2)} \ln^3 W_0 t_2}{4\pi N_0 (\ln^3 W_0 t_2 - \ln^3 W_0 t_1)} \right]^{1/3}. \quad (8)$$

В случае туннельной рекомбинации для вычисления r_0 и \bar{r} по измеренным концентрациям центров, если известна величина W_0 , могут быть использованы формулы (7) и (8). Однако анализ этих формул показывает, что r_0 и \bar{r} крайне мало чувствительны к численному значению (см. рис.1). Изменение W_0 на 10 порядков (от 10^4 до 10^{14} сек $^{-1}$) приводит



Р и с. 1. Зависимость σ_0 и $\bar{\sigma}$ от W_0 .
Кривая 1 - для σ_0 , кривая 2 - для $\bar{\sigma}$.



Р и с. 2. Зависимость σ_0 и $\bar{\sigma}$ от N_0 .
Кривые для σ_0 и $\bar{\sigma}$ совпадают.

к изменению значения g_0 и \bar{g} только лишь 1,9 и 1,3 раза соответственно. Поэтому достаточно грубая оценка численного значения W_0 . Кроме того, следует отметить, что g_0 и \bar{g} сильно зависят от численного значения экспериментально определяемой величины N_0 (см. рис. 2). Это означает, что экспериментальному определению N_0 следует уделить особое внимание.

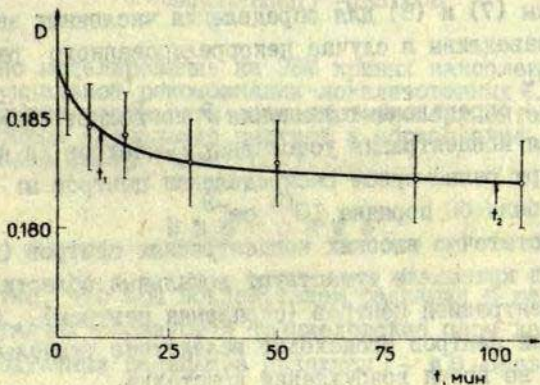
Определение g_0 и \bar{g} в KCl

Из многочисленных экспериментальных и теоретических работ известно, что в щелочно-галогидных кристаллах дйрочные центры (V_K, V_{KA}, H, H_A) по сравнению с F-центром имеют более локализованные волновые функции. Поэтому экспериментально определенное значение g_0 в рассматриваемом случае относится к F-центру. Изменения поглощения были исследованы только в F-полосе поглощения, следовательно конкретный тип дйрочного центра, на который осуществляется туннельная рекомбинация электрона F-центра, в настоящей работе не установлен.

Монокристаллические образцы KCl облучали электронами (энергия электронов 48 кэв, ток пучка 20 мка). Во время облучения температуру образца поддерживали 120°K. После прекращения облучения образец охладили в течение 6 мин до 90°K и при этой температуре измеряли поглощение в максимуме F-полосы поглощения. Кинетика изотермического изменения поглощения в максимуме F-полосы представлена на рис. 3. Значение $t_0 = 0$ на кинетике соответствует 6 минутам после прекращения возбуждения. По кинетике изотермической релаксации F-полосы поглощения были определены оптические плотности D_0, D_1 и D_2 для моментов времени $t_0 = 0$ сек, $t_1 = 6 \cdot 10^2$ сек и $t_2 = 6 \cdot 10^3$ сек и применением формулы Декстера-Смакулы [2] определены соответствующие концентрации F-центров $N_0, N_{(t_1)}$ и $N_{(t_2)}$. Толщина окрашенного слоя кристалла оценивалась по данным [3] и в расчетах была принята 10 мкм.

Подставляя численные значения $N_0, N_{(t_1)}, N_{(t_2)}, t_1$ и t_2 в формулы (7) и (8) и принимая, что $W_0 = 10^6 \text{ сек}^{-1}$ (значе-

ние оценено по данным работ [4,5]), было получено, что $r_0 = 0,35$ а и $\bar{r} = 9$ а, где a — постоянная кристаллической решетки (для KCl $a = 6,28 \text{ \AA}$).



Р и с. 3. Изменения оптической плотности в F-полосе поглощения KCl в зависимости от времени.

Температура измерения 90°K . Используемые в расчетах значения оптической плотности указаны стрелками для $t_1 = 6 \cdot 10^2$ сек и $t_2 = 6 \cdot 10^3$ сек.

Это означает, что по истечении времени $t_2 = 6 \cdot 10^3$ сек с максимальной эффективностью происходит разрушение F- и дырочных центров, расстояние между которыми около 9 постоянных решетки; следовательно большинство F-центров и дырочных центров, расстояние между которыми меньше 9 постоянных решетки, к этому времени вследствие туннельных переходов электронов прорекомбинировали. При равномерном распределении центров по объему кристалла среднее расстояние между двумя F- или двумя дырочными центрами должно быть около 18 постоянных решетки, что соответствует средней концентрации F-центров около 10^{18} см^{-3} . В то же время известно, что экс-

периментально наблюдаемые концентрации устойчивых F-центров превышают 10^{19} см^{-3} .

Следовательно, в кристаллах должны иметь место локальные скопления F-центров (а также дырочных центров), в которых концентрация центров значительно выше средней их концентрации по кристаллу.

Выводы

Формулы (7) и (8) для определения численных значений \bar{G} и \bar{F} справедливы в случае некоррелированного распределения центров.

Для KCl определенные значения \bar{F} позволяют заключить, что максимальная концентрация устойчивых F-центров (и дырочных центров), при равномерном распределении центров по объему кристалла, была бы порядка 10^{18} см^{-3} .

При достаточно высоких концентрациях центров (выше 10^{16} – 10^{17} см^{-3}) в кристалле существуют локальные области с повышенной концентрацией центров (скопления центров). Образование скоплений центров происходит вследствие туннельной рекомбинации во время возбуждения кристалла.

Скопления центров могут быть зародышами коллоидов, а в механизме образования агрегатных центров и коллоидов при низких температурах туннельная рекомбинация играет основную роль.

ЛИТЕРАТУРА

1. Гайлитис А.А. Зависимость кинетики туннельной люминесценции от взаимного распределения электронных и дырочных центров. - Уч.зап.ЛГУ, т. 193. Электронные и ионные процессы в ионных кристаллах, вып. 1. Рига, с.17-23.
2. Dexter D.L. Absorbtion of Light by Atoms in Solids. - "Phys.Rev.", 1956, 101, p.48-55.
3. Herrmann F. and Pinard P. The Penetration of Electrons in Alkali Halide Single Crystals and the Effect of Non-uniform Irradiation on Colour Centre Grotwth Curves. - "J. Phys., C: Solid State Phys.", 1970, 3, p.1037-1046.
4. Ueta M., Kondo Y., Hirai M., Yoshinari T. F-Centre Formation in KCl Crystals by Pulsed Electron Beam at 80°K. - "J.Phys.Soc.Japan", 1969, 26, p.1000-1006.
5. Hirai M., Kondo Y., Yoshinari T., Ueta M. Colour Center Formation and Bleaching in KCl and NaCl by Electron Pulse at 15°K. - "J.Phys.Soc.Japan", 1971, 30, p.440-448.

И.А.Тале, Д.К.Миллерс, Е.А.Котомин

РОЛЬ ТУННЕЛЬНОЙ РЕКОМБИНАЦИИ В НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОМ НАКОПЛЕНИИ F-ЦЕНТРОВ

Описано моделирование на ЭВМ кривых накопления F-центров с учетом туннельной рекомбинации локализованных F- и H-центров. Полученные результаты объясняют экспериментальные особенности кривых накопления центров и образование скоплений центров одного сорта (кластеров).

В в е д е н и е

Известно, что под воздействием радиации в щелочно-галогидных кристаллах образуются френкелевские пары дефектов. Первичными продуктами радиоллиза являются F- и H-центры [1-3]. Исследование кривых накопления F-центров в зависимости от дозы облучения показывают уменьшение скорости накопления центров с ростом дозы облучения для широкого интервала температур (от комнатных температур вплоть до 4°K) [4].

Многими авторами предлагаются формальные аппроксимации кривых накопления F-центров различными функциями, многостадийные механизмы (напр., [5-7]). Для случая подвижных H-центров разработана модель, феноменологически учитывающая их диффузию, захват на ловушках и рекомбинацию с F-центрами [8]. Причины уменьшения скорости накопления F-центров при увеличении дозы облучения ниже температуры делокализации H-центров не выяснены до сих пор.

М о д е л ь

В настоящем сообщении предлагается объяснение уменьшения скорости накопления F-центров при увеличении дозы облучения и других экспериментальных фактов на основе явления

туннельной рекомбинации пар электронно-дырочных центров. При этом не используется предположение о диффузии Н-центров. Рассмотрим следующую модель.

1. В узлах анионной подрешетки одновременно появляются пространственно разделенные пары локализованных F-, Н-центров (генетические пары F-, Н-центров) со скоростью α пар $\text{см}^{-3} \text{сек}^{-1}$. В одном узле находится не больше чем один центр.

2. Создание F- и Н-центров равновероятно для любого узла анионной подрешетки. Это значит, что при отсутствии рекомбинации распределение F- и Н-центров по объему модельного кристалла и по расстояниям в парах между F- и Н-центрами равномерное.

3. Вероятность паре центров не рекомбинировать τ секунд:

$$P(\tau) = \exp[-W_0 \tau \exp(-r/r_0)] \quad (1)$$

Уравнение (1) основано на вероятности туннельной рекомбинации $W_0 \exp(-r/r_0)$ [9], где W_0 - постоянная, r - расстояние между дефектами, r_0 - половина радиуса Бора более диффузного центра.

4. Рассматривается марковский процесс: вероятность рекомбинации центра в данный момент не зависит от его истории.

Возможность туннельного переноса электрона с F- на Н-центр отмечена [I0, II] и экспериментально наблюдалась [I-3]. Принятая модель основана на экспериментальных данных:

1) высокая эффективность накопления F- и Н-центров ниже температуры дelokализации Н-центра указывает на пространственную сепарацию значительной доли создающихся генетических пар F- и Н-центров (ср. I, 2);

2) если центры в генетической паре в среднем разделены на I0 постоянных решетки, то при концентрации центров 10^{18} см^{-3} можно ограничиться рассмотрением равномерного распределения их по объему.

Аналитическое рассмотрение предложенной модели, учитывающей пространственные эффекты, затруднительно, и было выполнено численное моделирование на ЭВМ. Параметры модели следующие:

1) кристаллическая решетка моделируется кубом $92 \times 92 \times 92$ постоянных решетки (a), $a = 5 \text{ \AA}$;

2) скорость генерации F-, H-пар (α) варьировалась от 10^{16} до $10^{19} \text{ см}^{-3} \text{ сек}^{-1}$;

3) $W_0 = 10^7 \text{ сек}^{-1} [I]$, $r_0 = 0,8a [II]$.

Последние два параметра, возможно, несколько завышены, что приводит к увеличению вероятности туннелирования. Каждая итерация моделирует время τ между созданием очередных пар центров, $\tau^{-1} = \alpha \Delta V$, $\Delta V = 10^{-16} \text{ см}^3$ (объем куба). Вероятность F_j , т.е. вероятность центру не рекомбинировать за время τ с любым из H-центров равна

$$P_{F_j}(\tau) = \prod_{i=1}^{N_H(t)} P_{F_j H_i}(\tau) = \prod_{i=1}^{N_H(t)} \exp[-W_0 \tau \exp(-r_{ij}/r_0)], \quad (2)$$

где $P_{F_j H_i}$ - вероятность найти пару $\{F_i, H_j\}$; $N_H(t)$ - число H-центров в ΔV ; r_{ij} - расстояние между F_j - и H_i -центрами. После определения вероятностей P_j для всех центров "пережить" время τ реализовался случайный механизм отбора центров: для всех F- и H-центров

$$P_j - \xi_j = \begin{cases} \geq 0 & \text{центры выживают} \\ < 0 & \text{центры рекомбинируют;} \end{cases}$$

ξ_j - случайное число с равномерным распределением на интервале $[0, 1]$.

Таким образом, учитывается вероятность рекомбинации не только ближайших F- и H-центров.

Пространственные эффекты рассматривались при помощи анализа: 1) распределения центров в сечениях куба; 2) плотности вероятности найти центры в зависимости от расстояния; 3) плотности вероятности (p) найти ближайший центр на расстоянии r от данного центра.

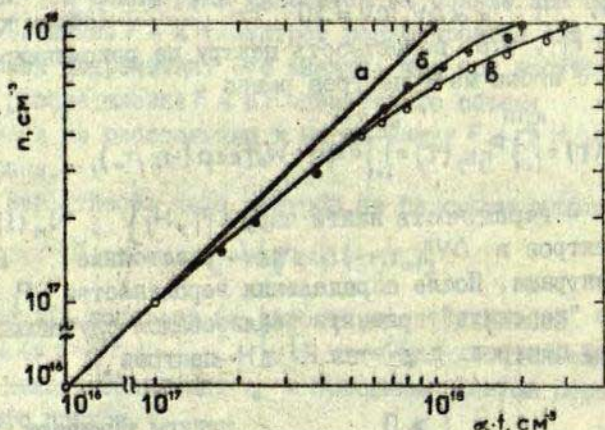
Всего рассматривались четыре типа плотностей вероятностей:

а) плотность вероятности найти рассматриваемому F-центру ближайший F-центр на расстоянии r (F-F);

б) плотность вероятности найти рассматриваемому Н-центру ближайший Н-центр на расстоянии r (Н-Н) ;

в) плотность вероятности найти рассматриваемому F-центру ближайший Н-центр на расстоянии r (F-Н) ;

г) плотность вероятности найти рассматриваемому Н-центру ближайший F-центр на расстоянии r (Н-F) .



Р и с. I. Кривые накопления F- и Н-центров.

а — без учета туннельной рекомбинации;

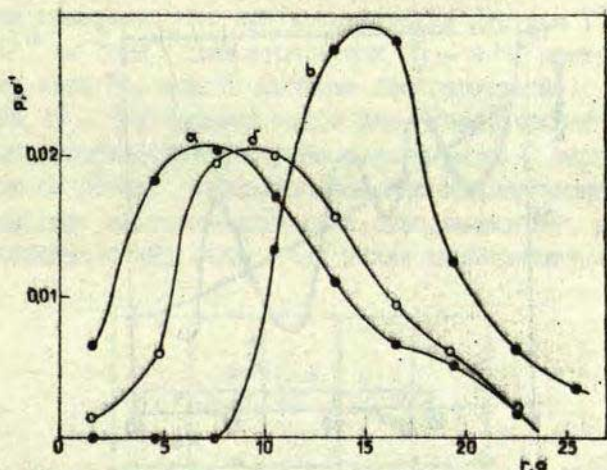
б и в — с учетом туннельной рекомбинации; для кривой б значение $\alpha = 10^{16} \text{ см}^{-3} \text{ сек}^{-1}$; для кривой в значение $\alpha = 10^{16} \text{ см}^{-3} \text{ сек}^{-1}$.

Результаты

На рис. I представлены смоделированные кривые накопления F- и Н-центров при двух значениях α . Концентрация центров линейно растет с дозой (по отношению к рассматриваемой модели под термином доза следует понимать произведение $\alpha \cdot t$) до 10^{17} см^{-3} ; при больших концентрациях начинается замедление накопления вследствие заметной вероятности туннельной рекомбинации центров. Для меньшего значения α замедление начинается при меньших концентрациях, что, естественно, объясняется ростом вероятности туннельной рекомбинации центров с увеличением

времени между появлением двух очередных пар центров (2).

При концентрации центров 10^{18} см⁻³ выживает: половина центров при $\alpha = 10^{19}$ см⁻³сек⁻¹ (ср. [1]), третья часть — при $\alpha = 10^{16}$ см⁻³сек⁻¹. При этом преимущественно рекомбинируют вновь появившиеся центры. Доля центров, рекомбинирующих со своими генетическими партнерами, не превышает нескольких процентов (и возрастет при учете корреляций в генетических парах).



Р и с. 2. Плотности вероятностей найти ближайший центр на определенном расстоянии.

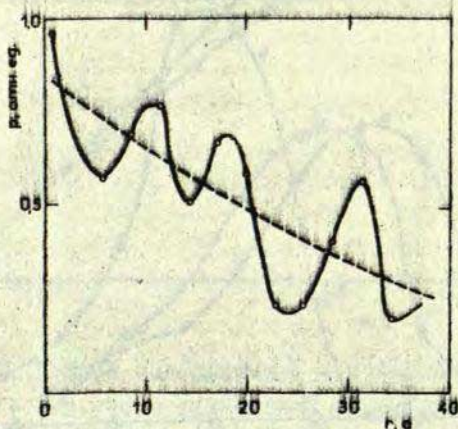
а — плотность вероятностей F-F и H-H при наличии рекомбинации;

б — плотность вероятностей F-F и H-H при отсутствии рекомбинации;

в — плотность вероятностей F-H и H-F при наличии рекомбинации.

На рис. 2 показаны плотности вероятности найти ближайший центр на определенном расстоянии (ПВЕЦ). Кривая б представляет четыре совпадающих ПВЕЦ при отсутствии рекомбинации, кривая а — ПВЕЦ при учете рекомбинации для F-F и H-H распределений. Сдвиг кривой а относительно кривой б к меньшим расстояниям означает создание более близких, чем в хао-

тическом распределении, пар центров одного сорта. Кривая в - ПВД для F-N и N-F распределений - показывает отсутствие центров разного сорта на взаимных расстояниях до 10 постоянных решетки. Приведенные данные легко интерпретируются как создание скоплений центров одного сорта (кластеров). Размер кластера, оцененный по рис. 1, а, порядка 20 постоянных решетки. Эти данные также иллюстрируются плотностью вероятности найти центры того же сорта на расстоянии r (рис. 3.).



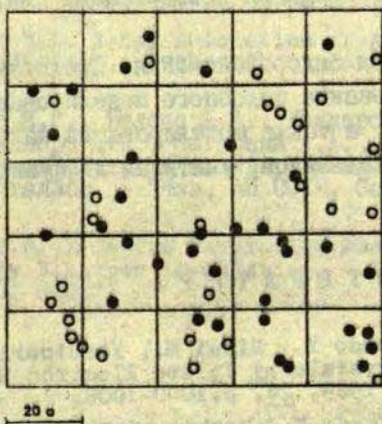
Р и с. 3. Плотность вероятности найти для рассматриваемого центра центр того же сорта на различных расстояниях.

Прерывистая кривая - плотность вероятности в случае равномерного распределения центров по объему;

Сплошная кривая - плотность вероятности распределения центров в модели. Кружками обозначены полученные после статистической обработки значения плотности вероятности.

Рассмотрим механизм образования кластеров. Если вблизи созданного F-центра появляется N-центр, то они с большой вероятностью рекомбинируют. Если же рядом создаются центры одного сорта, то они имеют большую вероятность выжить. Чем больше центров одного сорта в кластере, тем он устойчивее относительно появления центра другого сорта. Гипотеза существования кластеров объясняет возможность накопле-

ния больших концентраций центров (выше 10^{19} см $^{-3}$; напр. [13]), тогда как при равномерном распределении всех центров по объему концентрация не может превысить 10^{18} см $^{-3}$ [12]. Следовательно, при больших концентрациях центров кластеры будут более плотными и являются зародышами коллоидов. При этом резко растет доля агрегатных центров ($F_2, H_2, F_3, H_3 \dots$). Однако скорость накопления центров уменьшается из-за малой вероятности создаться центру около кластера своего сорта и большой вероятности создаться центру вне его. Моделирование показало, что при концентрации центров 10^{18} см $^{-3}$ и $\alpha = 10^{16}$ см $^{-3}$ сек $^{-1}$ доля агрегатных F_2 - и H_2 -центров (состоящих из двух F - или H - центров соответственно) бывает порядка 3%, что слишком много для пуассоновского распределения вероятностей в случае равномерного распределения центров по объему. Аномально высокие концентрации агрегатных центров, не соответствующие пуассоновскому распределению вероятностей, обнаружены также экспериментально [13].



Р и с. 4. Проекция координат центров на плоскости из слоя толщиной 40 постоянных решетки.

○ и ● обозначены координаты H - и F - центров соответственно.

В проекции явно выделяются области, в которых существуют только H - или только F - центры.

На рис. 4 показана проекция координат центров на плоскости x, y из слоя 40 а. Это также иллюстрирует существование скоплений.

Очевидно, кластеры живучее равномерной смеси и медленнее распадаются после включения возбуждения.

Предлагаемая модель применима и к процессу накопления вторичных центров (α, I, V_k).

З а к л ю ч е н и е

Таким образом проведенное моделирование, учитывающее туннельную рекомбинацию F - и H - центров, позволяет объяснить причины ряда экспериментально наблюдаемых явлений;

1) насыщение кривой накопления центров при температурах ниже делокализации H - центров;

2) аномально большую для равномерного распределения долю агрегатных центров;

3) возможность создания концентраций центров выше 10^{19} см^{-3} ;

4) механизм коллоидообразования. Представляет интерес дальнейшее использование подобного моделирования в области создания коллоидов, а также моделирование накопления центров и образование коллоидов, учитывая диффузию и захват H - центров.

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. Ueta M., Kondo Y., Hirai M., Yoshinari T. F Center Formation in KCl Crystals by Pulsed Electron Beam at 80°K. - "J.Phys.Soc.Jap.", 1969, 26, p.1000-1006.
2. Hirai M., Kondo Y., Yoshinari T. Color Center Formation and Bleaching in KCl and NaCl by Electron Pulse at 15°K. - "J.Phys.Soc.Jap.", 1971, 30, p.400-488.
3. Kondo Y., Hirai M. Color Center Formation in KCl:Ag Crystals under X-Raying near LHeT. - "J.Phys.Soc.Jap.", 1971, 30, p.1765.
4. Rahin H., Klick C. Formation of F Centers at Low and Room Temperatures. - "Phys.Rev.", 1960, 117, p.1005.

5. Алексеев П.Д., Вайсбург Д.И. Температурная зависимость элементарных стадий накопления F-центров в кристаллах NaCl и KI под действием протонов. - "Изв. высш. учебных заведений. Физика", 1971, 6, с.145-147.

6. Sastry E.V.R., Srinivasan T.M. Influence of Impurities on the Room Temperature Coloration Processes in Alkali Halides. - "Phys.Rev.", 1970, 2, p.3415-3420.

7. Мурадов С.М., Эланго М.А. Температурная зависимость и механизм радиационного создания электронных центров окраски в KCl и KCl-Ag. - "Физ. твердого тела", 1968, 10, с.3218.

8. Y.Farge. Interpretation of the Creation of F Centers by Ionizing Radiation above 77°K by a Recombination Model of Interstitials and Vacancies. - "J.Phys.Chem. Solids", 1960, 30, p.1375-1384.

9. Williams F. Donor-Acceptor Pairs in Semiconductors. - "Phys. status solidi", 1968, 25, p.493-512.

10. Витол И.К. Исследование дырочно-ионных процессов в щелочно-галогидных кристаллах. - Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Рига, 1969.

11. Dexter D.L. X-Ray Coloration of Alkali Halides. - "Phys.Rev.", 1954, 93, p.985-992.

12. Боганс Я.Р., Валюс Я.А., Кандерс У.А., Лейнерге-Нейланде И.Ф., Миллерс Д.К., Нагорный А.А., Тале И.А. Туннельная люминесценция чистых и активированных Tl и Ag щелочно-галогидных кристаллов. - "Изв. АН СССР. Сер. физ.", 1973, 37, с.741-746.

13. Soul P.B. F-Centre Saturation Phenomena in KCl during Low-Energy Electron Irradiation. - "Phys. status solidi", 1970, 42, p.801-812.

В.Г.Була, И.А.Тале

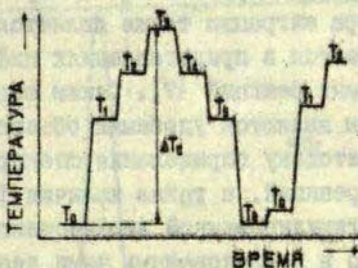
ОПРЕДЕЛЕНИЕ СПЕКТРОВ ФРАКЦИОННОГО ТЕРМОВЫСВЕЧИВАНИЯ В КРИСТАЛЛАХ KBr И $KBr-Tl$

Рассмотрены особенности оценки средних энергий тепловой ионизации ловушек методом фракционного термовысвечивания в щелочно-галогидных кристаллах, обусловленные диффузионно-контролируемой туннельной рекомбинацией V_k -центров и присутствием фона туннельной люминесценции. Определены энергии тепловой ионизации V_1 -, V_k -, $V_{ка}$ -, F' - и TC -центров в KBr .

В в е д е н и е

В работе [1] нами рассмотрена теория метода фракционного термовысвечивания (ФТВ) с учетом "задержанных" реакций, вызванных диффузией и туннельной рекомбинацией подвижных возбуждений, а также процессами туннельной рекомбинации в ассоциированных парах дефектов. Было показано, что определение средней энергии тепловой ионизации ловушек (\bar{E}) существенно усложняется, если вследствие "задержанных" реакций нарушается квазистационарность термостимулированной рекомбинационной люминесценции, т.е. изменения интенсивности люминесценции (I), которая пропорциональна числу актов излучательной рекомбинации в единицу времени, отстают от изменений скорости освобождения возбуждений из ловушек. Для выявления особенностей рекомбинационного процесса применим температурный режим со ступенчатым нагревом и последующим охлаждением образца (рис.1). При 5-7 фиксированных значениях температуры, образующих цикл нагрева-охлаждения, несколько раз измеряется интенсивность люминесценции и этим определяется ее зависимость от времени при постоянной температуре. Характер этой зависимости позволяет установить, является ли процесс квазистационарным. Такой режим измерений упрощает также оценку вели-

чины температурно-независимого фона в общем свечении образца.



Р и с. 1. Зависимость температуры образца от времени в ступенчатом режиме нагрева-охлаждения.

Назначение ступенек: $T_1 - T_2$ - измерение зависимости интенсивности люминесценции от температуры; $T_3; T_4$ - измерение интенсивности температурно-независимого фона люминесценции.

Исходя из развитых в работе [1] теоретических положений метода и алгоритма измерений, в данной статье на примере щелочно-галогидных кристаллов изложены особенности и практика определения спектров ФТВ. Приведены результаты оценки энергий тепловой ионизации ловушек в чистых и активированных KBr кристаллах.

Выбор объектов исследования

Термоактивационные процессы, происходящие в щелочно-галогидных кристаллах, имеют ряд особенностей. Дырочные стадии рекомбинации обусловлены тепловой дelokализацией N - и V_K -центров. Диффузия этих центров происходит в виде прыжков от узла к узлу анионной подрешетки кристалла с преодолением активационного барьера [2-4]. При этом время жизни N - и V_K -центров на узлах решетки много больше времени, за которое осуществляется перескок. Автолокализованные V_K -центры в результате спонтанных переходов электронов могут

рекомбинировать с удаленными от них электронными центрами [2,3,5,6]. Рекомбинация проявляется как температурно-независимое послесвечение, называемое туннельной люминесценцией (ТЛ).

Рекомбинация диффундирующих V_k -центров вследствие прыжкового характера миграции также является туннельным процессом и описывается в представлениях диффузионно-контролируемых туннельных реакций [7]. Таким образом щелочно-галогидные кристаллы являются удобными объектами, позволяющими рассмотреть методику определения спектров ФТВ в случае "задержанных" реакций, а также наличия фона ТЛ.

Кривые термостимулированной люминесценции (ТСЛ) показывают (рис.2), что в исследованных нами неактивированных кристаллах KBr , возбужденных рентгеновскими лучами при $80^\circ K$, разрушаются V_1 -, F' -, V_k -, V_{kA} - и V_4 -центры [8,II]. Имеются три характерных интервала температур:

интервал низких температур, в котором V_k -центры автолокализованы и ожидается наличие фона ТЛ, обусловленного рекомбинацией в парах $\{F - V_k\}$ [5,6]. В этом интервале температур разрушаются V_1 - и F' -центры;

интервал температур, при которых разрушаются V_k -центры и имеет место диффузионно-контролируемая туннельная рекомбинация;

интервал высоких температур, в котором разрушаются V_{kA} -центры.

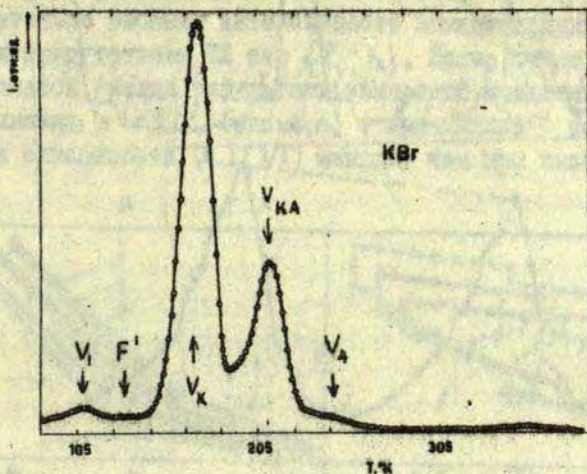
Обсудим подробно особенности определения спектра ФТВ в неактивированных кристаллах KBr , вызванные рекомбинационными процессами в вышеуказанных интервалах температуры. Напомним, что определение спектра ФТВ сводится к следующему:

1) оцениваются величины средних энергий тепловой ионизации преимущественно разрушающихся ловушек \hat{E} . По определению \hat{E} равна (см., напр., [1]):

$$\hat{E} = - \left. \frac{d \ln I}{d(1/kT)} \right|_{n(E) = \text{const}},$$

где $n(E)$ - концентрация заполненных ловушек. Поэтому результаты измерений $I(T)$ в координатах $\ln I - 1/T$ должны аппрок-

симметричной прямой, наклон которой определяется величиной \hat{E} . В случае зонных рекомбинационных процессов средняя энергия, вычисленная по измерениям $I(T)$ во время нагрева образца (\hat{E}_+), из-за непостоянства $n(E)$ несколько меньше



Р и с. 2. Кривая термостимулированной люминесценции неактивированного KBr; скорость нагрева $0,1^\circ\text{K сек}^{-1}$.

средней энергии, вычисленной по измерениям $I(T)$ во время охлаждения (\hat{E}_-), а \hat{E} должна оцениваться как среднее от \hat{E}_+ и \hat{E}_- ;

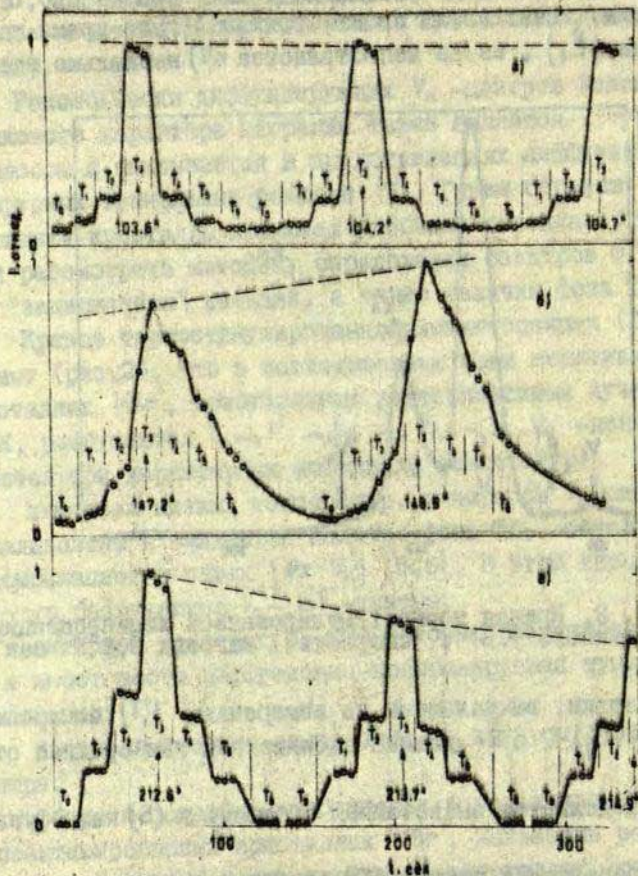
2) определяется высвеченная светосумма (S) как функция \hat{E} ;

3) определяется спектр ФТВ, который согласно работе [1] представляет собой первую производную $S(\hat{E})$ по средней энергии.

Средние энергии \hat{E}

На рис. 3 показаны зависимости интенсивности люминесценции от времени, измеренные в интервалах температур разрушения V_1 -, V_k - и $V_{ка}$ -центров; на рис. 4 - те же результаты в координатах $\ln I - 1/T$.

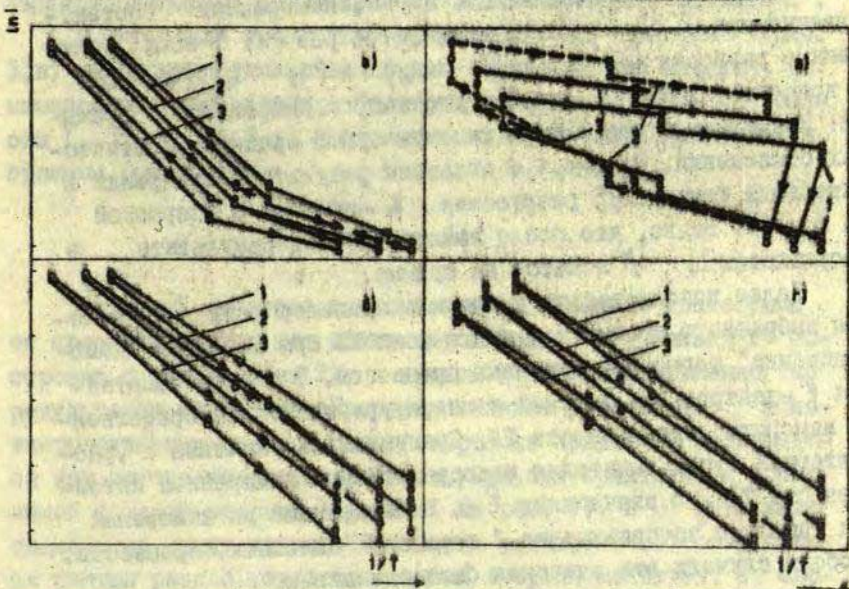
В интервале температур разрушения V_1 -центров (см. рис. 3, а) интенсивность люминесценции безынерционно следует за



Р и с. 3. Зависимость интенсивности люминесценции от времени неактивированного KBr , измеренная в ступенчатом режиме нагрева-охлаждения в интервале температур распада V_1 -центров (а); V_K -центров (б); V_{KL} -центров (в).

Сплошной линией обозначены моменты времени нагрева-охлаждения образца, пунктирной линией — изменения максимальной интенсивности цикла к циклу.

изменениями температуры. Заметное уменьшение интенсивности люминесценции во времени при максимальной температуре цикла (T_3 на рис.1) вызвано уменьшением концентрации V_1 -центров. Если образец охлаждается до T_0 , $T_0 = 80^\circ\text{K}$, сохраняется относительно высокая интенсивность люминесценции, обусловленная присутствием ТЛ пар $\{F - V_k\}$. Более отчетливо фон ТЛ проявляется, когда результаты измерений представляются в координатах $\ln I - 1/T$ (рис.4,а): при низких температурах наклон зависимости $\ln I(1/T)$ меньше, чем при высоких.



Р и с. 4. Зависимость $\ln I$ от обратной температуры для KVg в интервале распада V_1 -центров (а); V_1 -центров после вычитания интенсивности люминесценции при 80°K (б); V_k -центров (в); V_{KA} -центров (г).

Стрелками указана последовательность измерения интенсивности люминесценции в цикле нагрева-охлаждения, цифрами - последовательность циклов.

Для определения \hat{E} необходимо из общего свечения предварительно вычитать фон ТЛ. Интенсивность этого фона можно

непосредственно измерить после охлаждения образца до температуры, при которой термоактивационные процессы "заморожены". В использованной нами установке образец можно охлаждать не ниже 80°K [1], что в случае разрушения V_1 -центров недостаточно для полного "замораживания" термоактивационных процессов. Поэтому для вычитания фона ТЛ из полного свечения был применен следующий прием. В каждом цикле нагрева-охлаждения образец охлаждали до $T_0, T_5 = 80^{\circ}\text{K}$ (см. рис. 1) и измеряли интенсивности люминесценции I_0, I_5 , которые равны интенсивности ТЛ или больше ее. Затем формировалась величина $I_{\phi} = I/64 (I_0 + I_5)$. Она вычитывалась из всех значений интенсивности люминесценции $(I_1 - I_5)$, измеренных соответственно при $T_1 - T_5$ такое количество раз (K), пока полученные разности $(I_1 - K I_{\phi}) / (I_3 - K I_{\phi})$ и $(I_3 - K I_{\phi}) / (I_5 - K I_{\phi})$ в координатах $\ln I - 1/T$ лучше всего аппроксимировались прямыми. Критерием этого служил минимум суммы среднеквадратических отклонений. На рис. 4, б показаны результаты измерений в интервале температур разрушения V_1 -центров с поправкой на фон ТЛ. Видно, что после вычитания фона результаты в координатах $\ln I - 1/T$ ложатся на прямые.

Далее дополнительно проверили правомерность применения выбранного приема для учета фона ТЛ при неполном "замораживании" термоактивационных процессов. В случае разрушения F' -центров при азотной температуре можно непосредственно измерить интенсивность ТЛ. Сравнивались значения \dot{E} , рассчитанные путем вычитания непосредственно измеренной интенсивности ТЛ, со значениями \dot{E} , вычисленными из измерений при неполном "замораживании" термоактивационных процессов. В обоих случаях эти значения были одинаковы.

Рассмотрим интервал температур разрушения V_k -центров (см. рис. 3, б). После скачкообразного нагрева или охлаждения образца интенсивность люминесценции нарастает или соответственно спадает медленно, т.е. интенсивность люминесценции является не только функцией температуры, но и функцией времени. Нестационарные значения интенсивности люминесценции в координатах $\ln I - 1/T$ образуют своеобразные петли (рис. 4, в), вид которых зависит от температурного режима при измерении I . Поэтому по наклону зависимости $\ln I (1/T)$ в этом

случае невозможно определить истинные значения \hat{E} .

Характерно, что в интервале температур разрушения V_k -центров время установления квазистационарной интенсивности термостимулированной люминесценции тем меньше, чем выше температура (см. также [7]).

Уже в высокотемпературной части пика ТСП, соответствующего разрушению V_k -центров, время установления квазистационарной интенсивности люминесценции становится меньше постоянной времени измерительной аппаратуры. Таким образом в этом интервале температур оказывается возможным измерить квазистационарные интенсивности люминесценции и оценить \hat{E} .

В интервале температур разрушения V_{KA} -центров (рис. 3, в) интенсивность люминесценции безынерционно следует за изменениями температуры. Отсутствует также фон ТЛ (см. районы T_0 , T_0 на рис. 3, в), и зависимость $\ln I(1/t)$ аппроксимируется прямыми (рис. 4, г).

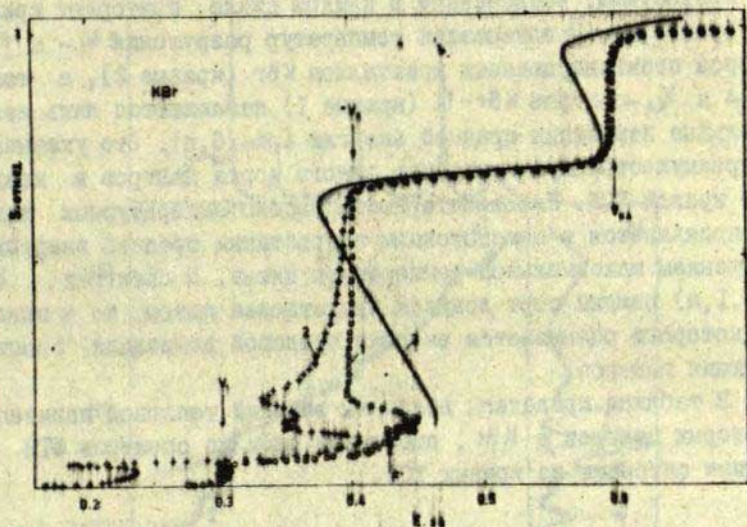
Зависимость $S(\hat{E})$

На рис. 5 показана зависимость высвеченной светосуммы от средней энергии для неактивированного KBr . Кривая 1 построена с учетом фона ТЛ, а кривая 2 — непосредственно по результатам измерений. Преимущественное разрушение моноэнергетических центров одного сорта на кривой $S(\hat{E})$ проявляется как крутое возрастание светосуммы при практически постоянной средней энергии (кривая 1 на рис. 5). В интервале температур между пиками ТСП, когда одновременно разрушаются центры разной глубины, средняя энергия меняется, а светосумма возрастает незначительно.

Рассмотрим начальный, низкоэнергетический участок $S(\hat{E})$, описывающий разрушение V_1 - и F' -центров. В соответствующем интервале температур V_k -центры автолокализованы. Ввиду того, что фон ТЛ, обусловленный рекомбинацией пар $\{F-V_k\}$, приводит к фактивному занижению средней энергии, начальный участок $S(\hat{E})$ без вычета фона сдвинут в сторону меньших значений средней энергии (см. кривые 1 и 2 на рис. 5). Характерно, что средняя энергия, вычисленная без вычета фона ТЛ, с увеличением высвеченной светосуммы проходит через максимум.

Это вызвано тем, что доля туннельного фона в общем свечении на "хвостах" соответствующего пика ТСЛ больше, чем в максимуме, и формально вычисленные значения средней энергии намного отличаются от истинных значений \hat{E} . После вычета фона ТЛ получены практически постоянные значения средней энергии для температур разрушения V_k -центров. Все сказанное относится также к интервалу температур разрушения F' -центров, однако при разрушении последних \hat{E} постепенно возрастает (кривая 1 на рис.5). Это вызвано одновременным разрушением более глубоких центров, пик которых находится под пиком ТСЛ V_k -центров. Природа этих центров не выяснена (F'_A -центры?).

Теперь обратим внимание на зависимость $S(\hat{E})$ при делокализации V_k -центров. Вместе с уменьшением концентрации V_k -центров постепенно уменьшается и интенсивность фона ТЛ. Поэтому при увеличении высвеченной светосуммы разность между значениями средней энергии, полученными с учетом и без учета фона ТЛ, уменьшается. В конечной стадии рекомбинации V_k -центров, а также в интервале V_{kA} -центров фон ТЛ отсутствует (кривые 1 и 2 на рис.5 совпадают). Зависимость $S(\hat{E})$ позволяет выявить также нестационарность рекомбинационного процесса и границы эффективного применения метода ФТВ. Кривая 3 на рис. 5 построена по формально вычисленной средней энергии \hat{E}_1 . В начальной стадии разрушения V_k -центров \hat{E}_1 больше \hat{E} , что указывает на нестационарность люминесценции, обусловленной диффузионно-контролируемой туннельной рекомбинацией V_k -центров (см. также рис.4, в). В конечной стадии разрушения V_k -центров \hat{E}_1 уменьшается по двум причинам [1]: квазистационарная люминесценция устанавливается практически безынерционно; все более существенными становятся изменения концентрации центров во время измерения $I(T)$. Из-за последнего фактора при измерении квазистационарных значений интенсивности люминесценции \hat{E}_1 всегда меньше \hat{E} (см. кривую 3 на рис.5 - разрушение V_{kA} -центров).



Р и с. 5. Зависимость высвеченной светосуммы от средней энергии тепловой ионизации ловушек КВР.

Средние энергии вычислены из измерений интенсивности люминесценции во время нагрева и последующего охлаждения образца: 1 - с учетом фона туннельной люминесценции; 2 - без учета фона туннельной люминесценции; 3 - во время нагрева образца с учетом фона туннельной люминесценции.

Спектры ФТВ

Окончательные результаты измерения спектров ФТВ кристаллов KBr и KBr-Tl (0,05 мол.%) представлены на рис.6. С повышением максимальной температуры цикла нагрева-охлаждения парциальные светосуммы, высвеченные в каждом цикле, повторяют кривые ТСЛ (рис.6,г). В интервалах температур разрушения V_1 - и F' -центров неактивированных кристаллов KBr (кривые 2), а также Ti° - и V_{KA} -центров KBr-Tl (кривые 1) наблюдаются лишь незначительные изменения средней энергии (рис.6,в). Это указывает на преимущественную ионизацию одного сорта центров в каждом пике кривой ТСЛ. Неэлементарность высокотемпературных пиков ТСЛ проявляется в немономтонном возрастании средней энергии с повышением максимальной температуры цикла. В спектрах ФТВ (рис.1,а) каждый сорт ловушек представлен пиком, по положению которого оценивается энергия тепловой ионизации соответствующих центров.

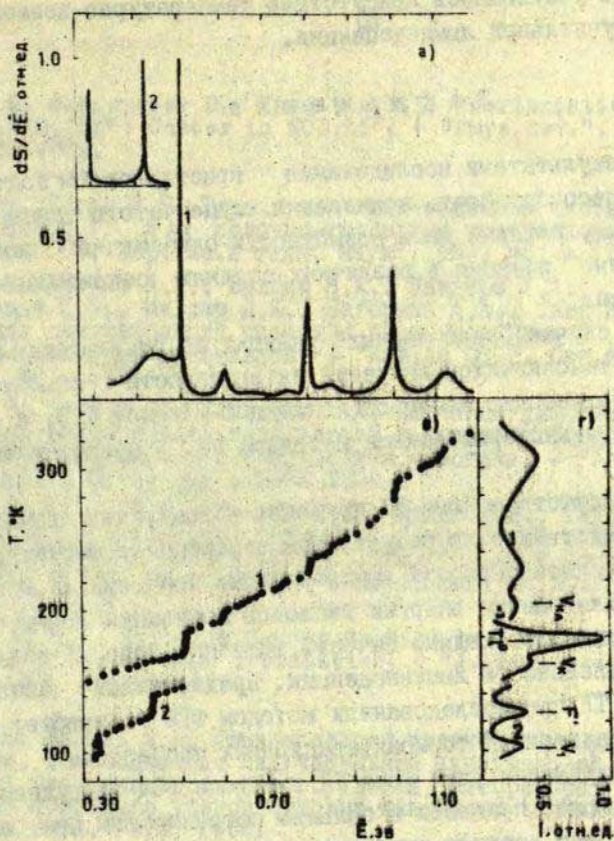
В таблице приведены величины энергий тепловой ионизации некоторых центров в KBr , оцененные нами из спектров ФТВ и другими авторами из кривых ТСЛ.

Т а б л и ц а

Энергии тепловой ионизации ловушек в кристаллах KBr

Символ центра	T, °K	E ФТВ, эв	E ТСЛ, эв	Кристалл
V_1	108	0,302	0,25 [9]	KBr
F'	133	0,422	0,35 [12]	KBr
V_K	177	0,40	0,41 [9]	KBr
Ti°	167	0,42		KBr-Tl (0,05 мол.%)
V_{KA}	179	0,514		KBr-Tl (0,05 мол.%)
	210	0,595		KBr-Tl (0,05 мол.%)

Полученные по спектрам ФТВ значения энергий тепловой ионизации V_1 - и F' -центров существенно превышают значения, приведенные в работах [9,12]. Расхождение, по-видимому, вызвано тем, что при оценке по кривым ТСЛ энергий тепловой ионизации



Р и с. 6. а - спектр фракционного термовысвечивания;
 в - температурная независимость средней энергии;
 г - кривая термостимулированной люминесценции.
 1 - KBr-Tl (0,05 мол. %); 2 - неактивированный KBr.

ловушек не учитывалось присутствие температурно-независимого фона туннельной люминесценции.

З а к л ю ч е н и е

1. Результаты исследования кристаллов КВг подтверждается целесообразность применения ступенчатого температурного режима, который дает возможность однозначно выявить "задержанные" реакции в различных стадиях рекомбинационного процесса.

2. В случае "задержанных" реакций по результатам измерений неустановившихся значений интенсивности люминесценции оценить энергию тепловой ионизации методом ФТВ, а также другими неизотермическими методами не представляется возможным.

3. Присутствие фона ТЛ приводит к тому, что вычисленные непосредственно по результатам измерений температурной зависимости интенсивности люминесценции значения \bar{E} меньше истинных. Для оценки энергии тепловой ионизации ловушек предварительно необходимо вычесть величину фона ТЛ из суммарной интенсивности люминесценции. Предложенный способ учета фона ТЛ при исследованиях методом ФТВ не требует полного "замораживания" термоактивационных процессов.

4. Выявление и учет фона ТЛ в методе ТСЛ затруднен. Наличие фона может привести к большим погрешностям при определении глубины ловушек этим методом.

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. Була В.Г., Тале И.А. Алгоритмизация измерений спектров фракционного термовысвечивания в ионных кристаллах с применением УВМ. - Уч.зап. ЛГУ, т.193. Электронные и ионные процессы в ионных кристаллах, вып.1, Рига, 1973, с.197-223.
2. Delbecq C.J., Ghosh A.K., Yuster P.H. Trapping and Anihilation of Electrons and Positive Holes in KCl-TlCl. - "Phys.Rev.", 1966, 151, p.599-609.
3. Keller F.J., Murray R.B. Thermal Motion of Holes in Potassium Iodide. - "Phys.Rev.", 1966, 150, p.670-679.

4. Schoemaker D., Yasaitis E.L. Reorientation Motions of the H (Li^+) Center in $KCl:Li^+$. - "Phys.Rev.", 1972, B5, p.4970-4985.

5. Боган Я.Р. Туннельная люминесценция чистых и активированных Tl и Ag щелочно-галогидных кристаллов. - "Изв. АН Латв.ССР. Сер. физ. и техн. наук", 1969, №3, с.57-62.

6. Боганс Я.Р., Валдис Я.А., Кандерс У.А., Лейнерте-Нейланде И.Ф., Миллер Д.К., Нагорный А.А., Тале И.А. Туннельная люминесценция чистых и активированных Tl и Ag щелочно-галогидных кристаллов. - "Изв. АН СССР. Сер. физ.", 1973, 37, с.741-746.

7. Тале И.А., Гайлетис А.А. Изучение диффузии и туннельной рекомбинации возбуждений в кристаллофосфорах активированных неизомерными методами. - "Изв. АН СССР. Сер. физ.", 1971, 35, с.1336-1339.

8. Лушик Ч.Б., Кяембе Х.Ф., Лушик Н.Э., Тийслер Э.О., Яек И.В. Делокализация примесных возбуждений и квазилокальные электронные возбуждения в активированных ионных кристаллах. - "Тр. Ин-та физики и астрономии АН ЭССР", 1969, №35, с.5-38.

9. Ueta M. Color Center Studies in Alkali Halides by Pulsed Electron Beam Irradiation. - "J.Phys.Soc.Japan", 1967, 23, p.1265-1279.

10. Валдис Я.А. Люминесценция щелочно-галогидных кристаллов, обусловленная излучательной аннигиляцией локализованных экситоноподобных возбуждений. Автореферат диссертации на присвоение ученой степени кандидата физико-математических наук. Рига, 1966.

11. Dutton D., Maurer R. Color Centers and Trapped Charge in KCl and KBr . - "Phys.Rev.", 1953, 90, p.126-130.

12. Scaramelli P.F. and M' Traps in Alkali Halides Studied by Means of Photostimulated Thermoluminescence. - "IL NUOVO CIMENTO", 1966, 45, BNr.2, p.119-125.

А.А.Гайлитис, П.А.Кулис

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ФЕНОМЕНОЛОГИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ ЛОВУШЕК ПРИ
СЛОЖНОЙ КИНЕТИКЕ, ВКЛЮЧАЮЩЕЙ ПЕРЕХОД ОТ КИНЕТИКИ ПЕРВОГО
ПОРЯДКА К КИНЕТИКЕ ВТОРОГО ПОРЯДКА И НАОБОРОТ

В работе [12] предлагался новый метод термовысвечивания — метод постоянного сигнала, позволяющий более точно, чем обычный метод термовысвечивания, определить оценки феноменологических параметров ловушек. При этом рассматривались только кинетики первого и второго порядка. В настоящей работе доказывается, что метод постоянного сигнала [12] применим независимо от того, реализуются ли простейшие случаи — кинетика первого или второго порядка, либо более сложные, включающие переход от кинетики первого порядка к кинетике второго порядка и наоборот.

Множество релаксационных процессов в твердых телах, например, термическое освобождение локализованных на ловушках электронов, распад ассоциатов, деориентация диполей описываются кинетическими уравнениями типа

$$\frac{dn}{dt} = -f(n)W_0 e^{-\varepsilon/kT}, \quad (1)$$

где n — концентрация рассматриваемых образований, ε — энергия термической активации, W_0 — частотный фактор. При этом ставится задача определения величин ε , W_0 и вида функции $f(n)$ анализом величин, пропорциональных скорости изменения концентрации — интенсивности люминесценции, термостимулированного тока, тока деполяризации.

Рассмотрим эту задачу на примере оценки параметров кинетики люминесценции по данным термовысвечивания.

В общем случае распределение ловушек электронов по энергиям термической активации сложно и оценка плотности локальных состояний выполняема только применением специфического, трудоемкого метода термовысвечивания [1-3]. При

дополнительном ограничении модели кристаллофосфора моноэнергетическими ловушками и ограничении кинетики простейшими предельными случаями кинетики (кинетикой первого или второго порядка) задача оценки феноменологических параметров решается анализом кривых термовысвечивания [4-9].

Однако такой анализ следует считать только приближенным: хотя параметры модели однозначно определяют форму кривой термовысвечивания, обратное неверно [10].

Количественный анализ легче выполнить применением видоизмененного метода термовысвечивания.

При этом эксперимент состоит в подборе такого закона нагрева кристаллофосфора, чтобы интенсивность люминесценции осталась на постоянном уровне (метод постоянного сигнала). Результатом этого эксперимента является реализованный закон управления температурой кристаллофосфора.

Анализом закона управления температурой выбирается гипотеза (кинетика первого или второго порядка) и определяются параметры модели.

Общезвестно, что при опустошении данного класса моноэнергетических ловушек кинетика часто становится более сложной, включая переход от процесса первого порядка к процессу второго порядка или наоборот [11].

В этих случаях анализ кривых термовысвечивания не обеспечивает выбор гипотезы и оценку основных параметров кинетики.

В настоящей работе доказывается, что метод постоянного сигнала [12] применим не только в простейших случаях кинетики первого или второго порядка, но и в общем случае, когда реализуется переход от кинетики первого порядка к кинетике второго порядка или наоборот.

При этом соотношения, связывающие экспериментально измеряемые величины — время t и температуру T с параметрами модели, получаются в аналитическом виде. Существенных приближений делать при этом не приходится.

В простейших случаях, соответствующих кинетике люминесценции первого или второго порядка, соотношения сводятся к линейным.

Рассмотрим модель кристаллофосфора, содержащего один класс ионизированных центров рекомбинации (концентрация n^+ , сечение рекомбинации σ^+), один класс активных ловушек электронов (концентрация v_j , концентрация заполненных ловушек n_j , энергия термической активации ε_j , частотный фактор W_j , сечение захвата электронов σ_j) и один или несколько классов пассивных ловушек (концентрация заполненных пассивных ловушек n'_0).

Согласно [II] изменение концентраций n_j и n^+ следует уравнениям:

$$\begin{cases} \frac{dn_j}{dt} = -W_j e^{-\varepsilon_j/kT} n_j + U^- N^- \sigma_j (v_j - n_j), \\ \frac{dn^+}{dt} = -\sigma^+ n^+ U^- N^-, \end{cases} \quad (2)$$

где U^- - средняя термическая скорость электрона зоны проводимости, N^- - концентрация электронов в зоне проводимости.

Использование уравнений (2) и общей теории [II] приводит к уравнению

$$\begin{cases} \frac{dn^+}{dt} = - \frac{(n^+ - n'_0)}{1 + \frac{\sigma_j v_j}{\sigma^+ n^+}} W_j e^{-\varepsilon_j/kT}, \\ n^+(0) = n'_0 + n_{j0}, \end{cases} \quad (3)$$

где $n^+(0)$ - исходная концентрация центров рекомбинации, n_{j0} - исходная концентрация заполненных ловушек рассматриваемого класса.

Рассмотрим, как меняется мгновенный порядок кинетики γ [13] при переходах от кинетики первого порядка к кинетике второго порядка и наоборот. Чтобы имел место первый случай, должны иметь место условия:

$$n'_0 = 0 \quad \text{и} \quad \sigma^+ n^+(0) \gg \sigma_j v_j.$$

При этом можно выполнить аппроксимацию соотношения (3) соотношением (I), в котором предполагается, что $f(n^+) = (n^+)^{\gamma}$. Используя теорию [13], получаем оценку мгновенного порядка кинетики γ :

$$\gamma = 2 - \frac{\sigma^+ n^+}{\sigma^+ n^+ + \sigma_j v_j}. \quad (4)$$

Видно, что с уменьшением концентрации n^+ мгновенный порядок кинетики γ меняется от 1 до 2. Чтобы имел место второй случай, должны иметь место условия: $n'_0 \neq 0$ и $\sigma^+ n^+(0) \ll \sigma_j \nu_j$, при этом получается

$$\gamma = 1 + \frac{n_j}{n_j + n'_0} \quad (5)$$

и в конце процесса опустошения ловушек данного класса, как видно из формулы (5), при $n_j \ll n'_0$ получаем кинетику первого порядка.

В обоих случаях можно рассчитать форму соответствующих кривых термовысвечивания. Результаты, как правило, неудобны для определения параметров кинетики и выбора гипотезы.

Выбор гипотезы (кинетики первого или второго порядка или переходные случаи) и оценка параметров существенно облегчаются использованием метода постоянного сигнала. При этом, начиная с произвольного момента времени t_a при температуре T_a , в дальнейшем температуру регулируют так, чтобы интенсивность люминесценции осталась постоянной.

Рассмотрим соответствующие законы управления температурой.

Переход от кинетики первого порядка к кинетике второго порядка

Использованием уравнения (3) при $n'_0 = 0$ получаем кинетическое уравнение для концентрации ионизированных центров рекомбинации:

$$\frac{dn^+}{dt} = - \frac{\sigma^+ n^+}{\sigma_j \nu_j + \sigma^+ n^+} W_j e^{-\epsilon_j/kT} n^+ \quad (6)$$

Из (6) следует, что требование $\frac{dn^+}{dt} = \text{const}$ будет выполнено, если, начиная с момента $t = t_a$ при $T = T_a$ и $n^+(T_a) = n_a^+$, дальнейшее изменение $n^+(T)$ последует согласно

$$n^+(T) = \frac{1}{2\sigma^+} C e^{\epsilon_j/kT} \left[1 + \sqrt{1 + \frac{4\sigma_j \nu_j}{C} e^{-\epsilon_j/kT}} \right], \quad (7)$$

где

$$C = \frac{(n_a^+ \sigma^+)^2}{n_a^+ \sigma^+ + \sigma_j v_j} e^{-\varepsilon_j/kT_a}$$

Определим закон управления температурой, приводящий к формуле (7). Из $\frac{dn^+}{dT} = f(T)$ и соотношения (6) получим уравнение

$$\frac{dn^+}{dT} \frac{1}{f(T)} = -W_j e^{-\varepsilon_j/kT} n^+ \frac{n^+ \sigma^+}{\sigma_j v_j + \sigma^+ n^+}, \quad (8)$$

и использованием (7) получаем дифференциальное уравнение для $f(T)$:

$$f(T) = \frac{dT}{dT} = \frac{1}{W_j} \left[\frac{\frac{\sigma_j v_j}{C} + \frac{1}{2} e^{\varepsilon_j/kT}}{\sqrt{1 + \frac{4\sigma_j v_j}{C} e^{-\varepsilon_j/kT}}} + \frac{1}{2} e^{\varepsilon_j/kT} \right] \frac{\varepsilon_j}{kT^2}. \quad (9)$$

Решением (9) при начальных условиях $t = t_a$ и $T = T_a$ является закон управления температурой

$$t - t_a = \frac{1}{2W_j} \left[e^{\varepsilon_j/kT_a} (1 + \sqrt{1 + b}) - e^{\varepsilon_j/kT} (1 + \sqrt{1 + b e^{\varepsilon_j/kT_a} e^{-\varepsilon_j/kT}}) \right], \quad (10)$$

где

$$b = \frac{4\sigma_j v_j [n_a^+ \sigma^+ + \sigma_j v_j]}{(n_a^+ \sigma^+)^2}. \quad (11)$$

Закон управления температурой содержит параметры $\varepsilon_j, W_j,$

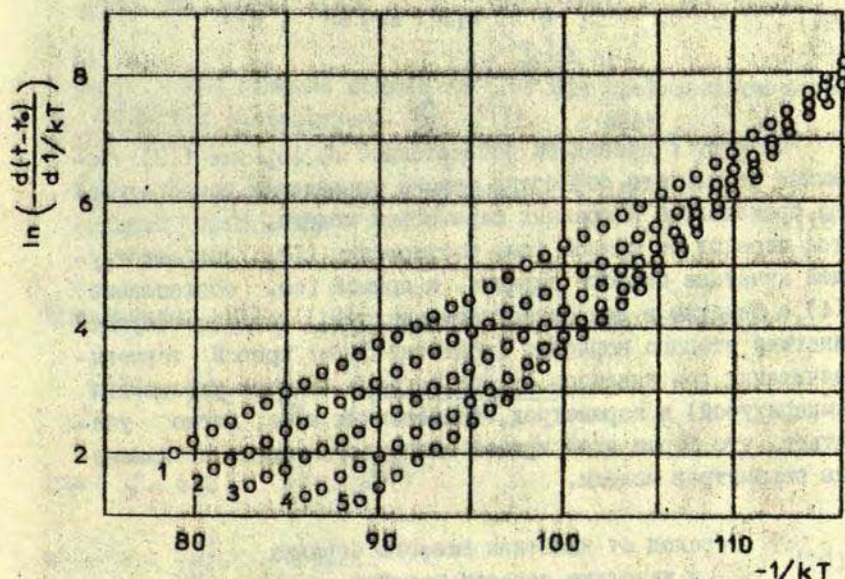
b .

Для облегчения математической обработки кривой - закона управления температурой - дифференцируем и логарифмируем закон (10):

$$\ln\left(-\frac{d(t-t_0)}{d^{1/kT}}\right) = \ln \varepsilon_j - \ln W_j - \ln 4 + \varepsilon_j/kT +$$

$$+ \ln \left\{ \frac{(1 + \sqrt{1 + b e^{\varepsilon_j/kT_0} e^{-\varepsilon_j/kT}})^2}{\sqrt{1 + b e^{\varepsilon_j/kT_0} e^{-\varepsilon_j/kT}}} \right\}. \quad (12)$$

Соотношение (12) также нелинейно относительно параметров, однако в начальных и конечных стадиях оно стремится к линейной зависимости.



Р и с. 1. Обработка закона управления температурой согласно формуле (12).

Параметры модели:

$$v_j = 10^{17} \text{ I/cm}^3; \quad \eta_j(0) = 10^{16} \text{ I/cm}^3;$$

$$W_j = 10^{11} \text{ сек}^{-1}; \quad \varepsilon_j = 0,3 \text{ эв}; \quad b_j = 10^{-17} \text{ см}^2;$$

$$n^+(0) = 10^{16} \text{ I/cm}^3; \quad n_0 = 0.$$

Параметр b^+ для кривых 1-5 равен соответственно 10^{-16} , 10^{-15} , 10^{-14} , $0,33 \cdot 10^{-15}$, $0,33 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$.

При этих значениях феноменологических параметров в начальных стадиях процесса

$$v_0 e^{\epsilon_j/kT_0} e^{-\epsilon_j/kT} \ll 1,$$

и из соотношения (I2) следует

$$\ln \left(- \frac{d(t-t_0)}{d^{1/kT}} \right) = \ln \epsilon_j - \ln W_j + \epsilon_j/kT; \quad (I3)$$

в конечных стадиях получаем соотношение, соответствующее процессу второго порядка:

$$\ln \left(- \frac{d(t-t_0)}{d^{1/kT}} \right) = \frac{\epsilon_j}{2} \frac{1}{kT} + \ln \left(\frac{\epsilon_j}{2} \right) + \frac{\epsilon_j}{2kT_0} - \ln \frac{n_0^+ \sigma^+}{\sigma_j \nu_j} W_j. \quad (I4)$$

На рис. I приведены рассчитанные по формуле (I2) численные результаты обработки закона управления температурой при произвольно выбранных параметрах модели. Явно выделяется переход от прямой (см. соотношение (I3), соответствующей кинетике первого порядка, к прямой (см. соотношение (I4) с меньшим в два раза углом наклона, соответствующей кинетике второго порядка. Рассчитав форму кривой термолюминесцирования при линейном законе нагрева (закон управления температурой) и параметрах, приведенных выше, легко убедиться, что форма этой кривой малочувствительна к изменению параметров модели.

Переход от кинетики второго порядка к кинетике первого порядка

Предположим, что в кристаллофосфоре присутствуют пассивные ловушки. Тогда при концентрации пассивных заполненных ловушек n_0^+ и выполнении $\sigma_j \nu_j \gg \sigma^+ n^+(0)$ из уравнения (3) следует

$$\frac{dn^+}{dt} = -n^+ W_j \frac{\sigma^+ n^+}{\sigma_j \nu_j} e^{-\epsilon_j/kT} + n_0^+ W_j \frac{\sigma^+ n^+}{\sigma_j \nu_j} e^{-\epsilon_j/kT}. \quad (I5)$$

Обозначим $W_0 = n_0' \frac{\delta_j W_1}{\delta_j v_j}$ и $W_2 = \frac{\delta_j^+ W_1}{\delta_j v_j}$,

тогда получим кинетическое уравнение

$$\frac{dn^+}{dt} = - (W_2 n^{+2} - W_0 n^+) e^{-\epsilon_j/kT} \quad (16)$$

Требование постоянности сигнала $\frac{dn^+}{dt} = \text{const}$ выполнено, если, начиная с момента $t = t_0$ при $T = T_0$, $n^+(T_0) = n_0^+$, дальнейшее изменение $n^+(T)$ следует закону

$$n^+(T) = \frac{n_0^+}{2} + \sqrt{\left(\frac{n_0^+}{2}\right)^2 + n_0^+ (n_0^+ - n_0') e^{\epsilon_j/kT} e^{-\epsilon_j/kT_0}} \quad (17)$$

в то же время решение уравнения (16) при произвольном законе уравнения температурой $\frac{dT}{dt} = f(T)$ дает

$$n^+(T) = \left[\frac{1}{n_0^+} + \left(\frac{1}{n^+(T_0)} - \frac{1}{n_0^+} \right) e^{-\int_{T_0}^T W_0 f(T') e^{-\epsilon_j/kT'} dT'} \right]^{-1} \quad (18)$$

Приравнявая (17) и (18), получаем выражение для $f(T)$:

$$f(T) = \frac{dT}{dt} = \frac{1}{W_0} \frac{\epsilon_j/kT^2 e^{\epsilon_j/kT}}{\sqrt{1 + d e^{\epsilon_j/kT}}} \quad (19)$$

где $d = 4\alpha(\alpha - 1) e^{-\epsilon_j/kT_0}$

$$\text{и } \alpha = \frac{n_0^+}{n_0'} \approx \frac{n^+(T_0)}{n_0'} \quad (20)$$

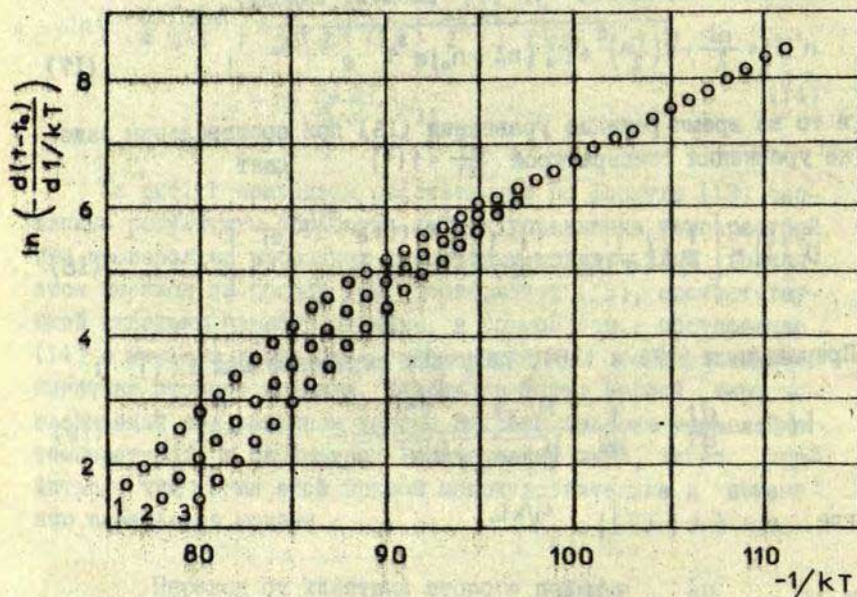
Интегрирование (19) с учетом начальных условий $t = t_0$ при $T = T_0$ дает закон управления температурой:

$$t - t_0 = \frac{e^{\epsilon_j/kT_0}}{2W_0\alpha(\alpha - 1)} \left[\sqrt{1 + 4\alpha(\alpha - 1)} - \sqrt{1 + 4\alpha(\alpha - 1) e^{\epsilon_j/kT} e^{-\epsilon_j/kT_0}} \right] \quad (21)$$

Преобразование к новым переменным дает:

$$\ln\left(-\frac{d(t-t_0)}{d(1/kT)}\right) = \epsilon_j/kT - \ln \epsilon_j - \ln W_0 - \frac{1}{2} \ln \left[1 + 4\alpha(\alpha-1) e^{\epsilon_j/kT} e^{-\epsilon_j/kT_0} \right]. \quad (22)$$

Данное соотношение - это закон управления температурой при кинетике, соответствующей переходу от процесса второго порядка к процессу первого порядка.



Р и с. 2. Обработка закона управления температурой согласно формуле (22).

Параметры модели:

$$\nu_j = 10^{18} \text{ см}^{-3}; \quad W_j = 10^{11} \text{ сек}^{-1}; \quad \epsilon_j = 0,3 \text{ эв};$$

$$\sigma_j = 10^{-15} \text{ см}^2; \quad n^+(0) = 10^{17} \text{ см}^{-3}; \quad G^+ = 10^{-17} \text{ см}^2.$$

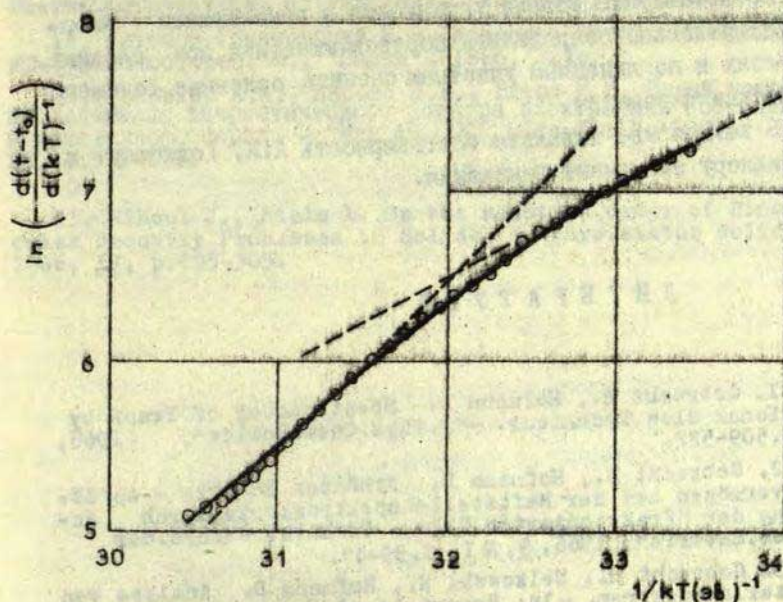
Параметры n_{j0} и n_0 для кривых 1-3 равны соответственно $0,95 \cdot 10^{17}$ и $0,5 \cdot 10^{16}$, $0,9 \cdot 10^{17}$ и $1 \cdot 10^{16}$, $0,8 \cdot 10^{17}$ и $0,2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$.

В предельном случае при $\alpha \rightarrow 1$ получаем соотношение, характерное для кинетики первого порядка:

$$\ln\left(-\frac{d(t-t_0)}{d(1/kT)}\right) = \theta_j/kT + \ln \theta_j - \ln W_0. \quad (23)$$

Во втором предельном случае при $n \rightarrow 0$ (формально достаточно потребовать $n = 1$) из (22) следует известное соотношение (14).

На рис. 2 приведены рассчитанные численные значения функции (22) при некоторых произвольно выбранных значениях феноменологических параметров (см. рис. 2). Видно, что с переходом к более высоким температурам выполняется переход от кинетики второго порядка к кинетике первого порядка. Представление экспериментальных данных в виде (22) позволяет определить θ_j , W_0 и α (при этом учитывается вся кривая).



Р и с. 3. Пример сложной, переходной кинетики при опустошении ловушек Ag^0 в кристалле $\text{KCl} - \text{Ag}$.

Сплошная кривая соответствует теории (22). Кружками обозначены экспериментальные значения.

На рис. 3 приведены экспериментальные данные для термовысвечивания пика Ag^0 в $KCl-Ag$. Экспериментальные данные удовлетворительно аппроксимируются соотношением (22), и получаются оценки: $\varepsilon_j = 1$ эв, $W_0 = 10^{11}$ сек⁻¹, $\alpha = 1,6$.

Рассмотренные соотношения показывают, что метод постоянного сигнала позволяет идентифицировать кинетику первого, второго и промежуточного, переходного порядка, представляя результаты эксперимента в легко обозримом, наглядном виде.

В общем случае (соотношения (12) и (22) закон управления не удается линеаризовать переходом к координатам

$$1/kT; \ln\left(-\frac{d(t-t_a)}{d 1/kT}\right);$$

однако явно выделяется линейные участки, в пределах которых в силе простейшие случаи кинетики.

Представление закона управления в приведенных координатах позволяет определить порядок кинетики при сложных гипотезах и по линейным участкам оценить основные феноменологические параметры.

В заключение выражаем благодарность А.К. Годжалну и Д.К. Миллеру за ценные замечания.

ЛИТЕРАТУРА

1. Gobrecht H., Hofmann D. Spectroscopy of Traps by Fractional Glow Technique. - "J. Phys. Chem. Solids", 1966, 27, p. 509-522.
2. Gobrecht H., Hofmann D. Erhöhtes Energie - Auflösungsvermögen bei der Haftstellenspektroskopie durch Anwendung der "fraktionierten Glow - Technik. - "Phys. der Kondens. Materie", 1966, 2, № 1, S. 39-47.
3. Gobrecht H., Nelkowski H., Hofmann D. Analyse von Haftstellenspektren. - In: Preprints of the International Conference on Luminescence, C, 6, vol. 2, Budapest, p. 188-195.

4. Nicholas K.H., Woods J.T. The Evaluation of Elektron Trapping Parameters from Conductivity Glow Curves in Cadmium Sulphide. - "Brit.J.Appl.Phys.", 1964, 15, p.783-795.

5. Kelly P.J., Laubitz M.J. On the Analysis of Glow Curves. - "Canadian J.Phys.", 1967, 45, p.311-321.

6. Land P.L. New Methods for Determining Electron Trap Parameters from Thermoluminescent or Conductivity "Glow Curves". - "J.Phys.Chem.Solids", 1969, 30, p.1681-1692.

7. Chen R. On the Calculation of Activation Energies and Frequency Factors from Glow Curves. - "J.Appl.Phys.", 1969, 40, № 2, p.570-585.

8. Shenker D., Chen R. Numerical Curve Fitting of General Order Kinetics Glow Peaks. - "J.Phys. D: Appl.Phys.", 1971, 4, p.287-291.

9. De Muer D. Development of a Universal Method for Calculating the Thermoluminescence Parameters. - "Physica", 1970, 48, p.1-12.

10. Kelly P.J., Bräunlich P. Phenomenological Theory of Thermoluminescence. - "Phys.Rev., B," 1970, 1, p.1587-1595.

11. Антонов-Романовский В.В. Кинетика фотолюминесценции кристаллофосфоров. М., "Наука", 1966. 324с.

12. Гайлитис А.А., Янсонс Я.Л., Витол И.К. Новый метод исследования энергетического спектра электронных состояний в кристаллофосфорах. - "Изв.АН СССР. Сер.физ.", 1969, 33, №6, с.977-979.

13. Nihoul J., Stals L. On the Reaction Order of Bimolecular Recovery Processes in Solids. - "Phys.status solidi", 1966, 17, p.295-305.

И.Фабрикант X, Е.А.Котомин

ТЕОРИЯ ДИФфуЗИОННО-КОНТРОЛИРУЕМОЙ РЕКОМБИНАЦИИ ДОНОРНО-АКЦЕПТОРНЫХ ПАР

I. КВАЗИСТАЦИОНАРНОЕ РЕШЕНИЕ

Рассмотрена асимптотика при больших временах квазистационарной кинетики диффузионно-контролируемой рекомбинации донорно-акцепторных пар с вероятностью рекомбинации (в единицу времени) $W_0 e^{-E_a/kT}$, где W_0 - параметр, зависящий от величины перекрывания волновых функций партнеров, r - расстояние между партнерами, r_0 - половина радиуса Бора более диффузного партнера. Применен подход парных плотностей вероятности, описывающих пространственные корреляции партнеров. Обосновано введение квазистационарного радиуса рекомбинации. Получено уравнение скорости рекомбинации с константой $k = 4\pi D r_0 [-\ln D + \ln(W_0 r_0^2) + 2c]$, $D = D_A + D_B$ - суммарный коэффициент диффузии, c - постоянная Эйлера. Теория справедлива как для туннельного, так и для термоактивационного механизма диффузии. В последнем случае, когда $D = D_0 e^{-E_a/kT}$, константа рекомбинации $k = 4\pi D r_0 \left[\frac{E_a}{kT} + \ln \frac{W_0 r_0^2}{D_0} + 2c \right]$, где E_a - энергия активации диффузии.

I. В в е д е н и е

В теории диффузионно-контролируемых реакций (ДКР) второго порядка важное место занимают работы Вейта [1,2], применившего описание реакции в терминах парной плотности ве-

X Сотрудник Института физики Академии наук Латвийской ССР.

роятности (ШВ), описывающей пространственную корреляцию партнеров. В большинстве известных нам работ по ДКР использовалось предложенное Смолуховским граничное условие. Оно основано на предположении о явном радиусе рекомбинации (ЯРР). Иными словами, предполагается, что рекомбинация частиц осуществляется только при сближении до радиуса рекомбинации r_0 и частицы никак не взаимодействуют при любых $r > r_0$. В работе [3] рассмотрен случай вероятности рекомбинации $W(r) \sim r^{-2m}$, $m = 3, 4, 5$ (r - расстояние между партнерами) и предложен способ введения радиуса рекомбинации в этом случае.

В теории туннельной рекомбинации донорно-акцепторных пар (ДАП) (см., напр., [4, 5, 6]) величина, обратная среднему времени жизни пары, или вероятность рекомбинации (т.е. спонтанного перехода электрона между пространственно разделенными дефектами) в единицу времени имеет вид:

$$W(r) = W_0 e^{-r/r_0} \quad (I)$$

где W_0 - параметр, зависящий от величины перекрытия волновых функций донорно-акцепторной пары, r - расстояние между партнерами, r_0 - половина радиуса Бора более диффузного (т.е. с более делокализованной волновой функцией) центра. (Уравнение (I) получается при предположении о водородоподобном виде $\psi \sim e^{-r/2r_0}$ волновой функции более диффузного центра.)

Естественно предположить, что закон (I) выполняется и в случае диффузии партнеров, поскольку основную часть времени жизни частицы локализованы. Однако феноменология ДКР с рекомбинацией по закону (I) не развита до сих пор. Цель данной работы - развить эту феноменологию, необходимую для описания ДКР ДАП, и применить её к V_K - центрам в щелочно-галоидных кристаллах.

2. Постановка задачи

Рассмотрим следующую модель: (I) в исходный момент времени $t=0$ в объеме V находятся две частицы А и В, (2.) плот

ность вероятности найти каждую частицу в любой точке объема V не зависит от координат, (3) частицы диффундируют с коэффициентами диффузии D_A и D_B соответственно, (4) обе частицы одновременно исчезают с вероятностью $W_0 e^{-\gamma t}$ (в единицу времени), (5) задача сферически симметрична, т.е. решение не зависит от угловых переменных. (Случай системы частиц обсужден в следующей статье, п. 2.)

Введем две одночастичные функции распределения $U_A(\vec{r}_A, t)$ и $U_B(\vec{r}_B, t)$ так, что $U_A(\vec{r}_A, t) \frac{dV_A}{V}$ есть вероятность найти частицу A в окрестности точки r_A в элементе объема dV_A в момент t . Согласно предположению (2) $U_A(\vec{r}_A, 0) = U_B(\vec{r}_B, 0) = 1$. Можно показать, что для неограниченного объема хаос в распределении частиц A и B , имевший место в исходный момент, будет сохраняться в любой момент времени (отсутствие макроскопической диффузии). Вводим двухчастичную функцию распределения (ДФР) (парная плотность вероятности у Вейта) $U_{AB}(\vec{r}_A, \vec{r}_B, t)$ так, что $\frac{U_{AB} dV_A dV_B}{V^2}$ есть вероятность одновременно в момент t найти частицу A в окрестности r_A в объеме dV_A , а частицу B в окрестности r_B в объеме dV_B . Поскольку U_A, U_B не зависят от координат, двухчастичная функция зависит только от расстояния между частицами $U_{AB}(\vec{r}_A, \vec{r}_B, t) = U_{AB}(|\vec{r}_A - \vec{r}_B|, t)$. Изменение ДФР во времени описывается уравнением (ср. [1]).

$$\frac{\partial U_{AB}(r, t)}{\partial t} = D \left[\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right] U_{AB}(r, t) - W_0 e^{-\gamma t} U_{AB}(r, t). \quad (2)$$

Как хорошо известно, диффузионное описание (2) применимо, если: 1) частицы до рекомбинации делают много случайных прыжков, 2) U_{AB} мало меняется на расстояниях порядка длины прыжка.

Вероятность найти пару AB при любом расстоянии партнеров друг от друга в момент t в объеме V

$$P_{AB}(t) = P_A(t) = P_B(t) = \int U_{AB}(r, t) \frac{dV}{V}. \quad (3)$$

P_A - вероятность найти частицу A (аналогично P_B).

Скорость изменения вероятности обнаружить пару получаем подстановкой (2) в продифференцированное уравнение (3), учитывая, что поток на бесконечности равен нулю:

$$\dot{P}_{AB}(t) = \dot{P}_A(t) = \dot{P}_B(t) = -4\pi \int U_{AB}(r,t) W_0 e^{-r/r_0} r^2 \frac{dr}{V} \quad (4)$$

3. Выбор начальных и граничных условий

Пусть $U_{AB}(r,0) = U_0$, где $U_0(r)$ задано, (5a)

$U_{AB}(r,t)$ ограничено при $r=0$, $r=\infty$. (5б)

Условие (5a) является начальным; в частном случае хаотического распределения $U_0(r) = 1$. Учитывая, что каждый партнер занимает конечную область радиуса $\leq r_0$, можно было бы наложить условие $U_{AB}(r,t) \neq 0$ для $r \leq r_0$ (и искать решение в области $r > r_0$), но это затрудняет решение и, как будет показано в следующем пункте, мало изменит результат.

4. Квазистационарное приближение

Предположим наличие двух существенно различных масштабов времени: именно, характерное время изменения одночастичных функций (τ_1) много больше характерного времени изменения двухчастичных функций (τ_2). Иначе говоря, полагаем, что, спустя время τ_2 , распределение частиц А, В по взаимным расстояниям при заданных значениях одночастичных функций можно считать стационарным. Таким образом, двухчастичная функция распределения оказывается зависящей от времени как параметра только через зависимость от времени одночастичных функций. Можно оценить τ_2 как R^2/D , где R - характерный размер задачи. (В модели ЯРР роль R играет r_0 ; через R^2/D сек влиянием члена, зависящего от начальной функции распределения, на константу реакции можно пренебречь.)

Таким образом, будем искать решение задачи в предлагаемом квазистационарном приближении в виде

$$U_{AB}(r,t) = R(r)T(t). \quad (6)$$

Используя условие суперпозиции [1] (частицы не коррелированы на больших расстояниях)

$$U_{AB}(\infty, t) = U_A(t) U_B(t) \quad (7)$$

и налагая условие $R(r) \rightarrow 1, r \rightarrow \infty$,

$$\text{имеем } T(t) = U_A(t) U_B(t). \quad (9)$$

В квазистационарном приближении мы не рассматриваем процесс установления стационарного пространственного распределения (т.е. времена меньше τ_2).

Приближенное решение уравнения (2) в виде произведения (6) а priori использовалось в работах [3,8], обоснование этого приема дано в приложении I.

Итак, для радиальной функции распределения (РФР) $R(r)$ имеем стационарное уравнение диффузии

$$D \left[\frac{d^2}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{d}{dr} \right] R(r) - W_0 e^{-r/r_b} R(r) = 0. \quad (10)$$

Решение уравнения (10) при условиях (5б), (8)

$$R(r) = \frac{2r_b}{r} \left[K_0(z) - \frac{K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} I_0(z) \right], \quad (11)$$

где $I_0(z), K_0(z)$ - модифицированные функции Бесселя нулевого ранга, $\alpha = 2r_b \sqrt{\frac{W_0}{D}}$, $z = \alpha e^{-r/2r_b}$. Вид $R(r)$ для разных α приведен на рисунке.

Для больших $r \gg r_b$ вторым слагаемым в (11) можно пренебречь, а в области насыщения (см. рис.) воспользоваться асимптотикой для $K_0(z)$ при $z \rightarrow 0$.

Тогда

$$R(r) \approx \frac{2r_b}{r} \left[\ln \frac{2}{\gamma \alpha} + \frac{r}{2r_b} \right] = 1 - \frac{2r_b}{r} \ln \alpha + \frac{2r_b}{r} \ln \frac{2}{\gamma}. \quad (12)$$

$\gamma = e^{\gamma} C$ - постоянная Эйлера.

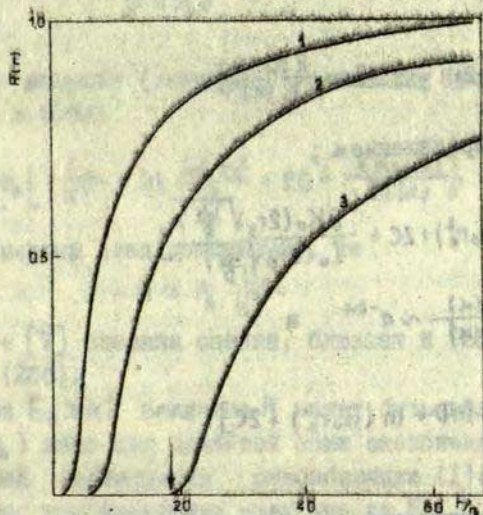
При больших α можно пренебречь последним членом в (12); тогда

$$R(r) \approx_{r \gg r_b} 1 - \frac{2r_b}{r} \ln \alpha. \quad (12a)$$

Видно, что насыщение достигается тем медленнее, чем больше W_0 и меньше D . Напомним, что в модели ЯРР [1]

$$R(r) = 1 - \frac{r_0}{r}, \quad r > r_0.$$

При $r \rightarrow 0$ можно оценить $R(r) \sim [I_0(\alpha)]^{-1}$, а при больших $\alpha [I_0(\alpha)]^{-1} \sim e^{-\alpha}$; т.е. вероятность найти пару на близком расстоянии экспоненциально мала. Поэтому условие $U_{AB}(r, t) = 0, r \leq r_0$ мало изменило бы полученное решение. Знание РФР необходимо для расчета спектров излучательной рекомбинации и константы скорости рекомбинации. Вычислим последнюю.



Р и с. Радиальная функция распределения.

Величина α : 1 - 10; 2 - 100; 3 - $4 \cdot 10^4$. Видно, что с уменьшением коэффициента диффузии радиальная функция распределения сдвигается в сторону больших r и медленнее достигает насыщения. Стрелкой отмечена величина ЯРР, определенная по формуле (186).

5. Константа скорости рекомбинации

Определим теперь интенсивность рекомбинации, т.е. скорость изменения вероятности найти пару АВ в момент t .

Подставляя (6) в (4) и учитывая (9), имеем:

$$\dot{P}_{AB}(t) = -\frac{4\pi}{V} \int_0^{\infty} U_{AB}(r,t) W_0 e^{-r/r_b} r^2 dr = -\frac{4\pi}{V} U_A U_B \int_0^{\infty} R(r) W_0 e^{-r/r_b} r^2 dr. \quad (I3)$$

В приложении 2 соответствующий интеграл вычислен; в итоге имеем

$$\dot{P}_{AB}(t) = \dot{P}_A = \dot{P}_B = -\frac{K}{V} U_A U_B, \quad (I4)$$

где константа реакции K

$$K = 4\pi D r_b \left[2 \ln \frac{\alpha}{2} + 2C + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right]. \quad (I5)$$

Подставив в (I5) определение α ,

$$K = 4\pi D r_b \left[-\ln \alpha + \ln(W_0 r_b^2) + 2C + \frac{2K_0(2r_b \sqrt{\frac{W_0}{D}})}{I_0(2r_b \sqrt{\frac{W_0}{D}})} \right]. \quad (I6)$$

При больших α $\frac{K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \sim e^{-2\alpha}$ и

$$K = 4\pi D r_b \left[-\ln D + \ln(W_0 r_b^2) + 2C \right]. \quad (I7)$$

6. Квазистационарный радиус рекомбинации

Введем для нашей модели квазистационарный радиус рекомбинации (КРР) так, что подобно модели ЯРР, $K=4\pi DR$, т.е.

$$R = r_b \left[2 \ln \frac{\alpha}{2} + 2C + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right]. \quad (I8a)$$

При больших α

$$R \approx r_b \left[2 \ln \frac{\alpha}{2} + 2C \right]. \quad (I8б)$$

Формула (16) справедлива для любого механизма диффузии; как термоактивационного, так и температурно-независимого туннельного. Последний механизм был теоретически предсказан в работах [9,10,11] и, по-видимому, экспериментально наблюдался [12] для $H_A(Li^+)$ -центров в $KCl(Li^+)$, а также для V_K -центров [13] (в последнем случае предполагается туннелирование связи по оси (110)).

В случае термоактивационного механизма диффузии имеем

$$D = D_0 e^{-E_a/kT}, \quad (19)$$

где E_a — энергия (энтальпия) активации движения.
Из (19) и (18а)

$$R = r_b \left[\frac{E_a}{kT} + \ln \frac{W_0 r_b^2}{D_0} + 2C + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right], \quad (20a)$$

а если первый член доминирует, то

$$R \approx r_b \frac{E_a}{kT}, \quad (20б)$$

В работе [7] сделана оценка, близкая к (20а), а при $E_a \gg kT$ дающая (20б).

При $E_a \gg kT$ величина R может быть велика (по сравнению с r_b) даже для принятой нами экспоненциально быстро спадающей вероятности рекомбинации (I). Из (20а) следует слабая температурная зависимость $R(T)$. При не слишком быстром изменении температуры КРР следует за изменением последней. Заметим, что в теории Вэйта не делается никаких предположений о температурной зависимости ЯРР.

Повторим, что КРР устанавливается после не рассматриваемого нами переходного периода $\tau_2 \sim R^2/D$, введение понятия о таком радиусе возможно только при интерпретации интегральных эффектов (концентрация частиц), но не в эффектах, связанных с видом пространственного распределения партнеров.

Обоснование квазистационарного приближения

Рассмотрим нестационарную задачу (2) и (5а, б).

Разделим переменные:

$$U_{AB}(r, t) = e^{-\lambda t} \frac{V(r)}{r}. \quad (\text{III.1})$$

Уравнение для $V(r)$:

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} - \frac{W_0}{D} e^{-r/r_0} + \frac{\lambda}{D} \right] V_\lambda(r) = 0. \quad (\text{III.2})$$

Его конечное в 0 решение с точностью до постоянной

$$V_\lambda(r) = I_{ip}(\alpha) I_{-ip}(z) - I_{-ip}(\alpha) I_{ip}(z), \quad (\text{III.3})$$

где

$$z = \alpha e^{-r/2r_0}, \quad \alpha = 2r_0 \sqrt{\frac{W_0}{D}}, \quad p = 2r_0 \sqrt{\frac{\lambda}{D}}, \quad I_{ip} - \text{модифицированные}$$

функции Бесселя с мнимыми индексами.

Спектр положительных значений непрерывен, так как при $\lambda > 0$ $V_\lambda(r)$ осциллирует и ограничено на бесконечности. При $\lambda < 0$ условие ограниченности на бесконечности требует $I_{2r_0 \sqrt{\lambda/D}}(\alpha) = 0$. Так как это уравнение решений не имеет, то дискретный спектр отсутствует совсем.

Итак,

$$U_{AB}(r, t) = \frac{1}{r} \int_0^\infty b(\lambda) e^{-\lambda t} \left\{ I_{ip}(\alpha) I_{-ip}(z) - I_{-ip}(\alpha) I_{ip}(z) \right\} d\lambda, \quad (\text{III.4})$$

$b(\lambda)$ находим из начального условия (5а)

$$\frac{1}{r} \int_0^\infty b(\lambda) V_\lambda(r) d\lambda = U_0(r). \quad (\text{III.5})$$

В силу полноты системы функций $V_\lambda(r)$ равенство (III.5) можно рассматривать как разложение функции $U_0(r)$ по полному набору $V_\lambda(r)$. Для нахождения коэффициентов $b(\lambda)$ умножим это равенство на $r V_\lambda^*(r)$ и проинтегрируем по r . Воспользуемся

свойством ортогональности функций $V_\lambda(r)$, доказательство которого можно найти в курсах квантовой механики (ср. [14]).

$$\int_0^\infty V_\lambda^*(r) V_{\lambda'}(r) dr = N_\lambda \delta(\lambda - \lambda'), \quad (\text{III.6})$$

Тогда

$$\delta(\lambda) = \frac{1}{N_\lambda} \int_0^\infty V_\lambda^*(r) r U_0(r) dr. \quad (\text{III.7})$$

Найдем теперь N_λ по методу, изложенному, например, в книге [15], т.е. рассмотрим $\int_0^\infty V_\lambda^*(r) V_{\lambda'}(r) dr$ и, не ставя своей целью доказательство ортогональности, учтем лишь ту часть, которая дает бесконечность при $\lambda \rightarrow \lambda'$.

Воспользовавшись асимптотикой

$$\Gamma_{\mp ip}(z) \simeq \left(\frac{\alpha}{2}\right)^{\pm ip} \frac{e^{\pm \frac{ipr}{2r_0}}}{\Gamma(1 \pm ip)}, \quad (\text{III.8})$$

где Γ - гамма-функция, имеем

$$\begin{aligned} \int_0^\infty V_\lambda^*(r) V_{\lambda'}(r) dr &\sim \frac{|I_{ip}(\alpha)|^2}{|\Gamma(1+ip)|^2} \int_0^\infty e^{\frac{ir(p'-p)}{2r_0}} dr = \\ &= \left| \frac{I_{ip}(\alpha)}{\Gamma(1+ip)} \right|^2 4\pi\sqrt{\lambda D} \delta(\lambda' - \lambda). \end{aligned} \quad (\text{III.9})$$

Таким образом,

$$N_\lambda = 4\pi\sqrt{\lambda D} \left| \frac{I_{ip}(\alpha)}{\Gamma(1+ip)} \right|^2. \quad (\text{III.10})$$

Окончательный результат

$$U_{AB}(r, t) = \frac{1}{r} \int_0^{\infty} \delta(\lambda) e^{-\lambda t} V_{\lambda}(r) d\lambda, \quad (\text{III. II})$$

где

$$\delta(\lambda) = \frac{1}{4\pi\sqrt{\lambda D}} \left| \frac{\Gamma(1+ip)}{\Gamma_{ip}(\alpha)} \right|^2 \int_0^{\infty} V_{\lambda}^*(r) r U_0(r) dr;$$

$V_{\lambda}(r)$ определено равенством (III.3),

$$\left| \Gamma(1+ip) \right|^2 = \frac{\pi p}{\text{sh}(\pi p)}.$$

Полученный результат и есть искомое решение задачи при любых временах. Исследуем его асимптотику при больших временах.

Известно, что асимптотику можно получить, разлагая $\delta(\lambda)V_{\lambda}$ в ряд по степеням $p = 2r_b \sqrt{\frac{\lambda}{D}}$ и интегрируя разложение почленно. Таким образом, рассматриваем поведение $\delta(\lambda)V_{\lambda}$ при $p \rightarrow 0$. Выразим V_{λ} через I_{ip} , K_{ip} :

$$V_{\lambda}(r) = \frac{2i \text{sh}(\pi p)}{\pi} \left\{ I_{ip}(\alpha) K_{ip}(z) - K_{ip}(\alpha) I_{ip}(z) \right\}. \quad (\text{III. I2})$$

Далее, при $p \rightarrow 0$

$$V_{\lambda}(r) \approx \frac{2i \text{sh}(\pi p)}{\pi} I_0(\alpha) \frac{V_{qs}(r)}{2r_b} \approx \frac{ip}{r_b} I_0(\alpha) V_{qs}, \quad (\text{III. I3})$$

где

$$V_{qs}(r) = 2r_b \left[K_0(z) - \frac{K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} I_0(z) \right]; \quad (\text{III. I4})$$

$V_{qs}(r) = rR(r)$, $R(r)$ удовлетворяет (I4).

Для $\delta(\lambda)$ имеем

$$\delta(\lambda) \approx -\frac{i}{2\pi D I_0(\alpha)} \int_0^{\infty} V_{qs}(r) r U_0(r) dr. \quad (\text{III. I5})$$

Подставив это выражение в (III. II), получаем

$$\begin{aligned}
 U_{AB}(r,t) &\underset{t \rightarrow \infty}{\approx} R(r) \frac{1}{\pi D^{3/2}} \int_0^{\infty} V_{gs}(p) p U_0(p) dp \int_0^{\infty} e^{-\lambda t} \lambda^{1/2} d\lambda = \\
 &= R(r) \frac{\int_0^{\infty} R(p) p^2 U_0(p) dp}{2\pi^{1/2} (Dt)^{3/2}} = R(r) T(t).
 \end{aligned}
 \tag{III.16}$$

Таким образом показано, что при больших временах решение (III.11) представимо в виде произведения $R(r)$ (см. (I4)) на функцию, зависящую только от времени и $U_0(p)$. Это и обосновывает идею квазистационарного приближения.

Вместо громоздкого прямого вычисления интеграла

$$J = W_0 \int_0^{\infty} R(r) e^{-r/r_0} r^2 dr \quad (\text{П2.1})$$

применим следующий метод.

Введем $V(r) = r R(r)$ и перепишем уравнение (10) в виде

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} - \Phi(r) \right] V(r) = 0, \quad \Phi(r) = \frac{W_0}{D} e^{-r/r_0}, \quad (\text{П2.2})$$

(Решение уравнения (П2.2) нам уже известно.)

Определим, учитывая (8), $V(r)$ как решение, равное нулю в $r=0$ и имеющее асимптотику $V(r) \sim r + a$, $r \rightarrow \infty$, a — постоянная, определяемая ниже.

Тогда из общей теории интегральных уравнений [16] следует, что $V(r)$ удовлетворяет уравнению:

$$V(r) = r - \int_0^r r' \Phi(r') V(r') dr' - r \int_r^{\infty} \Phi(r') V(r') dr'. \quad (\text{П2.3})$$

При $r \rightarrow \infty$ имеем:

$$a = \int_0^{\infty} r' V(r') \Phi(r') dr' = \frac{-J}{D}. \quad (\text{П2.4})$$

Теперь ищем асимптотику $V(r)$ при $r \rightarrow \infty$.

Из выражения (14)

$$V(r) = 2r_0 \left[K_0(z) - \frac{K_0(a)}{I_0(a)} I_0(z) \right]. \quad (\text{П2.5})$$

$$K_0(ae^{-r/2r_0}) \sim -I_0(ae^{-r/2r_0}) \ln \left(\frac{a}{2} e^{-r/2r_0} \right) + \psi(1) \approx$$

$$\approx \frac{r}{2r_0} - \ln \frac{a}{2} - C, \quad (\text{П2.6})$$

где C - постоянная Эйлера (0,577...),

$$V(r) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} r - 2r_b \left[C + \ln \frac{\alpha}{2} \right] - 2r_b \frac{K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)}, \quad (\text{П2.7})$$

откуда, сравнивая с $V(r) \approx r + \alpha$, $r \rightarrow \infty$,
имеем

$$\alpha = -r_b \left[2C + 2 \ln \frac{\alpha}{2} + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right]. \quad (\text{П2.8})$$

Итак, имеем

$$J = Dn_b \left[2C + 2 \ln \frac{\alpha}{2} + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right], \quad (\text{П2.9})$$

а константа реакции

$$K = 4\pi Dn_b \left[2C + 2 \ln \frac{\alpha}{2} + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right]. \quad (\text{П2.10})$$

ЛИТЕРАТУРА

1. Waite T.K. Theoretical Treatment of the Kinetics of Diffusion-Limited Reactions. - "Phys.Rev.", 1957, 107, 2, p.463-470.

2. Waite T.K. General Theory of Bimolecular Reaction Rates in Solids and Liquids. - "J.Chem.Phys.", 1958, 26, p. 103-106.

3. Шехтман В.Л. Влияние диффузии экситонов на передачу их энергии примесным центрам в кристаллах. - "Оптика и спектроскопия", 1972, 33, вып.2, с.284-291.

4. Thomas D.G., Hopfield J.J. and Augustyniak W.M. Kinetics of Radiative Recombination at Randomly Distributed Donors and Acceptors. - "Phys.Rev.", 1965, 140, 1A, p.202-220.

5. Thomas D.G., Hopfield J.J., Colbow K. - In: Radiative Recombinations in Semiconductors. Dunod, Paris, 1964, p.67.

6. Williams F.E. Donor-Acceptor Pairs in Semiconductors. - "Phys.status solidi", 1968, 25, p.493-512.

7. Гайлитис А.А. Некоторые вопросы феноменологической теории, моделирования и управления экспериментами в области рекомбинационной люминесценции кристаллофосфоров. Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук, Рига, 1972.

8. Антонов-Романовский В.В. Кинетика фотолюминесценции кристаллофосфоров. М., "Наука", 1966. 324 с; "Изв.АН СССР. Сер. физ.", 1971, 35, 7, с.1290.

9. Андреев А.Ф., Лифшиц И.М. Квантовая теория дефектов в кристаллах. - "Ж. эксперим. и теор. физ.", 1969, 56, 6, с.2057-2068.

10. Yakhot V.S. Quantum Theory of Localized Defect Migration in Solids. - "Phys. status solidi (b)", 1971, 48, p. 147-148.

11. Пушкарров Д.И. Микроскопическая квантовая теория дефектов при низких температурах. - "Ж. эксперим. и теор. физ.", 1970, 59, 5, с.1755-1764.

12. Schoemaker D., Yasaitis E.L. Reorientation Motions of the $H(Li^+)$ Center in $KCl:Li^+$. - "Phys. Rev.", 1972, B5, 12, p.4970-4885.

13. Song K.S. On the Migration of V_K -Centers in Alkali Halides. - "J. Phys. Chem. Sol.", 1970, 31, p.1389-1397.

14. Базь А.И., Зельдович Я.Б., Переломов А.М. Рассеяние реакции и распад в нерелятивистской квантовой механике. М., "Наука", 1971. 544 с.

15. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Квантовая механика. М., "Наука", 1963. 702 с.

16. Камке Э. Справочник по обыкновенным дифференциальным уравнениям. М., "Наука", 1971, 576 с.

Е.А.Котомин

ТЕОРИЯ ДИФфуЗИОННО-КОНТРОЛИРУЕМОЙ РЕКОМБИНАЦИИ
ДОНОРНО-АКЦЕПТОРНЫХ ПАР

II. ПРИМЕНЕНИЕ К V_K -ЦЕНТРАМ В ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ
КРИСТАЛЛАХ

Сравнены значения квазистационарного радиуса рекомбинации, полученные как согласно теории квазистационарной диффузионно-контролируемой рекомбинации, так и моделированием задачи на ЭВМ. Моделирование (случай исходного хаотического распределения в паре) показывает динамику установления квазистационарного радиуса рекомбинации и подтверждает упомянутую теорию. Развитая феноменология термоактивационной диффузионно-контролируемой рекомбинации донорно-акцепторных пар сравнивается с зонной феноменологией. Дана интерпретация формально определяемых параметров (энергии активации и частотного фактора) в случае диффузионной модели. Показана применимость диффузионной модели для описания процесса термоактивационной рекомбинации V_K -центров с электронными центрами в щелочно-галогидных кристаллах. Предполагается применимость развитой теории при описании диффузионно-контролируемой рекомбинации других дырочных дефектов: H-центров, протонов, низкосимметричных релаксированных экситонов ($V_K + \text{электрон}$).

I. Моделирование кинетики установления квазистационарного радиуса рекомбинации на ЭВМ

В статье "Квазистационарное решение" (см. настоящий сб., предыдущую статью) ^X было введено понятие квазистационарного (устанавливающегося через достаточно большое время) радиуса рекомбинации (КРР)

$$R = r_b \left[-\ln D + \ln (W_0 r_b^2) + 2C + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right], \quad (Ia)$$

^X Далее при ссылке статья будет обозначаться I.

$\alpha = 2r_B \sqrt{\frac{W_a}{D}}$, C - постоянная Эйлера. В случае термоактивационной диффузии с энергией активации E_a

$$R = r_B \left[\frac{E_a}{kT} + \ln \frac{W_a r_B^2}{D_0} + 2C + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right]. \quad (1б)$$

При больших α последним членом можно пренебречь.

При аналитическом подходе не удастся явно проследить динамику установления КРР. Однако численное моделирование на ЭВМ легко позволяет это сделать. В работах [1,2] выполнено моделирование на ЭВМ кинетики термоактивационной диффузионно-контролируемой рекомбинации (ДКР) донорно-акцепторных пар (ДАП). Модель была нами рассмотрена в статье I.

Кратко опишем выполненное [1,2] моделирование.

Решалось уравнение

$$\frac{\partial U_{AB}(r,t)}{\partial t} = D \left[\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right] U_{AB}(r,t) - W_a e^{-\frac{r}{r_B}} U_{AB}(r,t) \quad (2a)$$

с условиями

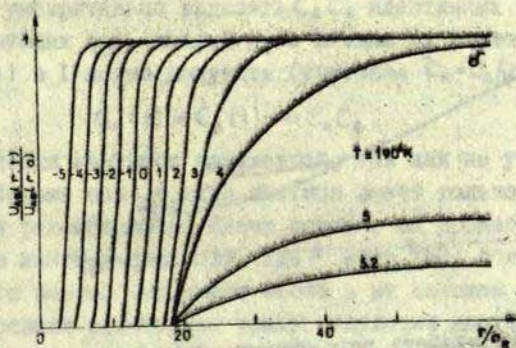
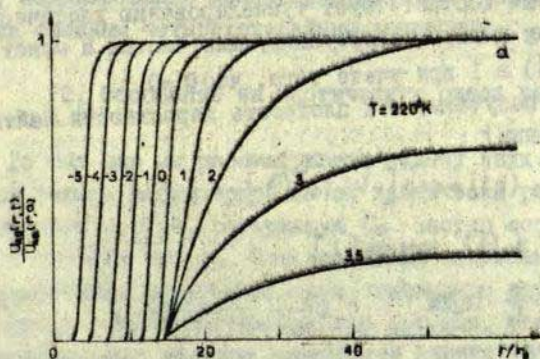
$$U_0(r) = 1, \quad (2б)$$

$$\left. \frac{\partial U_{AB}(r,t)}{\partial r} \right|_{R_0} = 0. \quad (2в)$$

Условие (2б) означает хаотичность распределения в паре, условие (2в) - отражение частиц от границы области - сферы большого радиуса R_0 . Численное решение выполнено методом баланса [3] по простой однослойной схеме. На рис. I приведены результаты расчета в форме $\frac{U_{AB}(r,t)}{U_{AB}(r,0)}$ от $\frac{r}{r_B}$ при двух различных температурах (величины параметров даны под рис.). Графически показана динамика установления КРР. С ростом температуры КРР уменьшается и устанавливается быстрее (ср. а и б). Величина переходного времени τ_1 хорошо соответствует оценке R^2/D , где R - КРР. При больших временах распределение близко к РРР (уравнение (II) в I) ^X.

Сделаем оценку КРР при 190°K по формуле (1б) для большого РРР, приведенная в I на рис. I (кривая 3) соответствует $\alpha = 4 \cdot 10^{+4}$, который получен по данным моделирования (см. рис. I, б).

ших α (см. данные под рис. 1). $E_a/kT = 30.5$, $\ln \frac{W_0 r_B^2}{D_0} = -12.92C = 1.54$, откуда $R = 190 \text{ \AA}$, что точно совпадает с КРР из рис. (1б) и рис. (1,3), в 1. Отсюда видно, что даже при $E_a \gg kT$ второй член в (1а) надо учитывать.



Р и с. 1. Кинетика установления квазистационарного радиуса рекомбинации [1].

Цифры около кривых означают $\lg t$, где t - время после начала процесса. Величины параметров: $R_0 = 650 \text{ \AA}$, $D_0 = 0.4 \cdot 10^{-2} \text{ см}^2/\text{сек}$, $E_a = 0.536$, $r_B = 10 \text{ \AA}$. Величина T : а - 220°K , б - 190°K .

На рис. 2 приведена зависимость интегральной интенсивности рекомбинации от времени (в пределах 13 порядков по времени и 9 по интенсивности). Видно, что:

1) при очень малых временах ($t \leq W_0^{-1}$) крутизна затухания мала, что обусловлено конечным W_0 ;

2) позже крутизна увеличивается и затухание идет по закону, который соответствует туннелированию хаотически распределенных в паре не диффундирующих частиц и может быть получен из (4) в I при учете того, что $D=0$.

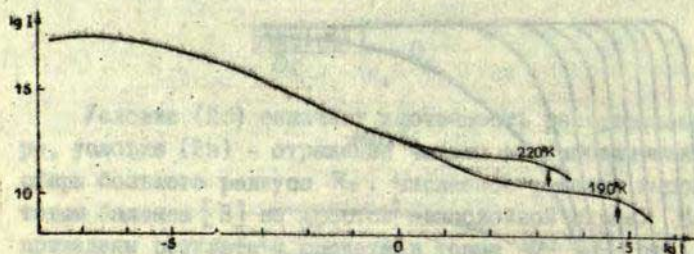
Из (2a) получаем, что плотность вероятности найти пару на расстоянии r :

$$U_{AB}(r,t) = \exp[-W_0 t e^{-r/r_B}], \quad (3)$$

и, подставляя в (4), имеем [1]:

$$\dot{P}_{AB}(t) \sim \int_0^{\infty} \exp\left[-\frac{r}{r_B} - W_0 t e^{-r/r_B}\right] r^2 dr \sim \frac{\ln^2(W_0 t)}{t}; \quad (4)$$

3) после истечения некоторого времени "включается" диффузия - появляется поток (к началу координат) плотности



Р и с. 2. Интенсивность рекомбинации как функция времени [1].

Значения параметров те же, что и для рис. 1. Видно, что "включение" диффузии происходит после некоторого времени, зависящего от температуры. Стрелками отмечены времена, после которых применимо понятие КРР.

вероятности обнаружить вторую частицу (обусловленный градиентом $U_{AB}(r,t)$). Это выражается в уменьшении наклона кривой затухания;

4) ещё через некоторое время окончательно устанавливается пространственное распределение и КРР (см. стрелки на рис. 2). Итак, моделирование демонстрирует, что установление КРР является сложным четырехстадийным процессом.

2. Обобщение на хаотическую смесь частиц

До сих пор мы рассматривали задачу двух частиц. Попробуем теперь рассмотреть смесь хаотически распределенных частиц двух сортов, содержащую C_A частиц сорта А и C_B сорта В в единице объема. Под хаосом мы понимаем то, что любые расстояния между частицами как одного сорта, так и разных сортов равновероятны; другими словами, все генетические связи порваны и частицы перемешаны в ходе диффузии. Это означает, что для любой частицы нет привилегированного партнера другого сорта, созданного одновременно с ней. Тогда можно умозрительно выделить $C_A C_B$ идентичных взаимодействующих пар (каждый A_1 с каждым B_1 и наоборот). Из (14) в I легко получить (учитывая $C_A = U_A/V$)

$$\dot{C}_A(t) = \dot{C}_B(t) = -k C_A C_B. \quad (5)$$

Эта оценка является заниженной, так как не учитывается взаимодействие пар: каждая частица имеет только одного партнера для рекомбинации. Иначе говоря, мы пренебрегаем вероятностью найти в объеме $3R^3$ (где R есть КРР) более двух частиц разного сорта. Это имеет место в не слишком плотной смеси, где среднее расстояние между частицами много больше R ;

$$\frac{0.554}{\sqrt{C_A + C_B}} \gg R,$$

что при $R \leq 100 \text{ \AA}$ справедливо при концентрациях $\leq 10^{17} \text{ см}^{-3}$.

Для построения строгой теории следовало бы исходить из уравнений для многочастичных функций распределения, удовлетворяющих некоторой системе зацепленных уравнений (ср., напр., [4]).

3. Сравнение диффузионной и зонной модели

Как хорошо известно, зонная феноменология [21] дает следующее уравнение кинетики рекомбинации зонных электронов и локализованных дырок:

$$\dot{C}_h(t) = \dot{C}_e(t) = - \frac{\sigma_h C_h C_e \omega_{oe}}{\sigma_h C_h + \sum_i \sigma_{ei} N_{ei}} e^{-E_e/kT}, \quad (6)$$

C_h - концентрация дырочных центров, C_e - концентрация электронов на ловушках данного сорта, E_e - энергия активации (глубина) ловушки, ω_{oe} - её частотный фактор, σ_h - сечение захвата электрона дыркой, σ_{ei} - сечение повторного захвата электрона электронным центром i -го сорта и N_{ei} - их концентрация ($N_{ei} \gg C_{ei}$).

В случае термоактивационной диффузии дырок и их рекомбинации с локализованными электронными центрами i -го сорта имеем (см. уравнения (5), (15) в I):

$$\dot{C}_h(t) = \dot{C}_e(t) = -4\pi D_{oh} R_i C_h C_{ei} e^{-E_h/kT} = -C_h C_{ei} e^{-E_h/kT} \omega_{ohi}, \quad (7)$$

E_h - энергия активации движения дырки, $\omega_{ohi} = 4\pi D_{oh} R_i$ - дырочный частотный фактор, R_i - КРР дырок с электронными центрами i -го сорта (величина R_i зависит от природы центра и его заряда - см. п. 4).

Сравнивая (6) и (7), видим формальное сходство уравнений. Однако, в зонной модели E_e, ω_{oe} характеризуют параметры ловушки, тогда как в диффузионной модели E_e, ω_{oe} характеризуют термоактивационное движение дырки.

При исследовании элементарных процессов термоактивационного разрушения дефектов в неизотермическом режиме (термостимулированная люминесценция (ТСЛ), фракционное термо-высвечивание (ФТВ) [5], метод постоянного сигнала (ПС) [6]) формальная обработка экспериментальных данных позволяет определить два параметра - энергию (E) и эффективный частотный фактор (ω_e^*), удовлетворяющие уравнению

$$\dot{C} = -\omega_0^* C^{\gamma} e^{-E/kT}, \quad (8)$$

γ - порядок процесса; $\gamma = 1$ или 2 (или меняется в ходе процесса).

Интерпретация параметров E , ω_0^* зависит как от порядка процесса (для ω_0^*), так и от выбора модели (см. табл. I).

Т а б л и ц а I

Интерпретация энергии (E) и эффективного частотного фактора (ω_0^*) в зонной и диффузионной модели

Порядок кинетики	Зонная модель		Диффузионная модель	
	E	ω_0^{*x}	E^{xx}	ω_0^*
Первый (вырожденный второй)	E_e	ω_{oe}	$E_h + \frac{kT^2}{\omega_0^*} \frac{d\omega_0^*}{dT}$	$\omega_{oh} C_e$
Второй	E_e	$\frac{\sigma_h \omega_{oe}}{\sum \sigma_{el} N_{el}}$	$E_h + \frac{kT^2}{\omega_0^*} \frac{d\omega_0^*}{dT}$	ω_{oh}

^x Предполагается независимым от температуры.

^{xx} Из (I,6), (?)

$$\frac{kT^2}{\omega_0^*} \frac{d\omega_0^*}{dT} = \frac{-kT}{1 + \frac{kT}{E} \left[\ln \frac{W_0 \Omega^2}{D_0} + 1.54 \right]} < 0.$$

Поэтому при интерпретации результатов необходимо: I) удостовериться в элементарности процесса (проверяется ФТВ в ПС);

2) знать порядок процесса (для определения ω_0^* , который дает ПС);

3) выбрать модель: зонную или диффузионную (ср. [7]).

Представляет интерес перечислить характерные признаки диффузионной модели, которые могут быть использованы при выборе между моделями.

1. Временная задержка разгорания интенсивности люминесценции при скачкообразном повышении температуры (обусловлена конечной скоростью диффузии партнеров).

2. В случае диффузионной кинетики первого (точнее, вырожденного второго) порядка (например, в активированных кристаллах) величина $\omega_0^* \sim C_0$ и линейно растет в пределах нескольких порядков с ростом концентрации электронных центров. Увеличение ω_0^* приводит к сдвигу температуры максимума полосы ТСЛ в сторону низких температур.

3. Величина эффективной энергии зависит от температуры из-за добавки, обусловленной температурной зависимостью ω_0^* (см. примечание XX к табл. I).

4. Температурная зависимость $\omega_{0h} \sim (kT)^{-1}$. Многочисленные измерения ω_{0h} в ШТК методом ПС, произведенные в нашей лаборатории, не позволяют выявить зависимость ω_{0h} от температуры. Заметим, что в работе [1] получено (при помощи полуклассической теории изучения):

$$\omega_{0h} \sim \frac{e^{E_2/kT}}{e^{E_2/kT} - 1} \approx \text{const}, \quad E_2 \gg kT. \quad (9)$$

5. Сдвиг спектров излучательной рекомбинации по шкале энергии во время переходного периода и "стабилизация" спектра через T_2 после установления КРР.

4. Применение теории к V_K -центрам

Многочисленные экспериментальные данные по V_K -центрам (X_2^- молекулярный ион) в щелочно-галогидных кристаллах (ШТК) подтверждают применимость диффузионной модели к их движению. Приведем некоторые результаты (соответствен-

но упомянутым выше пунктам).

1. Наблюдалась временная задержка разгорания интенсивности люминесценции в районе V_K -пика в КВР после скачкообразного повышения температуры [7]. Подобный эффект был предсказан по результатам моделирования диффузии со скачкообразным изменением температуры [1]. (Очевидно задержка тем больше, чем меньше коэффициент диффузии V_K -центра при данной температуре (см. [8]).)

2. Линейная зависимость ω_0^* от концентрации электронных центров и соответствующий низкотемпературный сдвиг максимума ТСЛ (T_M) V_K -пика в случае кинетики первого (вырожденного второго) порядка отмечены в нескольких работах (см. табл. 2). Впервые это явление было верно интерпретировано в работе [1]; интерпретации других авторов обсуждать не будем.

3. Зависимость $E(T)$ для V_K -центров в ЦТК никем, по видимому, не исследовалась. Исследование затруднено тем, что поправка энергии ($\sim 0,02 \text{ эВ}$) мала по сравнению с самой энергией (порядка нескольких десятых электрон-вольта). Наблюдаемое концентрационное повышение энергии необъяснимо в рамках нашей модели.

Экспериментальные данные по температурной зависимости $\omega_{\text{oh}} \sim (kT)^{-1}$ и сдвигу спектров излучательной рекомбинации нам неизвестны. Из таблицы 2 на примере NaCl видно, что в неактивированных кристаллах $\omega_{\text{oh}}^*(V_K) \approx 10^7 \text{ сек}^{-1}$, что много меньше характерной величины для электронных центров ($\omega_{\text{oh}}^* \sim 10^{11-12} \text{ сек}^{-1}$). Столь малое ω_0^* может быть одним из аргументом в пользу дырочного характера исследуемого центра.

Указанные экспериментальные данные подтверждают применимость диффузионной модели к термоактивационному движению V_K -центров. О применимости соотношения $W_0 e^{-T/h\nu}$ (и, следовательно, развитой выше феноменологии) говорит согласие теории (основанной на (1) и эксперимента по туннельной рекомбинации пространственно разделенных и не диффундирующих пар $\{F-V_K\}$ [1, 7]).

Известно несколько попыток применить теорию Вайта [12, 13] к количественному описанию диффузионной рекомбинации V_K -центров (например, [8, 14]). Мы не будем обсуждать эти ра-

боты, заметим только, что в [8] в качестве необходимого исходного значения принято $r_0 = 14 \text{ \AA}$ на основании данных по температурно-независимому механизму захвата дырок на Ti^+ . Однако этот механизм захвата горячих (нерелаксированных) дырок на активаторе существенно отличен от обсуждаемого захвата релаксированных (до χ_2 состояния) диффундирующих дырок (V_K) и оценка [8] некорректна, на наш взгляд. (Другие данные по захвату горячих дырок на активаторе дают оценку на порядок больше (ср., напр., [9]).

По формуле (17) в I мы можем оценить KPP при рекомбинации пар $\{F, V_K\}$. Известно, что волновая функция F-центра является значительно более диффузной, чем эта же функция V_K -центра, поскольку электрон F-центра с заметной вероятностью может быть обнаружен на расстоянии нескольких постоянных решетки от анионной вакансии [22], тогда как плотность волновой функции неспаренного электрона V_K -центра мала даже на ближайших ионах [23]. Оценим KPP, подставив величину коэффициента диффузии в (16). Согласно [15]

$$D = \frac{d^2}{12} f e^{-E_a/kT}, \quad (10)$$

где d - половина постоянной решетки, f - частотный фактор переориентации на 60° , имеем для KCl:

$$E_a = 0,54 \text{ эВ [23]; } f = 4 \cdot 10^{13} \text{ сек}^{-1}; d = 3,14 \text{ \AA}; \\ r_0 = 2,1 \text{ \AA [16]; } W_0 = 10^7 \text{ сек}^{-1} [17].$$

Оценка KPP при температуре 177°K (немного выше температуры делокализации - 173°K) $R \approx 50 \text{ \AA}$ и уменьшается с ростом температуры согласно формуле (16) (см. также следующую статью сборника).

Эту же оценку можно получить, используя интерполяцию экспериментальных данных по диффузии [18]. Заметим, что хотя величина KPP может быть велика (при температурах около делокализации), скорость рекомбинации мала из-за малости коэффициента диффузии (см. (17) в I).

Возможно, сделанная полукачественная оценка справедли-

ва для V_K -центров и в других ШТК немного выше температуры делокализации. Повторим еще раз, что мы сделали оценку КРР, который не зависит от вида функции начального распределения (ФНР) пар $\{F-V_K\}$ (заметим, что вид ФНР неизвестен).

Случай учета кулоновского поля заряженного электронного центра в рамках развитой феноменологии будет обсужден в следующей статье.

Заметим, что по формуле

$$\omega_{oh}^* = 4\pi r_B \left[\frac{E_g}{kT} + \ln \frac{W_0 r_B^2}{D_0} + 1.54 \right] D_0 C_e \quad (II)$$

в принципе можно оценить r_B (зная остальные параметры). Однако, вряд ли такая оценка может быть сделана точно.

5. Выводы

Подведем краткие итоги.

1. Предложена и развита феноменология диффузионно-контролируемых рекомбинаций донорно-акцепторных пар с вероятностью рекомбинации по закону $W_0 e^{-r/r_B}$. Теория справедлива как при туннельном, так и термоактивационном механизме диффузии (и применима к диэлектрикам, полупроводникам, неупорядоченным структурам).

2. Получена константа скорости рекомбинации донорно-акцепторных пар

$$k = 4\pi D r_B \left[-\ln D + \ln (W_0 r_B^2) + 1.54 + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right], \quad \alpha = 2r_B \sqrt{\frac{W_0}{D}}$$

3. Введен квазистационарный радиус рекомбинации, который в случае термоактивационной диффузии имеет вид

$$R = r_B \left[\frac{E_g}{kT} + \ln \frac{W_0 r_B^2}{D_0} + 1.54 + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right]$$

Для пар $\{V_K-F\}$ в KCl сделана оценка $R(177^\circ\text{K}) = 50\text{\AA}$. Предполагается, что эта оценка по порядку величины справедлива и в других ШТК несколько выше температуры делокализации V_K -центров.

4. Моделирование на ЭВМ демонстрирует процесс установления квазистационарного радиуса рекомбинации в случае

начального хаотического распределения и подтверждает предложенную феноменологию.

5. Результаты сравнены с зонной феноменологией, дана интерпретация формально определяемых энергий (E) и эффективного частотного фактора (ω_0^*). Интерпретация E, ω_0^* зависит от модели и порядка процесса.

6. Перечислены характерные свойства диффузионно-контролируемой рекомбинации донорно-акцепторных пар и показано, что этими свойствами, в частности, обладают V_K -центры в ШГК. Представляет интерес основанный на этих свойствах поиск дырочных центров в полупроводниках и стеклах. При этом условия наблюдения некоторых характерных эффектов (напр., сдвиг спектра излучения со временем и его стабилизация, зависимость эффективной энергии от температуры (заметное в методе ПС, ФТВ) могут сказаться благоприятнее, чем в щелочно-галлоидных кристаллах. Не исключено, что по высокоэнергетическому краю полосы излучения (соответствующему рекомбинации ближайших пар) удастся непосредственно определять КРР и динамику его установления, что невозможно в ШГК.

7. Мы предполагаем применимость развитой феноменологии к диффузии других дырочных дефектов; H -центров (в работе [18] предполагается температурная зависимость E, ω_{oh}^*), протонов, а также релаксированных до X_2^{-*} ($V_K + \text{электрон}$) низкосимметричных экситонов согласно модели Толпыго и Вуда (см., напр., [19]).

8. Мы также предполагаем качественную применимость развитой феноменологии к дырочным центрам, освобождающимся из ловушек (V_{KA}, V_F, H_A и др.). Для V_F -центров отмечен характерный низкотемпературный сдвиг максимума пика ТСИ при росте концентрации активатора в $KBr-Ca$ [20]. Однако величины параметров E, ω_0^* в общем случае зависят и от параметров ловушки.

В следующей статье рассмотрен случай учета кулоновского притяжения дефектов.

Изменение ω_0 и $T_m V_K$ -пика ТСЛ при изменении концентрации активатора

ШГК	Электронный центр	Концентрация активатора, мол. %	ω_0^* , сек ⁻¹	E, эВ	T_m , °К	Литература
NaCl	Ag	$5 \cdot 10^{-3}$	$1,5 \cdot 10^7$	0,36	182	[10]
		$45 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^8$	0,38	170	
		0,2	$1,2 \cdot 10^{12}$	0,43	161	
		0,22	$3 \cdot 10^{12}$	0,44	162	
		0,38	-	-	157	
Cs Br	Tl	неактивированный	10^{11}	0,5	205	[11]
		10^{-3} x	10^{14}	0,6	195	
CsI	Na	$1,2 \cdot 10^{-4}$	—	—	99	[12]
		xx 10^{-2}	—	—	87	
KCl	F	нет, аддитивно окрашен	10^9	0,5	205	П.Кулис. Частное сообщение
			10^{11}	0,5	195	

Примечания.

x 0,01 мол. % Tl в расплаве.

xx Промежуточные точки пропущены.

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. Гайлитис А.А. Некоторые вопросы феноменологической теории, моделирования и управления экспериментами в области рекомбинационной люминесценции кристаллофосфоров. Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Рига, 1972.
2. Гайлитис А.А., Витол И.К. Моделирование рекомбинационных явлений и научного эксперимента. - "Изв.АН СССР, Сер. физ.", 1971, 35, 7, с.1301-1304.
3. Тихонов А.Н., Самарский А.А. Уравнения математической физики, М., Из-во физ.-мат. лит., 1966. 720 с.
4. Шехтман В.Л. Влияние диффузии экситонов на передачу их энергии примесным центрам в кристаллах. - "Оптика и спектроскопия", 1972, 33, 2, с.284-291.
5. Gobrecht H., Hoffmann D. Spectroscopy of Traps by Fractional Glow Technique. - "J.Phys.Chem.Sol.", 1966, 27, p.509-522.
6. Гайлитис А.А., Ясноно Я.Л., Витол И.К. Новый метод исследования энергетического спектра электронных состояний в кристаллофосфорах. - "Изв.АН СССР, Сер. физ.", 1969, 33, 6, с.977-983.
7. Тале И.А., Гайлитис А.А. Изучение диффузии и туннельной рекомбинации возбуждений в кристаллофосфорах автоматизированными неизотермическими методами. - "Изв.АН СССР, Сер. физ.", 1971, 35, 7, с.1336-1339.
8. Dietrich H.V., Murray R.V. Kinetics of the Diffusion of Self-trapped Holes in Alkali Halides Scintillators. - "J.Lumin.", 1972, 5, I, p.155-170.
9. Лушник Ч.Б., Васильченко Е.А., Лушник Н.Е., Пунг Л.А. Релаксированные и нерелаксированные возбуждения в кристаллах типа NaCl. - "Тр.Ин-та физ. и астрон. АН ЭССР", 1972, 39, с.3-46.
10. Васильченко Е.А. Экситонные процессы в кристаллах CsBr и CsBr-Tl. - "Тр.Ин-та физ. и астрон. АН ЭССР", 1972, 39, с.47-63.
11. Панова А.Н., Ширяна Н.В. Механизмы послесвечения кристаллов CsI(Na) в области 60-90°K. - "Оптика и спектроскопия", 1972, 32, I, с.212-213; Примесные центры свечения и центры захвата в кристаллах CsI-Na. - Изв.АН СССР, Сер. физ.", 1971, 35, 7, с.1348-1351.

12. Waite T.R. Theoretical Treatment of the Kinetics of Diffusion-Limited Reactions. - "Phys.Rev.", 1957, 107, 2, p.463-470.

13. Waite T.R. General Theory of Bimolecular Reaction Rates in Solids and Liquids. - "J.Chem.Phys.", 1958, 28, p. 103-106.

14. Keller F.J., Murray R.B. Thermal Motion of Holes in Potassium Iodide. - "Phys.Rev.", 1966, 150, 2, p.670-679.

15. Popp R.P., Murray R.B. Diffusion of the V⁻-polaron in Alkali Halides: Experiments in NaCl and RbJ. - "J.Phys. Chem.Sol.", 1972, 33, p.601-610.

16. Абаренков И.В. Диссертация, Ленингр.гос. ун-т., 1959. Получено, что волновая функция основного состояния F-центра в NaCl ($a = 5,19 \text{ \AA}$) имеет первый максимум при $r = 2r_0 = 3,6 \text{ \AA}$, откуда $r_0/a = 0,35$. Полагая, что это отношение справедливо и в других щелочно-галогидных кристаллах, для KCl ($a = 6,28 \text{ \AA}$) оценим $r_0 = 2,1 \text{ \AA}$.

17. Ueta M., Kondo Y., Hirai M., Yoshinari I. Center Formation in KCl Crystals by Pulsed Electron Beam at 80 K. - "J. Phys.Soc.Japan", 1969, 26, p.1000-1006.

18. Schoemaker D., Yasaitis E.L. Recreantation Motions of the H (Li) Center in KCl: Li. - "Phys.Rev.", B", 1972, 5, 12, p.4970-4985.

19. Кудыкина Т.А., Толыго К.Б. Синглетные зоны для экситонов двух симметрий A_1 и A_2 . - "Изв. АН СССР, Сер. физ.", 1971, 35, 7, с.1381-1383.

20. Ийти Х.Р.-В., Малышева А.Ф. Электронномикроскопическое и оптическое исследование кристаллов KBr , облученных ультрафиолетовой радиацией. - "Тр. Ин-та физ. и астрон. АН СССР", 1972, 39, с.112-122.

21. Антонов-Романовский В.В. Кинетика фотолюминесценции кристаллофосфоров. М., "Наука", 1966. 324 с.; О диффузионной кинетике рекомбинационной люминесценции. - "Изв.АН СССР, Сер. физ.", 1971, 35, 7, с.1290-1298.

22. Fowler B. Physics of Color Centers, ed. B.Fowler, N.-Y., 1968, ch.2.

23. Kabber M.N. Point Defects in Solids, ed. Slifkin, N.Y., 1972, ch.6.

И.Фабрикант^X, Е.А.Котомин

ТЕОРИЯ ДИФФУЗИОННО-КОНТРОЛИРУЕМОЙ РЕКОМБИНАЦИИ
ДОНОРНО-АКЦЕПТОРНЫХ ПАР

III. УЧЕТ КУЛОНОВСКОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ

Обсуждается теория диффузионно-контролируемых рекомбинаций донорно-акцепторных пар с учетом кулоновского взаимодействия. При малых коэффициентах диффузии предложено приближение, когда теория Вэйта справедлива, но γ_0 заменено на квазистационарный радиус рекомбинации. При больших коэффициентах диффузии оказывается невозможным ввести эффективный радиус рекомбинации, при этом закон Аррениуса не выполняется. Обсуждена применимость теории к V_k -центрам в ШК.

I. В в е д е н и е

В своей фундаментальной работе [1] Вэйт применил в теории диффузионно-контролируемых реакций (ДКР) технику парных плотностей вероятностей (ППВ), описывающую пространственные корреляции частиц, и получил константу скорости реакции K . Кратко обсудим его результаты. После переходного периода (когда членом, зависящим от начальных условий, можно пренебречь) имеем:

$$K = 4\pi D\gamma_0, \quad (I)$$

где $D = D_A + D_B$ — суммарный коэффициент диффузии, γ_0 — явный радиус рекомбинации. В приближении явного радиуса рекомбинации считается, что частицы рекомбинируют, только сблизившись на взаимное расстояние, равное γ_0 , и не взаимодействуют при $r > \gamma_0$. В рамках этой феноменологии значе-

^X Сотрудник Института физики Академии наук Латвийской ССР.

ние r_0 не выражается через другие параметры и полагается температурно-независимым. Представление о явном радиусе рекомбинации связано с описанием близкодействующих сил между частицами. Вэйт [2] рассмотрел и случай дальнедействующего электростатического взаимодействия. Используя представление об устанавливаемом через достаточно большое время стационарном процессе рекомбинации (и, следовательно, игнорируя функцию начального распределения (ФНР) частиц в паре - см. предыдущие статьи, далее обозначаемые I, II) он получил константу скорости реакции, аналогичную (1), где следует заметить на эффективный радиус рекомбинации

$$r_{\text{eff}} = \frac{1}{\int_{r_0}^{\infty} e^{-\psi/kT} \frac{dr}{r^2}}, \quad (2)$$

где $\psi(r)$ - потенциальная энергия взаимодействия.

В случае кулоновского взаимодействия

$$\psi(r) = \frac{q_A q_B}{\epsilon r}, \quad (3)$$

где q_A, q_B - заряды взаимодействующих частиц, r - расстояние между ними, ϵ - низкочастотная диэлектрическая постоянная.

Подставляя (3) в (2), имеем (ср. также [3])

$$r_{\text{eff}} = \frac{q_A q_B / \epsilon kT}{e^{q_A q_B / \epsilon kT r_0} - 1}. \quad (4)$$

В случае $|q_A q_B| \gg \epsilon kT r_0$ имеем для r_{eff} два варианта:

а) притяжение (q_A, q_B различного знака)

$$r_{\text{eff}}^+ = \frac{|q_A q_B|}{\epsilon kT}; \quad (5)$$

б) отталкивание (q_A, q_B одного знака)

$$r_{\text{eff}}^- = \frac{q_A q_B}{\epsilon kT} e^{-q_A q_B / \epsilon kT r_0}. \quad (6)$$

Очевидно, что $r_{\text{eff}}^+ > r_0$, $r_{\text{eff}}^- < r_0$.

Если же $|q_A q_B| \ll \varepsilon h T_0$, то кулоновским взаимодействием можно пренебречь и по определению $r_{\text{eff}} = r_0$.
Итак, согласно теории Вайта отношение $n_{\text{eff}}^+ / r_0 \sim T^{-1}$ и уменьшается с ростом T .

В предыдущих двух статьях (I, II) предложена и развита феноменология диффузионно-контролируемой рекомбинации донорно-акцепторных пар (ДАП), для которых вероятность рекомбинации в единицу времени, т.е. величина, обратная среднему времени жизни пары, имеет вид [4]:

$$W(r) = W_0 e^{-r/r_0}, \quad (7)$$

где $W_0 = \text{const}$, r_0 - половина радиуса Бора более диффузного партнера, r - расстояние между партнерами. Используя технику ППВ и представления о квазистационарном решении, подобно [2], нами получена константа скорости реакции, формально аналогичная (I), если ввести квазистационарный радиус рекомбинации (КРР) R , который в случае обсуждаемой ниже термоактивационной диффузии имеет вид

$$R = r_0 \left[\frac{E_a}{kT} + \ln \frac{W_0 r_0^2}{D_0} + 2C + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right], \quad (8)$$

где E_a - энергия активации диффузии (предполагается диффундирующим только один партнер), D_0 - предэкспоненциальный множитель в коэффициенте диффузии, C - постоянная Эйлера, $\alpha = 2r_0 \sqrt{W_0/D}$. D - коэффициент диффузии.

Если α велико, тогда $\frac{K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \sim e^{-2\alpha}$ и последним членом можно пренебречь.

Квазистационарный радиус рекомбинации играет роль, подобную r_0 в теории явного радиуса рекомбинации, но, во-первых, выражается через другие параметры, во-вторых, температурно-зависим, в-третьих, может принимать довольно большие значения (см. статью II, п.3), тогда как r_0 всегда полагается порядка размера частиц (т.е. несколько ангстрем).

2. Учет кулоновского взаимодействия

Первое приближение. Обобщим развитую в статьях I, II теорию на случай кулоновского взаимодействия донорно-акцепторных пар (ДАП). В качестве первого приближения можно предположить применимость для ДАП теории [2], но заменяя r_0 в (2) на KPP (R) из (8), т.е. вводим

$$R_{\text{eff}} = \frac{q_A q_B / \varepsilon kT}{e^{q_A q_B / \varepsilon kTR} - 1} \quad (9)$$

Если первый член в скобках в формуле (8) является доминирующим, то

$$q = \frac{q_A q_B}{\varepsilon kTR} = \frac{q_A q_B}{\varepsilon r_B E_a}$$

не зависит от температуры; при учете следующих членов в (8), q уменьшается с температурой.

Температурная зависимость R_{eff}/R отлична от той же для r_{eff}/r_0 .

Для случая притяжения:

$$\frac{R_{\text{eff}}^+}{R} = \frac{-|q_A q_B| / \delta kT}{(e^{-q_A q_B / \delta kTR} - 1) R} \quad ; \quad (10a)$$

если $|q_A q_B| \gg \varepsilon kTR$, то

$$\frac{R_{\text{eff}}^+}{R} = \frac{q_A q_B / \delta kT}{r_B \left[\frac{E_a}{kT} + \ln \frac{W_0 r^+}{D_0} + 2C + \frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)} \right]} \quad ; \quad (10б)$$

а если первый член в (8) доминирует, то

$$\eta = \frac{R_{\text{eff}}^+}{R} = \frac{q_A q_B}{\varepsilon r_B E_a} \quad ; \quad (10в)$$

т.е. η - температурно-независимая величина в отличие от $\frac{R_{\text{eff}}^+}{r_0} \sim T^{-1}$ (Учет следующих членов в (8) (см., 10б) дает слабое уменьшение η с температурой).

Экспериментальное определение соответствующей температурной зависимости позволяет сделать выбор между двумя обсуждаемыми моделями. Известно, что введение ξ оправдано,

если рекомбинация происходит между состояниями, разделенными несколькими (и более) постоянными решетки. Поскольку $R_{\text{эф}} \gg R$, а R обычно составляет несколько постоянных решетки, то в этом случае введение ε тем более корректно, даже учитывая неточность дефектов.

Точная постановка проблемы. Диффузионно-контролируемая рекомбинация с учетом электрического взаимодействия описывается уравнением (ср. [2])

$$D[\Delta U_{AB}(r,t) + \frac{1}{kT} \nabla(U_{AB}(r,t) \nabla \varphi(r))] = W(r) U_{AB}(r,t), \quad (11)$$

где $U_{AB}(r,t)$ - плотность вероятности найти частицы A, B на взаимном расстоянии r в момент t (см. статью I), $\varphi(r)$ - потенциальная энергия взаимодействия пары. (Пока не задаемся конкретным видом вероятности рекомбинации.) Второй член в скобках описывает дрейф в центральном поле.

В квазистационарном приближении ищем решение (II) в виде

$$U_{AB}(r,t) = T(t) R(r), \quad (12)$$

где радиальную функцию распределения $R(r)$ полагаем удовлетворяющей стационарному уравнению диффузии

$$D[\Delta R(r) + \frac{1}{kT} (R(r) \Delta \varphi(r) + \frac{dR}{dr} \frac{d\varphi}{dr})] = W(r) R(r). \quad (13a)$$

Наложим граничное условие

$$R(r_0) = 0. \quad (13b)$$

(Это условие означает конечные размеры дефектов.)

Отделяем в (13a) угловые переменные. Считая, что решение сферически симметрично, имеем:

$$\frac{d^2 R}{dr^2} + \left[\frac{2}{r} + \frac{\varphi'}{kT} \right] \frac{dR}{dr} + \left[\frac{\Delta \varphi}{kT} - \frac{W(r)}{D} \right] R = 0. \quad (14)$$

Вводя подстановку

$$R = \frac{y}{r} e^{-\varphi/2kT},$$

получаем

$$y'' + \left[\frac{\psi''}{2} + \frac{\psi'}{r} - \frac{\psi'^2}{4} - \frac{W(r)}{D} \right] y = 0, \quad (15)$$

где $\psi = \frac{\varphi}{kT}$.

В случае кулоновского взаимодействия, учитывая $\psi = -\frac{q_A q_B}{\epsilon r}$ и подставляя $W(r)$ из (7), имеем

$$y'' - \left[\frac{g^2}{4r^4} + \frac{W_0 e^{-\gamma/r}}{D} \right] y = 0, \quad (16)$$

где $g = -\frac{q_A q_B}{\epsilon kT}$.

Скорость изменения вероятности найти пару АВ (ср. статью I, 4) в момент t в объеме V (интенсивность рекомбинации - для ансамбля):

$$J(t) = -\frac{1}{V} \int_{r_0}^{\infty} W_0 e^{-\gamma/r} U_{AB}(r,t) dV = \frac{4\pi W_0 U_A U_B}{V} \int_{r_0}^{\infty} e^{-\gamma/r} R r^2 dr, \quad (17)$$

где U_A, U_B - плотность вероятности найти частицу А (В) (полагаем, что эти плотности не зависят от координат, т.е. частицы равномерно распределены по объему).

Для множества идентичных пар частиц (17) переписывается:

$$\dot{C}_A(t) = \dot{C}_B(t) = -4\pi W_0 C_A C_B \int_{r_0}^{\infty} e^{-\gamma/r} R(r) r^2 dr = -k C_A C_B, \quad (18a)$$

где k - константа реакции C_A, C_B - концентрации.

Согласно формулам (П2.5), (П2.6) приложения 2 к определяется асимптотическим поведением $y(r)$ при $r \rightarrow r_0$ и $r \rightarrow \infty$. Так как решение уравнения (16) неизвестно в аналитическом виде, то в качестве приближения возьмем значения констант α и β в (П2.5), которые получаются при отсуствии кулоновского члена.

Тогда

$$k = k_0 + 4\pi D \left[-\frac{g}{2} + \frac{r_0}{4} \left(\frac{\pi}{2} \right)^{1/2} \frac{e^{-\alpha'}}{\alpha'^{1/2}} e^{-g/2r_0} \right], \quad \alpha' = \alpha e^{-1/2},$$

где k_0 - константа скорости реакции без кулоновского взаимодействия (см. статью I), g определено формулой (16). Эта формула справедлива для малых D , когда член $g^2/2r^4$ в (16) можно рассматривать как малое возмущение на расстояниях порядка r_0 , т.е.

$$g^2/r_0^4 \ll W_0/D.$$

В этом случае $\alpha' \gg \frac{|g|}{2r_0}$ и для K имеем

$$k = k_0 - 2\pi Dg, \quad (186)$$

или, вводя эффективный радиус рекомбинации R_2^+ ,

$$R_2^+ = R - g/2, \quad (186)$$

где R — КРР (см. статью I), $g < 0$ в случае притяжения.

При больших значениях D можно сделать приближение, противоположное предыдущему: пренебречь в уравнении (16) членом $\frac{W_0}{D} e^{-r/r_0}$ по сравнению с $g^2/4r^4$. Физическая интерпретация этого приближения затруднительна, но пределы применимости определяются условием

$$\frac{g^2}{4r^4} \gg \frac{W_0}{D} e^{-r/r_0} \quad \text{или} \quad \frac{1024 W_0 r_0^4 e^{E_0/kT} \epsilon^2 (kT)^2}{D_0 e^4 (q_A q_B)^2} \ll 1. \quad (19)$$

В приложении I для этого приближения интеграл в уравнении (18а) вычислен:

$$\int_{r_0}^{\infty} e^{-r/r_0} R(r) r^2 dr = \frac{I - \frac{5}{2} r_0^3 e^{-g/r_0}}{1 - e^{-g/r_0}}, \quad (20)$$

где

$$I = 2 (gr_0)^{3/2} K_3 (2\sqrt{|g|/r_0}) \quad \text{в случае} \\ \text{отталкивания } (g > 0).$$

$$I = r_0^3 \theta \left[\frac{1}{6} \left(\frac{|g|}{r_0} \right)^3 Ei \left(\frac{|g|}{r_0} \right) - e^{g/r_0} \left(\frac{1}{3} + \frac{|g|}{6r_0} + \frac{1}{6} \left(\frac{|g|}{r_0} \right)^2 - 2 \left(\frac{|g|}{r_0} \right)^{3/2} K_3 (2\sqrt{|g|/r_0}) \right] \quad (21)$$

— в случае притяжения ($g < 0$),

где $e^{-1} < \theta < 1$, Ei — интегральная показательная функция, K_3 — функция Макдональда 3-го ранга.

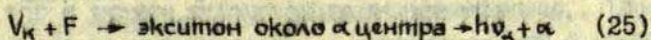
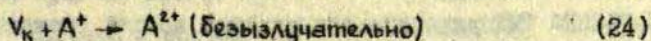
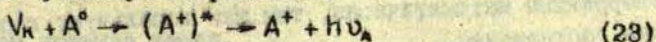
При больших $|g|/r_0$ член $K_3(2\sqrt{|g|/r_0})$ экспоненциально мал и им можно пренебречь, а для Ei воспользоваться асимптотическим разложением

$$Ei \left(\frac{|g|}{r_0} \right) \sim \frac{|g|}{r_0} + \sum_{\kappa=1}^{\infty} (-1)^{\kappa} (\kappa-1)! \left(\frac{r_0}{|g|} \right)^{\kappa}. \quad (22)$$

Из (17) и (21) видно, что $k \sim W_0 R^{*3}$ (R^* — параметр с размерностью см) вместо комбинации DR в отсутствие кулоновского взаимодействия (когда k очень слабо зависит от W_0).

Из формул (20) и (21) видно, что константа реакции не содержит коэффициента диффузии D (при достаточно больших коэффициентах диффузии, когда оценка (19) выполняется). Так как KPP R входит в k в виде произведения DR , то в этом приближении нельзя ввести представления о квазистационарном радиусе рекомбинации. При этом закон Аррениуса, т.е. пропорциональность константы реакции $e^{-E_a/kT}$ не выполняется: ведь член $e^{-E_a/kT}$ появлялся в k из-за того, что $k \sim D$ (см. уравнение (17) в I). Однако, можно думать, что при малых коэффициентах диффузии такой радиус можно ввести подобно тому, что мы назвали первым приближением.

Применение теории к V_K -центрам в щелочно-галогидных кристаллах. Применимость соотношения $W_0 e^{-E_a/kT}$ к V_K -центрам в ШПК показана в статьях I и II. Диффундирующие V_K -центры в ШПК участвуют в реакциях:



где A — активатор. (Предполагается отсутствие других центров.)

Существует несколько попыток применить теорию Вэйта [1,2] к термоактивационной диффузии V_K -центров в ШПК (напр., [5,6]). В случае заряженного притягивающего центра была использована формула (5). В работе [6] замечено, что формула (5) при низких температурах дает значения $r_{eff}^+ \approx 400 \text{ \AA}$ при 85°K , 7000 \AA при 4°K , превышающие среднее расстояние между электронными ловушками (при концентрации последних $\approx 10^{17} \text{ см}^{-3}$). На основании этого полагается, что формула (5) дает "очевидно слишком большие значения" r_{eff}^+ , так как стабильные V_K -центры не смогут

образовываться. Однако, на наш взгляд, имеет смысл говорить о термоактивационном радиусе рекомбинации только при температурах, превышающих температуру делокализации релаксированной дырки (V_K -центра). Ниже этой температуры можно говорить только о горячих (нерелаксированных) дырках (диффузионный характер движения которых весьма проблематичен) или туннельной диффузии V_K -центров [7] (когда уравнения типа (5) также неприменимы).

В работе [5] сделаны оценки отношения радиусов захвата диффундирующих V_K -центров на Tl^0 и Tl^+ -центрах в $KCl-Tl$, основываясь на экспериментальных данных работы [8], в которой обнаружено уменьшение на 0,3% концентрации Tl^+ -центров после нагрева возбужденного кристалла выше температуры делокализации V_K -центров, что интерпретировано как результат захвата дырки на активаторе с образованием Tl^{2+} . Однако в KCl в районе пика V_K разрушаются и F' -центры, поэтому уменьшение концентрации Tl^+ можно также интерпретировать и как захват на Tl^+ электрона (освободившегося из F') с образованием Tl^0 -центра. Основываясь на этом, мы полагаем, что интерпретация данных [8] не однозначна, и, следовательно, оценки [5] некорректны. Кроме того, оценки [5] некорректны математически, так как используют газокинетические соотношения.

Точная оценка требует подгонки параметров в системе уравнений [5], описывающих изменение концентраций V_K -и рекомбинирующих с ним электронных центров в процессе диффузии V_K , используя k из уравнения (17) в 1.

Оценка температуры, при которой уравнение (19) имеет место, дает для KCl ($r_b = 2,1 \text{ \AA}$; $W_0 = 10^7 \text{ сек}^{-1}$; $D_0 = 3,28 \cdot 10^{-3}$; $\xi \approx 5$; $E_a = 0,54 \text{ эВ}$) величину температуры $400^\circ K$, что значительно выше температуры разрушения Tl^0 -центров ($300^\circ K$), поэтому: во-первых, предсказанный эффект нарушения закона Аррениуса не будет наблюдаться в KCl (и, по-видимому, для V_K -центров в других ШПК), во-вторых, можно надеяться, что полукачественное первое приближение и формулы (9) и (18в) справедливы. (Выбор между ними можно сделать, моделируя задачу на ЭВМ.) В таблице I даны значения для KCl ква-

зистационарного радиуса рекомбинации V_K -центров на нейтральном центре (обозначено R) и притягивающем (R_{eff}, R_2^+), а также отношение R_{eff}^+/R в интервале температур от температуры дelokализации V_K -центра до температуры дelokализации электронов с Π^0 -центра. При расчете использовано первое приближение. Заметим, что природа электронного центра (A) определяется только одним параметром r_0 , который за неизменением лучшего взяли $2,1 \text{ \AA}$, как и для F -центра (см. статью II, п.4). Использование r_0 электронного, а не дырочного центра в (8) оправдано тем, что электронный имеет значительно более диффузную волновую функцию (см. статью II, п.4). Эта полукачественная оценка R_{eff}^+ справедлива для любого ионизированного активатора A^+ , а R - для F - и A^0 -центров и, по-видимому, а в ы ш е н а для отличных от F примесных центров. Более определенный расчет требует знания r_0 конкретного электронного центра или квантовомеханического расчета матричных элементов вероятности перехода. При этом определялись бы и пределы применимости (?) (в частности, в ШГК).

4. В ы в о д ы

Подведем краткие итоги.

1. Предложено первое приближение описания ДКР донорно-акцепторных пар с учетом кулоновского взаимодействия. Приближение основано на предположении о справедливости теории Вейта [2] при замене r_0 на квазистационарный радиус рекомбинации (см. статью I).

2. Показано, что при определенном соотношении параметров (см. (19)) не л ь з я ввести понятие эффективного радиуса рекомбинации. При этом закон Аррениуса не выполняется, т.е. константа реакции не содержит член $e^{-E_0/kT}$, что может быть обнаружено анализом изолированных пиков термостимулированной люминесценции методами фракционного термовысвечивания и постоянного сигнала. Этот эффект является прямым следствием вероятности рекомбинации $W_0 e^{-r/r_0}$ и не существует в модели Вейта [1,2]. Оценки показывают, что условие (19) для V_K -центра в КС1 (и других ШГК) имеет место при

температурах выше разрушения Tl° -центра. Однако возможно, что условие (19) имеет место в ходе ДКР других дырочных центров (H-центр, протон) и в других соединениях (стекла, полупроводники). Наблюдение невыполнения закона Аррениуса в ДКР представляет значительный интерес, и может быть критерием разделения случаев взаимодействия заряженных и незаряженных центров.

Т а б л и ц а

Квазистационарные радиусы рекомбинации V_k -центров с незаряженными (A°) и заряженными (A^+) электронными центрами

T, K	$R, \text{Å} (8)^*$	$R, \text{Å} (9)^{**}$	$R, \text{Å} (18b)^{xxx}$	R_{eff}/R^{xxxx}
177	51	195	146	3,83
190	46	179	136	3,90
210	38,8	160	119	4,1
230	33	145 ^{xx}	105	4,4
250	28,3	133	95	4,7
280	22,4	119	82	5,32
300	19	111	74,5	5,85

Примечания.

* Член $\frac{2K_0(\alpha)}{I_0(\alpha)}$ не учитывается, т.е. α велико при рассматриваемых температурах.

** Экспоненциальный член в уравнении (9) надо учитывать при $T \lesssim 230^{\circ}K$.

xxx Величина $R^{-1} \approx 2\text{Å}$ при этой температуре, поэтому рекомбинация при кулоновском отталкивании маловероятна.

xxxx Как видно, это отношение возрастает с температурой, в отличие от модели Вейта, где оно уменьшается пропорционально T^{-1} .

Для $R(r)$ имеем из (16), если (19) выполняется:

$$R = \frac{e^{-g/r} - e^{-g/r_b}}{1 - e^{-g/r}} , \quad r \geq r_b \quad (\text{III.1})$$

и для (18)

$$\dot{C}_A(t) = -\frac{4\pi W_0 C_A C_B}{1 - e^{-g/r_b}} \left\{ \int_{r_b}^{\infty} e^{-g/r - r/r_b} r^2 dr - e^{-g/r_b} \int_{r_b}^{\infty} e^{-r/r_b} r^2 dr \right\}. \quad (\text{III.2})$$

Рассмотрим в (III.2) первый интеграл. В случае $g > 0$ (отталкивание) подинтегральная функция быстро убывает при $r \rightarrow 0$, поэтому распространим пределы интегрирования $(0, \infty)$.

Тогда интеграл сводится к табличному:

$$I_1 = 2(g r_b)^{3/2} K_3(2\sqrt{g/r_b}) \approx 2 \left(\frac{\pi}{2}\right)^{1/2} g^{3/4} r_b^{3/4} e^{-2\sqrt{g/r_b}} \quad (\text{III.3})$$

при больших $\sqrt{g/r_b}$.

Рассмотрим теперь случай притяжения ($g < 0$):

$$I_1 = r_b^3 \int_1^{\infty} e^{\frac{g}{x r_b} - x} x^2 dx. \quad (\text{III.4})$$

Деформируем контур интегрирования, как показано на рис., рассмотрим интегралы по контуру. Тогда можно сделать оценку для интеграла по $(1, i\varepsilon)$:

$$I_1' = \int_1^{i\varepsilon} e^{\frac{|g|}{x r_b} - x} x^2 dx = \theta \int_1^{i\varepsilon} e^{\frac{|g|}{x r_b}} x^2 dx, \quad e^{-1} < \theta < 1. \quad (\text{III.5})$$

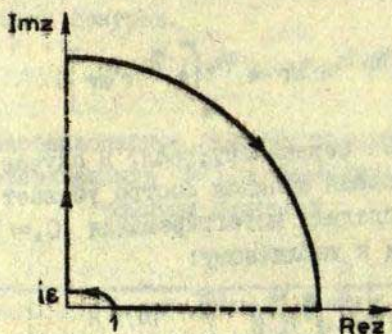
Далее

$$I_1' = -\theta \int_1^{i\varepsilon} e^{\frac{|g|}{r_b} t} \frac{dt}{t^4} = \theta \frac{1}{6} \left(\frac{|g|}{r_b}\right)^3 \text{Ei}\left(\frac{|g|}{r_b}\right) - \theta e^{\frac{|g|}{r_b}} \left[\frac{1}{3} + \frac{1}{6} \frac{|g|}{r_b} + \frac{1}{6} \left(\frac{|g|}{r_b}\right)^2\right]. \quad (\text{III.6})$$

Второй интеграл по $(i\varepsilon, \infty)$ сводится к табличному при $\varepsilon \rightarrow 0$:

$$I_1^2 = -i \int_0^{\infty} e^{\frac{|g|}{r_0} y} y^2 dy = -2 \left(\frac{|g|}{r_0} \right)^{3/2} K_3 \left(2 \sqrt{|g|/r_0} \right).$$

(III.7)



Р и с.

Интеграл I_1^3 по дуге стремится к нулю. Таким образом, имеем:

$$I_1 = r_0^3 \int_0^{\frac{\pi}{2}} e^{\frac{|g|}{r_0} x} x^2 dx = r_0^3 \theta \left[\frac{1}{6} \left(\frac{|g|}{r_0} \right)^3 \text{Ei} \left(\frac{|g|}{r_0} \right) - e^{\frac{|g|}{r_0} x} \times \left(\frac{1}{3} + \frac{1}{6} \frac{|g|}{r_0} + \frac{1}{6} \left(\frac{|g|}{r_0} \right)^2 \right) \right] - 2 (|g| r_0)^{3/2} K_3 \left(2 \sqrt{|g|/r_0} \right). \quad (\text{III.8})$$

Второй интеграл в (III.2) берется элементарно:

$$\int_0^{\infty} e^{-r/r_0} r^2 dr = \frac{5}{2} r_0^3. \quad (\text{III.9})$$

Таким образом,

$$\dot{C}_A(t) = - \frac{4\pi W_0 C_A C_B}{1 - e^{-g/r_0}} \left(I_1 - \frac{5}{2} r_0^3 e^{-g/r_0} \right), \quad (\text{III.10})$$

где I_1 определяется из (III.3) в случае отталкивания, а из (III.8) - в случае притяжения.

Обобщим метод, изложенный в I, для нахождения константы реакции K при наличии кулоновского взаимодействия. Перепишем уравнение (I6) в интегральном виде:

$$y(r) = y_0(r) - \frac{r e^{g/2r}}{g} \int_{r_0}^r r' e^{-g/2r'} \phi(r') y(r') dr' - \frac{r e^{-g/2r}}{g} \int_r^{\infty} r' e^{g/2r'} \phi(r') y(r') dr', \quad r \gg r_0, \quad (\text{II.2.1})$$

где $\phi(r) = \frac{W_0}{D} e^{-r/r_0}$, $y_0(r)$ - решение уравнения (I6) при отсутствии члена $\phi(r)$, т.е.

$$y_0(r) = r(C_1 e^{g/2r} + C_2 e^{-g/2r}), \quad (\text{II.2.2})$$

где константы C_1, C_2 подлежат определению.

Согласно нашим граничным условиям

$$y(r) \underset{r \rightarrow r_0}{\sim} \beta(r-r_0), \quad y(r) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} r + a \quad (\text{II.2.3})$$

(коэффициент I при r выражает условие нормировки).

Подставляя условия (II.2.3) в (II.2.1), с учетом (II.2.2) получаем

$$C_1 e^{g/2r_0} + C_2 - \frac{I_+}{g} = 0; \\ \beta = C_1 e^{g/2r_0} \left(1 - \frac{g}{2r_0}\right) + C_2 e^{-g/2r_0} \left(1 + \frac{g}{2r_0}\right) - \frac{e^{-g/2r_0}}{g} \left(1 + \frac{g}{2r_0}\right) I_+ + C_1 + C_2 = \frac{I_-}{g} + 1; \quad (\text{II.2.4})$$

$$\frac{g}{2} (C_1 - C_2) = \frac{1}{2} I_- + a;$$

где

$$I_{\pm} = \int_{r_0}^{\infty} r e^{\pm g/2r} \phi(r) y(r) dr.$$

Исключая из системы (II.2.4) C_1, C_2, I_+ , получаем

$$I_- = -\left(a + \frac{1}{2}g\right) - \beta r_0 e^{-g/2r_0} \quad (\text{II.2.5})$$

Из соотношения $y = r R e^{9/2r}$ и формулы (18) следует

$$k = 4\pi D I_0 = 4\pi D R_2^+ \quad (\text{П2.6})$$

Таким образом, зная поведение решения уравнения (16) вблизи точки r_0 и на ∞ , можно определить константу реакции k .

ЛИТЕРАТУРА

1. Waite T.K. Theoretical Treatment of the Kinetics of Diffusion-Limited Reactions. - "Phys.Rev.", 1957, 107, 2, p.463-470.
2. Waite T.K. General Theory of Bimolecular Reaction Rates in Solids and Liquids. - "J.Chem.Phys.", 1958, 28, p.103-106.
3. Capellos Christos and Bielski Benon M.J. Kinetic Systems. Math.description of Chem.Kinetics in Solution. N-Y., 1972, p.106-110.
4. Williams F.E. Donor-Acceptor Pairs in Semiconductors. "Phys. status solidi", 1968, 25, p.493-512.
5. Deitrich H.B., Murray R.B. Kinetics of the Diffusion of Self-trapped Holes in Alkali Halides Scintillators. - "J. Lumin.", 1972, 5, 1, p.155-170.
6. Keller K.J., Murray R.B. Thermal Motion of Holes in Potassium Iodide. - "Phys.Rev.", 1966, 150, 2, p.670-679.
7. Song K.S. On the Migration of V_K -Centers in Alkali Halides. - "J.Phys.Chem.Sol.", 1970, 31, p.1389-1397.
8. Delbecq Ch.J., Ghosh A.K., Yuster P.H. Trapping and Anihilation of Electrons and Positive Holes in KCl-TlCl. - "Phys.Rev.", 1966, 151, 2, p.599-609.

В.М.Медик, В.В.Пологрудов, Е.И.Шуралева ^х

О СВОЙСТВАХ СОБСТВЕННЫХ И ПРИМЕСНЫХ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ,
ОБРАЗОВАННЫХ ПРИ ФОТОВОЗБУЖДЕНИИ ЩЕЛОЧНО-ГАЛОИДНЫХ
КРИСТАЛЛОВ С Eu^{++}

При исследовании фотостимулированной проводимости кристалла KCl-Eu , возбужденного ультрафиолетовым излучением при комнатной температуре, найдено, что полоса, обусловленная наличием в кристалле F-центров, искажена больше, чем в случае рентгенизации этого же кристалла. Это обстоятельство рассматривается как доказательство взаимодействия близко расположенных центров в генетических парах $\{ F - V_{\text{K}}^{\text{II}} \}$, создаваемых фотонами.

При 90°K фотостимулированная проводимость кристалла KCl-Eu в области внутрицентрального поглощения не наблюдается, тем не менее имеет место запасание светосуммы, реализуемой в термостимулированной люминесценции при температуре $110-150^\circ\text{K}$, при которой отсутствует фотопроводимость. Термостимулированная люминесценция в этом случае сопровождается термостимулированным током. Предполагается, что запасание светосуммы происходит в процессе туннелирования; в результате последующей релаксации связь между центрами, создающимися в процессе туннелирования, утрачивается.

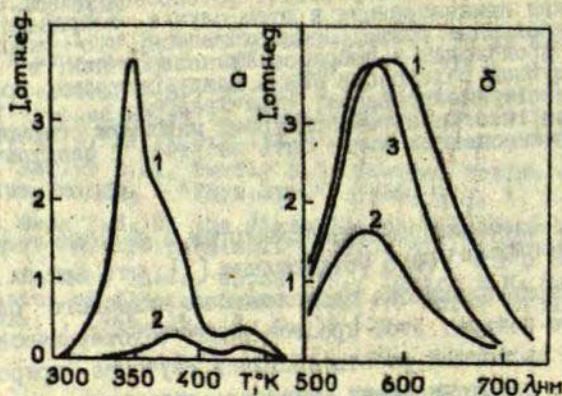
Установлено, что низкотемпературный максимум термостимулированной люминесценции может быть высвечен электрическим полем.

В процессе изучения запасания энергии в щелочно-галогидных кристаллах (ЩГК) с Eu^{++} было установлено [1], что при их фотозобуждении отрыв электрона происходит из анионного окружения примесного центра. Этот процесс носит фототермический характер. Целью настоящей работы являлось изучение природы уровней захвата, обеспечивающих запасание энергии в ряде ЩГК с Eu^{++} (KCl-Eu ; KJ-Eu ; RbCl-Eu). Описание условий экспериментов дано в работе [1].

В результате освещения кристалла KCl-Eu ультрафиолето-

^х Авторы статьи из Научно-исследовательского института прикладной физики при Иркутском государственном университете им. А.А.Дданова.

вым излучением с длиной волны $\lambda = 230$ нм при комнатной температуре на кривой термостимулированной люминесценции (ТСЛ), полученной для активаторного синего свечения, обнаруживаются три максимума при температурах 350, 375 и 440°K (рис. 1,а). На рис. 1,б приведены спектры фотостимулированной проводимости (ФСП), полученные для того же кристалла. Сопоставление кривых 1 и 3 (рис. 1,б) показывает, что спектр ФСП фотовозбужденного кристалла приблизительно описывает кривую поглощения F-полосы (кривая 1 на рис. 1,б), однако значительно сдвинут в сторону больших длин волн и имеет большую полуширину по сравнению со спектром ФСП рентгенизированного кристалла (кривая 3 на рис. 1,б). Подобные искажения параметров F-полосы поглощения уже наблюдались в ЦДК и связывались с взаимодействием F-центров и дефектов решетки [2,3,4]. После нагрева кристалла выше температуры



Р и с. 1. а - кривые ТСЛ KCl-Eu.

1 - возбуждение светом с длиной волны 230 нм 15 мин при 300°K; 2 - после нагрева до 380°K и облучения F-светом.

б - спектры ФСП KCl-Eu.

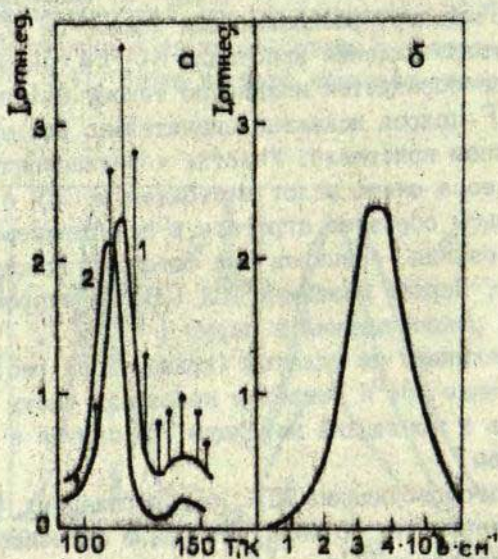
1 - возбуждение светом с длиной волны 230 нм 15 мин при 300°K; 2 - после нагрева до 350°K; 3 - облучение рентгеновскими лучами 10 сек.

первого максимума ТСЛ (350°K) в спектре ФСП (кривая 2 на рис. I, б) F-полоса уменьшается и принимает обычный вид. В работе [5] показано расширение F-полосы в рентгенизированных KCl-Eu кристаллах за счет близкого расположения дырочного центра. В рассматриваемом случае при фотовозбуждении F-центры по всей вероятности образуются по механизму, описанному в работах [6, 7, 8], т.е. при отрыве электронов от близлежащего к центру $\text{Eu}^{++}\text{V}_\text{c}^-$ иона хлора оставшаяся дырка взаимодействует с этим центром, образуя центр, подобный $\text{V}_\text{c}^{\text{M}}$ -центру, в KCl-Ca [9]. Анионная вакансия при этом отходит и, захватывая электрон, образует F-центр, расположенный вблизи от $\text{V}_\text{c}^{\text{M}}$ -центра. Так как при фотовозбуждении кристалла KCl-Eu основное количество F-центров образуется именно по такому механизму, естественно, что F-полоса искажена значительно больше, чем в рентгенизированном кристалле. Участие дорациационных вакансий в этом процессе очень мало: в отожженных ШГК с Eu^{++} активатор в основном образует агрегаты в виде тримеров [10], и процесс образования F-центров при фотовозбуждении значительно подавлен. Первый максимум ТСЛ (350°K) скорее всего можно связать с рекомбинацией в парах $\{\text{F}-\text{V}_\text{c}^{\text{M}}\}$, навести F-светом этот максимум не удается (кривая 2 на рис. I, а). После нагрева выше 350°K остается небольшая часть неискаженных F-центров и последний максимум ТСЛ связан с их термическим распадом.

При 90°K фотовозбуждение ШГК, активированных Eu^{++} приводит к запасанию светосуммы, которая в зависимости от основы главным образом высвечивается в интервале температур $110-150^{\circ}\text{K}$. При этом запасание энергии сопровождается уменьшением активаторного поглощения и выхода внутрицентральной люминесценции, что указывает на преобразование активатора, т.е. на образование центров $\text{Eu}^+\text{V}_\text{c}^-$ [11].

Во всех исследованных образцах в области низкотемпературного максимума наблюдается термостимулированный ток (ТСТ). Фотопроводимость при 90°K , если кристалл освещать светом с $\lambda=230$ нм, не обнаруживается. Таким образом можно предположить, что процесс запасания светосуммы при 90°K

происходит туннельно, а освобождение энергии - через зону проводимости. Возможный механизм этого процесса сводится к следующему: при фотовозбуждении при 90°K электрон из возбужденного состояния центра $\text{Eu}^{++}\text{V}_c^-$ переходит туннельно к близкорасположенному соседнему иону активатора; образуется пара $\{\text{Eu}^{++}\text{V}_c^-e^+ - \text{Eu}^+\text{V}_c^-\}$, в результате релаксации связь в парах нарушается и обратный переход электрона при деовозбуждении происходит через зону проводимости. Деовозбуждение может быть осуществлено либо нагреванием кристалла, либо ин-



Р и с. 2. а - кривые ТСЛ KCl-Eu . Возбуждение светом с длиной волны 230 нм при 90°K .

1 - в процессе термовисвечивания, налагались импульсы электрического поля ($E = 5 \cdot 10^4 \text{ в.см}^{-1}$); 2 - в процессе нагревания налагалось постоянное электрическое поле ($E = 1,5 \cdot 10^4 \text{ в.см}^{-1}$);

б - кривая ЭСЛ KCl-Eu . Скорость изменения напряженности $800 \text{ в.см}^{-1} \cdot \text{сек}^{-1}$.

фрактрасным излучением. В первом случае возникает ТСЛ, а во втором наблюдается оптическая вспышка и ФСП.

Небезынтересно действие электрического поля на ТСЛ в интервале температур 110–150°K исследованных нами кристаллов. На рис. 2 приведены данные, полученные для $KBr - Eu$. Как видно, наложение импульсов электрического поля приводит к значительному усилению яркости ТСЛ (кривая I на рис. 2, а). Постоянно действующее в процессе термовывесивания электрическое поле сдвигает максимум ТСЛ в сторону низких температур, не изменяя других параметров (полуширина, форма).

Если же после фотовозбуждения при 90°K повышать температуру, а напряженность электрического поля с постоянной скоростью, наблюдается максимум электростимулированной люминесценции (рис. 2, б), при последующем термовывесивании первый максимум на кривой ТСЛ отсутствует, т.е. ловушки, ответственные за этот максимум, освобождаются электрическим полем. Высветить таким способом полосы ТСЛ при более высоких температурах не удастся. Аналогичные результаты были получены В.П.Денксом с сотрудниками для кристалла $KCl - In - Na$ [12].

На примере электростимулированной люминесценции мы сталкиваемся с непосредственным действием электрического поля на ловушки носителей заряда, проявление которого на ЦПК не так давно еще не было известно. В работе [13], рассматривающей действие поля на возбужденные F-центры в KCl , предлагается практическое использование этого явления для записи информации. Дальнейшие исследования позволят лучше понять природу эффектов и оценить перспективы их использования.

ЛИТЕРАТУРА

1. Парфианович И.А., Мешик В.М., Саломатов В.Н., Шураева Е.И. Теоретическое и экспериментальное изучение локальных уровней в $KCl - Eu^{2+}$. - "Оптика и спектроскопия", 1973, 35, №3-4, с.876-879.

2. Smart R.St.C., Jennings P.J. Particle Size Effects on the Energies of Bulk and Surface F-Centres. - "Trans. Faraday Soc.", 1971, 67, p.1193-1199.

3. Sibley W.A. Effect of Plastic Deformation on the Production of F Centers, M Centers, and V Centers in KCl. - "Phys.Rev., A", 1964, 131, p.1176-1182.

4. Брмаков Г.А., Надгорный Э.М. Деформационная спектроскопия кристаллов NaCl с центрами окраски. - "Физ.твёрдого тела", 1972, 14, вып.4, с.1277-1280.

5. Лобанов В.Д., Партианович И.А., Шуралева Е.И. Взаимное распределение примесных ионов и радиационных дефектов в ШК. - "Физ.твёрдого тела", 1973, 15, вып.8, с.2518-2521.

6. Schneider E.E. Role of Impurities in Radiation Effects in Ionic Solids. - "Disc.Farad.Soc.", 1961, 31, p.176-183.

7. Hayes W. Effects of Ionizing Radiations on Alkali Halides Containing Divalent Impurities. - "J.Appl. Phys.", 1962, 33, p.329-331.

8. Hayes W., Nichols G.M. Paramagnetic Resonance and Optical Absorption of a V Center. - "Phys.Rev.", Second Series, 1960, 117, 4, p.993-998.

9. Vozzka R., Horvath T., Watterich A. On the Possible Mechanism of X-Ray Coloration in KCl(Ca) Crystals. - "Acta Phys.Acad.Scient.hung.", 1968, 24, p.255-266.

10. Unger S., Perlman M.M. Dipole Relaxation, Aggregation, and X-Ray Effects in KCl Doped with Eu^{2+} , Yb^{2+} , or Sm^{2+} . - "Phys.Rev.", B, 1972, 6, 10, p.3973-3981.

11. Ивахненко П.С., Партианович И.А., Шуралева Е.И. О наведенных активаторных центрах в KI-Eu. - "Изв. АН СССР. Сер. Физ.", 1969, 33, №6, с.1014-1016.

12. Лейман В.И., Денко В.П., Дудельзак А.Э. Термополевая ионизация электронных ловушек в люминесцирующих кристаллах KCl-In, Na. - "Физ.твёрдого тела", 1973, 15, вып.8, с.2454-2459.

13. Tubbs M.R., Wright D.K. Cathodochromic and Photochromic Alkali Halide Crystals for Optical Information Storage. - "Phys. status solidi (a)", 1971, 7, 1, p155-166.

ТОК ТЕРМОСТИМУЛИРОВАННОЙ ДЕПОЛЯРИЗАЦИИ, ОБУСЛОВЛЕННЫЙ
ЭФФЕКТОМ СИЛЬНОГО ПОЛЯ

Показано, что при достаточно больших внутренних полях в предварительно поляризованных диэлектриках ток термостимулированной деполяризации (ТСД) может быть следствием эффекта сильного поля. Приведен расчет тока ТСД, обусловленного эффектом Пуля, в приближении приэлектродной поляризации. Сформулирован критерий принадлежности к указанной модели ТСД. Показано, что применение существующих способов расчета параметров ловушек по кривым ТСД, к кривым ТСД обусловленным эффектом сильного поля, ведет к получению фиктивных значений.

Если предварительно поляризованный диэлектрик (полупроводник) замкнуть, то во внешней цепи можно наблюдать ток деполяризации (как при постоянной, так и при меняющейся температуре образца), величина которого определяется выражением полного тока [1]:

$$I(t) = \frac{S}{L} \int_0^L j(x, t) dx, \quad (1)$$

где S - площадь электродов,
 L - толщина диэлектрика,
 j - плотность тока внутри диэлектрика.

Пренебрегая диффузионной компонентой тока, из (1) получаем обычно используемое выражение для деполяризационного тока [2]:

$$I(t) = \frac{S}{L} \int_0^L \sigma(x, t) F(x, t), \quad (2)$$

где σ - проводимость диэлектрика,
 F - напряженность внутреннего поля.

Анализ выражения (2) с учетом условия короткого замыкания ($\int_0^L F(x, t) dx = 0$) показывает, что ток деполяризации будет тождественно равен нулю, если проводимость не является функцией координаты, т.е. $\sigma = \sigma(x)$. Наличие же тока деполяризации во внешней замкнутой цепи означает,

что либо диффузионная компонента тока играет существенную роль, либо $\sigma = \sigma(x)$, либо не выполняется условие короткого замыкания, либо имеется совокупность указанных причин.

Деполаризационные токи и, в частности, токи термостимулированной деполаризации (ТСД), обусловленные диффузионными процессами, рассмотрены в работах [1,3], а обусловленные пространственной неоднородностью проводимости в [2,4] для неоднородного (двухслойного) диэлектрика и в [5] для однородного диэлектрика. Причина пространственной неоднородности проводимости в последнем случае (однородный диэлектрик) усматривается в пространственно неоднородной локализации носителей заряда на ловушках (при поляризации), которая ведет к соответствующей неоднородности концентрации свободных носителей. Однако для однородного диэлектрика, как отмечалось в работе [1], возможна и другая причина появления тока ТСД - зависимость проводимости от величины внутреннего поля $\mathcal{E} [F(x)]$, (т.е. отклонение от закона Ома). Действительно, при достаточно больших внутренних полях могут иметь место эффекты сильного поля, например, эффект Пуля [6]:

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(-\frac{E - \alpha F}{kT}\right), \quad (3)$$

где E - энергия активации,
 α - параметр данного вещества,
 T - температура, $^{\circ}\text{K}$,
 k - постоянная Больцмана.

В приближении приэлектродной поляризации [7] путем интегрирования по частям выражения (2) с учетом (3) можно получить следующее приближенное выражение для тока ТСД, обусловленного эффектом сильного поля (I_F):

$$I_F(T) = \frac{Sq d^2 \sigma_0 n_+(T)}{2LE} \exp\left[-\frac{E - \frac{q d^2 \alpha}{2LE} n_+(T)}{kT}\right] \quad (4)$$

при $d \ll L$, $\frac{\alpha q d n_+}{kT} \gg 1$ (сильное внутреннее поле),
 где d - толщина области преимущественной локализации носителей заряда (концентрация n_+) в модели приэлектродной поляризации,
 ϵ - диэлектрическая проницаемость,

q - величина элементарного заряда.

Пользуясь известными выражениями для $n_1(T)$ [6], получаем из (4):

$$I_F(T) = I_0 \exp \left\{ -\frac{E}{kT} - \int_{T_0}^T \frac{\omega}{\beta} \exp \left(-\frac{E}{kT'} \right) dT' + \frac{\alpha F'(T_0)}{kT} \exp \left[-\int_{T_0}^T \frac{\omega}{\beta} \exp \left(-\frac{E}{kT'} \right) dT' \right] \right\} \quad (5)$$

в случае кинетики первого порядка,

$$I_F(T) = I_0 \exp \left\{ -\frac{E}{kT} + \frac{\alpha F'(T_0)}{kT} \left[1 + \int_{T_0}^T \frac{\omega}{\beta} \exp \left(-\frac{E}{kT'} \right) dT' \right]^{-1} \right\} \left[1 + \int_{T_0}^T \frac{\omega}{\beta} \exp \left(-\frac{E}{kT'} \right) dT' \right]^{-1} \quad (6)$$

в случае кинетики второго порядка.

Здесь ω - эффективный частотный фактор ловушек,

$$F'(T_0) = \frac{q d^2 \alpha n_1(T_0) \beta}{2 L \epsilon} \quad \begin{array}{l} \text{- скорость нагрева,} \\ \text{- максимальная величина внутренне-} \\ \text{го поля при начальной температу-} \\ \text{ре.} \end{array}$$

Анализ выражений (5), (6) и сравнение их с соответствующими выражениями для тока ТСД, не учитывающими эффект сильного поля ($I(T)$) [8], позволяет сделать следующие выводы:

а) наклон начального участка $I_F(T)$ в координатах Аррениуса уменьшается при увеличении степени начального заполнения ловушек, в то время как для $I(T)$ он не меняется, а в случае квазинепрерывного распределения ловушек по энергиям увеличивается [9]. Отмеченный эффект может быть использован для выбора по экспериментальным кривым одной из указанных моделей ТСД;

б) кривая $I_F(T)$ по сравнению с обычной кривой $I(T)$ характеризуется более быстрым спадом в высокотемпературной области. Температура (T_{mf}) максимума кривой $I_F(T)$ смещена в область более низких температур по сравнению с температурой максимума $I(T)$. С ростом $n_1(T_0)$ величина T_{mf} уменьшается;

в) применение существующим способом расчета параметров ловушек по кривым ТСД к $I_F(T)$ ведет к получению фиктивных значений. Так, например, по методу начального подъема из $I_F(T)$ получаем фиктивную энергию активации $E' = E - \alpha F'(T_0)$;

г) сравнение результатов расчета параметров ловушек,

полученных по кривым $I_r(T)$ и найденных другим, независимым методом (например, из термостимулированной люминесценции), открывает возможность оценки максимальной величины внутреннего поля и области преимущественной локализации объемного заряда (в приближении приэлектродной поляризации).

ЛИ Т Е Р А Т У Р А

1. Moran P.R., Podgoršak E.B. Non-Linear Mechanisms for Radiation Induced Thermally Activated Depolarisation Phenomena. - "Phys. Letters", 1973, 44A, p.237-238.

2. Борисова М.Э., Койков С.Н., Морозов С.Ф. Расчет временных зависимостей электронного потенциала и разрядного тока для различных моделей электретного состояния. В кн.: Материалы Всесоюзной конференции "Физика диэлектриков и перспективы ее развития", том 2, Л., 1973, с.123-125.

3. Keseler A., Caffun J.E. An investigation of the thermal defect order, defect mobility, and defect complex formation in cadmium fluoride. "J. Phys. C: Solid State Phys.", 1972, 5, p.1134-1152.

4. Губкин А.Н. О физической природе электретного эффекта. - "Труды МНЭМ", 1972, вып. 27, с.6-23.

5. Гороховатский Ю.А. Систематика явлений термостимулированной деполяризации. - "Изв. АН Латв. ССР. Сер. физ. и техн. наук" (в печати).

6. Губанов А.И. "К теории эффекта сильного поля в проводниках". - "Эк. техн. физ.", 1964, 24, с.308-319.

7. Вертопрахов В.Н., Сальман Е.Г. Определение энергетического спектра ловушек носителей заряда полудиэлектрического арсенида галлия методом термодеполяризации. "Электронная техника. Серия 8", 1972, вып. 8, с.94-99.

8. Гороховатский Ю.А. Термостимулированная деполяризация. "Изв. АН Латв. ССР. Сер. физ. и техн. наук", 1972, 3, с.15-22.

9. Гороховатский Ю.А. Термостимулированная деполяризация в случае квазинепрерывного энергетического распределения ловушки. "Изв. АН Латв. ССР. Сер. физ. и техн. наук", 1973, 4, с.23-28.

А.А.Гайлитис

УРАВНЕНИЯ СОСТОЯНИЯ ИОННЫХ КРИСТАЛЛОВ В КВАЗИГАРМОНИЧЕСКОМ ПРИБЛИЖЕНИИ И ПРИБЛИЖЕННАЯ ТЕОРИЯ КРИВОЙ ПЛАВЛЕНИЯ

В работе коротко рассмотрена постановка задачи — объяснить кривую плавления щелочно-галогидных кристаллов (ШГК) и возможные пути ее решения. Следуя общей теории И.П.Базарова [10], получены уравнения состояния ШГК. Получены выражения для температуры, характеризующей предел абсолютной устойчивости ШГК. Показано, что в рамках квазигармонического приближения [10] качественно объясняется аугермонический эффект — превышение теплоемкостью значения $6k_B$ на условную молекулу ШГК в области высоких температур. Получено новое доказательство закона Линдемана и показано, что вибрационное расширение, введенное Идой [15], является чисто геометрическим эффектом.

1. Постановка задачи

Хотя многими исследователями приложены значительные усилия, чтобы понять физику плавления, единой теории плавления в настоящее время не существует. К такому заключению можно прийти, рассмотрев работы [1-4, 7-10, 12-17, 19] и другие.

Детальное изучение механизмов плавления имеет огромное практическое значение, однако теоретических исследований по данному вопросу выполнено сравнительно мало.

Если отвлечься от общей задачи — объяснить, исходя из основных положений статистической термодинамики, существование фазового перехода кристалл-расплав [2], и предположить, как обычно делают, что это возможно, то уже не трудно выделить класс более узких задач.

Прежде всего следует теоретически объяснить зависимость между температурой плавления и давлением — кривую

плавления. По крайней мере есть смысл интересоваться кривой плавления при сравнительно низких температурах и давлениях. В интервале же чрезвычайно высоких температур и давлений вещество переходит либо в металлическое, либо плазменное состояние.

Плазма является ионизированным газом, и здесь говорить о плавлении бессмысленно — структурные единицы вещества в плазменном состоянии отличаются от структурных единиц того же вещества в твердом, жидком и газообразном состояниях.

В металлическом состоянии при высоких давлениях агрегатное состояние вещества зависит от ядерной подсистемы. В принципе здесь можно говорить о плавлении, но в этой области существенны квантовые эффекты, например, так называемое "холодное плавление" [4], которое может происходить даже из-за нулевых колебаний ядер. Вопрос о свойствах вещества в экстремальных состояниях (сверхвысокие давления и температуры) рассмотрен в работе [4]. В настоящей работе этот вопрос не затрагивается.

Вторая задача — определение численных величин энтальпий плавления W_n и энтропий плавления S_n . Для простых веществ известно [3], что W_n, S_n являются периодическими функциями номера атома в Периодической системе элементов Д.И. Менделеева. В то же время теоретического объяснения наблюдаемых величин W_n, S_n нет. Малыми энтропиями плавления отличаются щелочные металлы, большими — галогены.

Для всех веществ в точке плавления энтропия жидкого состояния выше энтропии твердого состояния. В работе [1] это объясняется увеличением разупорядоченности структуры при плавлении. В общем случае говорить об энтропии как мере разупорядоченности можно лишь в грубом приближении [5]. На это указывает контрпример — спонтанная кристаллизация переохлажденной жидкости. При том, согласно общим положениям термодинамики, энтропия системы возрастает.

Кроме выше рассмотренных задач, в работе [2] сформулирована еще одна задача весьма общего характера — объяснить функциональный вид изотерм $\Psi(p, v) = 0$; исходя только из известной потенциальной энергии взаимодействия структур-

ных единиц вещества. К сожалению, не существует системы, для которой потенциальную энергию взаимодействия структурных единиц можно было бы считать известной (потенциальная энергия известна, если для нее можно написать аналитическое выражение). Для большинства систем точно не определена отталкивающая часть потенциальной энергии взаимодействия. Поэтому широко используются полуэмпирические модельные потенциалы.

Если удастся найти обоснование плавлению в рамках достаточно общей теории, не включающей дополнительных параметров — кроме параметров модельного потенциала — температура плавления и зависимость ее от давления позволит уточнить модельный потенциал взаимодействия структурных единиц вещества.

К решению вопроса о кривой плавления можно подойти с разных сторон. Прежде всего, попытаться написать уравнение состояния, описывающее одновременно твердую и жидкую фазы — естественно, включая переход между ними, подобно тому, как уравнение Ван-дер-Ваальса качественно объясняет переход жидкость-пар.

В настоящее время неизвестна модель, на основе которой это выполнить. Переход жидкость-кристалл качественно отличается от перехода жидкость-пар отсутствием критической точки на кривой плавления. По крайней мере экспериментальных доказательств "критического плавления" нет [1]. Попытка объяснить плавление в рамках сильно упрощенной модели (решеточной модели для жидкости и твердого тела) [7] включает гипотезы, которые нельзя обосновать при произвольной функциональной зависимости потенциальной энергии взаимодействия структурных единиц вещества от расстояния между ними.

Подход со стороны общей модели для обеих фаз перспективен для объяснения эффектов "предплавления" или "опережения" — лавинообразного роста позиционных дефектов (вакансий, междоузельных атомов) вблизи точки плавления.

Наиболее строгим подходом является вычисление кривой плавления, исходя из равенства термодинамических потенциалов твердой и жидкой фазы [6]:

$$\Phi_T(p, T) = \Phi_{ж}(p, T). \quad (2)$$

Практически расчет кривой плавления по (2) сложен. Сложность заключается в вычислении $\Phi_{ж}(p, T)$, поскольку тогда необходимо численно определить статистический интеграл жидкости, имея для нее хорошую модель. Для жидкости, если не рассматривать грубо приближенные модели, термодинамические величины определяют не использованием статистического интеграла, а несколько косвенным методом — методом интегральных уравнений [8]. Рассчитывается радиальная функция распределения (РФР), одновременно характеризующая среднюю структуру жидкости и позволяющая рассчитать основные термодинамические величины. РФР может быть рассчитана только численно [8], но уравнения, используемые при этом, приближены [8].

Для жидкости нет хорошей модели, которую можно было бы взять в качестве исходного приближения. Для газа и кристалла таковыми являются идеальный газ и идеальный кристалл.

В жидкости структурные единицы совершают колебательное движение в окрестности виртуальных состояний равновесия и трансляционные перескоки между этими состояниями [9]. Построить общую модель, учитывая эту особенность, трудно.

Хотя и статистическая теория жидкости не дает возможность достаточно точно рассчитать $\Phi_{ж}(p, T)$ и использовать (2) для расчета кривой плавления, такой подход перспективен в смысле теста — насколько мы понимаем жидкое и твердое состояние. Ведь многие свойства кристаллических веществ при плавлении меняются мало.

Решение поставленной задачи можно начинать с исследования предела абсолютной устойчивости кристалла или расплава. Обычно подходят со стороны твердого состояния — легче рассчитать статистический интеграл и написать уравнение состояния [10, 11].

Уравнение состояния

$$\psi(p, V, T) = 0, \quad (3)$$

где p — давление, V — объем, T — температура, дает соотношение между термодинамическими величинами системы, которое является одним из основных соотношений, содержащим ценную информацию о свойствах вещества. Определение границы устойчивости

сводится к решению системы уравнений, в которой одно уравнение - уравнение состояния (3), а вторым уравнением является выражение

$$\frac{\partial P}{\partial V} = 0,$$

(4)

что совпадает с определением точки плавления по функциональному виду изотермы $\psi(P, V) = 0$ [12].

Нельзя полностью отождествлять потерю устойчивости с плавлением [13]. Жидкое состояние существует при давлениях и температурах выше координат тройной точки, но о потере устойчивости можно говорить при любом давлении, вплоть до нулевого.

С другой стороны, общеизвестно, что вблизи границы устойчивости системы сильно возрастают флуктуации. Поэтому именно неустойчивость может оказаться механизмом, который увеличивает концентрацию дефектов решетки [14].

При высокой концентрации дефектов интенсивность трансляционного передвижения структурных единиц вещества становится достаточной для появления качественно нового свойства - текучести.

Один из вариантов теории плавления, основанный на неустойчивости кристалла, развит Идой [14, 15]. Ида вводит понятие вибрационного расширения - эффективного увеличения средних по времени межатомных расстояний. Вибрационное расширение действительно имеет место, несмотря на то, что расстояния между точками, около которых атомы совершают колебания в гармоническом приближении, не меняются.

Вибрационное расширение, как это будет показано в настоящей работе, является чисто геометрическим эффектом.

Известно, что частоты колебаний решетки уменьшаются при увеличении постоянной решетки. Ида высказывает гипотезу [15], что аналогичное уменьшение частот вызывается также вибрационным расширением, хотя оно не изменяет постоянную решетки. При этом чисто формально получается, что вибрационное расширение не может превышать некоторую величину

Q. [15]. Температура, при которой вибрационное расширение до-

стигает критическую величину, Идой идентифицируется с температурой плавления. В настоящей работе будет показано, что предположение о наличии критического вибрационного расширения приводит к закону Линдемана [16]. Согласно работе [17] закон Линдемана следует из предположения, что для всех точек на кривой плавления статистический интеграл в приведенном конфигурационном пространстве остается постоянным.

В работах [18,19] рассмотрена возможность определить температуру плавления как температуру, при которой начинается лавинообразный прирост концентрации вакансий. Трудности здесь такие, что необходимо ввести дополнительные феноменологические параметры - энтальпии и энтропии образования вакансий и точно учесть изменение этих параметров с ростом концентрации вакансий, учитывая их взаимодействие.

В настоящей работе будет рассмотрена приближенная теория кривой плавления ионных кристаллов, следуя общей теории [10], в довольно грубом приближении отождествляя кривую плавления с кривой абсолютной утойчивости кристалла.

2. Уравнение состояния ионных кристаллов в квазигармоническом приближении

В работе [10] развита статистическая теория кристаллического состояния, исходящая из цепочек интегродифференциальных уравнений Боголюбова [20] для равновесных корреляционных функций. Метод корреляционных функций - основной метод в статистической теории жидкостей - [9] распространен на твердые тела. При этом оказалось возможным оборвать цепочку уравнений Боголюбова на первом уравнении в приближении мультипликативности бинарной функции распределения (приближение самоогласованного поля). Сущность приближения: области движения структурных единиц кристалла ни только не перекрываются (вплоть до температуры плавления), но и их линейные размеры малы по сравнению с расстоянием между ближайшими соседями a . Поэтому двухчастичную корреляционную функцию можно аппроксимировать произведением одночастичных корреляционных функций. В данном приближении из первого уравнения цепочки урав-

нений Боголобова получается нелинейное интегральное уравнение для одночастичной функции распределения, которое решается методом итераций.

В гармоническом приближении, при разложении потенциальной энергии — самосогласованного потенциала, создаваемого всеми частицами кристалла в окрестности узла, условно выбранного началом отсчета координат, ограничиваются квадратом смещения частицы из положения равновесия.

В главе I работы [10] дано решение уравнения равновесного самосогласованного поля для кристалла методом итераций в гармоническом приближении и с помощью этого решения получено выражение конфигурационной части свободной энергии (свободной энергии Гельмгольца):

$$F_k = -\frac{3}{2} N_1 kT \ln(2\pi kT) + \frac{1}{2} N_1 kT \ln D + U_0, \quad (5)$$

где N_1 — число частиц кристалла, $D = \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3$ — детерминант матрицы

$$\left\| \frac{\partial^2 u}{\partial q^{\alpha} \partial q^{\beta}} \right\|,$$

равный произведению диагональных элементов этой матрицы, приведенной к главным осям; u — потенциальная энергия частицы в узле решетки, q^{α}, q^{β} — декартовы координаты частицы. Величина U_0 — статическая энергия кристалла, которая в приближении аддитивности взаимодействия структурных единиц кристалла выражается формулой

$$U_0 = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{N_1} \sum_{j \neq i} \Phi |\bar{q}_{i0} - \bar{q}_{j0}|, \quad (6)$$

где Φ — потенциальная энергия взаимодействия двух частиц (модельный потенциал). Сумма (6) содержит $\frac{1}{2} N_1 (N_1 - 1)$ членов. Формулу (6) можно написать иначе, выделив вторую сумму:

$$U_0 = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{N_1} u_{0i} = \frac{1}{2} N_1 u_0 \quad (7)$$

В (7) величина $\psi_{0j} = \psi_0$ - статический самосогласованный потенциал, т.е. потенциальная энергия одной частицы в поле всех остальных.

Здесь "самосогласованность" имеет такой смысл: каждая частица движется в поле остальных и в то же время участвует при создании этого поля для других частиц.

Использованием выражения (7) имеем:

$$F_k = -\frac{3}{2} N_1 kT \ln(2\pi kT) + \frac{1}{2} N_1 kT \ln D + \frac{1}{2} N_1 \psi_0. \quad (8)$$

Рассматривая ионный кристалл, содержащий атомы двух сортов, условно перейдем от числа всех частиц N_1 к числу молекул

$$N = \frac{N_1}{2},$$

тогда из (8) следует выражение для F_k :

$$F_k = -3kTN \ln(2\pi kT) + NkT \ln D + N\psi_0. \quad (9)$$

Это - только конфигурационная часть свободной энергии. Добавив импульсную часть, получаем полную свободную энергию ионного кристалла, содержащего N молекул:

$$F = -3NkT \ln\left(\frac{2\pi mkT}{h^2}\right) - 3NkT \ln(2\pi kT) + NkT \ln D + N\psi_0, \quad (10)$$

где m - масса частицы (не различаются массы анионов и катионов), h - постоянная Планка.

Энтропия кристалла S выражается формулой [6]:

$$S = -k \left(\frac{\partial F}{\partial kT} \right)_V = kN \left(6 + \ln \frac{m^3 (kT)^6}{h^6 D} \right). \quad (11)$$

При этом предполагается, что $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3 = D$ не зависят от температуры, что является приближением. Теплоемкость получается

$$C_v = kT \left(\frac{\partial S}{\partial kT} \right)_v = 6kN \quad \text{или} \quad (12)$$

$6k \frac{2kT}{k}$ на одну молекулу, как это и должно быть в рамках гармонического приближения и в интервале высоких температур, в котором квантовыми эффектами можно пренебречь. В действительности ввиду того, что U_0 и D зависят от температуры, можно получить другое, приближенное выражение для энтропии:

$$S \approx kN \left[6 + 3 \ln \left(\frac{m}{h^2} (kT)^2 \right) - \ln D - \frac{kT}{D} \frac{\partial D}{\partial kT} - \frac{dU_0}{d(kT)} \right]. \quad (13)$$

Из формулы (13) следует приближенное выражение для теплоемкости ионных кристаллов в квазигармоническом приближении:

$$\begin{aligned} C_p &= kT \left(\frac{\partial S}{\partial kT} \right)_p = \\ &= kN \left[6 - 2 \frac{kT}{D} \frac{\partial D}{\partial kT} + \left(\frac{kT}{D} \right)^2 \left(\frac{\partial D}{\partial kT} \right)^2 - \right. \\ &\quad \left. - \frac{(kT)^2}{D} \frac{\partial^2 D}{\partial (kT)^2} - kT \frac{d^2 U_0}{d(kT)^2} \right]. \end{aligned} \quad (14)$$

Легко видеть, что в связи с условием $\frac{\partial D}{\partial kT} < 0$ (из общих соображений относительно изменения самоогласованного поля при термическом расширении кристалла) (14) даст прирост теплоемкости по сравнению с значением, даваемым (12). Однако расчет по (14) будет возможен лишь после получения уравнения состояния кристалла. В (14) учтена агармоничность, несмотря на квазигармоничность приближения. В разложении потенциальной энергии отброшены высшие члены. Приближение (10) для свободной энергии кристалла называется квазигармоническим [10].

Теперь перейдем к получению уравнений состояния ионных кристаллов. Уравнение состояния определяется использованием конфигурационной части свободной энергии (9) соотношением [6,8,10]

$$P = - \left(\frac{\partial F_k}{\partial V} \right)_T \quad (15)$$

Для этого следует определить D и u_0 как функцию объема или расстояния между ближайшими соседями [9,10].

3. Уравнения состояния ионных кристаллов

Рассчитаем, исходя из формулы (9), уравнение состояния. Обозначим, следуя [10], конфигурационную часть свободной энергии на одну молекулу f_k , как

$$f_k = \frac{F_k}{N} - 1$$

тогда получим:

$$f_k = -3kT \ln(2\pi kT) + kT \ln D + u_0. \quad (16)$$

Однако, от объема зависят лишь последние два члена формулы (16) и из соотношения

$$p = - \left(\frac{\partial F_k}{\partial V} \right)_T$$

использованием связи между объемом и расстоянием между ближайшими соседями [9,10] получаем, что

$$V = C \cdot a^3, \quad \frac{\partial a}{\partial V} = \frac{a}{3V},$$

где C — постоянная, зависящая от типа кристаллической структуры и размера образца. Тогда

$$\begin{aligned} p &= - \left(\frac{\partial F_k}{\partial V} \right)_T = - \frac{\partial F_k}{\partial a} \frac{\partial a}{\partial V} = \\ &= - \frac{a}{3V} \frac{\partial (f_k N)}{\partial a} = - \frac{a}{3V} \frac{\partial f_k}{\partial a}. \end{aligned} \quad (17)$$

В (17) v — объем, приходящийся на одну молекулу; (для ионных кристаллов $v = 2a^3$). Для давления получаем следующую формулу:

$$\begin{aligned} p &= - \frac{a}{3 \cdot 2 \cdot a^3} \frac{\partial f_k}{\partial a} = \\ &= - \frac{1}{6a^2} \frac{\partial}{\partial a} [kT \ln D + u_0]. \end{aligned} \quad (18)$$

Далее следует определять величины D и ω_0 при данном модельном потенциале взаимодействия структурных единиц кристалла.

Для ионных кристаллов потенциальная энергия взаимодействия частицы, условно расположенных в начале системы координат с частицей на k -ой координационной сфере, дается модельным потенциалом Борна (19) или Борна-Майера (20):

$$\Phi(\rho_k) = \frac{\lambda}{\rho_k^n} + (-1)^k \frac{e^2}{\rho_k}, \quad (19)$$

$$\Phi(\rho_k) = B e^{-\rho_k/\rho_0} + (-1)^k \frac{e^2}{\rho_k}. \quad (20)$$

В (19) и (20) λ, B, ρ_0 - постоянные, e - заряд электрона, ρ_k - расстояние от начала системы координат до частицы на k -ой координационной сфере.

Для расчета D и ω_0 положим частицы, расположенные на k -ой координационной сфере, равномерно "размазанными" по поверхности этой сферы. Не учитывается, что остальные частицы в действительности не остаются все время в равновесных положениях, а также то, что в действительности поле, которое "чувствует" частица в начале системы координат, не является сферически симметричным.

Если на k -ой координационной сфере число атомов равно Z_k , расстояние от начала системы координат до k -ой координационной сферы равно a_k , и мы интересуемся потенциалом при радиусе-векторе \vec{r} в окрестности данного "нулевого" узла, где $r \ll a_k$ для всех k . Согласно (21) расчет потенциала дается формулой:

$$\bar{\Phi}(\vec{r}) = \frac{1}{2} \sum_k Z_k \int_0^\pi \Phi[r^2 + a_k^2 - 2a_k r \cos \theta]^{1/2} \sin \theta d\theta,$$

где θ - угол между \vec{r} и \vec{a}_k при фиксированном \vec{r} (например, направленном по оси Z).

При расчете $\bar{\Phi}(\vec{r})$ будем учитывать только первую координационную сферу для эмпирических отталкивающих частей (19) и (20) и все координационные сферы для кулоновской части. Выполняя несложные выкладки, имеем в случае модельного потенциала Борна:

$$\bar{\Phi}(r) = \frac{3\lambda}{ar(n-2)} \left[\frac{1}{(a-r)^{n-2}} - \frac{1}{(a+r)^{n-2}} \right] - \frac{e^2}{a} \alpha, \quad (21)$$

а в случае модельного потенциала Борна-Майера:

$$\bar{\Phi}(r) = \frac{3\varphi_0^2 B}{ar} \left[e^{-\frac{(a-r)}{\varphi_0}} \left(\frac{a-r}{\varphi_0} + 1 \right) - e^{-\frac{(a+r)}{\varphi_0}} \left(\frac{a+r}{\varphi_0} + 1 \right) \right] - \frac{e^2}{a} \alpha, \quad (22)$$

где a - расстояние между ближайшими соседями, α - постоянная Маделунга. Разложив части в скобках (21) и (22) до членов, содержащих r^3 и $\left(\frac{r}{\varphi_0}\right)^3$ соответственно, получаем сферически симметричное поле, в котором движется частица в окрестности начала системы координат.

Из формулы (21) следует:

$$\bar{\Phi}(r) = u(r) = \frac{6\lambda}{a^n} - \frac{e^2}{a} \alpha + \frac{\lambda n(n-1)}{a^{n+2}} r^2. \quad (23)$$

Из формулы (22) следует:

$$\bar{\Phi}(r) = u(r) = 6Be^{-\frac{a}{\varphi_0}} - \frac{e^2}{a} \alpha + \frac{B}{a\varphi_0^2} e^{-\frac{a}{\varphi_0}} (a - 2\varphi_0) r^2. \quad (24)$$

Видно, что кулоновская часть модельных потенциалов не принимает участия при формировании потенциальной ямы для $r \ll a$.

Также становится ясным, что статический самосогласованный потенциал U_0 в обоих случаях включает отталкивающую часть, обусловленную отталкиванием шести ближайших соседей (можно показать, что учет отталкивания дальнейших соседей дает малую поправку) и энергию Маделунга. Из множителя при r^2 в (23) и (24) нетрудно получить детерминант D , так как смешанные вторые производные равны нулю.

$$D = \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 = \left(\frac{\partial^2 U}{\partial x^2} \right)_0^3. \quad (25)$$

Например, из (23) следует:

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial x^2} u(r) \right]^3 = \left(\frac{2n\lambda(n-1)}{a^{n+2}} \right)^3. \quad (26)$$

В случае модельного потенциала Борна получаем

$$D = \left(\frac{2n\lambda(n-1)}{a^{n+2}} \right)^3, \quad (27)$$

а в случае модельного потенциала Борна-Майера -

$$D = \left[\frac{2B}{a^3 \rho_0^2} e^{-\frac{a}{\rho_0}} (a - 2\rho_0) \right]^3. \quad (28)$$

Выражения (27) и (28) для величины D можно получить и другим путем: отказаться от приближения, в котором поле сферически симметрично согласно Ленарду-Джонсу и Левонгвару [21] и использовать формулу (2.31) из работы [10]:

$$\left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \right)_0 = \frac{1}{3} \sum_k z_k \left[\Phi''(a_k) + \frac{2}{a_k} \Phi'(a_k) \right]. \quad (29)$$

Из (23) и (24) следует, что статические части самосогласованного потенциала равны соответственно:

$$u = \frac{6\lambda}{a^n} - \frac{e^2}{a} \alpha, \quad (30)$$

$$u_0 = 6Be^{-\frac{a}{\rho_0}} - \frac{e^2}{a} \alpha. \quad (31)$$

Теперь использованием выражения (18) получим уравнения состояния ионных кристаллов в квазигармоническом приближении.

В случае модельного потенциала Борна имеем

$$p = -\frac{1}{6a^2} \left[\frac{kT}{D} \frac{\partial D}{\partial a} + \frac{\partial u_0}{\partial a} \right];$$

$$\frac{kT}{D} \frac{\partial D}{\partial a} = -\frac{kT \cdot 3(n+2)}{a}; \quad (32)$$

$$\frac{\partial u_0}{\partial a} = -\frac{6\lambda n}{a^{n+1}} + \frac{e^2}{a^2} \alpha,$$

и уравнение состояния имеет вид:

$$p = \frac{kT(n+2)}{v} + \frac{2\lambda n 2^{1/3}}{(v)^{n/3+1}} - \frac{e^2 \alpha 2^{1/3}}{3 v^{2/3}}, \quad (33)$$

или, не выражая открыто объем, имеем

$$p = \frac{1}{6a^3} \left[3kT(n+2) + \frac{6\lambda n}{a^n} - \frac{e^2}{a} \alpha \right]. \quad (34)$$

В случае модельного потенциала Борна-Майера получается:

$$\begin{aligned} \frac{kT}{p} \frac{\partial p}{\partial a} &= -3kT \left[\frac{1}{a} + \frac{1}{\varphi_0} - \frac{1}{a-2\rho_0} \right]; \\ \frac{\partial u_0}{\partial a} &= -6Ve^{-\frac{a}{\rho_0}} \frac{1}{\varphi_0} + \frac{e^2}{a^2} \alpha, \end{aligned}$$

и уравнение состояния имеет вид:

$$p = \frac{1}{6a^3} \left[3kT \left(\frac{a}{\rho_0} - \frac{2\rho_0}{a-2\rho_0} \right) + 6Ve^{-\frac{a}{\rho_0}} \frac{a}{\rho_0} - \frac{e^2}{a} \alpha \right]. \quad (35)$$

Переходя к объему на молекулу, имеем:

$$\begin{aligned} p &= kT \left[\frac{1}{v} - \frac{1}{Cv^{2/3}} - \frac{1}{v-2Cv^{2/3}} \right] + \\ &+ \frac{2B}{Cv^{2/3}} e^{-\frac{v}{C}} - \frac{e^2 c}{3v^{2/3} \varphi_0} \alpha, \end{aligned} \quad (36)$$

где $C = \varphi_0 \cdot 2^{4/3}$.

Далее на основе полученных уравнений состояния определим границы абсолютной устойчивости ионных кристаллов.

4. Уравнение границы абсолютной устойчивости ионных кристаллов

Для упрощения рассмотрим сначала границу устойчивости при отсутствии внешнего давления $p=0$, что для твердых тел является хорошим приближением - хотя это не совсем корректно. Уравнение состояния и условие (4) в случае модельного потенциала Борна дает систему уравнений:

$$\begin{cases} kT \cdot 3(n+2) + \frac{6\lambda n}{a^n} - \frac{e^2}{a} \alpha = 0, \\ kT(n+2) + \left(\frac{n}{3} + 1\right) \frac{2\lambda n}{a^n} = \frac{4}{9} \frac{e^2}{a} \alpha. \end{cases} \quad (37)$$

Из (37) выразим a при потере устойчивости:

$$a = \left[\frac{6n^2 \lambda}{e^2 \alpha} \right]^{\frac{1}{n-1}}, \quad (38)$$

что вместе со вторым уравнением системы (37) дает температуру неустойчивости при $p=0$ исключительно через параметры модельного потенциала. Под температурой неустойчивости при давлении $p=0$ понимается температура $T_n|_{p=0}$, получаемая совместным решением уравнений (3) и (4), исключая из системы уравнений объем или расстояние между ближайшими соседями a .

$$T_n|_{p=0} = \frac{1}{k(n+2)} \frac{2\lambda n(n-1)}{\left(\frac{6\lambda n^2}{e^2 \alpha}\right)^{\frac{n}{n-1}}}. \quad (39)$$

Если подставить, например, известные параметры модельного потенциала Борна для NaCl [10]: $\lambda = 0,7 \cdot 10^{-88}$ эрг·см¹⁰, $n = 10$, и остальные постоянные, получается $T_n = 2100^\circ\text{K}$, что значительно выше температуры плавления. Однако качественно подобный результат следует из теории И.П.Базарова для кристаллов благородных газов [10].

Если не прибегать к упрощению $p=0$, предел устойчивости определяется совместным решением уравнений (33) и (4), однако, в этом случае не удастся исключить объем или расстояние между ближайшими соседями a . Все же, учитывая, что a меняется не очень сильно, можно, оставив ее в выражении температуры неустойчивости, прийти к формуле:

$$T_n = \frac{3\left(2 + \frac{n-1}{3}\right)2a^3}{(n+2) \cdot n \cdot k} p + \frac{2\lambda n(n-1)}{k(n+2)\left(\frac{6\lambda n^2}{e^2 \alpha}\right)^{\frac{n}{n-1}}}. \quad (40)$$

Видно, что, считая a в первом члене приближенно постоянной, температура неустойчивости линейно растет с ростом давления. Второй член в (40) соответствует (39), давая температуру неустойчивости при $p=0$. Данная зависимость качественно объясняет рост температуры неустойчивости с давлением, поскольку величина не исключена. Однако это приближение является несущественным.

Подобные результаты следуют также из модельного потен-

циала Борна-Майера, но в этом случае не удается исключить даже при $\rho = 0$.

Из формул (35) и (4) при $\rho = 0$ следует система уравнений

$$\begin{cases} 3kT \left(\frac{1}{a^3} + \frac{1}{\varphi_0 a^2} - \frac{1}{a^3 - 2\rho_0 a^2} \right) + \frac{6B}{\varphi_0 a^2} e^{-\frac{a}{\varphi_0}} - \frac{e^2}{a^4} \alpha = 0, \\ 3kT \left(-\frac{3}{a^3} - \frac{2}{\varphi_0 a^2} + \frac{3a^3 - 4\varphi_0 a^2}{(a^3 - 2\varphi_0 a^2)^2} \right) - \\ - \frac{6B}{\varphi_0 a^2} e^{-\frac{a}{\varphi_0}} \left(2 + \frac{a}{\varphi_0} \right) + \frac{4e^2}{a^4} \alpha = 0. \end{cases} \quad (41)$$

Исключением члена, содержащего экспоненту, получаем:

$$T_H \Big|_{\rho=0} = \frac{1}{3k} \frac{e^2 \alpha \left(\frac{1}{\varphi_0} - \frac{2}{a} \right)}{\left[\left(\frac{a}{\varphi_0} \right)^2 - 2 + \left(\frac{2\varphi_0}{a - 2\varphi_0} \right)^2 \right]}. \quad (42)$$

При подставке численных величин a и φ_0 в (42), где a взята из экспериментальных данных, получаем то же значение температуры неустойчивости, что в выражении (39). Соотношение (42) сравнительно мало чувствительно к величине a , которую следовало бы найти решением системы уравнений (41) подобно, как это было выполнено решением системы (37).

$$T_H \Big|_{\rho=0} = \frac{1}{3k} \frac{6Be^{-\frac{a}{\varphi_0}} \left(\frac{a}{\varphi_0} - 2 \right)}{\left[2 + \frac{4}{a} \left(\frac{2\varphi_0}{a - 2\varphi_0} \right)^2 \right]}. \quad (43)$$

Приравнивая (42) и (43), опять имеем возможность исключить и выразить температуру неустойчивости исключительно через параметры модельного потенциала. К сожалению и в этом случае соответствующее уравнение не решается аналитически. Не применим также метод итераций, поскольку получается отображение, не являющееся сжимающим. Случай $\rho \neq 0$ в рамках настоящей работы для модельного потенциала Борна-Майера рассматриваться не будет.

Теперь, используя формулы (34) и (14), оценим, объясняет ли квазигармоническое приближение ангармонический эффект -

превышение теплоемкостью значение (I2), предсказываемое законом Дюлонга и Пти для интервала высоких температур. В отличие от идеального одноатомного газа теплоемкость твердых тел изменяется с температурой. В рамках квазигармонического приближения это изложение дает формулу (I4). С этой целью следует определить $\frac{\partial D}{\partial kT}$ и $\frac{\partial^2 D}{\partial (kT)^2}$, входящие в выражение (I4). Член $\frac{e^{1/a}}{a(kT)^2}$, как легко проверить, дает незначительный вклад. Из (34) при $p=0$ в силе формула:

$$3kT(n+2) + \frac{6\lambda n}{a^n} - \frac{e^2}{a} \alpha = 0. \quad (44)$$

В данной зависимости a является функцией температуры: при увеличении первого члена остальные уменьшаются по абсолютной величине. Формула (44) в силе при $p=0$ и любой температуре. При изменении температуры соответствующие изменения членов (44) таковы, что (44) остается в силе.

Можно написать:

$$\delta(kT)3(n+2) - \frac{6\lambda n^2}{a^{n+1}} \frac{da}{dkT} \delta(kT) + \frac{e^2}{a^2} \frac{da}{dkT} \delta(kT) = 0,$$

из чего, сократив на $\delta(kT)$, имеем:

$$\frac{da}{dkT} = - \frac{3(n+2)}{\frac{e^2}{a^2} \alpha - \frac{6\lambda n^2}{a^{n+1}}}. \quad (45)$$

или, так как $\frac{da}{dkT} > 0$, следует:

$$\frac{da}{dkT} = \frac{3a(n+2)}{\frac{6\lambda n^2}{a^n} - \frac{e^2}{a} \alpha}. \quad (46)$$

Теперь легко определить все входящие в выражение (I4) величины: из

$$D = \left(\frac{2\lambda n(n-1)}{a^{n+2}} \right)^3$$

и формулы (46) следует

$$\frac{\partial D}{\partial kT} = - \frac{9(n+2)^2}{\frac{6\lambda n^2}{a^n} - \frac{e^2}{a} \alpha} \cdot D. \quad (47)$$

Использованием соотношения (34), а также очевидного неравенства $\frac{6\lambda n^2}{a^n} \gg \frac{6\lambda n}{a^n}$ нетрудно получить неравенство, показывающее, что знаменатель (47) положителен. Поэтому второй член в (14) дает прирост теплоемкости по сравнению с теплоемкостью в гармоническом приближении $-6k \frac{2p1}{K}$ на молекулу.

Рассмотрим четвертый член в (14), так как третий всегда положителен. Расчет, подобный предыдущему, дает:

$$\frac{\partial^2 D}{\partial (kT)^2} = \left\{ \frac{9(n+2)^2}{\frac{6\lambda n^2}{a^n} - \frac{e^2}{a} \alpha} \right\}^2 \cdot D - \\ - D \left(\frac{6\lambda n^3}{a^n} - \frac{e^2}{a} \alpha \right) \left(\frac{9(n+2)^2}{\frac{6\lambda n^2}{a^n} - \frac{e^2}{a} \alpha} \right)^3 \cdot 3(n+2). \quad (48)$$

Подстановка (47) и (48) в выражение (14) дает при $\lambda = 0,7 \cdot 10^{-88}$ эрг.см⁻¹⁰ [10], $n = 10$ и $a = 2,82 \cdot 10^{-8}$ см для NaCl при 300°K C_p равную $6,4k \frac{2p1}{K}$ на молекулу. Данное значение так же, как и значение температур неустойчивости, не претендует на высокую точность. Можно предположить, что точность увеличится, если определим параметры модельного потенциала, используя уравнение состояния (33) и экспериментальные значения термодинамических величин. Увеличение теплоемкости ионных кристаллов при высоких температурах по сравнению с значением, предсказываемым законом Делонга и Пти, имеет место (см. напр., [22,23]).

5. Вибрационное расширение и соотношение Линдемана

Один из первых попыток объяснить плавление в связи с приростом амплитуд колебаний атомов кристалла принадлежит

Линдеману [16]. Он показывает, что твердая фаза становится неустойчивой, когда амплитуда колебаний достигает некоторую часть равновесного расстояния между атомами. В работе [1] температура, при которой это происходит, называется "колебательной температурой плавления" T_K .

Формула Линдемана имеет вид:

$$T_K = C_0 v_E^2 v^{2/3} m, \quad (49)$$

где v_E - характерная частота колебаний, m - масса атома, v - объем на одну частицу. Постоянная C_0 принимается одинаковой для кристаллов с одинаковой структурой [1].

Легко показать, что закон Линдемана следует из предположения Иди [15], т.е. из предположения, что вибрационное расширение Q не может превысить критическую величину Q_0 . Однако, последнее утверждение является гипотезой (по крайней мере оно выводится при прибегании к дополнительной гипотезе). Иди определяет вибрационное расширение Q в виде:

$$Q \stackrel{\text{def}}{=} \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{1}{t} \int_0^t \frac{|\bar{q}_1 - \bar{q}_2|}{|\bar{q}_{10} - \bar{q}_{20}|} dt - 1, \quad (50)$$

где \bar{q}_1, \bar{q}_2 - координаты двух атомов кристалла как функции времени, $\bar{q}_{10}, \bar{q}_{20}$ - координаты равновесных положений тех же атомов. В рамках гармонического приближения $Q \neq 0$.

В настоящей работе рассчитаем Q не усреднением по времени, но усреднением по статистическому ансамблю, используя гармоническое приближение самосогласованного поля [10].

Рассчитаем среднее по ансамблю от величины

$$\frac{|\bar{q}_1 - \bar{q}_2|}{|\bar{q}_{10} - \bar{q}_{20}|},$$

выбрав два атома, равновесное расстояние между которыми равно расстоянию между ближайшими соседями a :

$$|\bar{q}_{10} - \bar{q}_{20}| = a.$$

Обозначив

$$\left\langle \frac{|\bar{q}_1 - \bar{q}_2|}{|\bar{q}_{10} - \bar{q}_{20}|} \right\rangle \stackrel{\text{def}}{=} 1 + Q,$$

по определению для системы из N_1 частиц имеем:

$$1+Q = \frac{\int \dots \int |\vec{q}_1 - \vec{q}_2| \exp \left\{ -\frac{U_{N_1}(\vec{q}_1, \dots, \vec{q}_{N_1})}{kT} \right\} d\vec{q}_1, \dots, d\vec{q}_{N_1}}{|\vec{q}_{10} - \vec{q}_{20}| \int \dots \int \exp \left\{ -\frac{U_{N_1}(\vec{q}_1, \dots, \vec{q}_{N_1})}{kT} \right\} d\vec{q}_1, \dots, d\vec{q}_{N_1}}, \quad (51)$$

где $U_{N_1}(\vec{q}_1, \dots, \vec{q}_{N_1})$ - потенциальная энергия взаимодействия частиц кристалла:

$$U_{N_1}(\vec{q}_1, \dots, \vec{q}_{N_1}) = \sum_{i=1}^{N_1} \sum_{j>i}^{N_1} \phi(|\vec{q}_i - \vec{q}_j|). \quad (52)$$

Разложим сумму, выделив члены, содержащие \vec{q}_1 и \vec{q}_2 . Тогда имеем:

$$\begin{aligned} U_{N_1} &= \sum_{j=3}^{N_1} \phi(|\vec{q}_1 - \vec{q}_j|) + \frac{1}{2} \phi(|\vec{q}_1 - \vec{q}_2|) + \\ &+ \sum_{j=3}^{N_1} \phi(|\vec{q}_2 - \vec{q}_j|) + \frac{1}{2} \phi(|\vec{q}_2 - \vec{q}_1|) + \\ &+ \sum_{j=3}^{N_1} \sum_{\substack{i=1 \\ i \neq 1 \\ i \neq 2 \\ i > 1}}^{N_1} \phi(|\vec{q}_i - \vec{q}_j|) = u(\vec{q}_1) + u(\vec{q}_2) + \\ &+ \sum_{j=3}^{N_1} \sum_{\substack{i=1 \\ i \neq 1 \\ i \neq 2 \\ i > 1}}^{N_1} \phi(|\vec{q}_i - \vec{q}_j|). \end{aligned} \quad (53)$$

В гармоническом приближении, считая, что поле для первого и второго атома создается неподвижными остальными частицами и оно сферически симметрично, первые четыре члена в (53) представим в виде:

$$u(\vec{q}_1) = u_0 + \alpha^2 \vec{r}_1^2,$$

$$u(\vec{q}_2) = u_0 + \alpha^2 \vec{r}_2^2,$$

где \vec{r}_1 и \vec{r}_2 - смещения атомов 1 и 2 относительно равновесных положений \vec{q}_{10} и \vec{q}_{20} . Введением \vec{r}_1 и \vec{r}_2 можно выразить абсолютную величину

$$|\vec{q}_1 - \vec{q}_2| = |\vec{q}_{10} - \vec{q}_{20} + \vec{r}_1 - \vec{r}_2| = |-\vec{a} + \vec{r}_1 - \vec{r}_2|.$$

Тогда интегралы, содержащие переменные $\vec{q}_3 \dots \vec{q}_{N_1}$, можно вынести

как множители и сократить; после этого получаем

$$1+Q = \frac{\iint |\vec{a} + \vec{r}_2 - \vec{r}_1| \exp\left\{-\frac{\alpha^2}{kT} (\vec{r}_1^2 + \vec{r}_2^2)\right\} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2}{|\vec{a}| \iint \exp\left\{-\frac{\alpha^2}{kT} \vec{r}_1^2\right\} \exp\left\{-\frac{\alpha^2}{kT} \vec{r}_2^2\right\} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2}.$$

Данную формулу можно получить и другим путем: в выражении (51) можно непосредственно подставить конфигурационную часть распределения Гиббса в виде, полученном в работе И.П.Базарова [10] в гармоническом приближении самосогласованного поля:

Выполнив замену переменных, как при решении подобных задач в работе [10], имеем:

$$\alpha^2 (\vec{r}_1^2 + \vec{r}_2^2) = 2\alpha^2 \left(\vec{r}_1 + \frac{\vec{r}}{2}\right)^2 + \frac{\alpha^2}{2} \vec{r}^2,$$

где использовано обозначение $(\vec{r}_2 - \vec{r}_1) = \vec{r}$. Тогда получаем:

$$\begin{aligned} 1+Q &= \frac{\int |\vec{a} + \vec{r}| \exp\left\{-\frac{\alpha^2}{2kT} r^2\right\} d\vec{r} \int \exp\left\{-\frac{2\alpha^2}{kT} \left(\vec{r}_1 + \frac{\vec{r}}{2}\right)^2\right\} d\left(\vec{r}_1 + \frac{\vec{r}}{2}\right)}{a \left(\int \exp\left\{-\frac{\alpha^2}{kT} r^2\right\} d\vec{r}\right)^2} = \\ &= \frac{1}{a} \frac{\left(\frac{\pi kT}{2\alpha^2}\right)^{3/2}}{\left(\frac{\pi kT}{\alpha^2}\right)^3} \int |\vec{a} + \vec{r}| \exp\left\{-\frac{\alpha^2}{2kT} r^2\right\} d\vec{r} \end{aligned}$$

Выразив абсолютную величину в виде

$$|\vec{a} + \vec{r}| = \sqrt{a^2 + 2a \arccos \langle \vec{a}, \vec{r} \rangle + r^2},$$

и так как

$$d\vec{r} = r^2 \sin \theta dr d\varphi d\theta,$$

где $\langle \vec{a}, \vec{r} \rangle = \theta$,

выполнив выкладки, имеем:

$$1+Q = \frac{1}{a} \left(a + \frac{1}{a} \frac{kT}{\alpha^2}\right), \text{ поэтому} \quad (54)$$

$$Q = \frac{1}{a^2} \frac{kT}{\alpha^2}$$

Данное выражение для Q дает возможность заключить, что вибрационное расширение является чисто геометрическим эффектом. Ведь если выбрать атомы 1 и 2 не разделенными расстоянием между ближайшими соседями величиной a , но, например, величиной a_k , где первый атом условно расположен в начале системы координат, а второй — на k -ой координационной сфере, последнее выражение все равно будет в силе при замене a на a_k и Q в этом случае будет чрезвычайно малой величиной.

Из $u(r) = u_0 + \alpha^2 r^2$ получим частоту колебаний атома в потенциальной яме при массе атома m : $\omega = \sqrt{\frac{2\alpha^2}{m}}$,

что дает соотношение:

$$Q = \frac{2}{a^2} \frac{kT}{\omega^2 m} \quad (55)$$

Приняв гипотезу, что $Q = Q_0$ приводит к неустойчивости, и используя связь постоянной решетки с объемом на одну частицу, что имеет вид $v \sim a^3$, получаем известное соотношение Линдемана:

$$T_k = \frac{Q_0}{k} \omega^2 m (v)^{2/3} \quad (56)$$

З а к л ю ч е н и е

В работе коротко рассмотрена постановка задачи объяснить кривую плавления ионных кристаллов и возможные пути ее решения.

Получены уравнения состояния ионных кристаллов в квазигармоническом приближении, следуя общей теории И.П.Базарова [10].

Развита теория кривой абсолютной неустойчивости ионных кристаллов.

Получены выражения для температуры неустойчивости при отсутствии внешнего давления. Данные выражения содержат только фундаментальные постоянные и параметры модельных потенциалов ионных кристаллов. В случае модельного потенциала Бор-

на-Майера выражение для температуры неустойчивости невозможно получить в аналитическом виде. В работе [10], где рассмотрены кристаллы благородных газов, получены выражения, из которых также следует, что теоретические значения температур неустойчивости выше температур плавления. В настоящей работе имеет место подобный результат для температуры неустойчивости T_n .

Можно предположить, что качество результатов увеличится, если выполнить оценку параметров модельного потенциала сравнением измеренных значений термодинамических величин с величинами, которые следуют из полученных уравнений состояния. Показано, что использованием квазигармонического приближения, развитого в работе И.П.Базарова [10], качественно объясняется ангармонический эффект - превышение теплоемкости значения $3kT/k$ на молекулу в области комнатных температур. Это означает, что квазигармоническое приближение сравнительно хорошо учитывает ангармоничность, хотя при разложении потенциальной энергии отброшены члены выше второго порядка.

В работе [24] приведено значение C_v для NaCl при 300°K, что ниже, чем получается с учетом C_p согласно (14). Нельзя утверждать, что квазигармоническое приближение без учета коллективных колебаний способно полностью количественно объяснить ангармонические эффекты в ионных кристаллах. Это и не являлось целью настоящей работы.

Использованием гипотезы Идой [15], что вибрационное расширение Q не может превышать некоторую критическую величину Q_0 , и методов, развитых в работе И.П.Базарова [10] - получено новое доказательство формулы Линдемана.

В то же время гипотеза, введенная Идой, что вибрационное расширение изменяет частоты колебаний решетки подобно тому, как частоты колебаний меняются при термическом расширении кристалла, остается без доказательства. Из вывода выражения для вибрационного расширения Q , выполненного в настоящей работе усреднением по статистическому ансамблю, видно, что вибрационное расширение является чисто геометрическим эффектом.

Выражаем благодарность Ю.Р.Закису и А.К. Годжалну за предоставление тем, а также И.Р.Зитару и А.А.Яунбергу за полезные дискуссии и ценные замечания.

Л И Т Е Р А Т У Р А

1. Убеллоде А. Плавление и кристаллическая структура. М., "Мир", 1969. 420 с.
2. Уленбек Г. Фундаментальные проблемы статистической механики. - "Успехи физ. наук", 1971, 103, вып. 2, с. 275-318.
3. Глазов В.М. Об энтропиях плавления простых веществ в связи с периодическим законом Д.И. Менделеева. - "Ж. физ. химии", 1972, 46, №3, с. 606-611.
4. Киржниц Д.А. Экстремальные состояния вещества. - "Успехи физ. наук", 1971, 104, вып. 3, с. 489-508.
5. Wright P.G. Entropy and Disorder. - "Contemp. Phys.", 1970, 11, Nr. 6, p. 581-588.
6. Ландау Л.Д., Лившиц Е.М. Статистическая физика. М., "Наука", 1964. 567 с.
7. Kuramoto Y. Theory of Melting Transition. - "Progr. Theor. Phys.", 1971, 45, Nr. 6, p. 1724-1736.
8. Коваленко Н.П., Фашер И.Э. Метод интегральных уравнений в статистической теории жидкостей. - "Успехи физ. наук", 1972, 108, вып. 2, с. 209-239.
9. Фашер И.Э. Статистическая теория жидкостей. М., Физматгиз, 1961. 280 с.
10. Базаров И.П. Статистическая теория кристаллического состояния. М., Из-во Московского университета, 1972. 118 с.
11. Харков В.Н., Калинин В.А. Уравнения состояния твердых тел при высоких давлениях и температурах. М., "Наука", 1968. 311 с.
12. Herzfeld K.F., Mayer M.G. On the Theory of Fusion. - "Phys. Rev.", 1934, 46, p. 995-1001.
13. Hoover W.G., Ross M. Statistical Theories of Melting. - "Contemp. Phys.", 1971, 12, Nr. 4, p. 339-356.
14. Ida Y. Comment on Theory of Melting Proposed by Ida: A Reply. - "Phys. Rev.", 1973, 2, Nr. 12, p. 5416-5417.
15. Ida Y. Theory of Melting, Based on Lattice Instability. - "Phys. Rev.", 1969, 187, Nr. 3, p. 951-958.
16. Lindemann F.A. Über die Berechnung molekularen Eigenfrequenzen. - "Z. Physik", 1910, 11, S. 609-612.
17. Ross M. Generalized Lindemann Melting Law. - "Phys. Rev.", 1969, 184, Nr. 1, p. 233-242.
18. Владимиров В.И. Возможный вакансионный механизм плавления. - "Физ. твердого тела", 1968, 10, №9, с. 2639-2642.

19. Kurosawa T. On the Melting of Ionic Crystals. - "J. Phys.Soc.Japan", 1957, 12, p.338-341.
20. Боголюбов Н.Н. Проблемы динамической теории в статистической физике. - В кн.: Боголюбов Н.Н., Избранные труды в трех томах, том 2, Киев, "Наукова думка", 1970, с.99-196.
21. Lennard-Jones J.E., Devonshire A.F. Critical Phenomena in Gases. - "Proc.Roy.Soc." (London), 1937, 163, p.53-70.
22. Лейбфрид Г., Лдвиг В. Теория ангармонических эффектов в кристаллах. М., ИЛ, 1963. 231 с.
23. Киттель И. Введение в физику твердого тела. М., Гос. издательство технико-теоретической литературы, 1957. 523 с.
24. Mario P.Tosi. Cohesion of Ionic Solids in the Born Model. New York and London, Academic Press, 1964, vol.16, p. I-120.

Ю.К. Бранто

ЧИСЛЕННОЕ РЕШЕНИЕ УРАВНЕНИЙ ХАРТРИ-ФОКА, УСРЕДНЕННЫХ ПО ТЕРМАМ

Рассмотрены вопросы создания системы программ для численного решения уравнений Хартри-Фока. Показана возможность упростить программу, используя уравнения, не зависящие от типа связи. Приведены результаты расчетов для ионов щелочно-галлоидных кристаллов.

В в е д е н и е

Различные квантовомеханические расчеты ведут к необходимости иметь атомные волновые функции. Ведь теория атома — это фундамент молекулярной физики и теоретической химии, это основа физики твердого тела, имеющей широкие области практического применения.

С точки зрения теории твердого тела существенно получить хорошие волновые функции для щелочно-галлоидных кристаллов (ШГК). Волновые функции, если они хорошие, важны не сами по себе, а для того, чтобы вычислить экспериментально наблюдаемые величины. Такие теоретические расчеты чаще всего удается провести именно для ШГК, так как эти системы имеют достаточно простую электронную структуру. В хорошем приближении можно считать, что ШГК состоят из ионов, электронные оболочки которых являются сферически симметричными. Это подтверждается тем обстоятельством, что в рамках модели Борна-Майера удается получить вполне удовлетворительные количественные результаты. В этой модели также предполагается, что ионы центрально симметричны.

Влияние кристаллической матрицы учитывается, соответствующим образом изменяя радиальные волновые функции для свободных ионов. Одна из возможностей — расчет радиальных

частей волновых функций по методу Петрашень [1,2]. Интересно также попытаться учитывать кристаллическое поле непосредственно в хартри-фоковском расчете.

В настоящей работе рассматриваются вопросы разработки программы для численного решения уравнений Хартри-Фока. В основу этой программы легли идеи Каразии и Богдановича о решении уравнений, не зависящих от типа связи, и об использовании универсального потенциала для нахождения начального приближения волновой функции [3,4].

В приложении даны радиальные волновые функции, рассчитанные нами для ионов Li^+ , Na^+ , K^+ , Rb^+ , Cs^+ , F^- , Cl^- , Br^- , I^- и имеющие большое значение для ведения работ по нахождению волновых функций с учетом кристаллической матрицы и других расчетов для ШГК.

Уравнения, не зависящие от типа связи

Уравнения Хартри-Фока для каждого термина данной конфигурации часто не рассчитываются, так как численное решение занимает много машинного времени. Обычно вычисления делаются для определенного термина данной конфигурации или без учета термина. Каразия и Богданович предлагают решать уравнения, не зависящие от типа связи [3]. Уравнения получаются независимые от типа связи, если в функционале, который варьируется, не учитываются все с термом связанные взаимодействия.

Варьирование выражения

$$E = \sum_{nl} \left\{ N_{nl} I(nl) + \frac{N_{nl}(N_{nl}-1)}{2} F_0(nl, nl) + \sum_{k>0} f_k(nl, nl) F_k(nl, nl) + \frac{1}{2} \sum_{n'l' \neq nl} [N_{nl} N_{n'l'} F_0(nl, n'l') + \sum_{k>0} f_k(nl, n'l') F_k(nl, n'l') + \sum_k g_k(nl, n'l') G_k(nl, n'l')] \right\} \quad (I)$$

для энергии относительно радиальных орбиталей ведет к системе интегродифференциальных уравнений второго порядка [3]:

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} - 2\psi(nl/r) - \frac{l(l+1)}{r^2} - \epsilon_{nl, nl} \right] P(nl/r) -$$

$$- \chi(nl/r) - \sum_{n' \neq n} \epsilon_{nl, n'l'} P(n'l'/r) = 0 \quad (2)$$

$$P(nl/0) = P(nl/\infty) = 0$$

Здесь N_{nl} - число электронов в оболочке, $I(nl)$ - интеграл, выражающий кинетическую энергию электрона и энергию взаимодействия электрона с ядром, $F_K(nl, n'l')$ и $G_K(nl, n'l')$ - интегралы прямой и обменной частей взаимодействия между электронами. Коэффициенты при интегралах $F_K(nl, n'l')$ и $G_K(nl, n'l')$ в выражении (1) в случае заполненных оболочек есть простые аналитические выражения, а в случае незаполненных оболочек зависят от термина. Каравия и Богданович предлагают использовать аналитические выражения коэффициентов, усредненные по всем терминам [3, 4]:

$$f_K(nl, nl) = - \frac{N_{nl}(N_{nl}-1)}{2(2l+1)(4l+1)} (I \| C^{(K)} \| l)^2; \quad (3)$$

$$f_K(nl, n'l') = 0; \quad (4)$$

$$g_K(nl, n'l') = - \frac{N_{nl} N_{n'l'}}{2(2l+1)(2l'+1)} (I \| C^{(K)} \| l')^2. \quad (5)$$

Здесь $(I \| C^{(K)} \| l')$ - приведенный матричный элемент оператора сферической функции [5]. Интегралы $I(nl)$, $F_K(nl, n'l')$ и $G_K(nl, n'l')$ определены по книге Хартри [6].

В выражении (2) $\psi(nl/r)$ и $\chi(nl/r)$ - прямая часть потенциала и обменный член:

$$\psi(nl/r) = \frac{1}{r} \left\{ Z - \sum_{n'l'} (N_{n'l'} - \delta_{nl, n'l'}) Y_0(n'l', n'l'/r) - \right. \quad (6)$$

$$\left. - \frac{N_{nl}-1}{(2l+1)(4l+1)} \sum_{n'=2}^{2l} (I \| C^{(K)} \| l)^2 Y_K(nl, nl/r) \right\}$$

$$X(nl/r) = -\frac{1}{r} \sum_{n'l'} \sum_k \frac{N_{n'l'}}{(2l'+1)(2l+1)} (1 \| c^{(n)} \| l')^2 \cdot$$

$$\cdot Y_k(nl, n'l'/r) P(n'l'/r), \quad (7)$$

В случае заполненных оболочек решение уравнения (2) совпадает с точным решением уравнения Хартри-Фока, поскольку коэффициенты в выражениях (3), (4) и (5) как частный случай включают значения коэффициентов для заполненных оболочек.

Численное решение системы интегродифференциальных уравнений

Для численного интегрирования уравнения (2) была использована процедура Нумерова [7] и совершен переход к логарифмической переменной:

$$\rho = \ln Zr, \quad (8)$$

Формула Нумерова для дифференциального уравнения в виде

$$y''(x) = f(x)y(x) + g(x) \quad (9)$$

использована в форме

$$y_{n+1} = [2y_n - y_{n-1} + \frac{h^2}{12} (10y_n'' + y_{n-1}'' + g_{n+1})] / (1 + \frac{h^2}{12} f_{n+1}), \quad (10)$$

Уравнение (2) интегрируется от нуля по формуле (10) и от бесконечности, используя процедуру "хвоста" [7]. Оба решения сшиваются в точке, близкой к среднему радиусу \bar{r} волновой функции $P(nl/r)$.

$$\bar{r} = \int_0^\infty r P^2(nl/r) dr, \quad (11)$$

Поправка к диагональному множителю Лагранжа находится по формуле, данной Фрезе [7]:

$$\varepsilon_{nl, nl}^{(m+1)} = \varepsilon_{nl, nl}^{(m)} + \bar{r} |nl/r_0\rangle \Delta / (h \int_0^\infty P^2(nl/r) dr), \quad (12)$$

$$\text{где} \quad \bar{r} |nl/r_0\rangle = r^{-1/2} P(nl/r_0), \quad (13)$$

а точка Γ_0 близка к точке Γ .

Величина Δ , входящая в (12) показывает качество спивания решений от нуля и бесконечности:

$$\Delta = \delta^2 y_0 - h^2 \left\{ y_0' + (\delta^2/12) y_0'' \right\} = \quad (14)$$

$$= a_1 y_{-1} + d_0 y_0 + a_1 y_1 - (h^2/12)(g_{-1} + 10g_0 + g_1),$$

где

$$a_1 = 1 - \frac{h^2}{12} g_1 \quad (15)$$

$$d_1 = - (2 + 10 \frac{h^2}{12} f_1), \quad (16)$$

если дифференциальное уравнение дано в форме (9). Также используется методика Детмара и Шлоттера, заключающаяся в разложении решения в степенный ряд [8].

Решение производится методом последовательных приближений, до достижения всеми функциями условия

$$\Delta P(nl) \leq \alpha, \quad (17)$$

где α — заранее заданное малое число, которое определяет требуемую степень самосогласования, $\Delta P(nl)$ — погрешность согласования, определенная по формуле

$$\Delta P(nl) = \max \left| P^{(m)}(nl/r) - P^{(m-1)}(nl/r) \right|, \quad (18)$$

где индекс m указывает номер итерации.

При решении ищется ортонормированная система функций. Ортогональность в случае незаполненных оболочек достигается с помощью использования недиагональных множителей Лагранжа $\varepsilon_{nl, n'l}$ [8].

Некоторые результаты расчета атомов

Для решения уравнений Хартри-Фока (2) была составлена программа для ЭВМ "Днепр-2I" со средним быстродействием 16 тыс. операций в секунду. Программа работает полностью автоматически и требует минимальных данных о рассчитываемом атоме:

- 1) заряд ядра,
- 2) степень ионизации,
- 3) шаг расчета волновой функции,
- 4) первую точку аргумента волновой функции,
- 5) степень самосогласования,
- 6) электронную конфигурацию атома.

Во время отладки программы сравнивались нами полученные результаты для Li^+ , Li , Ne , Na , Mg с результатами Братцева [9]. Также проводились расчеты с использованием программы Каразии и Богдановича [10] в ЦЛПУ имени П. Стучки на ЭВМ "БЭСМ-4". Результаты для указанных элементов в пределах заданной точности α полностью совпадают. Атомные волновые функции для ионов Li^+ , Na^+ , K^+ , Rb^+ , Cs^+ , Br^- , F^- , Cl^- , I^- которые приводятся в данной работе, рассчитывались с точностью самосогласования $\alpha = 10^{-5}$. После самосогласования рассчитывались степени среднего радиуса

$$\bar{r}^n = \int_0^{\infty} r^n P^2(nl/r) dr, \quad (19)$$

где $n = \pm 1, \pm 2$.

Функции публикуются в виде, полученном после расчета на печатающем устройстве ЭВМ. Под каждой функцией приведены величины $\epsilon_{nl, nl}$ и \bar{r}^n , $n = \pm 1, \pm 2$, которые можно использовать для сравнения разных расчетов. В этих таблицах аргумент волновой функции $P(nl/r)$ меняется согласно формуле (8).

Использование базисного транслятора ЭВМ "Днепр-2I" позволило создать эффективную и быстродействующую программу. Например, расчет иона Na^+ с электронной конфигурацией $1s^2 2s^2 2p^6$ занимает около 20 минут машинного времени.

Автор выражает благодарность Каразие Р.И. и Богдановичу П.О. за ценные консультации во время разработки и отладки программы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Петрашень М.И., Иванова А.В., Вольф Г. Элементарный метод учета влияния поля кристаллической решетки на одно-электронные s - и p -функции иона. - "Вестн. Ленингр. ун-та", 1956, МСО. Сер. физики и химии, вып.2, с.29-38.

2. Петрашень М.И., Абаренков И.В., Кристофель Н.Н. Приближенные волновые функции свободных ионов и ионов в кристалле. - "Вестн. Ленингр. ун-та", 1960, №16. Сер. физики и химии, вып.3, с.7-21.

3. Karazijs R., Bogdanovičius P., Jusys A. On the Numerical Solution of Hartree-Fock Equations Independent of Coupling Scheme. - "Acta phys. Acad. scient. hung.", 1969, 27, p.467-475.

4. Богданович П.О. К вопросу о применении обычного и обобщенного метода Хартри-Фока. Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Вильнюс, 1972. 37 с.

5. Каразия Р.И., Визбарайте Я.И., Рудзикас З.Б., Клис А.П. Таблицы для расчета матричных элементов операторов атомных величин. М., ВЦ АН СССР, 1972. 106 с.

6. Хартри Д. Расчеты атомных структур. М., ИЛ, 1960. 271 с.

7. Froese Ch. Hartree-Fock Results for Some Excited States of O^{+2} , O^{+} , and Ne^{+} . - "Phys. Rev.", 1965, 137, 6A, p.1644-1648.

8. Froese Ch. Numerical Solution of the Hartree-Fock Equations. - "Canad. J. Phys.", 1963, 41, p.1895-1910.

9. Братцев В.Ф. Таблицы атомных волновых функций. М., "Наука", 1966. 192 с.

10. Богданович П.О., Каразия Р.И. Численное решение уравнений Хартри-Фока. Программа депонирована в Государственном фонде алгоритмов и программ, М1000083. Вильнюс, 1970. 158 с.

П р и л о ж е н и е
к статье Ю.К.Бранта
"Численное решение уравнений
Хартри-Фока, усредненных
по термам"

Численные значения
радиальных волновых функций для ионов
 Li^+ , Na^+ , K^+ , Rb^+ , Cs^+ , F^- , Cl^- , Br^- , I^-

R	P (15)	R	P (IS)
+1,16596 E-01	+1,14636 E+00	+4,48500 E+00	+1,11375 F+01
+1,17466 E-01	+1,15530 E+00	+5,15128 E+00	+1,11135 E+01
+1,18805 E-01	+1,16476 E+00	+5,54957 E+00	+1,10845 E+01
+1,20018 E-01	+1,17475 E+00	+5,58502 E+00	+1,10508 E+01
+1,21309 E-01	+1,18530 E+00	+6,22275 E+00	+1,10125 E+01
+1,22684 E-01	+1,19644 E+00	+6,66291 E+00	+9,96985 E+00
+1,24147 E-01	+1,20820 E+00	+7,0567 E+00	+9,2327 E+00
+1,25704 E-01	+1,22060 E+00	+7,5118 E+00	+8,7314 E+00
+1,27362 E-01	+1,23367 E+00	+7,9963 E+00	+8,1997 E+00
+1,29126 E-01	+1,24744 E+00	+8,5120 E+00	+7,6434 E+00
+1,31005 E-01	+1,26193 E+00	+9,0609 E+00	+7,0688 E+00
+1,33004 E-01	+1,27717 E+00	+9,6453 E+00	+6,4830 E+00
+1,35133 E-01	+1,29318 E+00	+1,0267 E+01	+5,8929 E+00
+1,37399 E-01	+1,30999 E+00	+1,10930 E+01	+5,3061 E+00
+1,39811 E-01	+1,32762 E+00	+1,11634 E+01	+4,7299 E+00
+1,42379 E-01	+1,34610 E+00	+1,2385 E+01	+4,1714 E+00
+1,45112 E-01	+1,36545 E+00	+1,3184 E+01	+3,6371 E+00
+1,48021 E-01	+1,38567 E+00	+1,4034 E+01	+3,1330 E+00
+1,51118 E-01	+1,40679 E+00	+1,4939 E+01	+2,6642 E+00
+1,54415 E-01	+1,42882 E+00	+1,5902 E+01	+2,2346 E+00
+1,57925 E-01	+1,45175 E+00	+1,6928 E+01	+1,8470 E+00
+1,61660 E-01	+1,47560 E+00	+1,8020 E+01	+1,5031 E+00
+1,65637 E-01	+1,50036 E+00	+1,9182 E+01	+1,2031 E+00
+1,69870 E-01	+1,52602 E+00	+2,0419 E+01	+9,4610 E-01
+1,74377 E-01	+1,55255 E+00	+2,1736 E+01	+7,3014 E-01
+1,79174 E-01	+1,57993 E+00	+2,3138 E+01	+5,5230 E-01
+1,84280 E-01	+1,60813 E+00	+2,4630 E+01	+4,0897 E-01
+1,89715 E-01	+1,63709 E+00	+2,6219 E+01	+2,9603 E-01
+1,95502 E-01	+1,66676 E+00	+2,7910 E+01	+2,0917 E-01
+1,10166 E+00	+1,69707 E+00	+2,9710 E+01	+1,4404 F-01
+1,10822 E+00	+1,72794 E+00	+3,1626 E+01	+9,6506 E-02
+1,11520 E+00	+1,75925 E+00	+3,3665 E+01	+6,2800 E-02
+1,12263 E+00	+1,79091 E+00	+3,5837 E+01	+3,9617 E-02
+1,13054 E+00	+1,82277 E+00	+3,8148 E+01	+2,4179 E-02
+1,13895 E+00	+1,85469 E+00	+4,0608 E+01	+1,4247 E-02
+1,14792 E+00	+1,88649 E+00	+4,3227 E+01	+8,0856 E-03
+1,15746 E+00	+1,91801 E+00	+4,6015 E+01	+4,4094 E-03
+1,16761 E+00	+1,94902 E+00	+4,8983 E+01	+2,3045 E-03
+1,17842 E+00	+1,97932 E+00	+5,2142 E+01	+1,1512 E-03
+1,18993 E+00	+1,10086 E+01	+5,5505 E+01	+5,4800 E-04
+1,20218 E+00	+1,10368 E+01	+5,9085 E+01	+2,4782 E-04
+1,21522 E+00	+1,10634 E+01	+6,2895 E+01	+1,0611 E-04
+1,22910 E+00	+1,10882 E+01	+6,6952 E+01	+4,2870 E-05
+1,24387 E+00	+1,11104 E+01	+7,1270 E+01	+1,6291 E-05
+1,25960 E+00	+1,11313 E+01	+7,5866 E+01	+5,6342 E-06
+1,27634 E+00	+1,11489 F+01	+8,0759 E+01	+0,0000 E+00
+1,29417 E+00	+1,11635 E+01		
+1,31314 E+00	+1,11747 E+01		
+1,33333 E+00	+1,11824 E+01		
+1,35483 E+00	+1,11860 F+01		
+1,37772 E+00	+1,11855 E+01		
+1,40208 E+00	+1,11806 E+01		
+1,42801 E+00	+1,11711 E+01		
+1,45561 E+00	+1,11567 F+01		
		E	
		<R>**-2	+5,5848 F+01
		<R>**-1	+1,14844 E+02
		<P>*-1	+2,6872 E+01
		<P>*-1	+5,7237 E+00
		<R>**-2	+4,4532 E+00

Na⁺

I67

R	P(1S)	P(2S)	P(2P)
+ .45261 E-02	+ .30270 E+00	+ .73877 E-01	+ .77745 E-03
+ .48180 E-02	+ .32119 E+00	+ .78387 E-01	+ .87956 E-03
+ .51287 E-02	+ .34074 E+00	+ .83155 E-01	+ .99497 E-03
+ .54595 E-02	+ .36140 E+00	+ .88193 E-01	+ .11254 E-02
+ .58116 E-02	+ .38322 E+00	+ .93515 E-01	+ .12728 E-02
+ .61864 E-02	+ .40626 E+00	+ .99131 E-01	+ .14393 E-02
+ .65854 E-02	+ .43057 E+00	+ .10506 E+00	+ .16274 E-02
+ .70102 E-02	+ .45621 E+00	+ .11130 E+00	+ .18398 E-02
+ .74623 E-02	+ .48323 E+00	+ .11789 E+00	+ .20797 E-02
+ .79435 E-02	+ .51168 E+00	+ .12482 E+00	+ .23504 E-02
+ .84559 E-02	+ .54163 E+00	+ .13211 E+00	+ .26559 E-02
+ .90012 E-02	+ .57312 E+00	+ .13977 E+00	+ .30006 E-02
+ .95817 E-02	+ .60621 E+00	+ .14782 E+00	+ .33894 E-02
+ .10200 E-01	+ .64095 E+00	+ .15627 E+00	+ .38278 E-02
+ .10858 E-01	+ .67738 E+00	+ .16513 E+00	+ .43220 E-02
+ .11558 E-01	+ .71555 E+00	+ .17440 E+00	+ .48788 E-02
+ .12303 E-01	+ .75550 E+00	+ .18409 E+00	+ .55061 E-02
+ .13097 E-01	+ .79727 E+00	+ .19422 E+00	+ .62124 E-02
+ .13941 E-01	+ .84087 E+00	+ .20478 E+00	+ .70074 E-02
+ .14840 E-01	+ .88632 E+00	+ .21578 E+00	+ .79018 E-02
+ .15798 E-01	+ .93365 E+00	+ .22722 E+00	+ .89077 E-02
+ .16816 E-01	+ .98284 E+00	+ .23909 E+00	+ .10038 E-01
+ .17901 E-01	+ .10339 E+01	+ .25138 E+00	+ .11308 E-01
+ .19056 E-01	+ .10867 E+01	+ .26409 E+00	+ .12735 E-01
+ .20285 E-01	+ .11414 E+01	+ .27719 E+00	+ .14335 E-01
+ .21593 E-01	+ .11977 E+01	+ .29067 E+00	+ .16130 E-01
+ .22985 E-01	+ .12557 E+01	+ .30449 E+00	+ .18141 E-01
+ .24468 E-01	+ .13152 E+01	+ .31861 E+00	+ .20394 E-01
+ .26046 E-01	+ .13762 E+01	+ .33301 E+00	+ .22915 E-01
+ .27726 E-01	+ .14383 E+01	+ .34762 E+00	+ .25734 E-01
+ .29514 E-01	+ .15015 E+01	+ .36237 E+00	+ .28884 E-01
+ .31417 E-01	+ .15655 E+01	+ .37721 E+00	+ .32399 E-01
+ .33444 E-01	+ .16301 E+01	+ .39203 E+00	+ .36320 E-01
+ .35601 E-01	+ .16949 E+01	+ .40676 E+00	+ .40689 E-01
+ .37897 E-01	+ .17597 E+01	+ .42126 E+00	+ .45551 E-01
+ .40341 E-01	+ .18241 E+01	+ .43543 E+00	+ .50955 E-01
+ .42942 E-01	+ .18876 E+01	+ .44912 E+00	+ .56956 E-01
+ .45712 E-01	+ .19498 E+01	+ .46217 E+00	+ .63610 E-01
+ .48660 E-01	+ .20103 E+01	+ .47442 E+00	+ .70978 E-01
+ .51798 E-01	+ .20684 E+01	+ .48566 E+00	+ .79126 E-01
+ .55139 E-01	+ .21236 E+01	+ .49569 E+00	+ .88122 E-01
+ .58695 E-01	+ .21752 E+01	+ .50429 E+00	+ .98038 E-01
+ .62481 E-01	+ .22227 E+01	+ .51121 E+00	+ .10895 E+00
+ .66511 E-01	+ .22654 E+01	+ .51618 E+00	+ .12094 E+00
+ .70800 E-01	+ .23026 E+01	+ .51895 E+00	+ .13407 E+00
+ .75366 E-01	+ .23335 E+01	+ .51920 E+00	+ .14845 E+00
+ .80227 E-01	+ .23575 E+01	+ .51664 E+00	+ .16414 E+00
+ .85401 E-01	+ .23739 E+01	+ .51096 E+00	+ .18123 E+00
+ .90909 E-01	+ .23821 E+01	+ .50185 E+00	+ .19979 E+00
+ .96772 E-01	+ .23815 E+01	+ .48898 E+00	+ .21991 E+00
+ .10301 E+00	+ .23715 E+01	+ .47204 E+00	+ .24164 E+00
+ .10966 E+00	+ .23516 E+01	+ .45073 E+00	+ .26585 E+00
+ .11673 E+00	+ .23216 E+01	+ .42477 E+00	+ .29019 E+00
+ .12426 E+00	+ .22811 E+01	+ .39391 E+00	+ .31710 E+00

R	P (IS)	P (ZS)	P (2P)
+ ,13227 E+00	+ ,22302 E+01	+ ,35791 E+00	+ ,34579 E+00
+ ,14080 E+00	+ ,21687 E+01	+ ,31662 E+00	+ ,37626 E+00
+ ,14988 E+00	+ ,20971 E+01	+ ,26990 E+00	+ ,40849 E+00
+ ,15955 E+00	+ ,20158 E+01	+ ,21772 E+00	+ ,44243 E+00
+ ,16984 E+00	+ ,19252 E+01	+ ,16010 E+00	+ ,47799 E+00
+ ,18079 E+00	+ ,18264 E+01	+ ,97162 E-01	+ ,51506 E+00
+ ,19245 E+00	+ ,17203 E+01	+ ,29127 E-01	+ ,55348 E+00
+ ,20487 E+00	+ ,16080 E+01	- ,43670 E-01	+ ,59306 E+00
+ ,21808 E+00	+ ,14910 E+01	- ,12078 E+00	+ ,63355 E+00
+ ,23214 E+00	+ ,13707 E+01	- ,20161 E+00	+ ,67467 E+00
+ ,24712 E+00	+ ,12487 E+01	- ,28547 E+00	+ ,71608 E+00
+ ,26303 E+00	+ ,11267 E+01	- ,37152 E+00	+ ,75741 E+00
+ ,28002 E+00	+ ,10064 E+01	- ,45879 E+00	+ ,79823 E+00
+ ,29808 E+00	+ ,88925 E+00	- ,54622 E+00	+ ,83807 E+00
+ ,31730 E+00	+ ,77685 E+00	- ,63264 E+00	+ ,87643 E+00
+ ,33777 E+00	+ ,67055 E+00	- ,71679 E+00	+ ,91279 E+00
+ ,35955 E+00	+ ,57148 E+00	- ,79738 E+00	+ ,94659 E+00
+ ,38274 E+00	+ ,48058 E+00	- ,87309 E+00	+ ,97728 E+00
+ ,40743 E+00	+ ,39849 E+00	- ,94259 E+00	+ ,10043 E+01
+ ,43370 E+00	+ ,32557 E+00	- ,10047 E+01	+ ,10271 E+01
+ ,46167 E+00	+ ,26190 E+00	- ,10561 E+01	+ ,10453 E+01
+ ,49145 E+00	+ ,20730 E+00	- ,11019 E+01	+ ,10582 E+01
+ ,52315 E+00	+ ,16135 E+00	- ,11352 E+01	+ ,10657 E+01
+ ,55689 E+00	+ ,12341 E+00	- ,11573 E+01	+ ,10673 E+01
+ ,59280 E+00	+ ,92728 E-01	- ,11679 E+01	+ ,10628 E+01
+ ,63103 E+00	+ ,68421 E-01	- ,11668 E+01	+ ,10522 E+01
+ ,67173 E+00	+ ,49579 E-01	- ,11540 E+01	+ ,10353 E+01
+ ,71506 E+00	+ ,35296 E-01	- ,11300 E+01	+ ,10124 E+01
+ ,76117 E+00	+ ,24712 E-01	- ,10954 E+01	+ ,98365 E+00
+ ,81026 E+00	+ ,17046 E-01	- ,10511 E+01	+ ,94933 E+00
+ ,86252 E+00	+ ,11617 E-01	- ,99820 E+00	+ ,90989 E+00
+ ,91815 E+00	+ ,78551 E-02	- ,93801 E+00	+ ,86586 E+00
+ ,97736 E+00	+ ,52981 E-02	- ,87194 E+00	+ ,81784 E+00
+ ,10404 E+01	+ ,35879 E-02	- ,80153 E+00	+ ,76650 E+00
+ ,11075 E+01	+ ,24561 E-02	- ,72836 E+00	+ ,71259 E+00
+ ,11789 E+01	+ ,17093 E-02	- ,65400 E+00	+ ,65687 E+00
+ ,12550 E+01	+ ,12134 E-02	- ,57995 E+00	+ ,60014 E+00
+ ,13359 E+01	+ ,87848 E-03	- ,50764 E+00	+ ,54319 E+00
+ ,14221 E+01	+ ,64661 E-03	- ,43832 E+00	+ ,48681 E+00
+ ,15138 E+01	+ ,48129 E-03	- ,37308 E+00	+ ,43175 E+00
+ ,16114 E+01	+ ,36011 E-03	- ,31279 E+00	+ ,37871 E+00
+ ,17153 E+01	+ ,26933 E-03	- ,25811 E+00	+ ,32831 E+00
+ ,18260 E+01	+ ,20043 E-03	- ,20944 E+00	+ ,28109 E+00
+ ,19437 E+01	+ ,14788 E-03	- ,16695 E+00	+ ,23750 E+00
+ ,20691 E+01	+ ,10789 E-03	- ,13059 E+00	+ ,19787 E+00
+ ,22025 E+01	+ ,77673 E-04	- ,10014 E+00	+ ,16240 E+00
+ ,23446 E+01	+ ,55092 E-04	- ,75181 E-01	+ ,13117 E+00
+ ,24958 E+01	+ ,38443 E-04	- ,55190 E-01	+ ,10416 E+00
+ ,26568 E+01	+ ,26356 E-04	- ,39561 E-01	+ ,81230 E-01
+ ,28281 E+01	+ ,17731 E-04	- ,27651 E-01	+ ,62135 E-01
+ ,30105 E+01	+ ,11689 E-04	- ,18816 E-01	+ ,46560 E-01
+ ,32047 E+01	+ ,75406 E-05	- ,12444 E-01	+ ,34132 E-01
+ ,34113 E+01	+ ,47532 E-05	- ,79858 E-02	+ ,24443 E-01
+ ,36314 E+01	+ ,29231 E-05	- ,49633 E-02	+ ,17074 E-01

R	P (IS)	P (PS)	P (2P)
+ ,38656 E+01	+ ,17509 E-05	- ,29818 E-02	+ ,11613 E-01
+ ,41149 E+01	+ ,10197 E-05	- ,17282 E+02	+ ,76791 E-02
+ ,43802 E+01	+ ,57630 E-06	- ,96414 E-03	+ ,49268 E-02
+ ,46627 E+01	+ ,31537 E-06	- ,51663 E-03	+ ,30610 E-02
+ ,49635 E+01	+ ,16461 E-06	- ,26528 E-03	+ ,18378 E-02
+ ,52836 E+01	+ ,00000 E+00	- ,13021 E-03	+ ,10639 E-02
+ ,56243 E+01	+ ,00000 E+00	- ,60943 E-04	+ ,59240 E-03
+ ,59871 E+01	+ ,00000 E+00	- ,27129 E-04	+ ,31648 E+03
+ ,63732 E+01	+ ,00000 E+00	- ,11456 E-04	+ ,16178 E-03
+ ,67843 E+01	+ ,00000 E+00	- ,45768 E-05	+ ,78907 E-04
+ ,72218 E+01	+ ,00000 E+00	- ,17252 E-05	+ ,36605 E-04
+ ,76876 E+01	+ ,00000 E+00	- ,61151 E-06	+ ,16100 E-04
+ ,81834 E+01	+ ,00000 E+00	+ ,00000 E+00	+ ,66902 E-05
+ ,87112 E+01	+ ,00000 E+00	+ ,00000 E+00	+ ,26190 E-05
+ ,92730 E+01	+ ,00000 E+00	+ ,00000 E+00	+ ,96800 E-06
+ ,98710 E+01	+ ,00000 E+00	+ ,00000 E+00	+ ,00000 E+00
E	+ ,81519 E+02	+ ,61474 E+01	+ ,35944 E+01
<R>**-2	+ ,22649 E+03	+ ,14384 E+02	+ ,41974 E+01
<R>*-1	+ ,10607 E+02	+ ,18669 E+01	+ ,16992 E+01
<R>** 1	+ ,14286 E+00	+ ,77912 E+00	+ ,79625 E+00
<R>*** 2	+ ,27482 E-01	+ ,73143 E+00	+ ,81589 E+00

K ⁺	R	P(1S)	P(2S)	P(2P)	P(3S)	P(3P)
-	26204 E-02	+ 40296 E+00	+ 11571 E+00	+ 14320 E-02	+ 38118 E-01	+ 43721 E-03
-	27894 E-02	+ 42758 E+00	+ 12278 E+00	+ 16201 E-02	+ 40445 E-01	+ 49463 E-03
-	29693 E-02	+ 45360 E+00	+ 13024 E+00	+ 18327 E-02	+ 42905 E-01	+ 55954 E-03
-	31108 E-02	+ 48110 E+00	+ 13813 E+00	+ 20729 E-02	+ 45504 E-01	+ 63289 E-03
-	33646 E-02	+ 51015 E+00	+ 14647 E+00	+ 23444 E-02	+ 48249 E-01	+ 71578 E-03
-	35816 E-02	+ 54082 E+00	+ 15526 E+00	+ 26511 E-02	+ 51146 E-01	+ 80941 E-03
-	38126 E-02	+ 57319 E+00	+ 16454 E+00	+ 29976 E-02	+ 54203 E-01	+ 91518 E-03
-	40585 E-02	+ 60731 E+00	+ 17433 E+00	+ 33888 E-02	+ 57425 E-01	+ 10346 E-02
-	43203 E-02	+ 64328 E+00	+ 18463 E+00	+ 38305 E-02	+ 60820 E-01	+ 11695 E-02
-	45989 E-02	+ 68115 E+00	+ 19549 E+00	+ 43291 E-02	+ 64394 E-01	+ 13217 E-02
-	48955 E-02	+ 72102 E+00	+ 20690 E+00	+ 48918 E-02	+ 68154 E-01	+ 14935 E-02
-	52112 E-02	+ 76293 E+00	+ 21890 E+00	+ 55267 E-02	+ 72106 E-01	+ 16873 E-02
-	55473 E-02	+ 80598 E+00	+ 23151 E+00	+ 62427 E-02	+ 76257 E-01	+ 19059 E-02
-	59051 E-02	+ 85321 E+00	+ 24473 E+00	+ 70500 E-02	+ 80611 E-01	+ 21523 E-02
-	62859 E-02	+ 90171 E+00	+ 25859 E+00	+ 79601 E-02	+ 85175 E-01	+ 24302 E-02
-	66914 E-02	+ 95251 E+00	+ 27310 E+00	+ 89856 E-02	+ 89953 E-01	+ 27432 E-02
-	71229 E-02	+ 10057 E+01	+ 28828 E+00	+ 10141 E-01	+ 94948 E-01	+ 30958 E-02
-	75823 E-02	+ 10613 E+01	+ 30412 E+00	+ 11441 E-01	+ 10016 E+00	+ 34928 E-02
-	80713 E-02	+ 11193 E+01	+ 32065 E+00	+ 12985 E-01	+ 10560 E+00	+ 39396 E-02
-	85919 E-02	+ 11798 E+01	+ 33786 E+00	+ 14552 E-01	+ 11127 E+00	+ 44423 E-02
-	91460 E-02	+ 12427 E+01	+ 35575 E+00	+ 16404 E-01	+ 11715 E+00	+ 50075 E-02
-	97359 E-02	+ 13082 E+01	+ 37431 E+00	+ 18485 E-01	+ 12326 E+00	+ 56428 E-02
-	10364 E-01	+ 13761 E+01	+ 39353 E+00	+ 20823 E-01	+ 12958 E+00	+ 63564 E-02
-	11032 E-01	+ 14464 E+01	+ 41339 E+00	+ 23448 E-01	+ 13611 E+00	+ 71575 E-02
-	11744 E-01	+ 15191 E+01	+ 43386 E+00	+ 26394 E-01	+ 14284 E+00	+ 80563 E-02
-	12501 E-01	+ 15941 E+01	+ 45490 E+00	+ 29697 E-01	+ 14976 E+00	+ 90641 E-02
-	13307 E-01	+ 16712 E+01	+ 47648 E+00	+ 33398 E-01	+ 15685 E+00	+ 10193 E-01
-	14166 E-01	+ 17503 E+01	+ 49852 E+00	+ 37542 E-01	+ 16409 E+00	+ 11458 E-01
-	15079 E-01	+ 18313 E+01	+ 52097 E+00	+ 42180 E-01	+ 17146 E+00	+ 12872 E-01
-	16052 E-01	+ 19134 E+01	+ 54372 E+00	+ 47364 E-01	+ 17892 E+00	+ 14454 E-01
-	17087 E-01	+ 19979 E+01	+ 56669 E+00	+ 53156 E-01	+ 18645 E+00	+ 16220 E-01
-	18189 E-01	+ 20829 E+01	+ 58976 E+00	+ 59619 E-01	+ 19400 E+00	+ 18191 E-01
-	19362 E-01	+ 21686 E+01	+ 61278 E+00	+ 66825 E-01	+ 20154 E+00	+ 20388 E-01
-	20611 E-01	+ 22547 E+01	+ 63561 E+00	+ 74851 E-01	+ 20899 E+00	+ 22834 E-01
-	21940 E-01	+ 23407 E+01	+ 65806 E+00	+ 83779 E-01	+ 21631 E+00	+ 25555 E-01
-	23355 E-01	+ 24260 E+01	+ 67993 E+00	+ 93701 E-01	+ 22343 E+00	+ 28577 E-01
-	24861 E-01	+ 25102 E+01	+ 70699 E+00	+ 10471 E+00	+ 23027 E+00	+ 31930 E-01

R	P (1S)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+.26465 E-01	+.25926 E+01	+.72100 E+00	+.11691 E+00	+.23674 E+00	+.35646 E-01
+.28172 E-01	+.26725 E+01	+.73966 E+00	+.13042 E+00	+.24275 E+00	+.39755 E-01
+.29989 E-01	+.27492 E+01	+.75668 E+00	+.14534 E+00	+.24819 E+00	+.44295 E-01
+.31923 E-01	+.28220 E+01	+.77170 E+00	+.16181 E+00	+.25295 E+00	+.49300 E-01
+.33982 E-01	+.28900 E+01	+.78437 E+00	+.17994 E+00	+.25690 E+00	+.54808 E-01
+.36173 E-01	+.29523 E+01	+.79430 E+00	+.19987 E+00	+.25991 E+00	+.60859 E-01
+.38506 E-01	+.30081 E+01	+.80105 E+00	+.22173 E+00	+.26184 E+00	+.67492 E-01
+.40490 E-01	+.30563 E+01	+.80418 E+00	+.24567 E+00	+.26253 E+00	+.74746 E-01
+.43433 E-01	+.30962 E+01	+.80322 E+00	+.27182 E+00	+.26182 E+00	+.82662 E-01
+.46447 E-01	+.31258 E+01	+.79769 E+00	+.30031 E+00	+.25954 E+00	+.91276 E-01
+.49443 E-01	+.31470 E+01	+.78708 E+00	+.33128 E+00	+.25554 E+00	+.10062 E+00
+.52632 E-01	+.31562 E+01	+.77088 E+00	+.36485 E+00	+.24962 E+00	+.11074 E+00
+.56026 E-01	+.31534 E+01	+.74859 E+00	+.40113 E+00	+.24162 E+00	+.12165 E+00
+.59639 E-01	+.31380 E+01	+.71971 E+00	+.44021 E+00	+.23137 E+00	+.13338 E+00
+.63486 E-01	+.31094 E+01	+.68376 E+00	+.48217 E+00	+.21870 E+00	+.14593 E+00
+.67580 E-01	+.30671 E+01	+.64032 E+00	+.52706 E+00	+.20348 E+00	+.15931 E+00
+.71939 E-01	+.30108 E+01	+.58899 E+00	+.57489 E+00	+.18558 E+00	+.17352 E+00
+.76578 E-01	+.29405 E+01	+.52944 E+00	+.62564 E+00	+.16488 E+00	+.18852 E+00
+.81517 E-01	+.28562 E+01	+.46145 E+00	+.67924 E+00	+.14132 E+00	+.20428 E+00
+.86775 E-01	+.27583 E+01	+.38487 E+00	+.73557 E+00	+.11485 E+00	+.22073 E+00
+.92371 E-01	+.26475 E+01	+.29970 E+00	+.79444 E+00	+.85510 E-01	+.23779 E+00
+.98329 E-01	+.25247 E+01	+.20605 E+00	+.85561 E+00	+.53348 E-01	+.25535 E+00
+.10467 E+00	+.23909 E+01	+.10423 E+00	+.91876 E+00	+.18503 E-01	+.27326 E+00
+.11142 E+00	+.22477 E+01	-.52988 E-02	+.98347 E+00	-.18824 E-01	+.29135 E+00
+.11861 E+00	+.20966 E+01	-.12186 E+00	+.10493 E+01	-.56347 E-01	+.30942 E+00
+.12626 E+00	+.19396 E+01	-.24458 E+00	+.11156 E+01	-.99897 E-01	+.32722 E+00
+.13440 E+00	+.17787 E+01	-.37235 E+00	+.11617 E+01	-.14241 E+00	+.34447 E+00
+.14307 E+00	+.16160 E+01	-.50387 E+00	+.12469 E+01	-.18593 E+00	+.36084 E+00
+.15229 E+00	+.14538 E+01	-.63758 E+00	+.13104 E+01	-.22951 E+00	+.37598 E+00
+.16212 E+00	+.12942 E+01	-.77176 E+00	+.13712 E+01	-.27268 E+00	+.38950 E+00
+.17257 E+00	+.11395 E+01	-.90448 E+00	+.14283 E+01	-.31431 E+00	+.40095 E+00
+.18370 E+00	+.99164 E+00	-.10337 E+01	+.14808 E+01	-.35357 E+00	+.40989 E+00
+.19555 E+00	+.85230 E+00	-.11571 E+01	+.15275 E+01	-.38948 E+00	+.41582 E+00
+.20916 E+00	+.72302 E+00	-.12726 E+01	+.15674 E+01	-.42098 E+00	+.41825 E+00
+.22159 E+00	+.60492 E+00	-.13779 E+01	+.15995 E+01	-.44700 E+00	+.41668 E+00
+.23588 E+00	+.49877 E+00	-.14708 E+01	+.16228 E+01	-.46647 E+00	+.41061 E+00
+.25109 E+00	+.40498 E+00	-.15493 E+01	+.16364 E+01	-.47833 E+00	+.39956 E+00

R	P (1S)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .26729 E+00	+ .32354 E+00	- .16117 E+01	+ .16395 E+01	- .48161 E+00	+ .38309 E+00
+ .28452 E+00	- .25413 E+00	- .16563 E+01	+ .16315 E+01	- .47541 E+00	+ .36080 E+00
+ .30287 E+00	- .19408 E+00	- .16821 E+01	+ .16121 E+01	- .45898 E+00	+ .33238 E+00
+ .32241 E+00	+ .14851 E+00	- .16884 E+01	+ .15811 E+01	- .43175 E+00	+ .29759 E+00
+ .34320 E+00	+ .11032 E+00	- .16751 E+01	+ .15385 E+01	- .39337 E+00	+ .25629 E+00
+ .36534 E+00	- .80322 E-01	- .16423 E+01	+ .14846 E+01	- .34372 E+00	+ .20848 E+00
+ .38890 E+00	+ .57290 E-01	- .15910 E+01	+ .14203 E+01	- .28298 E+00	+ .15427 E+00
+ .41398 E+00	- .40014 E-01	- .15227 E+01	+ .13462 E+01	- .21163 E+00	+ .93942 E-01
- .44068 E+00	+ .27364 E-01	- .14390 E+01	+ .12637 E+01	- .13049 E+00	+ .27954 E-01
+ .46910 E+00	- .18327 E-01	- .13425 E+01	+ .11741 E+01	- .48786 E-01	- .43075 E-01
+ .49935 E+00	- .12030 E-01	- .12359 E+01	+ .10792 E+01	+ .56247 E-01	- .11834 E+00
+ .53156 E+00	+ .77476 E-02	- .11220 E+01	+ .98063 E+00	+ .15857 E+00	- .19686 E+00
+ .56584 E+00	- .49046 E-02	- .10040 E+01	+ .86039 E+00	+ .26418 E+00	- .27746 E+00
+ .60234 E+00	- .30578 E-02	- .88491 E+00	+ .78039 E+00	+ .37075 E+00	- .35884 E+00
+ .64118 E+00	- .18807 E-02	- .76780 E+00	+ .68251 E+00	+ .47580 E+00	- .43955 E+00
+ .68254 E+00	- .11413 E-02	- .65534 E+00	+ .58850 E+00	+ .57676 E+00	- .51805 E+00
- .72656 E+00	+ .68115 E-03	- .54985 E+00	+ .49993 E+00	+ .67105 E+00	- .59275 E+00
- .77342 E+00	- .39569 E-03	- .45315 E+00	+ .41807 E+00	+ .75622 E+00	- .66206 E+00
+ .82330 E+00	- .21841 E-03	- .36655 E+00	+ .34390 E+00	+ .83004 E+00	- .72447 E+00
+ .87639 E+00	- .10807 E-03	- .29081 E+00	+ .27805 E+00	+ .89062 E+00	- .77858 E+00
+ .93292 E+00	- .39601 E-04	- .22613 E+00	+ .22078 E+00	+ .93646 E+00	- .82319 E+00
+ .99339 E+00	- .22045 E-05	- .17221 E+00	+ .17203 E+00	+ .96661 E+00	- .85735 E+00
- .10671 E+01	- .26683 E-04	- .12838 E+00	+ .13144 E+00	+ .98061 E+00	- .88038 E+00
- .11253 E+01	- .39749 E-04	- .93640 E-01	+ .98400 E-01	+ .97860 E+00	- .89193 E+00
+ .11979 E+01	- .45300 E-04	- .56816 E-01	+ .72132 E-01	+ .96127 E+00	- .89198 E+00
+ .12751 E+01	- .45993 E-04	- .46647 E-01	+ .51744 E-01	+ .92981 E+00	- .88084 E+00
+ .13574 E+01	- .43684 E-04	- .31884 E-01	+ .36307 E-01	+ .88584 E+00	- .85914 E+00
+ .14449 E+01	- .39669 E-04	- .21366 E-01	+ .24910 E-01	+ .83134 E+00	- .82778 E+00
- .15381 E+01	- .34844 E-04	- .14070 E-01	+ .16712 E-01	+ .78853 E+00	- .78789 E+00
+ .16373 E+01	- .29808 E-04	- .91398 E-02	+ .10967 E-01	+ .69975 E+00	- .74080 E+00
- .17429 E+01	- .24342 E-04	- .58867 E-02	+ .70473 E-02	+ .62737 E+00	- .68797 E+00
+ .18553 E+01	- .20470 E-04	- .37845 E-02	+ .44413 E-02	+ .55367 E+00	- .63091 E+00
+ .19750 E+01	- .16507 E-04	- .24470 E-02	+ .27521 E-02	+ .48077 E+00	- .57117 E+00
+ .21024 E+01	- .13093 E-04	- .16027 E-02	+ .16830 E-02	+ .40051 E+00	- .51027 E+00
+ .22380 E+01	- .10220 E-04	- .10687 E-02	+ .10203 E-02	+ .34446 E+00	- .44963 E+00
+ .23823 E+01	- .78524 E-05	- .72641 E-03	+ .61634 E-03	+ .28383 E+00	- .39055 E+00

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .25359 E+01	- .59375 E-05	- .50202 E-03	+ .37286 E-03	+ .22945 E+00	- .33418 E+00
+ .26995 E+01	- .44166 E-05	- .35072 E-03	+ .22673 E-03	+ .18180 E+00	- .28148 E+00
+ .28736 E+01	- .32299 E-05	- .24593 E-03	+ .13877 E-03	+ .14105 E+00	- .23319 E+00
+ .30589 E+01	- .23205 E-05	- .17189 E-03	+ .85384 E-04	+ .10702 E+00	- .18983 E+00
+ .32562 E+01	- .16363 E-05	- .11905 E-03	+ .52609 E-04	+ .78314 E-01	- .15169 E+00
+ .34662 E+01	- .11313 E-05	- .81322 E-04	+ .32288 E-04	+ .57337 E-01	- .11886 E+00
+ .36898 E+01	- .76594 E-06	- .54594 E-04	+ .19625 E-04	+ .40374 E-01	- .91214 E-01
+ .39277 E+01	- .50724 E-06	- .35923 E-04	+ .11748 E-04	+ .27649 E-01	- .68466 E-01
+ .41810 E+01	- .32811 E-06	- .23116 E-04	+ .68944 E-05	+ .18384 E-01	- .50198 E-01
+ .44507 E+01	- .20701 E-06	- .14519 E-04	+ .39508 E-05	+ .11848 E-01	- .35895 E-01
+ .47377 E+01	- .12703 E-06	- .88847 E-05	+ .22028 E-05	+ .73879 E-02	- .24995 E+01
+ .50433 E+01	- .78593 E-07	- .52874 E-05	+ .11868 E-05	+ .44484 E-02	- .18920 E-01
+ .53686 E+01	+ .00000 E+00	- .30543 E-05	+ .59068 E-06	+ .25812 E-02	- .11114 E-01
+ .57148 E+01	+ .00000 E+00	- .17092 E-05	+ .00000 E+00	+ .14403 E-02	- .70710 E-02
+ .60834 E+01	+ .00000 E+00	- .92462 E-06	+ .00000 E+00	+ .77118 E-03	- .43479 E-02
+ .64757 E+01	+ .00000 E+00	- .48195 E-06	+ .00000 E+00	+ .39527 E-03	- .25784 E-02
+ .68934 E+01	+ .00000 E+00	- .23544 E-06	+ .00000 E+00	+ .19349 E-03	- .14711 E-02
+ .73380 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .90232 E-04	- .80557 E-03
+ .78112 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .39986 E-04	- .42224 E-03
+ .83150 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .16795 E-04	- .21125 E-03
+ .88513 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .66680 E-05	- .10857 E-03
+ .94221 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .24951 E-05	- .45415 E-04
+ .10030 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .87508 E-06	- .19386 E-04
+ .10677 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .77936 E-05
+ .11365 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .29416 E-05
+ .12048 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .10442 E-05
+ .12879 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00

173

E	+ .26750 E+03	+ .29416 E+02	+ .23478 E+02	+ .39276 E+01	+ .23411 E+01
<P>...-2	+ .69007 E+03	+ .58994 E+02	+ .18928 E+02	+ .67849 E+01	+ .19553 E+01
<P>...-1	+ .18546 E-02	+ .37975 E+01	+ .36971 E-01	+ .10746 E+01	+ .94153 E+00
<R>... 1	+ .81467 E-01	+ .38640 E+00	+ .34941 E+00	+ .12770 E+01	+ .14313 E-01
<R>... 2	+ .89135 E-02	+ .17661 E+00	+ .15079 E+00	+ .18828 E+04	+ .24166 E+01

Rb⁺

R	P(13)	P(2P)	P(25)	P(36)	P(3P)
+ .13456 E-02	+ .56834 E+00	+ .24250 E-02	+ .17924 E+00	+ .72582 E-01	+ .99763 E-03
+ .14324 E-02	+ .60305 E+00	+ .27435 E-02	+ .19018 E+00	+ .77012 E-01	+ .11287 E-02
+ .15248 E-02	+ .63976 E+00	+ .31035 E-02	+ .20175 E+00	+ .81695 E-01	+ .12768 E-02
+ .16231 E-02	+ .67855 E+00	+ .35103 E-02	+ .21397 E+00	+ .86643 E-01	+ .14441 E-02
+ .17278 E-02	+ .71952 E+00	+ .39701 E-02	+ .22688 E+00	+ .91869 E-01	+ .16333 E-02
+ .18392 E-02	+ .76277 E+00	+ .44894 E-02	+ .24050 E+00	+ .97385 E-01	+ .18459 E-02
+ .19578 E-02	+ .80841 E+00	+ .50761 E-02	+ .25488 E+00	+ .10320 E+00	+ .20882 E-02
+ .20841 E-02	+ .85654 E+00	+ .57385 E-02	+ .27003 E+00	+ .10934 E+00	+ .23608 E-02
+ .22185 E-02	+ .90727 E+00	+ .64865 E-02	+ .28599 E+00	+ .11580 E+00	+ .26684 E-02
+ .23616 E-02	+ .96068 E+00	+ .73308 E-02	+ .30280 E+00	+ .12260 E+00	+ .30157 E-02
+ .25139 E-02	+ .10169 E+01	+ .82836 E-02	+ .32048 E+00	+ .12976 E+00	+ .34077 E-02
+ .26760 E-02	+ .10760 E+01	+ .93585 E-02	+ .33906 E+00	+ .13728 E+00	+ .38498 E-02
+ .28486 E-02	+ .11381 E+01	+ .10571 E-01	+ .35858 E+00	+ .14518 E+00	+ .43485 E-02
+ .30323 E-02	+ .12033 E+01	+ .11938 E-01	+ .37905 E+00	+ .15347 E+00	+ .49108 E-02
+ .32279 E-02	+ .12717 E+01	+ .13479 E-01	+ .40051 E+00	+ .16215 E+00	+ .55446 E-02
+ .34361 E-02	+ .13434 E+01	+ .15215 E-01	+ .42298 E+00	+ .17124 E+00	+ .62587 E-02
+ .36577 E-02	+ .14183 E+01	+ .17171 E-01	+ .44647 E+00	+ .18075 E+00	+ .70638 E-02
+ .38936 E-02	+ .14967 E+01	+ .19372 E-01	+ .47100 E+00	+ .19067 E+00	+ .79686 E-02
+ .41447 E-02	+ .15785 E+01	+ .21851 E-01	+ .49657 E+00	+ .20101 E+00	+ .89877 E-02
+ .44120 E-02	+ .16638 E+01	+ .24639 E-01	+ .52320 E+00	+ .21178 E+00	+ .10134 E-01
+ .46966 E-02	+ .17526 E+01	+ .27773 E-01	+ .55088 E+00	+ .22297 E+00	+ .11423 E-01
+ .49995 E-02	+ .18449 E+01	+ .31297 E-01	+ .57959 E+00	+ .23458 E+00	+ .12872 E-01
+ .53219 E-02	+ .19406 E+01	+ .35254 E-01	+ .60931 E+00	+ .24659 E+00	+ .14499 E-01
+ .56652 E-02	+ .20397 E+01	+ .39697 E-01	+ .64002 E+00	+ .25900 E+00	+ .16326 E-01
+ .60305 E-02	+ .21422 E+01	+ .44682 E-01	+ .67167 E+00	+ .27178 E+00	+ .18375 E-01
+ .64195 E-02	+ .22478 E+01	+ .50271 E-01	+ .70419 E+00	+ .28490 E+00	+ .20672 E-01
+ .68335 E-02	+ .23565 E+01	+ .56534 E-01	+ .73752 E+00	+ .29835 E+00	+ .23246 E-01
+ .72742 E-02	+ .24680 E+01	+ .63545 E-01	+ .77155 E+00	+ .31207 E+00	+ .26127 E-01
+ .77434 E-02	+ .25821 E+01	+ .71390 E-01	+ .80619 E+00	+ .32603 E+00	+ .29350 E-01
+ .82428 E-02	+ .26985 E+01	+ .80159 E-01	+ .84128 E+00	+ .34016 E+00	+ .32952 E-01
+ .87744 E-02	+ .28167 E+01	+ .89953 E-01	+ .87668 E+00	+ .35439 E+00	+ .36974 E-01
+ .93403 E-02	+ .29364 E+01	+ .10088 E+00	+ .91219 E+00	+ .36885 E+00	+ .41461 E-01
+ .99427 E-02	+ .30571 E+01	+ .11306 E+00	+ .94760 E+00	+ .38285 E+00	+ .46461 E-01
+ .10584 E-01	+ .31783 E+01	+ .12662 E+00	+ .98265 E+00	+ .39688 E+00	+ .52026 E-01
+ .11267 E-01	+ .32992 E+01	+ .14171 E+00	+ .10171 E+01	+ .41063 E+00	+ .58213 E-01
+ .11993 E-01	+ .34192 E+01	+ .15847 E+00	+ .10505 E+01	+ .42395 E+00	+ .65083 E-01

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .12767 E-01	+ .35375 E+01	+ .10827 E+01	+ .17705 E+00	+ .43670 E+00	+ .72701 E-01
+ .13590 E-01	+ .36532 E+01	+ .11131 E+01	+ .19765 E+00	+ .44870 E+00	+ .81135 E-01
+ .14467 E-01	+ .37653 E+01	+ .11413 E+01	+ .22043 E+00	+ .45977 E+00	+ .90459 E-01
+ .15400 E-01	+ .38728 E+01	+ .11669 E+01	+ .24558 E+00	+ .46971 E+00	+ .10075 E+00
+ .16393 E-01	+ .39747 E+01	+ .11893 E+01	+ .27332 E+00	+ .47827 E+00	+ .11208 E+00
+ .17450 E-01	+ .40697 E+01	+ .12079 E+01	+ .30384 E+00	+ .48522 E+00	+ .12454 E+00
+ .18575 E-01	+ .41566 E+01	+ .12221 E+01	+ .33737 E+00	+ .49030 E+00	+ .13822 E+00
+ .19775 E-01	+ .42341 E+01	+ .12312 E+01	+ .37412 E+00	+ .49321 E+00	+ .15318 E+00
+ .21049 E-01	+ .43009 E+01	+ .12345 E+01	+ .41430 E+00	+ .49365 E+00	+ .16952 E+00
+ .22406 E-01	+ .43557 E+01	+ .12312 E+01	+ .45815 E+00	+ .49132 E+00	+ .18732 E+00
+ .23851 E-01	+ .43971 E+01	+ .12206 E+01	+ .50586 E+00	+ .48588 E+00	+ .20665 E+00
+ .25390 E-01	+ .44239 E+01	+ .12019 E+01	+ .55763 E+00	+ .47699 E+00	+ .22757 E+00
+ .27027 E-01	+ .44349 E+01	+ .11743 E+01	+ .61365 E+00	+ .46431 E+00	+ .25014 E+00
+ .28770 E-01	+ .44288 E+01	+ .11370 E+01	+ .67406 E+00	+ .44751 E+00	+ .27441 E+00
+ .30626 E-01	+ .44048 E+01	+ .10892 E+01	+ .73899 E+00	+ .42627 E+00	+ .30039 E+00
+ .32601 E-01	+ .43619 E+01	+ .10302 E+01	+ .80851 E+00	+ .40027 E+00	+ .32809 E+00
+ .34703 E-01	+ .42996 E+01	+ .95922 E+00	+ .88265 E+00	+ .36924 E+00	+ .35747 E+00
+ .36942 E-01	+ .42175 E+01	+ .87580 E+00	+ .96137 E+00	+ .33295 E+00	+ .38846 E+00
+ .39324 E-01	+ .41154 E+01	+ .77941 E+00	+ .10446 E+01	+ .29121 E+00	+ .42097 E+00
+ .41860 E-01	+ .39935 E+01	+ .66974 E+00	+ .11320 E+01	+ .24392 E+00	+ .45483 E+00
+ .44560 E-01	+ .38526 E+01	+ .54665 E+00	+ .12234 E+01	+ .19105 E+00	+ .48985 E+00
+ .47434 E-01	+ .36934 E+01	+ .41021 E+00	+ .13184 E+01	+ .13269 E+00	+ .52573 E+00
+ .50493 E-01	+ .35173 E+01	+ .26071 E+00	+ .14163 E+01	+ .69041 E-01	+ .56215 E+00
+ .53750 E-01	+ .33259 E+01	+ .98763 E-01	+ .15166 E+01	+ .44900 E-01	+ .59869 E+00
+ .57216 E-01	+ .31215 E+01	+ .74739 E-01	+ .16184 E+01	+ .72580 E-01	+ .63483 E+00
+ .60906 E-01	+ .29063 E+01	+ .25856 E+00	+ .17206 E+01	+ .14936 E+00	+ .67000 E+00
+ .64834 E-01	+ .26831 E+01	+ .45111 E+00	+ .18223 E+01	+ .22903 E+00	+ .70350 E+00
+ .69016 E-01	+ .24548 E+01	+ .65042 E+00	+ .19221 E+01	+ .31052 E+00	+ .73456 E+00
+ .73467 E-01	+ .22245 E+01	+ .85418 E+00	+ .20185 E+01	+ .39253 E+00	+ .76252 E+00
+ .78205 E-01	+ .19953 E+01	+ .10597 E+01	+ .21101 E+01	+ .47358 E+00	+ .78581 E+00
+ .83249 E-01	+ .17708 E+01	+ .12639 E+01	+ .21951 E+01	+ .55198 E+00	+ .80402 E+00
+ .88618 E-01	+ .15536 E+01	+ .14637 E+01	+ .22718 E+01	+ .62585 E+00	+ .81583 E+00
+ .94334 E-01	+ .13466 E+01	+ .16553 E+01	+ .23385 E+01	+ .69315 E+00	+ .82012 E+00
+ .10042 E+00	+ .11522 E+01	+ .18352 E+01	+ .23933 E+01	+ .75172 E+00	+ .81573 E+00
+ .10689 E+00	+ .97255 E+00	+ .19997 E+01	+ .24345 E+01	+ .79932 E+00	+ .80150 E+00
+ .11379 E+00	+ .80911 E+00	+ .21452 E+01	+ .24605 E+01	+ .83371 E+00	+ .77635 E+00
+ .12113 E+00	+ .66290 E+00	+ .22682 E+01	+ .24699 E+01	+ .85271 E+00	+ .73927 E+00
+ .12894 E+00	+ .53438 E+00	+ .23658 E+01	+ .24616 E+01	+ .85428 E+00	+ .68941 E+00
+ .13725 E+00	+ .42345 E+00	+ .24353 E+01	+ .24348 E+01	+ .83661 E+00	+ .62608 E+00
+ .14611 E+00	+ .32951 E+00	+ .24748 E+01	+ .23889 E+01	+ .79826 E+00	+ .54888 E+00

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .15553 E+00	+ .25155 E+00	- .24831 E+01	+ .23241 E+01	- .73821 E+00	+ .45769 E+00
+ .16556 E+00	+ .18819 E+00	- .24599 E+01	+ .22409 E+01	- .65600 E+00	+ .35274 E+00
+ .17624 E+00	+ .13782 E+00	- .24059 E+01	+ .21402 E+01	- .55178 E+00	+ .23468 E+00
+ .18760 E+00	+ .98702 E-01	- .23224 E+01	+ .20237 E+01	- .42644 E+00	+ .10459 E+00
+ .19970 E+00	+ .69044 E-01	- .22122 E+01	+ .18934 E+01	- .28161 E+00	- .35985 E-01
+ .21258 E+00	+ .47125 E-01	- .20785 E+01	+ .17518 E+01	- .11974 E+00	- .18502 E+00
+ .22629 E+00	+ .31350 E-01	- .19254 E+01	+ .16018 E+01	+ .55964 E-01	- .34005 E+00
+ .24089 E+00	+ .20305 E-01	- .17577 E+01	+ .14465 E+01	+ .24156 E+00	- .49817 E+00
+ .25643 E+00	+ .12791 E-01	- .15805 E+01	+ .12893 E+01	+ .43247 E+00	- .65613 E+00
+ .27296 E+00	+ .78275 E-02	- .13989 E+01	+ .11335 E+01	+ .62365 E+00	- .81043 E+00
+ .29057 E+00	+ .46449 E-02	- .12181 E+01	+ .98209 E+00	+ .80974 E+00	- .95740 E+00
+ .30931 E+00	+ .26650 E-02	- .10428 E+01	+ .83807 E+00	+ .98531 E+00	- .10934 E+01
+ .32926 E+00	+ .14695 E-02	- .87704 E+00	+ .70385 E+00	+ .11451 E+01	- .12149 E+01
+ .35049 E+00	+ .76835 E-03	- .72419 E+00	+ .58133 E+00	+ .12844 E+01	- .13188 E+01
+ .37310 E+00	+ .36881 E-03	- .58666 E+00	+ .47182 E+00	+ .13989 E+01	- .14023 E+01
+ .39716 E+00	+ .14782 E-03	- .46591 E+00	+ .37604 E+00	+ .14856 E+01	- .14633 E+01
+ .42277 E+00	+ .29927 E-04	- .36249 E+00	+ .29408 E+00	+ .15422 E+01	- .15004 E+01
+ .45004 E+00	+ .29744 E-04	- .27609 E+00	+ .22551 E+00	+ .15678 E+01	- .15131 E+01
+ .47907 E+00	+ .56912 E-04	- .20573 E+00	+ .16947 E+00	+ .15628 E+01	- .15017 E+01
+ .50996 E+00	+ .66120 E-04	- .14989 E+00	+ .12472 E+00	+ .15286 E+01	- .14671 E+01
+ .54285 E+00	+ .65562 E-04	- .10673 E+00	+ .89855 E-01	+ .14679 E+01	- .14113 E+01
+ .57786 E+00	+ .59913 E-04	- .74243 E-01	+ .63356 E-01	+ .13842 E+01	- .13369 E+01
+ .61513 E+00	+ .51895 E-04	- .50451 E-01	+ .43719 E-01	+ .12819 E+01	- .12468 E+01
+ .65480 E+00	+ .43125 E-04	- .33497 E-01	+ .29536 E-01	+ .11658 E+01	- .11447 E+01
+ .69704 E+00	+ .34561 E-04	- .21744 E-01	+ .19553 E-01	+ .10408 E+01	- .10343 E+01
+ .74199 E+00	+ .26746 E-04	- .13815 E-01	+ .12704 E-01	+ .91195 E+00	- .91926 E+00
+ .78985 E+00	+ .19953 E-04	- .86029 E-02	+ .81199 E-02	+ .78377 E+00	- .80337 E+00
+ .84079 E+00	+ .14277 E-04	- .52607 E-02	+ .51226 E-02	+ .66039 E+00	- .68997 E+00
+ .89501 E+00	+ .96994 E-05	- .31639 E-02	+ .32027 E-02	+ .54515 E+00	- .58200 E+00
+ .95274 E+00	+ .61316 E-05	- .18721 E-02	+ .19934 E-02	+ .44060 E+00	- .48185 E+00
+ .10142 E+01	+ .34473 E-05	- .10872 E-02	+ .12403 E-02	+ .34839 E+00	- .39129 E+00
+ .10796 E+01	+ .15058 E-05	- .61454 E-03	+ .77376 E-03	+ .26931 E+00	- .31145 E+00
+ .11492 E+01	+ .16753 E-06	- .33151 E-03	+ .48422 E-03	+ .20338 E+00	- .24281 E+00
+ .12233 E+01	+ .69939 E-06	- .16296 E-03	+ .30329 E-03	+ .14993 E+00	- .18528 E+00
+ .13022 E+01	+ .12100 E-05	- .63688 E-04	+ .18913 E-03	+ .10784 E+00	- .13829 E+00
+ .13862 E+01	+ .14615 E-05	- .66673 E-05	+ .11649 E-03	+ .75652 E-01	- .10090 E+00

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .14756 E+01	+ .15329 E-05	+ .24361 E-04	+ .70118 E-04	+ .51750 E-01	- .71935 E-01
+ .15708 E+01	+ .14860 E-05	+ .39375 E-04	+ .40654 E-04	+ .34532 E-01	- .50087 E-01
+ .16721 E+01	+ .13676 E-05	+ .44642 E-04	+ .22203 E-04	+ .22499 E-01	- .34057 E-01
+ .17799 E+01	+ .12119 E-05	+ .44175 E-04	+ .10945 E-04	+ .14344 E-01	- .22617 E-01
+ .18947 E+01	+ .10423 E-05	+ .40567 E-04	+ .43497 E-05	+ .89778 E-02	- .14679 E-01
+ .20169 E+01	+ .87460 E-06	+ .35473 E-04	+ .72176 E-06	+ .55465 E-02	- .93207 E-02
+ .21470 E+01	+ .71828 E-06	+ .29925 E-04	- .10740 E-05	+ .34077 E-02	- .58022 E-02
+ .22855 E+01	+ .57855 E-06	+ .24536 E-04	- .17871 E-05	+ .21015 E-02	- .35511 E-02
+ .24329 E+01	+ .45762 E-06	+ .19639 E-04	- .19012 E-05	+ .13139 E-02	- .21453 E-02
+ .25898 E+01	+ .35568 E-06	+ .15385 E-04	- .17180 E-05	+ .83963 E-03	- .12855 E-02
+ .27568 E+01	+ .27171 E-06	+ .11814 E-04	- .14171 E-05	+ .55048 E-03	- .76796 E-03
+ .29346 E+01	+ .20397 E-06	+ .88984 E-05	- .10982 E-05	+ .36956 E-03	- .45962 E-03
+ .31239 E+01	+ .15041 E-06	+ .65756 E-05	- .81112 E-06	+ .25235 E-03	- .27645 E-03
+ .33254 E+01	+ .10889 E-06	+ .47661 E-05	- .57536 E-06	+ .17368 E-03	- .16722 E-03
+ .35398 E+01	+ .77316 E-07	+ .33866 E-05	- .39369 E-06	+ .11941 E-03	- .10151 E-03
+ .37681 E+01	+ .53810 E-07	+ .23572 E-05	- .26044 E-06	+ .81398 E-04	- .61572 E-04
+ .40112 E+01	+ .36509 E-07	+ .16036 E-05	- .16494 E-06	+ .54699 E-04	- .37109 E-04
+ .42699 E+01	+ .25871 E-07	+ .10690 E-05	+ .00000 E+00	+ .36085 E-04	- .22093 E-04
+ .45452 E+01	+ .00000 E+00	+ .69480 E-06	+ .00000 E+00	+ .23297 E-04	- .12925 E-04
+ .48384 E+01	+ .00000 E+00	+ .44024 E-06	+ .00000 E+00	+ .14683 E-04	- .73961 E-05
+ .51504 E+01	+ .00000 E+00	+ .27151 E-06	+ .00000 E+00	+ .90154 E-05	- .41245 E-05
+ .54826 E+01	+ .00000 E+00	+ .16262 E-06	+ .00000 E+00	+ .53820 E-05	- .22338 E-05
+ .58362 E+01	+ .00000 E+00	+ .96980 E-07	+ .00000 E+00	+ .31177 E-05	- .11678 E-05
+ .62126 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .17490 E-05	- .56501 E-06
+ .66133 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .94797 E-06	+ .00000 E+00
+ .70398 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .49490 E-06	+ .00000 E+00
+ .74938 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .24196 E-06	+ .00000 E+00
+ .79772 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00

E	+ .11033 E+04	+ .15050 E+03	+ .13621 E+03	+ .24667 E+02	- .19377 E+02
<R>***-2	+ .26633 E+04	+ .27018 E+03	+ .89549 E+02	+ .45716 E+02	+ .14860 E+02
<R>***-1	+ .36493 E+02	+ .81612 E+01	+ .81133 E+01	+ .27411 E+01	+ .26292 E+01
<R>*** 1	+ .41276 E-01	+ .18174 E+00	+ .15693 E+00	+ .51812 E+00	+ .52074 E+00
<R>*** 2	+ .22813 E-02	+ .38879 E-01	+ .30066 E-01	+ .30769 E+00	+ .31603 E+00

R	P(30)	P(45)	P(4P)
+ .13456 E-02	+ .21875 E-05	+ .24509 E-01	+ .29881 E-03
+ .14324 E-02	+ .26358 E-05	+ .26005 E-01	+ .33805 E-03
+ .15248 E-02	+ .31758 E-05	+ .27587 E-01	+ .38241 E-03
+ .16231 E-02	+ .38261 E-05	+ .29258 E-01	+ .43254 E-03
+ .17278 E-02	+ .46093 E-05	+ .31022 E-01	+ .48919 E-03
+ .18392 E-02	+ .55522 E-05	+ .32885 E-01	+ .55318 E-03
+ .19578 E-02	+ .66875 E-05	+ .34850 E-01	+ .62546 E-03
+ .20841 E-02	+ .80542 E-05	+ .36921 E-01	+ .70708 E-03
+ .22185 E-02	+ .96992 E-05	+ .39103 E-01	+ .79924 E-03
+ .23616 E-02	+ .11679 E-04	+ .41400 E-01	+ .90326 E-03
+ .25139 E-02	+ .14061 E-04	+ .43817 E-01	+ .10206 E-02
+ .26760 E-02	+ .16927 E-04	+ .46357 E-01	+ .11531 E-02
+ .28486 E-02	+ .20375 E-04	+ .49024 E-01	+ .13024 E-02
+ .30323 E-02	+ .24522 E-04	+ .51822 E-01	+ .14709 E-02
+ .32279 E-02	+ .29508 E-04	+ .54754 E-01	+ .16607 E-02
+ .34361 E-02	+ .35503 E-04	+ .57823 E-01	+ .18746 E-02
+ .36577 E-02	+ .42709 E-04	+ .61032 E-01	+ .21154 E-02
+ .38936 E-02	+ .51368 E-04	+ .64382 E-01	+ .23867 E-02
+ .41447 E-02	+ .61772 E-04	+ .67875 E-01	+ .26919 E-02
+ .44120 E-02	+ .74269 E-04	+ .71510 E-01	+ .30353 E-02
+ .46966 E-02	+ .89274 E-04	+ .75288 E-01	+ .34213 E-02
+ .49995 E-02	+ .10729 E-03	+ .79206 E-01	+ .38552 E-02
+ .53219 E-02	+ .12891 E-03	+ .83261 E-01	+ .43425 E-02
+ .56652 E-02	+ .15484 E-03	+ .87449 E-01	+ .48896 E-02
+ .60305 E-02	+ .18595 E-03	+ .91762 E-01	+ .55032 E-02
+ .64195 E-02	+ .22324 E-03	+ .96193 E-01	+ .61912 E-02
+ .68335 E-02	+ .26792 E-03	+ .10073 E+00	+ .69620 E-02
+ .72742 E-02	+ .32145 E-03	+ .10536 E+00	+ .78248 E-02
+ .77434 E-02	+ .38554 E-03	+ .11007 E+00	+ .87900 E-02
+ .82428 E-02	+ .46225 E-03	+ .11484 E+00	+ .98686 E-02
+ .87744 E-02	+ .55400 E-03	+ .11964 E+00	+ .11073 E-01
+ .93403 E-02	+ .66370 E-03	+ .12445 E+00	+ .12416 E-01
+ .99427 E-02	+ .79478 E-03	+ .12924 E+00	+ .13914 E-01
+ .10584 E-01	+ .95130 E-03	+ .13396 E+00	+ .15580 E-01
+ .11267 E-01	+ .11381 E-02	+ .13860 E+00	+ .17432 E-01

L78

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)
+ .11993 E-01	+ .13609 E-02	+ .14308 E+00	+ .19489 E+01
+ .12767 E-01	+ .16264 E-02	+ .14737 E+00	+ .21769 E-01
+ .13590 E-01	+ .19425 E-02	+ .15141 E+00	+ .24294 E-01
+ .14467 E-01	+ .23187 E-02	+ .15513 E+00	+ .27085 E-01
+ .15400 E-01	+ .27660 E-02	+ .15846 E+00	+ .30164 E-01
+ .16393 E-01	+ .32972 E-02	+ .16132 E+00	+ .33556 E-01
+ .17450 E-01	+ .39276 E-02	+ .16364 E+00	+ .37284 E-01
+ .18575 E-01	+ .46748 E-02	+ .16532 E+00	+ .41374 E-01
+ .19773 E-01	+ .55597 E-02	+ .16626 E+00	+ .45850 E-01
+ .21049 E-01	+ .66062 E-02	+ .16636 E+00	+ .50737 E-01
+ .22406 E-01	+ .78425 E-02	+ .16552 E+00	+ .56057 E-01
+ .23851 E-01	+ .93010 E-02	+ .16362 E+00	+ .61833 E-01
+ .25390 E-01	+ .11019 E-01	+ .16054 E+00	+ .68084 E-01
+ .27027 E-01	+ .13041 E-01	+ .15618 E+00	+ .74826 E-01
+ .28770 E-01	+ .15415 E-01	+ .15042 E+00	+ .82070 E-01
+ .30626 E-01	+ .18200 E-01	+ .14315 E+00	+ .89822 E-01
+ .32601 E-01	+ .21460 E-01	+ .13426 E+00	+ .98079 E-01
+ .34703 E-01	+ .25268 E-01	+ .12366 E+00	+ .10683 E+00
+ .36942 E-01	+ .29710 E-01	+ .11127 E+00	+ .11606 E+00
+ .39324 E-01	+ .34879 E-01	+ .97033 E-01	+ .12572 E+00
+ .41860 E-01	+ .40881 E-01	+ .80912 E-01	+ .13578 E+00
+ .44560 E-01	+ .47833 E-01	+ .62902 E-01	+ .14616 E+00
+ .47434 E-01	+ .55860 E-01	+ .43035 E-01	+ .15678 E+00
+ .50493 E-01	+ .65128 E-01	+ .21384 E-01	+ .16753 E+00
+ .53750 E-01	+ .75770 E-01	- .19273 E-02	+ .17828 E+00
+ .57216 E-01	+ .87965 E-01	- .26721 E-01	+ .18887 E+00
+ .60908 E+01	+ .10189 E+00	- .52756 E-01	+ .19912 E+00
+ .64834 E+01	+ .11775 E+00	- .79726 E-01	+ .20882 E+00
+ .69016 E-01	+ .13575 E+00	- .10725 E+00	+ .21773 E+00
+ .73467 E-01	+ .15608 E+00	- .13488 E+00	+ .22556 E+00
+ .78205 E-01	+ .17897 E+00	- .16209 E+00	+ .23204 E+00
+ .83249 E-01	+ .20462 E+00	- .18828 E+00	+ .23684 E+00
+ .88618 E-01	+ .23326 E+00	- .21279 E+00	+ .23961 E+00
+ .94334 E-01	+ .26505 E+00	- .23491 E+00	+ .24081 E+00
+ .10042 E+00	+ .30019 E+00	- .25385 E+00	+ .23768 E+00
+ .10689 E+00	+ .33881 E+00	- .26885 E+00	+ .23227 E+00
+ .11379 E+00	+ .38101 E+00	- .27909 E+00	+ .22343 E+00
+ .12113 E+00	+ .42684 E+00	- .28383 E+00	+ .21089 E+00
+ .12894 E+00	+ .47630 E+00	- .28233 E+00	+ .19437 E+00
+ .13725 E+00	+ .52929 E+00	- .27399 E+00	+ .17369 E+00

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)
+ .14611 E+00	+ .58565 E+00	+ .14875 E+00	- .25831 E+00
+ .15553 E+00	+ .64509 E+00	+ .11956 E+00	- .23496 E+00
+ .16556 E+00	+ .70724 E+00	+ .86232 E-01	- .20384 E+00
+ .17624 E+00	+ .77160 E+00	+ .49046 E-01	- .16508 E+00
+ .18760 E+00	+ .83753 E+00	+ .84230 E-02	- .11910 E+00
+ .19970 E+00	+ .90429 E+00	- .35045 E-01	- .66624 E-01
+ .21258 E+00	+ .97099 E+00	- .80594 E-01	- .86982 E-02
+ .22629 E+00	+ .10366 E+01	- .12729 E+00	+ .53303 E-01
+ .24089 E+00	+ .11001 E+01	- .17403 E+00	+ .11764 E+00
+ .25643 E+00	+ .11603 E+01	- .21958 E+00	+ .18251 E+00
+ .27296 E+00	+ .12159 E+01	- .26257 E+00	+ .24555 E+00
+ .29057 E+00	+ .12657 E+01	- .30159 E+00	- .30447 E+00
+ .30931 E+00	+ .13085 E+01	- .33518 E+00	+ .35685 E+00
+ .32926 E+00	+ .13480 E+01	- .36190 E+00	- .40028 E+00
+ .35049 E+00	+ .13684 E+01	- .38042 E+00	+ .43252 E+00
+ .37310 E+00	+ .13837 E+01	- .38952 E+00	+ .45155 E+00
+ .39716 E+00	+ .13882 E+01	- .38822 E+00	+ .45575 E+00
+ .42277 E+00	+ .13815 E+01	- .37577 E+00	+ .44391 E+00
+ .45004 E+00	+ .13635 E+01	- .35172 E+00	+ .41536 E+00
+ .47907 E+00	+ .13342 E+01	- .31595 E+00	+ .37004 E+00
+ .50996 E+00	+ .12942 E+01	- .26868 E+00	+ .30846 E+00
+ .54285 E+00	+ .12439 E+01	- .21048 E+00	+ .23175 E+00
+ .57786 E+00	+ .11844 E+01	- .14225 E+00	+ .14163 E+00
+ .61513 E+00	+ .11169 E+01	- .65259 E-01	+ .40357 E-01
+ .65480 E+00	+ .10426 E+01	+ .18965 E-01	- .69368 E-01
+ .69704 E+00	+ .96317 E+00	+ .10860 E+00	- .18446 E+00
+ .74199 E+00	+ .88010 E+00	+ .20162 E+00	- .30158 E+00
+ .78985 E+00	+ .79510 E+00	+ .29582 E+00	- .41723 E+00
+ .84079 E+00	+ .70985 E+00	+ .38888 E+00	- .52794 E+00
+ .89501 E+00	+ .62595 E+00	+ .47846 E+00	- .63034 E+00
+ .95274 E+00	+ .54489 E+00	+ .56230 E+00	- .72138 E+00
+ .10142 E+01	+ .46801 E+00	+ .63823 E+00	- .79842 E+00
+ .10796 E+01	+ .39641 E+00	+ .70434 E+00	- .85935 E+00
+ .11492 E+01	+ .33092 E+00	+ .75902 E+00	- .90273 E+00
+ .12233 E+01	+ .27213 E+00	+ .80107 E+00	- .92783 E+00
+ .13022 E+01	+ .22034 E+00	+ .82968 E+00	- .93465 E+00
+ .13862 E+01	+ .17556 E+00	+ .84453 E+00	- .92390 E+00
+ .14756 E+01	+ .13759 E+00	+ .84578 E+00	- .89694 E+00
+ .15708 E+01	+ .10601 E+00	+ .83400 E+00	- .85569 E+00
+ .16721 E+01	+ .80267 E-01	+ .81019 E+00	- .80250 E+00

R	3D	4S	4P
+ .17799 E+01	+ .59699 E-01	- .73998 E+00	+ .77567 E+00
+ .18947 E+01	+ .43600 E-01	- .67089 E+00	+ .73203 E+00
+ .20169 E+01	+ .31258 E-01	- .59797 E+00	+ .68104 E+00
+ .21470 E+01	+ .21994 E-01	- .52383 E+00	+ .62458 E+00
+ .22855 E+01	+ .15188 E-01	- .45083 E+00	+ .56453 E+00
+ .24329 E+01	+ .10295 E-01	- .38098 E+00	+ .50273 E+00
+ .25898 E+01	+ .68517 E-02	- .31593 E+00	+ .44091 E+00
+ .27568 E+01	+ .44409 E-02	- .25688 E+00	+ .38062 E+00
+ .29346 E+01	+ .28825 E-02	- .20461 E+00	+ .32321 E+00
+ .31239 E+01	+ .18263 E-02	- .15950 E+00	+ .26977 E+00
+ .33254 E+01	+ .11415 E-02	- .12155 E+00	+ .22113 E+00
+ .35398 E+01	+ .70514 E-03	- .90438 E-01	+ .17784 E+00
+ .37681 E+01	+ .43115 E-03	- .65607 E-01	+ .14017 E+00
+ .40112 E+01	+ .26124 E-03	- .46344 E-01	+ .10816 E+00
+ .42699 E+01	+ .15692 E-03	- .31828 E-01	+ .81593 E-01
+ .45452 E+01	+ .93378 E-04	- .21216 E-01	+ .60099 E-01
+ .48384 E+01	+ .54957 E-04	- .13704 E-01	+ .43157 E-01
+ .51504 E+01	+ .31905 E-04	- .85622 E-02	+ .30166 E-01
+ .54826 E+01	+ .18209 E-04	- .51644 E-02	+ .20491 E-01
+ .58362 E+01	+ .10179 E-04	- .30013 E-02	+ .13501 E-01
+ .62126 E+01	+ .55511 E-05	- .16770 E-02	+ .86115 E-02
+ .66133 E+01	+ .29405 E-05	- .89907 E-03	+ .53069 E-02
+ .70398 E+01	+ .15011 E-05	- .46140 E-03	+ .31527 E-02
+ .74938 E+01	+ .70804 E-06	- .22615 E-03	+ .18012 E-02
+ .79772 E+01	+ .00000 E+00	- .10561 E-03	+ .98724 E-03
+ .84916 E+01	+ .00000 E+00	- .46680 E-04	+ .51770 E-03
+ .90393 E+01	+ .00000 E+00	- .19729 E-04	+ .25899 E-03
+ .96223 E+01	+ .00000 E+00	- .78522 E-05	+ .12324 E-03
+ .10243 E+02	+ .00000 E+00	- .29463 E-05	+ .55591 E-04
+ .10903 E+02	+ .00000 E+00	- .10352 E-05	+ .23691 E-04
+ .11607 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .95031 E-05
+ .12355 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .35766 E-05
+ .13152 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .12652 E-05
+ .14000 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E-00

E	
<R>...-2	+ .98665 E+01
<R>...-1	+ .73840 E+01
<R>... 1	+ .23943 E+01
<R>... 2	+ .52131 E+00
	+ .33100 E+00

+ .34430 E+01	+ .20172 E+01
+ .55327 E-01	+ .15870 E+01
+ .87610 E+00	+ .75448 E+00
+ .14992 E+01	+ .17272 E+01
+ .25562 E-01	+ .34388 E+01

Cs⁺

R	P(1S)	P(2S)	P(2P)	P(3S)	P(3P)
+ .90522 E-03	+ .69575 E+00	+ .22644 E+00	+ .31515 E-02	+ .10164 E+00	+ .14785 E-02
+ .96360 E-03	+ .73824 E+00	+ .24026 E+00	+ .35654 E-02	+ .10784 E+00	+ .16726 E-02
+ .10257 E-02	+ .78318 E+00	+ .25487 E+00	+ .40332 E-02	+ .11440 E+00	+ .18921 E-02
+ .10919 E-02	+ .83066 E+00	+ .27031 E+00	+ .45620 E-02	+ .12133 E+00	+ .21401 E-02
+ .11623 E-02	+ .88082 E+00	+ .28662 E+00	+ .51594 E-02	+ .12865 E+00	+ .24204 E-02
+ .12373 E-02	+ .93377 E+00	+ .30383 E+00	+ .58343 E-02	+ .13637 E+00	+ .27370 E-02
+ .13171 E-02	+ .98964 E+00	+ .32198 E+00	+ .65967 E-02	+ .14452 E+00	+ .30946 E-02
+ .14020 E-02	+ .10486 E+01	+ .34112 E+00	+ .74576 E-02	+ .15311 E+00	+ .34983 E-02
+ .14925 E-02	+ .11106 E+01	+ .36129 E+00	+ .84297 E-02	+ .16215 E+00	+ .39544 E-02
+ .15887 E-02	+ .11760 E+01	+ .38252 E+00	+ .95269 E-02	+ .17168 E+00	+ .44691 E-02
+ .16912 E-02	+ .12449 E+01	+ .40485 E+00	+ .10765 E-01	+ .18170 E+00	+ .50499 E-02
+ .18002 E-02	+ .13172 E+01	+ .42832 E+00	+ .12162 E-01	+ .19223 E+00	+ .57051 E-02
+ .19163 E-02	+ .13933 E+01	+ .45298 E+00	+ .13737 E-01	+ .20329 E+00	+ .64441 E-02
+ .20399 E-02	+ .14731 E+01	+ .47884 E+00	+ .15514 E-01	+ .21489 E+00	+ .72773 E-02
+ .21715 E-02	+ .15568 E+01	+ .50594 E+00	+ .17516 E-01	+ .22705 E+00	+ .82164 E-02
+ .23116 E-02	+ .16445 E+01	+ .53432 E+00	+ .19772 E-01	+ .23977 E+00	+ .92745 E-02
+ .24606 E-02	+ .17363 E+01	+ .56398 E+00	+ .22314 E-01	+ .25308 E+00	+ .10466 E-01
+ .26193 E-02	+ .18322 E+01	+ .59496 E+00	+ .25175 E-01	+ .26697 E+00	+ .11808 E-01
+ .27883 E-02	+ .19323 E+01	+ .62726 E+00	+ .28395 E-01	+ .28145 E+00	+ .13318 E-01
+ .29681 E-02	+ .20367 E+01	+ .66089 E+00	+ .32018 E-01	+ .29652 E+00	+ .15017 E-01
+ .31595 E-02	+ .21454 E+01	+ .69584 E+00	+ .36091 E-01	+ .31218 E+00	+ .16927 E-01
+ .33633 E-02	+ .22584 E+01	+ .73209 E+00	+ .40669 E-01	+ .32842 E+00	+ .19073 E-01
+ .35802 E-02	+ .23755 E+01	+ .76962 E+00	+ .45812 E-01	+ .34522 E+00	+ .21484 E-01
+ .38111 E-02	+ .24969 E+01	+ .80839 E+00	+ .51584 E-01	+ .36258 E+00	+ .24190 E-01
+ .40569 E-02	+ .26223 E+01	+ .84833 E+00	+ .58061 E-01	+ .38045 E+00	+ .27225 E-01
+ .43186 E-02	+ .27516 E+01	+ .88938 E+00	+ .65323 E-01	+ .39881 E+00	+ .30628 E-01
+ .45971 E-02	+ .28846 E+01	+ .93144 E+00	+ .73459 E-01	+ .41761 E+00	+ .34440 E-01
+ .48936 E-02	+ .30210 E+01	+ .97439 E+00	+ .82568 E-01	+ .43679 E+00	+ .38708 E-01
+ .52092 E-02	+ .31606 E+01	+ .10181 E+01	+ .92759 E-01	+ .45629 E+00	+ .43481 E-01
+ .55451 E-02	+ .33030 E+01	+ .10623 E+01	+ .10415 E+00	+ .47603 E+00	+ .48815 E-01
+ .59028 E-02	+ .34477 E+01	+ .11070 E+01	+ .11687 E+00	+ .49590 E+00	+ .54771 E-01
+ .62835 E-02	+ .35941 E+01	+ .11517 E+01	+ .13106 E+00	+ .51581 E+00	+ .61414 E-01
+ .66887 E-02	+ .37418 E+01	+ .11963 E+01	+ .14688 E+00	+ .53561 E+00	+ .68815 E-01
+ .71201 E-02	+ .38900 E+01	+ .12405 E+01	+ .16450 E+00	+ .55516 E+00	+ .77053 E-01

R	P (1S)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	3P
+ .75793 E-02	+ .40379 E+01	+ .12838 E+01	+ .18408 E+00	+ .57429 E+00	+ .86208 E-01
+ .80681 E-02	+ .41846 E+01	+ .13258 E+01	+ .20584 E+00	+ .59282 E+00	+ .96374 E-01
+ .85885 E-02	+ .43292 E+01	+ .13662 E+01	+ .22997 E+00	+ .61051 E+00	+ .10764 E+00
+ .91424 E-02	+ .44705 E+01	+ .14043 E+01	+ .25670 E+00	+ .62714 E+00	+ .12012 E+00
+ .97320 E-02	+ .46075 E+01	+ .14397 E+01	+ .28626 E+00	+ .64243 E+00	+ .13390 E+00
+ .10360 E-01	+ .47389 E+01	+ .14717 E+01	+ .31890 E+00	+ .65609 E+00	+ .14911 E+00
+ .11028 E-01	+ .48632 E+01	+ .14995 E+01	+ .35487 E+00	+ .66790 E+00	+ .16585 E+00
+ .11739 E-01	+ .49791 E+01	+ .15225 E+01	+ .39445 E+00	+ .67720 E+00	+ .18426 E+00
+ .12496 E-01	+ .50850 E+01	+ .15398 E+01	+ .43792 E+00	+ .68393 E+00	+ .20444 E+00
+ .13302 E-01	+ .51793 E+01	+ .15507 E+01	+ .48554 E+00	+ .68736 E+00	+ .22631 E+00
+ .14160 E-01	+ .52605 E+01	+ .15541 E+01	+ .53759 E+00	+ .68759 E+00	+ .25060 E+00
+ .15073 E-01	+ .53269 E+01	+ .15491 E+01	+ .59436 E+00	+ .68385 E+00	+ .27682 E+00
+ .16045 E-01	+ .53769 E+01	+ .15348 E+01	+ .65610 E+00	+ .67559 E+00	+ .30526 E+00
+ .17080 E-01	+ .54089 E+01	+ .15101 E+01	+ .72306 E+00	+ .66241 E+00	+ .33602 E+00
+ .18182 E-01	+ .54214 E+01	+ .14740 E+01	+ .79546 E+00	+ .64385 E+00	+ .36917 E+00
+ .19354 E-01	+ .54130 E+01	+ .14255 E+01	+ .87348 E+00	+ .61943 E+00	+ .40476 E+00
+ .20603 E-01	+ .53825 E+01	+ .13637 E+01	+ .95726 E+00	+ .58869 E+00	+ .44280 E+00
+ .21931 E-01	+ .53289 E+01	+ .12875 E+01	+ .10469 E+01	+ .55121 E+00	+ .48327 E+00
+ .23346 E-01	+ .52514 E+01	+ .11961 E+01	+ .11423 E+01	+ .50658 E+00	+ .52611 E+00
+ .24852 E-01	+ .51495 E+01	+ .10888 E+01	+ .12435 E+01	+ .45450 E+00	+ .57119 E+00
+ .26454 E-01	+ .50232 E+01	+ .96506 E+00	+ .13503 E+01	+ .39473 E+00	+ .61834 E+00
+ .28161 E-01	+ .48726 E+01	+ .82445 E+00	+ .14624 E+01	+ .32713 E+00	+ .66727 E+00
+ .29977 E-01	+ .46987 E+01	+ .66683 E+00	+ .15793 E+01	+ .25170 E+00	+ .71765 E+00
+ .31910 E-01	+ .45024 E+01	+ .49233 E+00	+ .17005 E+01	+ .16858 E+00	+ .76901 E+00
+ .33968 E-01	+ .42854 E+01	+ .30138 E+00	+ .18251 E+01	+ .78123 E-01	+ .82082 E+00
+ .36159 E-01	+ .40499 E+01	+ .94826 E-01	+ .19522 E+01	+ .19140 E-01	+ .87238 E+00
+ .38491 E-01	+ .37985 E+01	+ .12613 E+00	+ .20808 E+01	+ .12243 E+00	+ .92290 E+00
+ .40973 E-01	+ .35340 E+01	+ .35982 E+00	+ .22094 E+01	+ .23070 E+00	+ .97142 E+00
+ .43616 E-01	+ .32599 E+01	+ .60413 E+00	+ .23366 E+01	+ .34263 E+00	+ .10169 E+01
+ .46429 E-01	+ .29797 E+01	+ .85644 E+00	+ .24606 E+01	+ .45660 E+00	+ .10560 E+01
+ .49423 E-01	+ .26974 E+01	+ .11137 E+01	+ .25794 E+01	+ .57068 E+00	+ .10933 E+01
+ .52611 E-01	+ .24169 E+01	+ .13723 E+01	+ .26911 E+01	+ .68264 E+00	+ .11219 E+01
+ .56004 E-01	+ .21420 E+01	+ .16284 E+01	+ .27933 E+01	+ .78994 E+00	+ .11415 E+01
+ .59616 E-01	+ .18765 E+01	+ .18776 E+01	+ .28839 E+01	+ .88981 E+00	+ .11502 E+01
+ .63461 E-01	+ .16238 E+01	+ .21154 E+01	+ .29605 E+01	+ .97922 E+00	+ .11480 E+01
+ .67554 E-01	+ .13869 E+01	+ .23370 E+01	+ .30209 E+01	+ .10550 E+01	+ .11313 E+01
+ .71910 E-01	+ .11682 E+01	+ .25377 E+01	+ .30628 E+01	+ .11739 E+01	+ .10992 E+01
+ .76548 E-01	+ .96956 E+00	+ .27128 E+01	+ .30843 E+01	+ .11527 E+01	+ .10501 E+01
+ .81483 E-01	+ .79225 E+00	+ .28581 E+01	+ .30837 E+01	+ .11682 E+01	+ .98263 E+00

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	3P
+ .86741 E-01	+ .63673 E+00	- .29698 E+01	+ .30598 E+01	- .11577 E+01	+ .89875 E+00
+ .92335 E-01	+ .50282 E+00	- .30448 E+01	+ .30118 E+01	+ .11187 E+01	+ .78876 E+00
+ .98290 E-01	+ .38976 E+00	- .30810 E+01	+ .29393 E+01	- .18495 E+01	+ .66169 E+00
+ .10463 E+00	+ .29622 E+00	- .30770 E+01	+ .28429 E+01	- .94889 E+00	+ .51402 E+00
+ .11138 E+00	+ .22048 E+00	- .30330 E+01	+ .27235 E+01	- .81679 E+00	+ .34748 E+00
+ .11956 E+00	+ .16052 E+00	- .29502 E+01	+ .25830 E+01	- .65402 E+00	+ .16340 E+00
+ .12621 E+00	+ .11417 E+00	- .28310 E+01	+ .24237 E+01	- .46258 E+00	- .35884 E-01
+ .13435 E+00	+ .79232 E-01	- .26791 E+01	+ .22487 E+01	- .24563 E+00	- .24729 E+00
+ .14301 E+00	+ .53573 E-01	- .24994 E+01	+ .20616 E+01	- .75852 E-02	- .46701 E+00
+ .15223 E+00	+ .35242 E-01	- .22978 E+01	+ .18665 E+01	+ .24602 E+00	- .69038 E+00
+ .16205 E+00	+ .22520 E-01	- .20799 E+01	+ .16674 E+01	+ .50863 E+00	- .91296 E+00
+ .17250 E+00	+ .13954 E-01	- .18532 E+01	+ .14689 E+01	+ .77285 E+00	- .11289 E+01
+ .18363 E+00	+ .83639 E-02	- .16240 E+01	+ .12750 E+01	+ .10308 E+01	- .13321 E+01
+ .19547 E+00	+ .48339 E-02	- .13989 E+01	+ .10896 E+01	+ .12742 E+01	- .15176 E+01
+ .20808 E+00	+ .26787 E-02	- .11835 E+01	+ .91599 E+00	+ .14953 E+01	- .16797 E+01
+ .22150 E+00	+ .14082 E-02	- .98261 E+00	+ .75686 E+00	+ .16866 E+01	- .18137 E+01
+ .23579 E+00	+ .68627 E-03	- .79998 E+00	+ .61412 E+00	+ .18419 E+01	- .19155 E+01
+ .25099 E+00	+ .29224 E-03	- .63806 E+00	+ .48887 E+00	+ .19562 E+01	- .19822 E+01
+ .26718 E+00	+ .87265 E-04	- .49812 E+00	+ .38143 E+00	+ .20262 E+01	- .20120 E+01
+ .28441 E+00	+ .12375 E-04	- .38023 E+00	+ .29140 E+00	+ .28507 E+01	- .20047 E+01
+ .30275 E+00	- .55195 E-04	- .28351 E+00	+ .21774 E+00	+ .20303 E+01	- .19915 E+01
+ .32228 E+00	- .68368 E-04	- .20625 E+00	+ .15895 E+00	+ .19678 E+01	- .18948 E+01
+ .34307 E+00	- .66723 E-04	- .14623 E+00	+ .11324 E+00	+ .18678 E+01	- .17786 E+01
+ .36519 E+00	- .58240 E-04	- .10090 E+00	+ .78628 E-01	+ .17363 E+01	- .16479 E+01
+ .38874 E+00	- .47196 E-04	- .67680 E-01	+ .53142 E-01	+ .15806 E+01	- .14987 E+01
+ .41382 E+00	- .35881 E-04	- .44057 E-01	+ .34909 E-01	+ .14087 E+01	- .13371 E+01
+ .44051 E+00	- .25501 E-04	- .27783 E-01	+ .22250 E-01	+ .12286 E+01	- .11699 E+01
+ .46892 E+00	- .16638 E-04	- .16931 E-01	+ .13730 E-01	+ .10482 E+01	- .10031 E+01
+ .49916 E+00	- .94992 E-05	- .99357 E-02	+ .81767 E-02	+ .87434 E+00	- .84239 E+00
+ .53135 E+00	- .40659 E-05	- .55810 E-02	+ .46746 E-02	+ .71256 E+00	- .69241 E+00
+ .56562 E+00	- .18185 E-06	- .29670 E-02	+ .25406 E-02	+ .56704 E+00	- .55869 E+00
+ .60210 E+00	- .23814 E-05	- .14575 E-02	+ .12860 E-02	+ .44035 E+00	- .43749 E+00
+ .64093 E+00	+ .38801 E-05	- .62278 E-03	+ .57681 E-03	+ .33350 E+00	- .33584 E+00
+ .68227 E+00	+ .45672 E-05	- .18499 E-03	+ .19382 E-03	+ .24619 E+00	- .25168 E+00
+ .72627 E+00	+ .46728 E-05	+ .27821 E-04	- .63219 E-06	+ .17705 E+00	- .18401 E+00
+ .77311 E+00	+ .43928 E-05	+ .11794 E-03	- .89794 E-04	+ .12399 E+00	- .13119 E+00
+ .82297 E+00	+ .38850 E-05	+ .14404 E-03	- .12225 E-03	+ .84538 E-01	- .91164 E-01
+ .87605 E+00	+ .32693 E-05	+ .13879 E-03	- .12552 E-03	+ .58112 E-01	- .61731 E-01
+ .93255 E+00	+ .26316 E-05	+ .11987 E-03	- .11484 E-03	+ .36267 E-01	- .40732 E-01

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .99269 E+00	+ .20284 E-05	+ .96607 E-04	- .98477 E-04	+ .24838 E-01	- .26196 E-01
+ .10567 E+01	+ .14934 E-05	+ .73754 E-04	- .80833 E-04	+ .14025 E-01	- .16434 E-01
+ .11249 E+01	+ .10424 E-05	+ .53538 E-04	- .64152 E-04	+ .84101 E-02	- .10070 E-01
+ .11974 E+01	+ .67906 E-06	+ .36805 E-04	- .49483 E-04	+ .49294 E-02	- .60387 E-02
+ .12746 E+01	+ .39878 E-06	+ .23650 E-04	- .37192 E-04	+ .28246 E-02	- .35531 E-02
+ .13569 E+01	+ .19220 E-06	+ .13774 E-04	- .27271 E-04	+ .15784 E-02	- .20569 E-02
+ .14444 E+01	- .45027 E-07	+ .66959 E-05	- .19511 E-04	+ .85290 E-03	- .11743 E-02
+ .15375 E+01	+ .00000 E+00	+ .18827 E-05	- .13612 E-04	+ .43632 E-03	- .66135 E-03
+ .16367 E+01	+ .00000 E+00	- .11801 E-05	- .92453 E-05	+ .20021 E-03	- .36667 E-03
+ .17422 E+01	+ .00000 E+00	- .29479 E-05	- .60979 E-05	+ .58867 E-04	- .19814 E-03
+ .18546 E+01	+ .00000 E+00	- .38006 E-05	- .38898 E-05	- .16797 E-05	- .10233 E-03
+ .19742 E+01	+ .00000 E+00	- .40393 E-05	- .23842 E-05	+ .36875 E-04	- .48387 E-04
+ .21015 E+01	+ .00000 E+00	- .38930 E-05	- .13892 E-05	- .31598 E-04	- .18660 E-04
+ .22371 E+01	+ .00000 E+00	- .35280 E-05	- .75457 E-06	- .34700 E-04	- .29934 E-05
+ .23813 E+01	+ .00000 E+00	- .30599 E-05	- .36672 E-06	- .51532 E-04	+ .45514 E-05
+ .25349 E+01	+ .00000 E+00	- .25649 E-05	- .14212 E-06	- .45343 E-04	+ .75010 E-05
+ .26984 E+01	+ .00000 E+00	- .20981 E-05	+ .00000 E+00	- .38081 E-04	+ .79699 E-05
+ .28725 E+01	+ .00000 E+00	- .16617 E-05	+ .00000 E+00	- .38867 E-04	+ .72103 E-05
+ .30577 E+01	+ .00000 E+00	- .12916 E-05	+ .00000 E+00	- .24298 E-04	+ .59829 E-05
+ .32549 E+01	+ .00000 E+00	- .98281 E-06	+ .00000 E+00	- .18642 E-04	+ .46660 E-05
+ .34648 E+01	+ .00000 E+00	- .73243 E-06	+ .00000 E+00	- .13968 E-04	+ .34716 E-05
+ .36883 E+01	+ .00000 E+00	- .53462 E-06	+ .00000 E+00	- .10231 E-04	+ .24823 E-05
+ .39262 E+01	+ .00000 E+00	- .38207 E-06	+ .00000 E+00	- .73270 E-05	+ .17127 E-05
+ .41794 E+01	+ .00000 E+00	- .26716 E-06	+ .00000 E+00	- .51299 E-05	+ .11428 E-05
+ .44489 E+01	+ .00000 E+00	- .18262 E-06	+ .00000 E+00	- .35091 E-05	+ .73830 E-06
+ .47359 E+01	+ .00000 E+00	- .12192 E-06	+ .00000 E+00	- .23431 E-05	+ .46167 E-06
+ .50413 E+01	+ .00000 E+00	- .79177 E-07	+ .00000 E+00	- .15255 E-05	+ .27467 E-06
+ .53665 E+01	+ .00000 E+00	- .52794 E-07	+ .00000 E+00	- .96707 E-06	+ .00000 E+00
+ .57126 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .59611 E-06	+ .00000 E+00
+ .60810 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .35673 E-06	+ .00000 E+00
+ .64732 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .20682 E-06	+ .00000 E+00
+ .68907 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .11792 E-06	+ .00000 E+00
+ .73351 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .88008 E-07	+ .00000 E+00

106

E	+ .25459 E+04	+ .39664 E+03	+ .37299 E+03	+ .85741 E+02	+ .75547 E+02
<R>...-2	+ .59247 E+04	+ .63660 E+03	+ .21265 E+03	+ .13087 E+03	+ .43613 E+02
<R>...-1	+ .54464 E+02	+ .12555 E+02	+ .12538 E+02	+ .48334 E+01	+ .45519 E+01
<R>... 1	+ .27624 E-01	+ .11853 E+00	+ .18103 E+00	+ .31160 E+00	+ .30219 E+00
<R>... 2	+ .10205 E-02	+ .16498 E-01	+ .12405 E-01	+ .11875 E+00	+ .10568 E+00

	R	P(3D)	P(4S)	P(4P)	P(4O)	P(5S)	P(5P)								
90522	E-03	40187	E-05	46859	E-01	66381	E-03	17402	E-03	20968	E-03	18475	E-01	22290	E-03
96360	E-03	48423	E-05	49719	E-01	75099	E-03	20968	E-03	20968	E-03	18475	E-01	25217	E-03
10257	E-02	58343	E-05	52742	E-01	84953	E-03	25263	E-03	25263	E-03	19598	E-01	28526	E-03
10919	E-02	70292	E-05	55937	E-01	96089	E-03	30437	E-03	30437	E-03	20730	E-01	32266	F-03
11623	E-02	84677	E-05	59310	E-01	10867	E-02	36666	E-03	36666	E-03	22030	E-01	36491	F-03
12373	E-02	10200	E-04	62871	E-01	12289	E-02	44167	E-03	44167	E-03	23362	E-01	41264	E-03
13171	E-02	12286	E-04	66627	E-01	13894	E-02	53198	E-03	53198	E-03	24758	E-01	46656	E-03
14020	E-02	14796	E-04	70586	E-01	15708	E-02	64070	E-03	64070	E-03	26220	E-01	52274	E-03
14025	E-02	17818	E-04	74758	E-01	17755	E-02	77136	E-03	77136	E-03	29479	E-01	59619	E-03
15887	E-02	21455	E-04	79149	E-01	20066	E-02	92904	E-03	92904	E-03	27411	E-01	67337	E-03
16012	E-02	25831	E-04	83768	E-01	22676	E-02	11185	E-04	11185	E-04	31127	E-01	74134	E-03
18002	E-02	31097	E-04	88623	E-01	25615	E-02	13465	E-04	13465	E-04	32931	E-01	86012	E-03
19163	E-02	37430	E-04	93721	E-01	28933	E-02	16208	E-04	16208	E-04	34825	E-01	97153	E-03
20399	E-02	45048	E-04	99069	E-01	32674	E-02	19506	E-04	19506	E-04	36813	E-01	10971	E-02
21715	E-02	54208	E-04	10467	E-00	36890	E-02	23473	E-04	23473	E-04	38893	E-01	12387	E-02
23116	E-02	65220	E-04	11054	E-00	41641	E-02	28241	E-04	28241	E-04	41074	E-01	13982	E-02
24406	E-02	78457	E-04	11667	E-00	46991	E-02	33973	E-04	33973	E-04	43393	E-01	15779	E-02
26193	E-02	94364	E-04	12307	E-00	53016	E-02	40860	E-04	40860	E-04	45732	E-01	17802	E-02
27883	E-02	11348	E-03	12975	E-00	59795	E-02	49136	E-04	49136	E-04	48212	E-01	20078	E-02
29681	E-02	13643	E-03	13669	E-00	67421	E-02	59075	E-04	59075	E-04	50792	E-01	22639	E-02
31595	E-02	16339	E-03	14391	E-00	75996	E-02	71010	E-04	71010	E-04	53474	E-01	25518	E-02
33433	E-02	19708	E-03	15139	E-00	85631	E-02	83337	E-04	83337	E-04	56255	E-01	28754	E-02
35802	E-02	23679	E-03	15914	E-00	96453	E-02	10253	E-03	10253	E-03	59132	E-01	32387	E-02
38111	E-02	28443	E-03	16713	E-00	10860	E-01	12316	E-03	12316	E-03	62103	E-01	36466	E-02
40569	E-02	34156	E-03	17537	E-00	12223	E-01	14785	E-03	14785	E-03	65163	E-01	41042	E-02
43186	E-02	41004	E-03	18383	E-00	13750	E-01	17759	E-03	17759	E-03	68305	E-01	46171	E-02
45971	E-02	49211	E-03	19249	E-00	15462	E-01	21308	E-03	21308	E-03	71522	E-01	51917	E-02
48936	E-02	59042	E-03	20132	E-00	17377	E-01	25564	E-03	25564	E-03	74805	E-01	58349	E-02
52092	E-02	70812	E-03	21030	E-00	19520	E-01	30660	E-03	30660	E-03	78148	E-01	65543	E-02
55451	E-02	84898	E-03	21938	E-00	21914	E-01	36759	E-03	36759	E-03	81515	E-01	73581	E-02
59028	E-02	10175	E-02	22853	E-00	24587	E-01	44053	E-03	44053	E-03	84913	E-01	82556	E-02
62835	E-02	12189	E-02	23769	E-00	27568	E-01	52773	E-03	52773	E-03	88314	E-01	92365	E-02

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)	P (4D)	P (5S)	P (5P)
+ .66887 E-02	+ .14595 E-02	+ .24680 E+00	+ .30889 E-01	+ .63191 E-03	+ .91697 E-01	+ .10372 E-01
+ .71201 E-02	+ .17469 E-02	+ .25579 E+00	+ .34585 E-01	+ .75631 E-03	+ .95035 E-01	+ .11613 E-01
+ .75793 E-02	+ .20898 E-02	+ .26458 E+00	+ .38694 E-01	+ .90474 E-03	+ .98299 E-01	+ .12992 E-01
+ .80681 E-02	+ .24987 E-02	+ .27308 E+00	+ .43254 E-01	+ .10817 E-02	+ .10146 E+00	+ .14523 E-01
+ .85885 E-02	+ .29859 E-02	+ .28120 E+00	+ .48309 E-01	+ .12926 E-02	+ .10447 E+00	+ .16220 E-01
+ .91424 E-02	+ .35661 E-02	+ .28881 E+00	+ .53903 E-01	+ .15437 E-02	+ .10730 E+00	+ .18098 E-01
+ .97320 E-02	+ .42563 E-02	+ .29581 E+00	+ .60085 E-01	+ .18425 E-02	+ .10989 E+00	+ .20174 E-01
+ .10360 E-01	+ .50767 E-02	+ .30204 E+00	+ .66904 E-01	+ .21975 E-02	+ .11220 E+00	+ .22463 E-01
+ .11028 E-01	+ .60510 E-02	+ .30736 E+00	+ .74410 E-01	+ .26191 E-02	+ .11417 E+00	+ .24963 E-01
+ .11739 E-01	+ .72069 E-02	+ .31160 E+00	+ .82658 E-01	+ .31192 E-02	+ .11574 E+00	+ .27751 E-01
+ .12496 E-01	+ .85767 E-02	+ .31460 E+00	+ .91699 E-01	+ .37118 E-02	+ .11685 E+00	+ .30786 E-01
+ .13302 E-01	+ .10198 E-01	+ .31616 E+00	+ .10159 E+00	+ .44133 E-02	+ .11742 E+00	+ .34105 E-01
+ .14160 E-01	+ .12116 E-01	+ .31608 E+00	+ .11237 E+00	+ .52426 E-02	+ .11738 E+00	+ .37725 E-01
+ .15073 E-01	+ .14380 E-01	+ .31415 E+00	+ .12411 E+00	+ .62216 E-02	+ .11665 E+00	+ .41662 E-01
+ .16045 E-01	+ .17050 E-01	+ .31016 E+00	+ .13683 E+00	+ .73761 E-02	+ .11513 E+00	+ .45932 E-01
+ .17080 E-01	+ .20194 E-01	+ .30388 E+00	+ .15058 E+00	+ .87352 E-02	+ .11280 E+00	+ .50546 E-01
+ .18182 E-01	+ .23891 E-01	+ .29509 E+00	+ .16539 E+00	+ .10333 E-01	+ .10952 E+00	+ .55514 E-01
+ .19354 E-01	+ .28230 E-01	+ .28358 E+00	+ .18128 E+00	+ .12208 E-01	+ .10522 E+00	+ .60843 E-01
+ .20603 E-01	+ .33316 E-01	+ .26912 E+00	+ .19824 E+00	+ .14405 E-01	+ .99824 E-01	+ .66533 E-01
+ .21931 E-01	+ .39265 E-01	+ .25152 E+00	+ .21628 E+00	+ .16973 E-01	+ .93259 E-01	+ .72579 E-01
+ .23346 E-01	+ .46210 E-01	+ .23060 E+00	+ .23534 E+00	+ .19971 E-01	+ .85458 E-01	+ .78968 E-01
+ .24852 E-01	+ .54302 E-01	+ .20021 E+00	+ .25336 E+00	+ .23461 E-01	+ .76367 E-01	+ .85679 E-01
+ .26454 E-01	+ .63708 E-01	+ .17825 E+00	+ .27626 E+00	+ .27517 E-01	+ .65946 E-01	+ .92681 E-01
+ .28161 E-01	+ .74618 E-01	+ .14666 E+00	+ .29791 E+00	+ .32217 E-01	+ .54175 E-01	+ .99929 E-01
+ .29977 E-01	+ .87238 E-01	+ .11144 E+00	+ .32013 E+00	+ .37651 E-01	+ .41055 E-01	+ .10737 E+00
+ .31910 E-01	+ .10180 E+00	+ .72683 E-01	+ .34271 E+00	+ .43915 E-01	+ .26618 E-01	+ .11492 E+00
+ .33968 E-01	+ .11855 E+00	+ .30346 E-01	+ .36538 E+00	+ .51116 E-01	+ .10928 E-01	+ .12249 E+00
+ .36159 E-01	+ .13777 E+00	+ .14697 E-01	+ .38781 E+00	+ .59366 E-01	+ .59144 E-02	+ .12998 E+00
+ .38491 E-01	+ .15975 E+00	+ .62662 E-01	+ .40963 E+00	+ .68787 E-01	+ .23764 E-01	+ .13725 E+00
+ .40973 E-01	+ .18479 E+00	+ .11284 E+00	+ .43038 E+00	+ .79506 E-01	+ .42428 E-01	+ .14416 E+00
+ .43616 E-01	+ .21322 E+00	+ .16458 E+00	+ .44955 E+00	+ .91655 E-01	+ .61663 E-01	+ .15052 E+00
+ .46429 E-01	+ .24537 E+00	+ .21708 E+00	+ .46656 E+00	+ .10537 E+00	+ .81170 E-01	+ .15614 E+00

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)	P (4D)	P (5S)	P (5P)
+ .49423 E-01	+ .28158 E+00	- .26941 E+00	+ .48077 E+00	+ .12077 E+00	- .10050 E+00	+ .16080 E+00
+ .52611 E-01	+ .32219 E+00	- .32047 E+00	+ .49147 E+00	+ .13800 E+00	- .11952 E+00	+ .16427 E+00
+ .56004 E-01	+ .36751 E+00	- .36902 E+00	+ .49792 E+00	+ .15716 E+00	- .13749 E+00	+ .16629 E+00
+ .59616 E-01	+ .41783 E+00	- .41370 E+00	+ .49933 E+00	+ .17835 E+00	- .15398 E+00	+ .16660 E+00
+ .63461 E-01	+ .47340 E+00	- .45301 E+00	+ .49491 E+00	+ .20164 E+00	- .16844 E+00	+ .16492 E+00
+ .67554 E-01	+ .53441 E+00	- .48541 E+00	+ .48385 E+00	+ .22708 E+00	- .18028 E+00	+ .16099 E+00
+ .71910 E-01	+ .60098 E+00	- .50931 E+00	+ .46540 E+00	+ .25465 E+00	- .18890 E+00	+ .15455 E+00
+ .76548 E-01	+ .67313 E+00	- .52312 E+00	+ .43886 E+00	+ .28429 E+00	- .19372 E+00	+ .14537 E+00
+ .81485 E-01	+ .75276 E+00	- .52535 E+00	+ .40367 E+00	+ .31587 E+00	- .19417 E+00	+ .13326 E+00
+ .86741 E-01	+ .83362 E+00	- .51464 E+00	+ .35938 E+00	+ .34919 E+00	- .18974 E+00	+ .11807 E+00
+ .92335 E-01	+ .92131 E+00	- .48989 E+00	+ .30577 E+00	+ .38395 E+00	- .18002 E+00	+ .99750 E-01
+ .98290 E-01	+ .10132 E+01	- .45029 E+00	+ .24287 E+00	+ .41973 E+00	- .16473 E+00	+ .78301 E-01
+ .10463 E+00	+ .11086 E+01	- .39546 E+00	+ .17100 E+00	+ .45802 E+00	- .14372 E+00	+ .53851 E-01
+ .11138 E+00	+ .12064 E+01	- .32553 E+00	+ .90837 E-01	+ .49218 E+00	- .11707 E+00	+ .26645 E-01
+ .11856 E+00	+ .13054 E+01	- .24119 E+00	+ .34445 E-02	+ .52743 E+00	- .85064 E-01	+ .29373 E-02
+ .12621 E+00	+ .14041 E+01	- .14380 E+00	- .89694 E-01	+ .56086 E+00	- .48230 E-01	- .34308 E-01
+ .13435 E+00	+ .15008 E+01	- .35416 E-01	- .18666 E+00	+ .59144 E+00	- .74118 E-02	- .66966 E-01
+ .14301 E+00	+ .15938 E+01	+ .81188 E-01	- .28509 E+00	+ .61802 E+00	+ .36323 E-01	- .99908 E-01
+ .15223 E+00	+ .16809 E+01	+ .20253 E+00	- .38223 E+00	+ .63933 E+00	+ .81545 E-01	- .13219 E+00
+ .16205 E+00	+ .17600 E+01	+ .32449 E+00	- .47494 E+00	+ .65406 E+00	+ .12670 E+00	- .16275 E+00
+ .17250 E+00	+ .18290 E+01	+ .44240 E+00	- .55984 E+00	+ .66084 E+00	+ .17086 E+00	- .19036 E+00
+ .18363 E+00	+ .18857 E+01	+ .55121 E+00	- .63334 E+00	+ .65831 E+00	+ .20944 E+00	- .21378 E+00
+ .19547 E+00	+ .19281 E+01	+ .64568 E+00	- .69185 E+00	+ .64518 E+00	+ .24288 E+00	- .23174 E+00
+ .20808 E+00	+ .19544 E+01	+ .72062 E+00	- .73188 E+00	+ .62026 E+00	+ .26835 E+00	- .24304 E+00
+ .22150 E+00	+ .19631 E+01	+ .77118 E+00	- .75027 E+00	+ .58235 E+00	+ .28397 E+00	- .24658 E+00
+ .23579 E+00	+ .19532 E+01	+ .79312 E+00	- .74435 E+00	+ .53129 E+00	+ .28812 E+00	- .24144 E+00
+ .25039 E+00	+ .19240 E+01	+ .78308 E+00	- .71211 E+00	+ .46605 E+00	+ .27957 E+00	- .22700 E+00
+ .26718 E+00	+ .18756 E+01	+ .73891 E+00	- .65243 E+00	+ .38676 E+00	+ .25757 E+00	- .20293 E+00
+ .28441 E+00	+ .18084 E+01	+ .65983 E+00	- .56516 E+00	+ .29379 E+00	+ .22200 E+00	- .16929 E+00
+ .30275 E+00	+ .17236 E+01	+ .54666 E+00	- .45130 E+00	+ .18796 E+00	+ .17342 E+00	- .12661 E+00
+ .32228 E+00	+ .16230 E+01	+ .40187 E+00	- .31301 E+00	+ .70633 E-01	+ .11311 E+00	- .75803 E-01
+ .34327 E+00	+ .15090 E+01	+ .22963 E+00	- .15368 E+00	- .56321 E-01	- .43137 E-01	- .18515 E-01

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)	P (4D)	P (5S)	P (5S)
+ .36519 E+00	+ .13844 E+01	+ .35680 E-01	+ .22187 E-01	- .19052 E+00	- .33727 E-01	- .43500 E-01
+ .38874 E+00	+ .12522 E+01	- .17288 E+00	+ .20906 E+00	- .32911 E+00	- .11406 E+00	- .10782 E+00
+ .41382 E+00	+ .11161 E+01	- .38788 E+00	+ .40063 E+00	- .46882 E+00	- .19395 E+00	+ .17175 E+00
+ .44051 E+00	+ .97945 E+00	- .60057 E+00	+ .59005 E+00	- .60610 E+00	- .26913 E+00	+ .23233 E+00
+ .46892 E+00	+ .84563 E+00	- .80206 E+00	+ .77033 E+00	- .73724 E+00	- .33529 E+00	+ .28654 E+00
+ .49916 E+00	+ .71775 E+00	- .98390 E+00	+ .93471 E+00	- .85852 E+00	- .38826 E+00	+ .33139 E+00
+ .53135 E+00	+ .59843 E+00	- .11387 E+01	+ .10771 E+01	- .96644 E+00	- .42434 E+00	+ .36415 E+00
+ .56562 E+00	+ .48974 E+00	- .12604 E+01	+ .11924 E+01	- .10579 E+01	- .44055 E+00	+ .38251 E+00
+ .60210 E+00	+ .39309 E+00	- .13450 E+01	+ .12768 E+01	- .11303 E+01	- .43480 E+00	+ .38470 E+00
+ .64093 E+00	+ .30921 E+00	- .13905 E+01	+ .13282 E+01	- .11819 E+01	- .40615 E+00	+ .36965 E+00
+ .68227 E+00	+ .23817 E+00	- .13973 E+01	+ .13462 E+01	- .12116 E+01	- .35477 E+00	+ .33706 E+00
+ .72627 E+00	+ .17950 E+00	- .13678 E+01	+ .13320 E+01	- .12193 E+01	- .28207 E+00	+ .28738 E+00
+ .77311 E+00	+ .13225 E+00	- .13055 E+01	+ .12881 E+01	- .12056 E+01	- .19049 E+00	+ .22186 E+00
+ .82297 E+00	+ .95164 E-01	- .12167 E+01	+ .12187 E+01	- .11720 E+01	- .83455 E-01	+ .14241 E+00
+ .87605 E+00	+ .66824 E-01	- .11076 E+01	+ .11286 E+01	- .11207 E+01	+ .34874 E-01	+ .51576 E-01
+ .93255 E+00	+ .45744 E-01	- .98510 E+00	+ .10233 E+01	- .10545 E+01	+ .15983 E+00	- .47658 E-01
+ .99269 E+00	+ .30494 E-01	- .85603 E+00	+ .90850 E+00	- .97523 E+00	+ .28647 E+00	- .15195 E+00
+ .10567 E+01	+ .19775 E-01	- .72684 E+00	+ .78969 E+00	- .88938 E+00	+ .40986 E+00	- .25779 E+00
+ .11249 E+01	+ .12459 E-01	- .60232 E+00	+ .67187 E+00	- .79725 E+00	+ .52531 E+00	- .36162 E+00
+ .11974 E+01	+ .76164 E-02	- .48732 E+00	+ .55934 E+00	- .70308 E+00	+ .62839 E+00	- .46000 E+00
+ .12746 E+01	+ .45094 E-02	- .38462 E+00	+ .45544 E+00	- .60985 E+00	+ .71614 E+00	- .54977 E+00
+ .13569 E+01	+ .25792 E-02	- .29596 E+00	+ .36253 E+00	- .52016 E+00	+ .78527 E+00	- .62817 E+00
+ .14444 E+01	+ .14191 E-02	- .22189 E+00	+ .28197 E+00	- .48613 E+00	+ .83420 E+00	- .69296 E+00
+ .15375 E+01	+ .74514 E-03	- .16199 E+00	+ .21419 E+00	- .35937 E+00	+ .86220 E+00	- .74253 E+00
+ .16367 E+01	+ .36730 E-03	- .11511 E+00	+ .15882 E+00	- .29093 E+00	+ .86950 E+00	- .77593 E+00
+ .17422 E+01	+ .16344 E-03	- .79578 E-01	+ .11491 E+00	- .23131 E+00	+ .85727 E+00	- .79293 E+00
+ .18546 E+01	+ .58264 E-04	- .53525 E-01	+ .81105 E-01	- .18057 E+00	+ .82748 E+00	- .79394 E+00
+ .19742 E+01	+ .71683 E-05	- .35039 E-01	+ .55834 E-01	- .13836 E+00	+ .78271 E+00	- .77997 E+00
+ .21015 E+01	+ .15312 E-04	- .22348 E-01	+ .37494 E-01	- .10403 E+00	+ .72597 E+00	- .75255 E+00
+ .22371 E+01	+ .23225 E-04	- .13917 E-01	+ .24571 E-01	- .76725 E-01	+ .66048 E+00	- .71359 E+00
+ .23813 E+01	+ .24089 E-04	- .84915 E-02	+ .15729 E-01	- .53499 E-01	+ .58950 E+00	- .66527 E+00
+ .25349 E+01	+ .21826 E-04	- .51047 E-02	+ .98495 E-02	- .39363 E-01	+ .51611 E+00	- .60991 E+00

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)	P (4D)	P (5S)	P (5P)
+ .26984 E+01	- .18430 E-04	- .30468 E-02	+ .60478 E-02	- .27371 E-01	+ .44314 E+00	- .54987 E+00
+ .28725 E+01	- .14877 E-04	- .18232 E-02	+ .36526 E-02	- .18659 E-01	+ .37296 E+00	- .48742 E+00
+ .30577 E+01	- .11619 E-04	- .11051 E-02	+ .21785 E-02	- .12471 E-01	+ .30751 E+00	- .42466 E+00
+ .32549 E+01	- .88326 E-05	- .68418 E-03	+ .12888 E-02	- .81754 E-02	+ .24820 E+00	- .36348 E+00
+ .34648 E+01	- .65560 E-05	- .43428 E-03	+ .75971 E-03	- .52591 E-02	+ .19593 E+00	- .30544 E+00
+ .36883 E+01	- .47584 E-05	- .28196 E-03	+ .44774 E-03	- .33225 E-02	+ .15112 E+00	- .25180 E+00
+ .39262 E+01	- .33788 E-05	- .18588 E-03	+ .26426 E-03	- .20634 E-02	+ .11374 E+00	- .20346 E+00
+ .41794 E+01	- .23470 E-05	- .12323 E-03	+ .15607 E-03	- .12612 E-02	+ .83434 E+01	- .16098 E+00
+ .44489 E+01	- .15938 E-05	- .81395 E-04	+ .91957 E-04	- .75951 E-03	+ .59568 E-01	- .12457 E+00
+ .47359 E+01	- .10572 E-05	- .53142 E-04	+ .53799 E-04	- .46104 E-03	+ .41330 E-01	- .94159 E-01
+ .50413 E+01	- .68420 E-06	- .34091 E-04	+ .31082 E-04	- .26424 E-03	+ .27823 E-01	- .69431 E-01
+ .53465 E+01	- .43117 E-06	- .21394 E-04	+ .17638 E-04	- .15267 E-03	+ .18141 E-01	- .49870 E-01
+ .57126 E+01	- .25924 E-06	- .13089 E-04	+ .97836 E-05	- .86886 E-04	+ .11436 E-01	- .34836 E-01
+ .60810 E+01	+ .00000 E+00	- .77869 E-05	+ .52819 E-05	- .48610 E-04	+ .69560 E-02	- .23626 E-01
+ .64732 E+01	+ .00000 E+00	- .44936 E-05	+ .27647 E-05	- .26660 E-04	+ .40746 E-02	- .15528 E-01
+ .68907 E+01	+ .00000 E+00	- .25096 E-05	+ .13944 E-05	- .14285 E-04	+ .22935 E-02	- .98707 E-02
+ .73351 E+01	+ .00000 E+00	- .13532 E-05	+ .65082 E-06	- .74497 E-05	+ .12378 E-02	- .60562 E-02
+ .78081 E+01	+ .00000 E+00	- .70157 E-06	+ .00000 E+00	- .37652 E-05	+ .63980 E-03	- .35784 E-02
+ .83117 E+01	+ .00000 E+00	- .33903 E-06	+ .00000 E+00	- .18305 E-05	+ .31479 E-03	- .20313 E-02
+ .88478 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .82363 E-06	+ .14760 E-03	- .11050 E-02
+ .94184 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .65702 E-04	- .57442 E-03
+ .10026 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .27690 E-04	- .28453 E-03
+ .10672 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .11018 E-04	- .13387 E-03
+ .11361 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .41273 E-05	- .59637 E-04
+ .12063 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .14509 E-05	- .25064 E-04
+ .12873 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .47532 E-06	- .99005 E-05
+ .13784 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .36630 E-05

F	+ .56808 E+02	+ .17745 E+02	+ .13892 E+02	+ .71137 E+01	+ .28129 E+01	+ .17175 E+01
<P>***-2	- .24240 E+02	+ .28595 E+02	+ .93239 E+01	+ .44710 E+01	+ .39271 E+01	+ .12193 E+01
<P>***-1	- .44146 E-01	+ .19033 E+01	+ .18042 E+01	+ .15785 E+01	+ .69927 E+00	+ .60836 E+00
<P>*** 1	+ .27310 E+00	+ .72281 E+00	+ .75110 E+00	+ .83151 E+00	+ .18392 E+01	+ .21016 E+01
<P>*** 2	+ .87840 E-01	+ .58819 E+00	+ .64012 E+00	+ .80182 E+00	+ .38033 E+01	+ .50096 E+01

R	P(15)	P(25)	P(2P)
+ .55319 E-02	+ .27216 E+00	+ .61393 E-01	+ .56286 E-03
+ .58887 E-02	+ .28878 E+00	+ .65141 E-01	+ .63679 E-03
+ .62685 E-02	+ .30636 E+00	+ .69103 E-01	+ .72035 E-03
+ .66727 E-02	+ .32493 E+00	+ .73291 E-01	+ .81479 E-03
+ .71031 E-02	+ .34456 E+00	+ .77713 E-01	+ .92150 E-03
+ .75612 E-02	+ .36527 E+00	+ .82381 E-01	+ .10421 E-02
+ .80489 E-02	+ .38713 E+00	+ .87305 E-01	+ .11782 E-02
+ .85680 E-02	+ .41018 E+00	+ .92498 E-01	+ .13320 E-02
+ .91206 E-02	+ .43448 E+00	+ .97868 E-01	+ .15057 E-02
+ .97088 E-02	+ .46006 E+00	+ .10373 E+00	+ .17017 E-02
+ .10335 E-01	+ .48699 E+00	+ .10979 E+00	+ .19229 E-02
+ .11001 E-01	+ .51530 E+00	+ .11616 E+00	+ .21725 E-02
+ .11711 E-01	+ .54506 E+00	+ .12285 E+00	+ .24540 E-02
+ .12466 E-01	+ .57629 E+00	+ .12987 E+00	+ .27714 E-02
+ .13270 E-01	+ .60905 E+00	+ .13723 E+00	+ .31292 E-02
+ .14126 E-01	+ .64338 E+00	+ .14494 E+00	+ .35324 E-02
+ .15037 E-01	+ .67930 E+00	+ .15300 E+00	+ .39866 E-02
+ .16007 E-01	+ .71685 E+00	+ .16142 E+00	+ .44980 E-02
+ .17039 E-01	+ .75606 E+00	+ .17020 E+00	+ .50737 E-02
+ .18138 E-01	+ .79694 E+00	+ .17934 E+00	+ .57213 E-02
+ .19308 E-01	+ .83950 E+00	+ .18885 E+00	+ .64497 E-02
+ .20553 E-01	+ .88374 E+00	+ .19872 E+00	+ .72685 E-02
+ .21879 E-01	+ .92964 E+00	+ .20895 E+00	+ .81883 E-02
+ .23290 E-01	+ .97719 E+00	+ .21952 E+00	+ .92211 E-02
+ .24792 E-01	+ .10263 E+01	+ .23042 E+00	+ .10380 E-01
+ .26391 E-01	+ .10770 E+01	+ .24163 E+00	+ .11680 E-01
+ .28093 E-01	+ .11292 E+01	+ .25313 E+00	+ .13137 E-01
+ .29905 E-01	+ .11827 E+01	+ .26489 E+00	+ .14769 E-01
+ .31834 E-01	+ .12375 E+01	+ .27688 E+00	+ .16593 E-01
+ .33887 E-01	+ .12934 E+01	+ .28904 E+00	+ .18638 E-01
+ .36072 E-01	+ .13503 E+01	+ .30133 E+00	+ .20920 E-01
+ .38399 E-01	+ .14079 E+01	+ .31370 E+00	+ .23468 E-01
+ .40875 E-01	+ .14661 E+01	+ .32607 E+00	+ .26309 E-01
+ .43512 E-01	+ .15245 E+01	+ .33835 E+00	+ .29476 E-01
+ .46318 E-01	+ .15828 E+01	+ .35047 E+00	+ .33000 E-01
+ .49305 E-01	+ .16408 E+01	+ .36232 E+00	+ .36919 E-01
+ .52485 E-01	+ .16980 E+01	+ .37378 E+00	+ .41271 E-01
+ .55870 E-01	+ .17541 E+01	+ .38472 E+00	+ .46099 E-01
+ .59473 E-01	+ .18087 E+01	+ .39501 E+00	+ .51446 E-01
+ .63309 E-01	+ .18611 E+01	+ .40448 E+00	+ .57360 E-01
+ .67392 E-01	+ .19110 E+01	+ .41297 E+00	+ .63893 E-01
+ .71739 E-01	+ .19577 E+01	+ .42029 E+00	+ .71097 E-01
+ .76365 E-01	+ .20007 E+01	+ .42625 E+00	+ .79028 E-01
+ .81291 E-01	+ .20394 E+01	+ .43061 E+00	+ .87745 E-01
+ .86533 E-01	+ .20732 E+01	+ .43317 E+00	+ .97306 E-01
+ .92114 E-01	+ .21014 E+01	+ .43368 E+00	+ .10777 E+00
+ .98055 E-01	+ .21235 E+01	+ .43189 E+00	+ .11921 E+00
+ .10438 E+00	+ .21388 E+01	+ .42755 E+00	+ .13167 E+00

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)
+ .11111 E+00	+ .21467 E+01	+ .42039 E+00	+ .14523 E+00
+ .11828 E+00	+ .21468 E+01	+ .41016 E+00	+ .15993 E+00
+ .12591 E+00	+ .21385 E+01	+ .39660 E+00	+ .17584 E+00
+ .13403 E+00	+ .21213 E+01	+ .37945 E+00	+ .19301 E+00
+ .14267 E+00	+ .20951 E+01	+ .35847 E+00	+ .21147 E+00
+ .15187 E+00	+ .20595 E+01	+ .33346 E+00	+ .23127 E+00
+ .16167 E+00	+ .20145 E+01	+ .30423 E+00	+ .25243 E+00
+ .17209 E+00	+ .19601 E+01	+ .27061 E+00	+ .27496 E+00
+ .18319 E+00	+ .18965 E+01	+ .23251 E+00	+ .29886 E+00
+ .19501 E+00	+ .18241 E+01	+ .18987 E+00	+ .32410 E+00
+ .20758 E+00	+ .17435 E+01	+ .14268 E+00	+ .35065 E+00
+ .22097 E+00	+ .16553 E+01	+ .91040 E-01	+ .37844 E+00
+ .23522 E+00	+ .15604 E+01	+ .35094 E-01	+ .40738 E+00
+ .25039 E+00	+ .14599 E+01	- .24907 E-01	+ .43735 E+00
+ .26654 E+00	+ .13551 E+01	- .88624 E-01	+ .46821 E+00
+ .28373 E+00	+ .12471 E+01	- .15561 E+00	+ .49976 E+00
+ .30203 E+00	+ .11375 E+01	- .22533 E+00	+ .53180 E+00
+ .32151 E+00	+ .10276 E+01	- .29713 E+00	+ .56408 E+00
+ .34225 E+00	+ .91908 E+00	- .37026 E+00	+ .59632 E+00
+ .36432 E+00	+ .81326 E+00	- .44388 E+00	+ .62821 E+00
+ .38782 E+00	+ .71153 E+00	- .51704 E+00	+ .65940 E+00
+ .41283 E+00	+ .61513 E+00	- .58877 E+00	+ .68953 E+00
+ .43945 E+00	+ .52513 E+00	- .65801 E+00	+ .71822 E+00
+ .46780 E+00	+ .44236 E+00	- .72369 E+00	+ .74508 E+00
+ .49797 E+00	+ .36745 E+00	- .78473 E+00	+ .76971 E+00
+ .53008 E+00	+ .30077 E+00	- .84012 E+00	+ .79172 E+00
+ .56427 E+00	+ .24241 E+00	- .88886 E+00	+ .81074 E+00
+ .60066 E+00	+ .19225 E+00	- .93008 E+00	+ .82643 E+00
+ .63940 E+00	+ .14993 E+00	- .96305 E+00	+ .83849 E+00
+ .68064 E+00	+ .11491 E+00	- .98716 E+00	+ .84665 E+00
+ .72454 E+00	+ .86515 E-01	- .10020 E+01	+ .85073 E+00
+ .77126 E+00	+ .63969 E-01	- .10074 E+01	+ .85059 E+00
+ .82101 E+00	+ .46451 E-01	- .10033 E+01	+ .84617 E+00
+ .87396 E+00	+ .33143 E-01	- .99002 E+00	+ .83748 E+00
+ .93032 E+00	+ .23262 E-01	- .96789 E+00	+ .82462 E+00
+ .99032 E+00	+ .16092 E-01	- .93755 E+00	+ .80774 E+00
+ .10542 E+01	+ .11008 E-01	- .89980 E+00	+ .78707 E+00
+ .11222 E+01	+ .74821 E-02	- .85558 E+00	+ .76289 E+00
+ .11946 E+01	+ .50848 E-02	- .80594 E+00	+ .73554 E+00
+ .12716 E+01	+ .34820 E-02	- .75202 E+00	+ .70540 E+00
+ .13536 E+01	+ .24222 E-02	- .69498 E+00	+ .67288 E+00
+ .14409 E+01	+ .17236 E-02	- .63601 E+00	+ .63842 E+00
+ .15338 E+01	+ .12595 E-02	- .57624 E+00	+ .60244 E+00
+ .16328 E+01	+ .94517 E-03	- .51677 E+00	+ .56539 E+00
+ .17381 E+01	+ .72565 E-03	- .45859 E+00	+ .52769 E+00
+ .18502 E+01	+ .56668 E-03	- .40256 E+00	+ .48976 E+00
+ .19695 E+01	+ .44730 E-03	- .34945 E+00	+ .45197 E+00

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)
+ .20965 E+01	+ .35493 E-03	+ .29985 E+00	+ .41468 E+00
+ .22317 E+01	+ .28193 E-03	+ .25422 E+00	+ .37822 E+00
+ .23757 E+01	+ .22352 E-03	+ .21286 E+00	+ .34287 E+00
+ .25289 E+01	+ .17653 E-03	+ .17592 E+00	+ .30888 E+00
+ .26920 E+01	+ .13873 E-03	+ .14345 E+00	+ .27645 E+00
+ .28656 E+01	+ .10838 E-03	+ .11533 E+00	+ .24577 E+00
+ .30504 E+01	+ .84129 E-04	+ .91378 E-01	+ .21696 E+00
+ .32471 E+01	+ .64854 E-04	+ .71303 E-01	+ .19012 E+00
+ .34566 E+01	+ .49627 E-04	+ .54763 E-01	+ .16532 E+00
+ .36795 E+01	+ .37680 E-04	+ .41374 E-01	+ .14259 E+00
+ .39168 E+01	+ .28372 E-04	+ .30731 E-01	+ .12194 E+00
+ .41694 E+01	+ .21175 E-04	+ .22430 E-01	+ .10334 E+00
+ .44383 E+01	+ .15657 E-04	+ .16079 E-01	+ .86747 E-01
+ .47246 E+01	+ .11461 E-04	+ .11318 E-01	+ .72078 E-01
+ .50293 E+01	+ .83011 E-05	+ .78200 E-02	+ .59247 E-01
+ .53536 E+01	+ .59446 E-05	+ .53037 E-02	+ .48144 E-01
+ .56989 E+01	+ .42059 E-05	+ .35313 E-02	+ .38646 E-01
+ .60665 E+01	+ .29377 E-05	+ .23089 E-02	+ .30622 E-01
+ .64577 E+01	+ .20238 E-05	+ .14834 E-02	+ .23929 E-01
+ .68742 E+01	+ .13739 E-05	+ .93706 E-03	+ .18426 E-01
+ .73175 E+01	+ .91823 E-06	+ .58254 E-03	+ .13966 E-01
+ .77895 E+01	+ .60351 E-06	+ .35669 E-03	+ .10410 E-01
+ .82919 E+01	+ .38965 E-06	+ .21526 E-03	+ .76213 E-02
+ .88266 E+01	+ .24672 E-06	+ .12810 E-03	+ .54743 E-02
+ .93859 E+01	+ .15678 E-06	+ .75159 E-04	+ .38530 E-02
+ .10002 E+02	+ .00000 E+00	+ .43453 E-04	+ .26536 E-02
+ .10647 E+02	+ .00000 E+00	+ .24723 E-04	+ .17858 E-02
+ .11334 E+02	+ .00000 E+00	+ .13818 E-04	+ .11725 E-02
+ .12065 E+02	+ .00000 E+00	+ .75685 E-05	+ .74990 E-03
+ .12843 E+02	+ .00000 E+00	+ .40490 E-05	+ .46634 E-03
+ .13671 E+02	+ .00000 E+00	+ .20993 E-05	+ .28147 E-03
+ .14553 E+02	+ .00000 E+00	+ .10110 E-05	+ .16457 E-03
+ .15491 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .93014 E-04
+ .16490 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .50705 E-04
+ .17554 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .28597 E-04
+ .18686 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .13392 E-04
+ .19891 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .64581 E-05
+ .21174 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .29764 E-05
+ .22540 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .13160 E-05
+ .23993 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .29634 E-09
+ .25541 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .11707 E-09
+ .27188 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .47328 E-10
+ .28941 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00

E	+ .51659 E+02	+ .21492 E+01	+ .36197 E+00
<R>**-2	+ .15014 E+03	+ .82569 E+01	+ .20815 E+01
<R>**-1	+ .86295 E+01	+ .14112 E+01	+ .11618 E+01
<R>*-1	+ .17576 E+00	+ .10356 E+01	+ .12556 E+01
<R>*-2	+ .41622 E-01	+ .13189 E+01	+ .22101 E+01

C1-

R	P(13)	P(2S)	P(2P)	P(3S)	P(3P)
+ .29287 E-02	+ .38032 E+00	+ .10656 E+00	+ .12888 E-02	+ .31397 E-01	+ .31893 E-03
+ .31175 E-02	+ .40355 E+00	+ .11307 E+00	+ .14581 E-02	+ .33314 E-01	+ .36082 E-03
+ .33186 E-02	+ .42811 E+00	+ .11994 E+00	+ .16494 E-02	+ .35340 E-01	+ .40816 E-03
+ .35326 E-02	+ .45407 E+00	+ .12721 E+00	+ .18656 E-02	+ .37481 E-01	+ .46167 E-03
+ .37695 E-02	+ .48149 E+00	+ .13488 E+00	+ .21100 E-02	+ .39742 E-01	+ .52213 E-03
+ .40030 E-02	+ .51044 E+00	+ .14299 E+00	+ .23860 E-02	+ .42128 E-01	+ .59044 E-03
+ .42612 E-02	+ .54098 E+00	+ .15153 E+00	+ .26978 E-02	+ .44646 E-01	+ .66759 E-03
+ .45360 E-02	+ .57319 E+00	+ .16054 E+00	+ .30499 E-02	+ .47300 E-01	+ .75472 E-03
+ .48285 E-02	+ .60713 E+00	+ .17003 E+00	+ .34475 E-02	+ .50096 E-01	+ .85310 E-03
+ .51399 E-02	+ .64288 E+00	+ .18003 E+00	+ .38962 E-02	+ .53041 E-01	+ .96414 E-03
+ .54714 E-02	+ .68051 E+00	+ .19054 E+00	+ .44027 E-02	+ .56138 E-01	+ .10895 E-02
+ .58243 E-02	+ .72007 E+00	+ .20159 E+00	+ .49740 E-02	+ .59393 E-01	+ .12308 E-02
+ .62000 E-02	+ .76164 E+00	+ .21320 E+00	+ .56184 E-02	+ .62812 E-01	+ .13903 E-02
+ .65998 E-02	+ .80528 E+00	+ .22538 E+00	+ .63451 E-02	+ .66399 E-01	+ .15701 E-02
+ .70255 E-02	+ .85105 E+00	+ .23815 E+00	+ .71642 E-02	+ .70159 E-01	+ .17728 E-02
+ .74786 E-02	+ .89900 E+00	+ .25151 E+00	+ .80871 E-02	+ .74095 E-01	+ .20011 E-02
+ .79609 E-02	+ .94918 E+00	+ .26549 E+00	+ .91267 E-02	+ .78210 E-01	+ .22583 E-02
+ .84743 E-02	+ .10016 E+01	+ .28008 E+00	+ .10297 E-01	+ .82508 E-01	+ .25480 E-02
+ .90209 E-02	+ .10564 E+01	+ .29531 E+00	+ .11615 E-01	+ .86990 E-01	+ .28739 E-02
+ .96027 E-02	+ .11135 E+01	+ .31116 E+00	+ .13097 E-01	+ .91656 E-01	+ .32407 E-02
+ .10222 E-01	+ .11729 E+01	+ .32763 E+00	+ .14764 E-01	+ .96506 E-01	+ .36530 E-02
+ .10881 E-01	+ .12347 E+01	+ .34473 E+00	+ .16637 E-01	+ .10154 E+00	+ .41165 E-02
+ .11583 E-01	+ .12988 E+01	+ .36244 E+00	+ .18742 E-01	+ .10675 E+00	+ .46371 E-02
+ .12330 E-01	+ .13652 E+01	+ .38073 E+00	+ .21105 E-01	+ .11213 E+00	+ .52216 E-02
+ .13125 E-01	+ .14338 E+01	+ .39959 E+00	+ .23756 E-01	+ .11768 E+00	+ .56774 E-02
+ .13972 E-01	+ .15046 E+01	+ .41899 E+00	+ .26729 E-01	+ .12338 E+00	+ .66127 E-02
+ .14873 E-01	+ .15774 E+01	+ .43887 E+00	+ .30061 E-01	+ .12922 E+00	+ .74367 E-02
+ .15832 E-01	+ .16521 E+01	+ .45918 E+00	+ .33791 E-01	+ .13519 E+00	+ .83593 E-02
+ .16853 E-01	+ .17285 E+01	+ .47987 E+00	+ .37966 E-01	+ .14126 E+00	+ .93916 E-02
+ .17940 E-01	+ .18065 E+01	+ .50084 E+00	+ .42633 E-01	+ .14742 E+00	+ .10546 E-01
+ .19097 E-01	+ .18857 E+01	+ .52202 E+00	+ .47847 E-01	+ .15363 E+00	+ .11835 E-01
+ .20329 E-01	+ .19660 E+01	+ .54329 E+00	+ .53666 E-01	+ .15987 E+00	+ .13273 E-01
+ .21640 E-01	+ .20470 E+01	+ .56452 E+00	+ .60154 E-01	+ .16608 E+00	+ .14876 E-01
+ .23036 E-01	+ .21283 E+01	+ .58558 E+00	+ .67380 E-01	+ .17224 E+00	+ .16662 E-01
+ .24521 E-01	+ .22095 E+01	+ .60630 E+00	+ .75420 E-01	+ .17829 E+00	+ .18648 E-01
+ .26103 E-01	+ .22901 E+01	+ .62650 E+00	+ .84354 E-01	+ .18417 E+00	+ .20855 E-01
+ .27786 E-01	+ .23696 E+01	+ .64596 E+00	+ .94270 E-01	+ .18983 E+00	+ .23304 E-01

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .29578 E-01	+ .24474 E+01	+ .66445 E+00	+ .10526 E+00	+ .19519 E+00	+ .26017 E-01
+ .31486 E-01	+ .25229 E+01	+ .68172 E+00	+ .11743 E+00	+ .20017 E+00	+ .29018 E-01
+ .33517 E-01	+ .25954 E+01	+ .69749 E+00	+ .13087 E+00	+ .20470 E+00	+ .32335 E-01
+ .35678 E-01	+ .26642 E+01	+ .71144 E+00	+ .14570 E+00	+ .20866 E+00	+ .35992 E-01
+ .37979 E-01	+ .27285 E+01	+ .72324 E+00	+ .16204 E+00	+ .21197 E+00	+ .40018 E-01
+ .40429 E-01	+ .27875 E+01	+ .73252 E+00	+ .18001 E+00	+ .21451 E+00	+ .44442 E-01
+ .43036 E-01	+ .28403 E+01	+ .73891 E+00	+ .19972 E+00	+ .21617 E+00	+ .49292 E-01
+ .45812 E-01	+ .28860 E+01	+ .74199 E+00	+ .22130 E+00	+ .21682 E+00	+ .54600 E-01
+ .48766 E-01	+ .29239 E+01	+ .74133 E+00	+ .24489 E+00	+ .21633 E+00	+ .60393 E-01
+ .51912 E-01	+ .29529 E+01	+ .73649 E+00	+ .27059 E+00	+ .21456 E+00	+ .66701 E-01
+ .55260 E-01	+ .29723 E+01	+ .72699 E+00	+ .29855 E+00	+ .21138 E+00	+ .73550 E-01
+ .58824 E-01	+ .29812 E+01	+ .71239 E+00	+ .32885 E+00	+ .20664 E+00	+ .80966 E-01
+ .62617 E-01	+ .29789 E+01	+ .69221 E+00	+ .36162 E+00	+ .20019 E+00	+ .88970 E-01
+ .66656 E-01	+ .29647 E+01	+ .66600 E+00	+ .39695 E+00	+ .19191 E+00	+ .97579 E-01
+ .70955 E-01	+ .29381 E+01	+ .63332 E+00	+ .43489 E+00	+ .18166 E+00	+ .10681 E+00
+ .75531 E-01	+ .28985 E+01	+ .59377 E+00	+ .47551 E+00	+ .16932 E+00	+ .11665 E+00
+ .80402 E-01	+ .28458 E+01	+ .54699 E+00	+ .51882 E+00	+ .15478 E+00	+ .12712 E+00
+ .85588 E-01	+ .27798 E+01	+ .49267 E+00	+ .56482 E+00	+ .13795 E+00	+ .13819 E+00
+ .91108 E-01	+ .27007 E+01	+ .43060 E+00	+ .61345 E+00	+ .11878 E+00	+ .14984 E+00
+ .96984 E-01	+ .26087 E+01	+ .36064 E+00	+ .66461 E+00	+ .97221 E-01	+ .16203 E+00
+ .10324 E+00	+ .25046 E+01	+ .28276 E+00	+ .71816 E+00	+ .73291 E-01	+ .17470 E+00
+ .10990 E+00	+ .23890 E+01	+ .19708 E+00	+ .77388 E+00	+ .47037 E-01	+ .18778 E+00
+ .11698 E+00	+ .22631 E+01	+ .10384 E+00	+ .83150 E+00	+ .18558 E-01	+ .20117 E+00
+ .12453 E+00	+ .21283 E+01	+ .34545 E-02	+ .89067 E+00	+ .11988 E-01	+ .21475 E+00
+ .13256 E+00	+ .19860 E+01	+ .10348 E+00	+ .95098 E+00	+ .44381 E-01	+ .22839 E+00
+ .14111 E+00	+ .18380 E+01	+ .21617 E+00	+ .10119 E+01	+ .78330 E-01	+ .24191 E+00
+ .15021 E+00	+ .16862 E+01	+ .33366 E+00	+ .10729 E+01	+ .14347 E+00	+ .25513 E+00
+ .15990 E+00	+ .15327 E+01	+ .45476 E+00	+ .11333 E+01	+ .14937 E+00	+ .26781 E+00
+ .17021 E+00	+ .13796 E+01	+ .57808 E+00	+ .11923 E+01	+ .18551 E+00	+ .27971 E+00
+ .18119 E+00	+ .12290 E+01	+ .70208 E+00	+ .12492 E+01	+ .22129 E+00	+ .29056 E+00
+ .19287 E+00	+ .10828 E+01	+ .82501 E+00	+ .13031 E+01	+ .25603 E+00	+ .30005 E+00
+ .20531 E+00	+ .94295 E+00	+ .94502 E+00	+ .13530 E+01	+ .28906 E+00	+ .30786 E+00
+ .21856 E+00	+ .81111 E+00	+ .10601 E+01	+ .13981 E+01	+ .31953 E+00	+ .31365 E+00
+ .23265 E+00	+ .68869 E+00	+ .11683 E+01	+ .14374 E+01	+ .34662 E+00	+ .31706 E+00
+ .24766 E+00	+ .57678 E+00	+ .12674 E+01	+ .14698 E+01	+ .36949 E+00	+ .31774 E+00
+ .26363 E+00	+ .47610 E+00	+ .13556 E+01	+ .14947 E+01	+ .38726 E+00	+ .31533 E+00
+ .28063 E+00	+ .38706 E+00	+ .14310 E+01	+ .15110 E+01	+ .39909 E+00	+ .30947 E+00
+ .29873 E+00	+ .30967 E+00	+ .14919 E+01	+ .15181 E+01	+ .40418 E+00	+ .29983 E+00
+ .31800 E+00	+ .24362 E+00	+ .15369 E+01	+ .15154 E+01	+ .40179 E+00	+ .28612 E+00
+ .33851 E+00	+ .18833 E+00	+ .15650 E+01	+ .15025 E+01	+ .39129 E+00	+ .26807 E+00

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .36034 E+00	+ .14294 E+00	- .15753 E-01	+ .14792 E+01	- .37219 E+00	+ .24547 E+00
+ .38358 E+00	+ .10643 E+00	- .15677 E-01	+ .14453 E+01	- .34412 E+00	+ .21817 E+00
+ .40832 E+00	+ .77742 E-01	- .15423 E+01	+ .14012 E+01	- .30692 E+00	+ .18609 E+00
+ .43465 E+00	+ .55651 E-01	- .14997 E+01	+ .13472 E+01	- .26063 E+00	+ .14924 E+00
+ .46268 E+00	+ .39041 E-01	- .14412 E+01	+ .12841 E+01	- .20551 E+00	+ .10773 E+00
+ .49252 E+00	+ .26846 E-01	- .13683 E+01	+ .12128 E+01	- .14208 E+00	+ .61748 E-01
+ .52429 E+00	+ .18106 E-01	- .12830 E+01	+ .11348 E+01	- .71091 E-01	+ .11622 E-01
+ .55810 E+00	+ .11991 E-01	- .11875 E+01	+ .10504 E+01	+ .64513 E-01	- .42222 E-01
+ .59410 E+00	+ .78135 E-02	- .10946 E+01	+ .96222 E+00	+ .89290 E-01	- .99231 E-01
+ .63241 E+00	+ .50235 E-02	- .97690 E+00	+ .87149 E+00	+ .17594 E+00	- .15874 E+00
+ .67320 E+00	+ .31973 E-02	- .86724 E+00	+ .77993 E+00	+ .26472 E+00	- .21995 E+00
+ .71662 E+00	+ .20222 E-02	- .75832 E+00	+ .68922 E+00	+ .35379 E+00	- .28198 E+00
+ .76284 E+00	+ .12744 E-02	- .65268 E+00	+ .60099 E+00	+ .44117 E+00	- .34386 E+00
+ .81203 E+00	+ .80091 E-03	- .55253 E+00	+ .51675 E+00	+ .52487 E+00	- .40453 E+00
+ .86441 E+00	+ .50044 E-03	- .45972 E+00	+ .43778 E+00	+ .60290 E+00	- .46290 E+00
+ .92015 E+00	+ .30818 E-03	- .37564 E+00	+ .36516 E+00	+ .67338 E+00	- .51789 E+00
+ .97950 E+00	+ .18378 E-03	- .30120 E+00	+ .29964 E+00	+ .73461 E+00	- .56844 E+00
+ .10427 E+01	+ .10255 E-03	- .23681 E+00	+ .24170 E+00	+ .78514 E+00	- .61357 E+00
+ .11099 E+01	+ .49441 E-04	- .18242 E+00	+ .19151 E+00	+ .82385 E+00	- .65240 E+00
+ .11815 E+01	+ .15120 E-04	- .13759 E+00	+ .14893 E+00	+ .85001 E+00	- .68423 E+00
+ .12577 E+01	- .63866 E-05	- .10155 E+00	+ .11360 E+00	+ .86329 E+00	- .70851 E+00
+ .13388 E+01	- .19077 E-04	- .73312 E-01	+ .84927 E-01	+ .86381 E+00	- .72493 E+00
+ .14252 E+01	- .25734 E-04	- .51765 E-01	+ .62194 E-01	+ .85207 E+00	- .73336 E+00
+ .15171 E+01	- .28344 E-04	- .35760 E-01	+ .44596 E-01	+ .82899 E+00	- .73392 E+00
+ .16149 E+01	- .28339 E-04	- .24194 E-01	+ .31303 E-01	+ .79578 E+00	- .72691 E+00
+ .17191 E+01	- .26741 E-04	- .16063 E-01	+ .21509 E-01	+ .75392 E+00	- .71283 E+00
+ .18299 E+01	- .24269 E-04	- .10501 E-01	+ .14474 E-01	+ .70507 E+00	- .69232 E+00
+ .19480 E+01	- .21409 E-04	- .67954 E-02	+ .95495 E-02	+ .65098 E+00	- .66616 E+00
+ .20736 E+01	- .18478 E-04	- .43855 E-02	+ .61886 E-02	+ .59341 E+00	- .63520 E+00
+ .22073 E+01	- .15673 E-04	- .28494 E-02	+ .39508 E-02	+ .53406 E+00	- .60033 E+00
+ .23497 E+01	- .13101 E-04	- .18834 E-02	+ .24950 E-02	+ .47450 E+00	- .56247 E+00
+ .25012 E+01	- .10816 E-04	- .12781 E-02	+ .15672 E-02	+ .41614 E+00	- .52250 E+00
+ .26626 E+01	- .88308 E-05	- .89497 E-03	+ .98548 E-03	+ .36018 E+00	- .48128 E+00
+ .28343 E+01	- .71371 E-05	- .64648 E-03	+ .62451 E-03	+ .30757 E+00	- .43960 E+00
+ .30171 E+01	- .57135 E-05	- .47915 E-03	+ .40106 E-03	+ .25907 E+00	- .39814 E+00
+ .32117 E+01	- .45320 E-05	- .36150 E-03	+ .26183 E-03	+ .21515 E+00	- .35755 E+00
+ .34188 E+01	- .35625 E-05	- .27538 E-03	+ .17373 E-03	+ .17609 E+00	- .31833 E+00
+ .36393 E+01	- .27752 E-05	- .21039 E-03	+ .11680 E-03	+ .14197 E+00	- .28094 E+00
+ .38740 E+01	- .21421 E-05	- .16041 E-03	+ .79167 E-04	+ .11270 E+00	- .24572 E+00
+ .41238 E+01	- .16380 E-05	- .12167 E-03	+ .53796 E-04	+ .88034 E-01	- .21293 E+00

R	P (1S)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .43898 E+01	- .12405 E-05	- .91599 E-04	+ .36466 E-04	+ .67631 E-04	- .18274 E+00
+ .46729 E+01	- .43004 E-06	- .68361 E-04	+ .24562 E-04	+ .51069 E-04	- .15527 E+00
+ .49743 E+01	- .69000 E-06	- .50525 E-04	+ .16391 E-04	+ .37881 E-04	- .13056 E+00
+ .52051 E+01	- .50631 E-06	- .36952 E-04	+ .10817 E-04	+ .27587 E-04	- .10857 E+00
+ .56366 E+01	- .36725 E-06	- .26725 E-04	+ .70516 E-05	+ .19715 E-04	- .89255 E-01
+ .60002 E+01	- .26315 E-06	- .19100 E-04	+ .45374 E-05	+ .13819 E-04	- .72484 E-01
+ .63871 E+01	- .18615 E-06	- .13479 E-04	+ .28806 E-05	+ .94965 E-05	- .58110 E-01
+ .67991 E+01	- .12991 E-06	- .93851 E-05	+ .18038 E-05	+ .63969 E-05	- .45954 E-01
+ .72376 E+01	- .89071 E-07	- .64422 E-05	+ .11135 E-05	+ .42229 E-05	- .35819 E-01
+ .77044 E+01	- .63898 E-07	- .43554 E-05	+ .67542 E-06	+ .27319 E-05	- .27493 E-01
+ .82013 E+01	+ .00000 E+00	- .28974 E-05	+ .38572 E-06	+ .17321 E-05	- .20760 E-01
+ .87302 E+01	+ .00000 E+00	- .18945 E-05	+ .00000 E+00	+ .10764 E-05	- .15407 E-01
+ .92032 E+01	+ .00000 E+00	- .12162 E-05	+ .00000 E+00	+ .65586 E-05	- .11224 E-01
+ .98926 E+01	+ .00000 E+00	- .76573 E-06	+ .00000 E+00	+ .39187 E-05	- .80179 E-02
+ .10531 E+02	+ .00000 E+00	- .47215 E-06	+ .00000 E+00	+ .22962 E-05	- .56089 E-02
+ .11219 E+02	+ .00000 E+00	- .28400 E-06	+ .00000 E+00	+ .13194 E-05	- .38371 E-02
+ .11933 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .74303 E-05	- .25635 E-02
+ .12792 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .40980 E-05	- .16698 E-02
+ .13522 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .22105 E-05	- .10588 E-02
+ .14394 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .11640 E-05	- .65233 E-03
+ .15322 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .59680 E-05	- .38982 E-03
+ .16310 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .29589 E-05	- .22548 E-03
+ .17362 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .15656 E-05	- .12598 E-03
+ .18482 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .67828 E-04
+ .19674 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .35110 E-04
+ .20943 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .17429 E-04
+ .22293 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .82758 E-05
+ .23731 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .37523 E-05
+ .25262 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .16301 E-05
+ .26891 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .53055 E-09
+ .28625 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .20428 E-09
+ .30471 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .74363 E-10
+ .32437 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00

E	+ .20901 E+03	+ .20459 E+02	+ .15392 E+02	+ .14668 E+04	+ .30061 E+00
<R> ** -2	+ .55043 E+03	+ .44992 E+02	+ .14288 E+02	+ .41993 E+01	+ .10431 E-01
<R> ** -1	+ .16558 E+02	+ .33137 E+01	+ .32030 E+01	+ .85300 E-02	+ .67955 E+00
<K> ** 1	+ .91296 E-01	+ .44180 E+00	+ .40538 E+00	+ .16020 E+01	+ .20294 E+01
<H> ** 2	+ .11200 E-01	+ .23129 E+00	+ .20386 E+00	+ .30129 E+01	+ .51150 E+01

Br

R	P(13)	P(23)	P(2P)	P(33)	P(3P)
+ .14005 E-02	+ .55239 E+00	+ .17330 E+00	+ .23328 E-02	+ .68862 E-01	+ .93584 E-03
+ .15142 E-02	+ .58613 E+00	+ .18387 E-00	+ .26392 E-02	+ .73066 E-01	+ .10587 E-02
+ .16119 E-02	+ .62181 E+00	+ .19506 E-00	+ .29655 E-02	+ .77509 E-01	+ .11977 E-02
+ .17158 E-02	+ .65951 E+00	+ .20687 E-00	+ .33769 E-02	+ .82204 E-01	+ .13547 E+02
+ .18265 E-02	+ .69933 E+00	+ .21935 E-00	+ .38192 E-02	+ .87182 E-01	+ .15321 E-02
+ .19443 E-02	+ .74137 E+00	+ .23252 E-00	+ .43188 E-02	+ .92345 E-01	+ .17325 E-02
+ .20697 E-02	+ .78573 E+00	+ .24642 E-00	+ .48831 E-02	+ .97916 E-01	+ .19589 E-02
+ .22032 E-02	+ .83251 E+00	+ .26187 E-00	+ .55284 E-01	+ .10374 E+00	+ .22145 E-02
+ .23453 E-02	+ .88181 E+00	+ .27890 E-00	+ .62488 E-02	+ .10987 E+00	+ .25031 E-02
+ .24965 E-02	+ .93373 E+00	+ .29775 E-00	+ .70522 E-02	+ .11632 E+00	+ .28289 E-02
+ .26570 E-02	+ .98837 E+00	+ .30984 E-00	+ .79887 E-02	+ .12311 E+00	+ .31966 E-02
+ .28290 E-02	+ .10498 E+01	+ .32781 E-00	+ .90028 E-02	+ .13025 E+00	+ .36113 E-02
+ .30114 E-02	+ .11052 E+01	+ .34688 E-00	+ .10169 E-01	+ .13774 E+00	+ .40791 E-02
+ .32058 E-02	+ .11698 E+01	+ .36648 E-00	+ .11484 E-01	+ .14560 E+00	+ .46066 E-02
+ .34124 E-02	+ .12360 E+01	+ .38723 E-00	+ .12966 E-01	+ .15364 E+00	+ .52811 E-02
+ .36324 E-02	+ .13057 E+01	+ .40895 E-00	+ .14637 E-01	+ .16247 E+00	+ .60710 E-02
+ .38667 E-02	+ .13785 E+01	+ .43166 E+00	+ .16518 E-01	+ .17149 E+00	+ .69255 E-02
+ .41161 E-02	+ .14547 E+01	+ .45537 E+00	+ .18638 E-01	+ .18090 E+00	+ .74758 E-02
+ .43810 E-02	+ .15342 E+01	+ .48010 E-00	+ .21020 E-01	+ .19072 E+00	+ .84310 E-02
+ .46642 E-02	+ .16171 E+01	+ .50585 E-00	+ .23702 E-01	+ .20093 E+00	+ .95065 E-02
+ .49650 E-02	+ .17034 E+01	+ .53261 E-00	+ .26718 E-01	+ .21155 E+00	+ .10716 E-01
+ .52852 E-02	+ .17931 E+01	+ .56037 E-00	+ .30107 E-01	+ .22257 E+00	+ .12075 E-01
+ .56260 E-02	+ .18862 E+01	+ .58911 E-00	+ .33915 E-01	+ .23396 E+00	+ .13601 E-01
+ .59889 E-02	+ .19825 E+01	+ .61881 E-00	+ .38189 E-01	+ .24574 E+00	+ .15315 E-01
+ .63751 E-02	+ .20821 E+01	+ .64940 E-00	+ .42984 E-01	+ .25786 E+00	+ .17237 E-01
+ .67863 E-02	+ .21848 E+01	+ .68085 E-00	+ .48361 E-01	+ .27032 E+00	+ .19392 E-01
+ .72240 E-02	+ .22904 E+01	+ .71308 E-00	+ .54386 E-01	+ .28308 E+00	+ .21806 E-01
+ .76899 E-02	+ .23988 E+01	+ .74599 E-00	+ .61132 E-01	+ .29611 E+00	+ .24509 E-01
+ .81859 E-02	+ .25097 E+01	+ .77949 E+00	+ .68679 E-01	+ .30935 E+00	+ .27533 E-01
+ .87138 E-02	+ .26228 E+01	+ .81343 E+00	+ .77115 E-01	+ .32276 E+00	+ .30912 E-01
+ .92758 E-02	+ .27377 E+01	+ .84766 E+00	+ .86537 E-01	+ .33627 E+00	+ .34686 E-01
+ .98740 E-02	+ .28541 E+01	+ .88201 E+00	+ .97051 E-01	+ .34981 E+00	+ .38895 E-01
+ .10511 E-01	+ .29715 E+01	+ .91626 E+00	+ .10877 E+00	+ .36329 E+00	+ .43588 E-01
+ .11189 E-01	+ .30892 E+01	+ .95017 E+00	+ .12182 E+00	+ .37661 E+00	+ .48807 E-01
+ .11910 E-01	+ .32068 E+01	+ .98346 E+00	+ .13633 E+00	+ .38967 E+00	+ .54613 E-01
+ .12678 E-01	+ .33234 E+01	+ .10158 E+01	+ .15245 E+00	+ .40232 E+00	+ .61850 E-01
+ .13496 E-01	+ .34384 E+01	+ .10469 E+01	+ .17034 E+00	+ .41443 E+00	+ .68207 E-01

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .14367 E-01	+ .35509 E+01	+ .10764 E+01	+ .19015 E+00	+ .42584 E+00	+ .76121 E-01
+ .15293 E-01	+ .36599 E+01	+ .11037 E+01	+ .21207 E+00	+ .43637 E+00	+ .84871 E-01
+ .16280 E-01	+ .37644 E+01	+ .11285 E+01	+ .23628 E+00	+ .44582 E+00	+ .94527 E-01
+ .17329 E-01	+ .38635 E+01	+ .11502 E+01	+ .26297 E+00	+ .45398 E+00	+ .10516 E+00
+ .18447 E-01	+ .39559 E+01	+ .11682 E+01	+ .29235 E+00	+ .46061 E+00	+ .11686 E+00
+ .19637 E-01	+ .40404 E+01	+ .11820 E+01	+ .32461 E+00	+ .46546 E+00	+ .12969 E+00
+ .20903 E-01	+ .41158 E+01	+ .11909 E+01	+ .35998 E+00	+ .46827 E+00	+ .14374 E+00
+ .22251 E-01	+ .41808 E+01	+ .11942 E+01	+ .39866 E+00	+ .46875 E+00	+ .15908 E+00
+ .23687 E-01	+ .42342 E+01	+ .11911 E+01	+ .44086 E+00	+ .46660 E+00	+ .17580 E+00
+ .25214 E-01	+ .42745 E+01	+ .11810 E+01	+ .48679 E+00	+ .46150 E+00	+ .19393 E+00
+ .26840 E-01	+ .43007 E+01	+ .11631 E+01	+ .53664 E+00	+ .45314 E+00	+ .21360 E+00
+ .28571 E-01	+ .43115 E+01	+ .11366 E+01	+ .59057 E+00	+ .44121 E+00	+ .23480 E+00
+ .30414 E-01	+ .43057 E+01	+ .11007 E+01	+ .64875 E+00	+ .42537 E+00	+ .25761 E+00
+ .32376 E-01	+ .42825 E+01	+ .10546 E+01	+ .71128 E+00	+ .40532 E+00	+ .28203 E+00
+ .34464 E-01	+ .42410 E+01	+ .99776 E+00	+ .77826 E+00	+ .38077 E+00	+ .30806 E+00
+ .36686 E-01	+ .41806 E+01	+ .92939 E+00	+ .84969 E+00	+ .35146 E+00	+ .33569 E+00
+ .39053 E-01	+ .41009 E+01	+ .84896 E+00	+ .92536 E+00	+ .31717 E+00	+ .36486 E+00
+ .41571 E-01	+ .40019 E+01	+ .75603 E+00	+ .10057 E+01	+ .27771 E+00	+ .39546 E+00
+ .44252 E-01	+ .38836 E+01	+ .65026 E+00	+ .10901 E+01	+ .23299 E+00	+ .42735 E+00
+ .47106 E-01	+ .37468 E+01	+ .53153 E+00	+ .11782 E+01	+ .18298 E+00	+ .46035 E+00
+ .50144 E-01	+ .35922 E+01	+ .39988 E+00	+ .12699 E+01	+ .12777 E+00	+ .49428 E+00
+ .53378 E-01	+ .34213 E+01	+ .25561 E+00	+ .13644 E+01	+ .67525 E-01	+ .52859 E+00
+ .56821 E-01	+ .32355 E+01	+ .99285 E-01	+ .14613 E+01	+ .25819 E-01	+ .56313 E+00
+ .60486 E-01	+ .30369 E+01	+ .68235 E-01	+ .15596 E+01	+ .66591 E-01	+ .59733 E+00
+ .64387 E-01	+ .28279 E+01	+ .24577 E+00	+ .16586 E+01	+ .13936 E+00	+ .63070 E+00
+ .68539 E-01	+ .26110 E+01	+ .43179 E+00	+ .17570 E+01	+ .21490 E+00	+ .66256 E+00
+ .72960 E-01	+ .23892 E+01	+ .62442 E+00	+ .18537 E+01	+ .29221 E+00	+ .69221 E+00
+ .77665 E-01	+ .21655 E+01	+ .82143 E+00	+ .19473 E+01	+ .37009 E+00	+ .71883 E+00
+ .82674 E-01	+ .19429 E+01	+ .10202 E+01	+ .20363 E+01	+ .44715 E+00	+ .74153 E+00
+ .88006 E-01	+ .17245 E+01	+ .12180 E+01	+ .21191 E+01	+ .52179 E+00	+ .75937 E+00
+ .93682 E-01	+ .15133 E+01	+ .14114 E+01	+ .21941 E+01	+ .59224 E+00	+ .77131 E+00
+ .99724 E-01	+ .13120 E+01	+ .15972 E+01	+ .22594 E+01	+ .66660 E+00	+ .77630 E+00
+ .10616 E+00	+ .11230 E+01	+ .17719 E+01	+ .23135 E+01	+ .73283 E+00	+ .77324 E+00
+ .11300 E+00	+ .94819 E+00	+ .19318 E+01	+ .23546 E+01	+ .79981 E+00	+ .76106 E+00
+ .12029 E+00	+ .78914 E+00	+ .20736 E+01	+ .23812 E+01	+ .79244 E+00	+ .73872 E+00
+ .12805 E+00	+ .64681 E+00	+ .21938 E+01	+ .23919 E+01	+ .81164 E+00	+ .70528 E+00
+ .13631 E+00	+ .52166 E+00	+ .22895 E+01	+ .23856 E+01	+ .81448 E+00	+ .65908 E+00
+ .14510 E+00	+ .41360 E+00	+ .23583 E+01	+ .23615 E+01	+ .79925 E+00	+ .60193 E+00

R	P (1S)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .15446 E+00	+ .32205 E+00	- .23983 E+01	+ .23191 E+01	- .76454 E+00	+ .53094 E+00
+ .16442 E+00	+ .24603 E-00	- .24082 E+01	+ .22584 E+01	- .70936 E+00	+ .44678 E+00
+ .17502 E+00	+ .18421 E-00	- .23877 E+01	+ .21798 E+01	- .63322 E+00	+ .34962 E+00
+ .18631 E+00	+ .13504 E-00	- .23373 E+01	+ .20843 E+01	- .53621 E+00	+ .23999 E+00
+ .19833 E+00	+ .96819 E-01	- .22584 E+01	+ .19733 E+01	- .41908 E+00	+ .11883 E+00
+ .21112 E+00	+ .67817 E-01	- .21535 E+01	+ .18488 E+01	- .28330 E+00	- .12481 E-01
+ .22473 E+00	+ .46360 E-01	- .20256 E+01	+ .17131 E+01	- .13109 E+00	- .15214 E+00
+ .23923 E+00	+ .30900 E-01	- .18788 E+01	+ .15690 E+01	+ .34630 E-01	- .29790 E+00
+ .25465 E+00	+ .20061 E-01	- .17174 E+01	+ .14194 E+01	+ .21022 E+00	- .44715 E+00
+ .27108 E+00	+ .12674 E-01	- .15465 E+01	+ .12675 E+01	+ .39146 E+00	- .59689 E+00
+ .28856 E+00	+ .77850 E-02	- .13710 E+01	+ .11165 E+01	+ .57364 E+00	- .74391 E+00
+ .30717 E+00	+ .46425 E-02	- .11958 E+01	+ .96955 E+00	+ .75176 E+00	- .88481 E+00
+ .32698 E+00	+ .26815 E-02	- .10255 E+01	+ .82933 E+00	+ .92074 E+00	- .10162 E+01
+ .34807 E+00	+ .14927 E-02	- .86420 E+00	+ .69826 E+00	+ .10756 E+01	- .11347 E+01
+ .37052 E+00	+ .79187 E-03	- .71508 E+00	+ .57828 E+00	+ .18117 E+01	- .12374 E+01
+ .39442 E+00	+ .38973 E-03	- .58057 E+00	+ .47071 E+00	+ .13252 E+01	- .13216 E+01
+ .41985 E+00	+ .16466 E-03	- .46219 E+00	+ .37632 E+00	+ .14128 E+01	- .13852 E+01
+ .44693 E+00	+ .42855 E-04	- .36053 E+00	+ .29529 E+00	+ .14725 E+01	- .14268 E+01
+ .47576 E+00	- .20303 E-04	- .27538 E+00	+ .22727 E+00	+ .15030 E+01	- .14456 E+01
+ .50644 E+00	- .50182 E-04	- .20584 E+00	+ .17146 E+00	+ .15045 E+01	- .14418 E+01
+ .53910 E+00	- .61746 E-04	- .15049 E+00	+ .12673 E+00	+ .14782 E+01	- .14161 E+01
+ .57387 E+00	- .63118 E-04	- .10757 E+00	+ .91735 E-01	+ .14264 E+01	- .13700 E+01
+ .61088 E+00	- .59001 E-04	- .73157 E-01	+ .65023 E-01	+ .13523 E+01	- .13058 E+01
+ .65028 E+00	- .52162 E-04	- .51336 E-01	+ .45135 E-01	+ .12596 E+01	- .12262 E+01
+ .69222 E+00	- .44264 E-04	- .34295 E-01	+ .30699 E-01	+ .11528 E+01	- .11341 E+01
+ .73687 E+00	- .36311 E-04	- .22430 E-01	+ .20482 E-01	+ .10364 E+01	- .10331 E+01
+ .78439 E+00	- .28888 E-04	- .14386 E-01	+ .13429 E-01	+ .91512 E+00	- .92654 E+00
+ .83498 E+00	- .22309 E-04	- .90689 E-02	+ .86775 E-02	+ .79318 E+00	- .81777 E+00
+ .88883 E+00	- .16704 E-04	- .56361 E-02	+ .55466 E-02	+ .67454 E+00	- .70998 E+00
+ .94616 E+00	- .12088 E-04	- .34646 E-02	+ .35235 E-02	+ .56249 E+00	- .60600 E+00
+ .10072 E+01	- .83993 E-05	- .21128 E-02	+ .22361 E-02	+ .45964 E+00	- .50823 E+00
+ .10721 E+01	- .55388 E-05	- .12799 E-02	+ .14245 E-02	+ .36777 E+00	- .41852 E+00
+ .11413 E+01	- .33869 E-05	- .76893 E-03	+ .91413 E-03	+ .28792 E+00	- .33818 E+00
+ .12149 E+01	- .18208 E-05	- .45503 E-03	+ .59151 E-03	+ .22036 E+00	- .26796 E+00
+ .12932 E+01	- .72460 E-06	- .26136 E-03	+ .38529 E-03	+ .16476 E+00	- .20805 E+00
+ .13766 E+01	- .90059 E-08	- .14149 E-03	+ .25155 E-03	+ .2026 E+00	- .15818 E+00
+ .14654 E+01	+ .00000 E+00	- .67539 E-04	+ .16361 E-03	+ .85629 E-01	- .11770 E+00
+ .15599 E+01	+ .00000 E+00	- .22630 E-04	+ .10524 E-03	+ .59457 E-01	- .85658 E+01

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .16606 E+01	+ .00000 E+00	+ .36895 E-05	+ .66414 E-04	+ .40256 E-04	- .60953 E-01
+ .17677 E+01	+ .00000 E+00	+ .18077 E-04	+ .40722 E-04	+ .26588 E-04	- .42401 E-01
+ .18817 E+01	+ .00000 E+00	+ .24886 E-04	+ .23947 E-04	+ .17154 E-04	- .28838 E-01
+ .20030 E+01	+ .00000 E+00	+ .27007 E-04	+ .13226 E-04	+ .10839 E-04	- .19188 E-01
+ .21322 E+01	+ .00000 E+00	+ .26361 E-04	+ .65784 E-05	+ .67381 E-05	- .12506 E-01
+ .22697 E+01	+ .00000 E+00	+ .24211 E-04	+ .26255 E-05	+ .41508 E-05	- .80005 E-02
+ .24161 E+01	+ .00000 E+00	+ .21366 E-04	+ .41387 E-06	+ .23598 E-06	- .50405 E-02
+ .25719 E+01	+ .00000 E+00	+ .18326 E-04	- .70747 E-06	+ .16008 E-06	- .31416 E-02
+ .27378 E+01	+ .00000 E+00	+ .15381 E-04	- .11743 E-05	+ .10289 E-06	- .19486 E-02
+ .29144 E+01	+ .00000 E+00	+ .12687 E-04	- .12710 E-05	+ .68650 E-06	- .12111 E-02
+ .31023 E+01	+ .00000 E+00	+ .10314 E-04	- .11769 E-05	+ .47708 E-06	- .75942 E-03
+ .33024 E+01	+ .00000 E+00	+ .82787 E-05	- .10007 E-05	+ .34377 E-06	- .48312 E-03
+ .35154 E+01	+ .00000 E+00	+ .65689 E-05	- .80439 E-06	+ .25438 E-06	- .31268 E-03
+ .37421 E+01	+ .00000 E+00	+ .51562 E-05	- .62036 E-06	+ .19122 E-06	- .20574 E-03
+ .39835 E+01	+ .00000 E+00	+ .40052 E-05	- .46294 E-06	+ .14468 E-06	- .13713 E-03
+ .42404 E+01	+ .00000 E+00	+ .30793 E-05	- .33605 E-06	+ .10944 E-06	- .92097 E-04
+ .45139 E+01	+ .00000 E+00	+ .23430 E-05	- .23811 E-06	+ .82411 E-06	- .61971 E-04
+ .48050 E+01	+ .00000 E+00	+ .17640 E-05	- .16499 E-06	+ .61603 E-06	- .41574 E-04
+ .51149 E+01	+ .00000 E+00	+ .13138 E-05	+ .00000 E+00	+ .45636 E-06	- .27709 E-04
+ .54448 E+01	+ .00000 E+00	+ .96754 E-06	+ .00000 E+00	+ .33464 E-06	- .18280 E-04
+ .57959 E+01	+ .00000 E+00	+ .70421 E-06	+ .00000 E+00	+ .24270 E-06	- .11927 E-04
+ .61697 E+01	+ .00000 E+00	+ .50626 E-06	+ .00000 E+00	+ .17394 E-06	- .76853 E-05
+ .65676 E+01	+ .00000 E+00	+ .35927 E-06	+ .00000 E+00	+ .12310 E-06	- .48869 E-05
+ .69912 E+01	+ .00000 E+00	+ .25149 E-06	+ .00000 E+00	+ .85965 E-06	- .30631 E-05
+ .74421 E+01	+ .00000 E+00	+ .17352 E-06	+ .00000 E+00	+ .59182 E-06	- .18956 E-05
+ .79221 E+01	+ .00000 E+00	+ .11763 E-06	+ .00000 E+00	+ .40132 E-06	- .11554 E-05
+ .84330 E+01	+ .00000 E+00	+ .82563 E-07	+ .00000 E+00	+ .26779 E-06	- .69215 E-06
+ .89769 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .17565 E-06	- .39211 E-06
+ .95558 E+01	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .11313 E-06	+ .00000 E+00
+ .10172 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .71461 E-06	+ .00000 E+00
+ .10820 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .44216 E-06	+ .00000 E+00
+ .11527 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .26672 E-06	+ .00000 E+00
+ .12270 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00

E	+ .97943 E+03	+ .12972 E+03	+ .11643 E+03	+ .19066 E+02	+ .14281 E+02
<R>+0-2	+ .23805 E+04	+ .23917 E+03	+ .79143 E+02	+ .59054 E+02	+ .12605 E+02
<R>+0-1	+ .34498 E+02	+ .76762 E+01	+ .76237 E+01	+ .25347 E+01	+ .24170 E+01
<R>+0 1	+ .43673 E-01	+ .19311 E+00	+ .16714 E+00	+ .53891 E+00	+ .56632 E+00
<R>+0 2	+ .25544 E-02	+ .43908 E-01	+ .34132 E-01	+ .35863 E+00	+ .37465 E+00

R	P(3D)	P(4B)	P(4P)
+ .14225 E-02	+ .19571 E-05	+ .20567 E-01	+ .22351 E-03
+ .15142 E-02	+ .23582 E-05	+ .21823 E-01	+ .25287 E-03
+ .16119 E-02	+ .28413 E-05	+ .23150 E-01	+ .28605 E-03
+ .17158 E-02	+ .34231 E-05	+ .24552 E-01	+ .32354 E-03
+ .18265 E-02	+ .41238 E-05	+ .26033 E-01	+ .36592 E-03
+ .19443 E-02	+ .49674 E-05	+ .27596 E-01	+ .41378 E-03
+ .20697 E-02	+ .59832 E-05	+ .29244 E-01	+ .46785 E-03
+ .22032 E-02	+ .72059 E-05	+ .30983 E-01	+ .52891 E-03
+ .23453 E-02	+ .86776 E-05	+ .32814 E-01	+ .59784 E-03
+ .24965 E-02	+ .10449 E-04	+ .34742 E-01	+ .67565 E-03
+ .26576 E-02	+ .12580 E-04	+ .36769 E-01	+ .76346 E-03
+ .28290 E-02	+ .15145 E-04	+ .38901 E-01	+ .86252 E-03
+ .30114 E-02	+ .18229 E-04	+ .41139 E-01	+ .97425 E-03
+ .32056 E-02	+ .21939 E-04	+ .43487 E-01	+ .11002 E-02
+ .34124 E-02	+ .26408 E-04	+ .45948 E-01	+ .12422 E-02
+ .36324 E-02	+ .31764 E-04	+ .48523 E-01	+ .14022 E-02
+ .38667 E-02	+ .38211 E-04	+ .51216 E-01	+ .15824 E-02
+ .41161 E-02	+ .45958 E-04	+ .54028 E-01	+ .17853 E-02
+ .43816 E-02	+ .55267 E-04	+ .56959 E-01	+ .20136 E-02
+ .46642 E-02	+ .66447 E-04	+ .60010 E-01	+ .22705 E-02
+ .49650 E-02	+ .79872 E-04	+ .63181 E-01	+ .25593 E-02
+ .52852 E-02	+ .95989 E-04	+ .66469 E-01	+ .28838 E-02
+ .56260 E-02	+ .11533 E-03	+ .69873 E-01	+ .32483 E-02
+ .59889 E-02	+ .13854 E-03	+ .73387 E-01	+ .36575 E-02
+ .63751 E-02	+ .16636 E-03	+ .77008 E-01	+ .41166 E-02
+ .67863 E-02	+ .19973 E-03	+ .80727 E-01	+ .46313 E-02
+ .72240 E-02	+ .23971 E-03	+ .84536 E-01	+ .52079 E-02
+ .76899 E-02	+ .28760 E-03	+ .88423 E-01	+ .58533 E-02
+ .81859 E-02	+ .34493 E-03	+ .92376 E-01	+ .65754 E-02
+ .87138 E-02	+ .41358 E-03	+ .96378 E-01	+ .73823 E-02
+ .92758 E-02	+ .49568 E-03	+ .10041 E+00	+ .82834 E-02
+ .98740 E-02	+ .59383 E-03	+ .10445 E+00	+ .92885 E-02
+ .10511 E-01	+ .71111 E-03	+ .10847 E+00	+ .10488 E-01
+ .11189 E-01	+ .85117 E-03	+ .11244 E+00	+ .11655 E-01
+ .11910 E-01	+ .10183 E-02	+ .11633 E+00	+ .13041 E-01
+ .12678 E-01	+ .12177 E-02	+ .12010 E+00	+ .14580 E-01
+ .13496 E-01	+ .14552 E-02	+ .12371 E+00	+ .16287 E-01
+ .14367 E-01	+ .17381 E-02	+ .12710 E+00	+ .18176 E-01
+ .15293 E-01	+ .20748 E-02	+ .13023 E+00	+ .20264 E-01
+ .16280 E-01	+ .24750 E-02	+ .13304 E+00	+ .22569 E-01
+ .17329 E-01	+ .29504 E-02	+ .13545 E+00	+ .25107 E-01

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)
+.18447 E-01	+.35146 E-02	+.13741 E+00	+.27898 E-01
+.19637 E-01	+.41834 E-02	+.13883 E+00	+.30960 E-01
+.20903 E-01	+.49753 E-02	+.13964 E+00	+.34311 E-01
+.22251 E-01	+.59121 E-02	+.13974 E+00	+.37970 E-01
+.23687 E-01	+.70187 E-02	+.13906 E+00	+.41955 E-01
+.25214 E-01	+.83244 E-02	+.13749 E+00	+.46281 E-01
+.26840 E-01	+.98628 E-02	+.13494 E+00	+.50965 E-01
+.28571 E-01	+.11673 E-01	+.13131 E+00	+.56017 E-01
+.30414 E-01	+.13799 E-01	+.12651 E+00	+.61447 E-01
+.32376 E-01	+.16293 E-01	+.12044 E+00	+.67259 E-01
+.34464 E-01	+.19212 E-01	+.11303 E+00	+.73453 E-01
+.36686 E-01	+.22624 E-01	+.10418 E+00	+.80021 E-01
+.39053 E-01	+.26603 E-01	+.93830 E-01	+.86948 E-01
+.41571 E-01	+.31235 E-01	+.81936 E-01	+.94210 E-01
+.44252 E-01	+.36614 E-01	+.68462 E-01	+.10177 E+00
+.47106 E-01	+.42846 E-01	+.53405 E-01	+.10958 E+00
+.50144 E-01	+.50051 E-01	+.36788 E-01	+.11758 E+00
+.53378 E-01	+.58356 E-01	+.18673 E-01	+.12569 E+00
+.56821 E-01	+.67904 E-01	+.84077 E-03	+.13381 E+00
+.60486 E-01	+.78849 E-01	-.21605 E-01	+.14183 E+00
+.64387 E-01	+.91356 E-01	-.43422 E-01	+.14961 E+00
+.68539 E-01	+.10560 E+00	-.66039 E-01	+.15700 E+00
+.72960 E-01	+.12177 E+00	-.89142 E-01	+.16381 E+00
+.77665 E-01	+.14005 E+00	-.11236 E+00	+.16985 E+00
+.82674 E-01	+.16065 E+00	-.13325 E+00	+.17491 E+00
+.88006 E-01	+.18375 E+00	-.15733 E+00	+.17873 E+00
+.93682 E-01	+.20951 E+00	-.17805 E+00	+.18107 E+00
+.99724 E-01	+.23823 E+00	-.19680 E+00	+.18167 E+00
+.10616 E+00	+.26995 E+00	-.21296 E+00	+.18027 E+00
+.11300 E+00	+.30485 E+00	-.22586 E+00	+.17659 E+00
+.12029 E+00	+.34305 E+00	-.23486 E+00	+.17839 E+00
+.12805 E+00	+.38459 E+00	-.23938 E+00	+.16143 E+00
+.13631 E+00	+.42949 E+00	-.23859 E+00	+.14953 E+00
+.14510 E+00	+.47769 E+00	-.23221 E+00	+.13453 E+00
+.15446 E+00	+.52907 E+00	-.21972 E+00	+.11634 E+00
+.16442 E+00	+.58340 E+00	-.20886 E+00	+.94960 E-01
+.17502 E+00	+.64037 E+00	-.17550 E+00	+.78454 E-01
+.18631 E+00	+.69956 E+00	-.14373 E+00	+.43803 E-01
+.19833 E+00	+.76844 E+00	-.18587 E+00	+.12895 E-01
+.21112 E+00	+.82237 E+00	-.62483 E-01	+.19461 E-01
+.22473 E+00	+.88458 E+00	-.14394 E-01	-.53528 E-01

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)
+23923 E+00	+94623 E+00	+37300 E-01	-88646 E-01
+25465 E+00	+10063 E-01	+91246 E-01	-12404 E+00
+27108 E+00	+10638 E+01	+14586 E-00	-15881 E+00
+28856 E+00	+11127 E-01	+19936 E+00	-19199 E+00
+30717 E+00	+11667 E-01	+24984 E+00	-22255 E+00
+32698 E+00	+12099 E-01	+29530 E+00	-24943 E+00
+34807 E-00	+12460 E+01	+33370 E+00	-27158 E+00
+37052 E+00	+12742 E+01	+36341 E+00	-28799 E+00
+39442 E+00	+12937 E-01	+38251 E+00	-29778 E+00
+41985 E+00	+13036 E-01	+38966 E+00	-30017 E+00
+44693 E+00	+13037 E-01	+38381 E+00	-29456 E+00
+47576 E+00	+12936 E-01	+36431 E+00	-28056 E+00
+50644 E+00	+12733 E+01	+33098 E+00	-25799 E+00
+53910 E+00	+12430 E-01	+28409 E+00	-22691 E+00
+57387 E+00	+12034 E+01	+22448 E+00	-18761 E+00
+61088 E+00	+11549 E+01	+15311 E+00	-14066 E+00
+65028 E+00	+10986 E-01	+71847 E-01	-86627 E-01
+69222 E+00	+10355 E-01	-17406 E-01	-26622 E-01
+73687 E+00	+96685 E+00	-11238 E+00	+38383 E-01
+78439 E+00	+89393 E+00	-21056 E+00	+10689 E+00
+83498 E+00	+81816 E+00	-38934 E+00	+17775 E+00
+88883 E+00	+74093 E+00	-40602 E+00	+24941 E+00
+94616 E+00	+66365 E-00	-49797 E+00	+32035 E+00
+10072 E+01	+58766 E-00	-58270 E+00	+38905 E+00
+10721 E+01	+51421 E+00	-65796 E+00	+45400 E+00
+11413 E+01	+44439 E+00	-72183 E+00	+51380 E+00
+12149 E+01	+37913 E-00	-77279 E+00	+56719 E+00
+12932 E+01	+31916 E-00	-80982 E+00	+61307 E+00
+13766 E+01	+26499 E+00	-83238 E+00	+65060 E+00
+14654 E+01	+21689 E+00	-84049 E+00	+67918 E+00
+15599 E+01	+17493 E-00	-83466 E+00	+69848 E+00
+16406 E+01	+13898 E-00	-81588 E+00	+70849 E+00
+17677 E+01	+10873 E-00	-78552 E+00	+70944 E+00
+18817 E+01	+83738 E-01	-74529 E+00	+70183 E+00
+20030 E+01	+63476 E-01	-69709 E+00	+68637 E+00
+21322 E+01	+47356 E-01	-64292 E+00	+66392 E+00
+22697 E+01	+34773 E-01	-58480 E+00	+63549 E+00
+24161 E+01	+28137 E-01	-52467 E+00	+60214 E+00
+25719 E+01	+17899 E-01	-46429 E+00	+56495 E+00
+27378 E+01	+12365 E-01	-40522 E+00	+52581 E+00
+29144 E+01	+87061 E-02	-34876 E+00	+48333 E+00

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)
+ .31023 E+01	+ .59649 E-02	- .29594 E+00	+ .44084 E+00
+ .33024 E+01	+ .40501 E-02	- .24753 E+00	+ .39839 E+00
+ .35154 E+01	+ .27330 E-02	- .20400 E+00	+ .35672 E+00
+ .37421 E+01	+ .18385 E-02	- .16559 E+00	+ .31645 E+00
+ .39835 E+01	+ .12371 E-02	- .13233 E+00	+ .27806 E+00
- .42404 E+01	+ .83584 E-03	- .10407 E+00	+ .24201 E+00
+ .45139 E+01	+ .56668 E-03	- .80491 E-01	+ .20855 E+00
+ .48050 E+01	+ .38702 E-03	- .61197 E-01	+ .17787 E+00
+ .51149 E+01	+ .26591 E-03	- .45712 E-01	+ .15010 E+00
+ .54448 E+01	+ .18351 E-03	- .33529 E-01	+ .12526 E+00
+ .57959 E+01	+ .12689 E-03	- .24138 E-01	+ .10331 E+00
+ .61697 E+01	+ .87641 E-04	- .17047 E-01	+ .84176 E-01
+ .65676 E+01	+ .60285 E-04	- .11806 E-01	+ .67782 E-01
+ .69912 E+01	+ .41182 E-04	- .80162 E-02	+ .53714 E-01
+ .74421 E+01	+ .27868 E-04	- .53349 E-02	+ .42004 E-01
+ .79221 E+01	+ .18641 E-04	- .34798 E-02	+ .32347 E-01
+ .84330 E+01	+ .12302 E-04	- .22246 E-02	+ .24588 E-01
+ .89769 E+01	+ .79964 E-05	- .13940 E-02	+ .18251 E-01
+ .95558 E+01	+ .51114 E-05	- .85637 E-03	+ .13344 E-01
+ .10172 E+02	+ .32082 E-05	- .51580 E-03	+ .95680 E-02
+ .10A28 E+02	+ .19734 E-05	- .30460 E-03	+ .67192 E-02
+ .11527 E+02	+ .11832 E-05	- .17632 E-03	+ .46154 E-02
+ .12270 E+02	+ .65956 E-06	- .10001 E-03	+ .30965 E-02
+ .13061 E+02	+ .00000 E+00	- .55525 E-04	+ .20260 E-02
+ .13904 E+02	+ .00000 E+00	- .30140 E-04	+ .12997 E-02
+ .14800 E+02	+ .00000 E+00	- .15970 E-04	+ .79920 E-03
+ .15755 E+02	+ .00000 E+00	- .82430 E-05	+ .48010 E-03
+ .16771 E+02	+ .00000 E+00	- .41338 E-05	+ .27925 E-03
+ .17853 E+02	+ .00000 E+00	- .20001 E-05	+ .15694 E-03
+ .19004 E+02	+ .00000 E+00	- .89983 E-06	+ .85029 E-04
+ .20230 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .44307 E-04
+ .21534 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .22149 E-04
+ .22923 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .10396 E-04
+ .24402 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .48430 E-05
+ .25975 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .21221 E-05
	+ .57642 E+01	+ .13719 E+01	+ .27866 E+00
	+ .50622 E+01	+ .37478 E+01	+ .91225 E+00
	+ .21589 E+01	+ .73361 E+00	+ .57565 E+00
	+ .58427 E+00	+ .17861 E+01	+ .23043 E+01
	+ .42828 E+00	+ .36921 E+01	+ .64516 E+01

E
 <R>= 2
 <R>= 1
 <R>= 1
 <R>= 2

R	P (1S)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .93938 E-03	+ .68276 E+00	+ .22165 E+00	+ .30782 E-02	+ .98731 E-01	+ .14304 E-02
+ .99996 E-03	+ .72446 E+00	+ .23518 E+00	+ .34825 E-02	+ .10476 E+00	+ .16182 E-02
+ .10645 E-02	+ .76856 E+00	+ .24948 E+00	+ .39394 E-02	+ .11113 E+00	+ .18306 E-02
+ .11331 E-02	+ .81515 E+00	+ .26459 E+00	+ .44558 E-02	+ .11786 E+00	+ .20705 E-02
+ .12062 E-02	+ .86437 E+00	+ .28055 E+00	+ .50394 E-02	+ .12497 E+00	+ .23417 E-02
+ .12840 E-02	+ .91634 E+00	+ .29740 E+00	+ .56986 E-02	+ .13247 E+00	+ .26480 E-02
+ .13668 E-02	+ .97117 E+00	+ .31517 E+00	+ .64433 E-02	+ .14038 E+00	+ .29940 E-02
+ .14549 E-02	+ .10290 E+01	+ .33391 E+00	+ .72842 E-02	+ .14873 E+00	+ .33847 E-02
+ .15488 E-02	+ .10899 E+01	+ .35365 E+00	+ .82336 E-02	+ .15752 E+00	+ .38259 E-02
+ .16487 E-02	+ .11541 E+01	+ .37443 E+00	+ .93053 E-02	+ .16677 E+00	+ .43238 E-02
+ .17550 E-02	+ .12216 E+01	+ .39629 E+00	+ .10515 E-01	+ .17650 E+00	+ .48657 E-02
+ .18682 E-02	+ .12926 E+01	+ .41926 E+00	+ .11879 E-01	+ .18673 E+00	+ .55196 E-02
+ .19887 E-02	+ .13673 E+01	+ .44339 E+00	+ .13418 E-01	+ .19748 E+00	+ .62346 E-02
+ .21169 E-02	+ .14456 E+01	+ .46871 E+00	+ .15153 E-01	+ .20875 E+00	+ .70407 E-02
+ .22535 E-02	+ .15277 E+01	+ .49524 E+00	+ .17109 E-01	+ .22056 E+00	+ .79493 E-02
+ .23988 E-02	+ .16138 E+01	+ .52302 E+00	+ .19313 E-01	+ .23292 E+00	+ .89731 E-02
+ .25535 E-02	+ .17038 E+01	+ .55206 E+00	+ .21795 E-01	+ .24584 E+00	+ .10126 E-01
+ .27182 E-02	+ .17980 E+01	+ .58238 E+00	+ .24589 E-01	+ .25933 E+00	+ .11424 E-01
+ .28935 E-02	+ .18963 E+01	+ .61400 E+00	+ .27735 E-01	+ .27340 E+00	+ .12885 E-01
+ .30801 E-02	+ .19987 E+01	+ .64692 E+00	+ .31273 E-01	+ .28804 E+00	+ .14529 E-01
+ .32788 E-02	+ .21054 E+01	+ .68113 E+00	+ .35252 E-01	+ .30325 E+00	+ .16377 E-01
+ .34902 E-02	+ .22162 E+01	+ .71661 E+00	+ .39723 E-01	+ .31903 E+00	+ .18453 E-01
+ .37153 E-02	+ .23312 E+01	+ .75335 E+00	+ .44746 E-01	+ .33536 E+00	+ .20786 E-01
+ .39549 E-02	+ .24503 E+01	+ .79130 E+00	+ .50385 E-01	+ .35222 E+00	+ .23404 E-01
+ .42100 E-02	+ .25733 E+01	+ .83040 E+00	+ .56711 E-01	+ .36958 E+00	+ .26341 E-01
+ .44815 E-02	+ .27002 E+01	+ .87059 E+00	+ .63804 E-01	+ .38742 E+00	+ .29633 E-01
+ .47706 E-02	+ .28307 E+01	+ .91176 E+00	+ .71751 E-01	+ .40568 E+00	+ .33322 E-01
+ .50782 E-02	+ .29646 E+01	+ .95380 E+00	+ .80648 E-01	+ .42432 E+00	+ .37451 E-01
+ .54058 E-02	+ .31016 E+01	+ .99657 E+00	+ .90602 E-01	+ .44326 E+00	+ .42069 E-01
+ .57544 E-02	+ .32414 E+01	+ .10399 E+01	+ .10173 E+00	+ .46243 E+00	+ .47230 E-01
+ .61255 E-02	+ .33833 E+01	+ .10836 E+01	+ .11415 E+00	+ .48175 E+00	+ .52992 E-01
+ .65206 E-02	+ .35271 E+01	+ .11274 E+01	+ .12802 E+00	+ .50108 E+00	+ .59420 E-01
+ .69411 E-02	+ .36720 E+01	+ .11711 E+01	+ .14347 E+00	+ .52033 E+00	+ .66581 E-01
+ .73888 E-02	+ .38174 E+01	+ .12143 E+01	+ .16067 E+00	+ .53933 E+00	+ .74552 E-01
+ .78653 E-02	+ .39626 E+01	+ .12567 E+01	+ .17981 E+00	+ .55792 E+00	+ .83412 E-01
+ .83726 E-02	+ .41066 E+01	+ .12979 E+01	+ .20106 E+00	+ .57592 E+00	+ .93247 E-01
+ .89126 E-02	+ .42485 E+01	+ .13374 E+01	+ .22463 E+00	+ .59313 E+00	+ .10415 E+00

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .94874 E-02	+ .43872 E+01	+ .13748 E+01	+ .25074 E+00	+ .60929 E+00	+ .11622 E+00
+ .10099 E-01	+ .45217 E+01	+ .14094 E+01	+ .27961 E+00	+ .62416 E+00	+ .12956 E+00
+ .10751 E-01	+ .46506 E+01	+ .14407 E+01	+ .31150 E+00	+ .63745 E+00	+ .14428 E+00
+ .11444 E-01	+ .47726 E+01	+ .14680 E+01	+ .34664 E+00	+ .64885 E+00	+ .16048 E+00
+ .12182 E-01	+ .48864 E+01	+ .14905 E+01	+ .38531 E+00	+ .65801 E+00	+ .17829 E+00
+ .12968 E-01	+ .49903 E+01	+ .15076 E+01	+ .42777 E+00	+ .66457 E+00	+ .19782 E+00
+ .13804 E-01	+ .50830 E+01	+ .15182 E+01	+ .47429 E+00	+ .66814 E+00	+ .21919 E+00
+ .14694 E-01	+ .51627 E+01	+ .15216 E+01	+ .52515 E+00	+ .66830 E+00	+ .24251 E+00
+ .15642 E-01	+ .52279 E+01	+ .15168 E+01	+ .58061 E+00	+ .66462 E+00	+ .26788 E+00
+ .16651 E-01	+ .52770 E+01	+ .15029 E+01	+ .64094 E+00	+ .65664 E+00	+ .29542 E+00
+ .17725 E-01	+ .53085 E+01	+ .14788 E+01	+ .70637 E+00	+ .64390 E+00	+ .32520 E+00
+ .18868 E-01	+ .53208 E+01	+ .14436 E+01	+ .77711 E+00	+ .62594 E+00	+ .35729 E+00
+ .20085 E-01	+ .53127 E+01	+ .13962 E+01	+ .85335 E+00	+ .60229 E+00	+ .39175 E+00
+ .21380 E-01	+ .52828 E+01	+ .13358 E+01	+ .93523 E+00	+ .57251 E+00	+ .42859 E+00
+ .22759 E-01	+ .52303 E+01	+ .12613 E+01	+ .10228 E+01	+ .53618 E+00	+ .46779 E+00
+ .24227 E-01	+ .51543 E+01	+ .11720 E+01	+ .11161 E+01	+ .48293 E+00	+ .50930 E+00
+ .25789 E-01	+ .50544 E+01	+ .10672 E+01	+ .12151 E+01	+ .44244 E+00	+ .55298 E+00
+ .27453 E-01	+ .49305 E+01	+ .94618 E+00	+ .13195 E+01	+ .38448 E+00	+ .59867 E+00
+ .29223 E-01	+ .47829 E+01	+ .80871 E+00	+ .14291 E+01	+ .31892 E+00	+ .64611 E+00
+ .31108 E-01	+ .46123 E+01	+ .65459 E+00	+ .15434 E+01	+ .24576 E+00	+ .69497 E+00
+ .33114 E-01	+ .44198 E+01	+ .48394 E+00	+ .16619 E+01	+ .16513 E+00	+ .74481 E+00
+ .35250 E-01	+ .42070 E+01	+ .29720 E+00	+ .17838 E+01	+ .77367 E+00	+ .79511 E+00
+ .37523 E-01	+ .39760 E+01	+ .95163 E+00	+ .19083 E+01	+ .17019 E+01	+ .84520 E+00
+ .39943 E-01	+ .37293 E+01	+ .12098 E+00	+ .20341 E+01	+ .11727 E+00	+ .89431 E+00
+ .42520 E-01	+ .34699 E+01	+ .34962 E+00	+ .21601 E+01	+ .22239 E+00	+ .94154 E+00
+ .45262 E-01	+ .32009 E+01	+ .58667 E+00	+ .22847 E+01	+ .53109 E+00	+ .98584 E+00
+ .48181 E-01	+ .29261 E+01	+ .83561 E+00	+ .24062 E+01	+ .4182 E+00	+ .10260 E+01
+ .51288 E-01	+ .26491 E+01	+ .10874 E+01	+ .25228 E+01	+ .55278 E+00	+ .10608 E+01
+ .54596 E-01	+ .23738 E+01	+ .13407 E+01	+ .26324 E+01	+ .66159 E+00	+ .10886 E+01
+ .58117 E-01	+ .21041 E+01	+ .15915 E+01	+ .27329 E+01	+ .76603 E+00	+ .11084 E+01
+ .61866 E-01	+ .18435 E+01	+ .18357 E+01	+ .28221 E+01	+ .86334 E+00	+ .11180 E+01
+ .65856 E-01	+ .15954 E+01	+ .20688 E+01	+ .28977 E+01	+ .95059 E+00	+ .11160 E+01
+ .70103 E-01	+ .13628 E+01	+ .22862 E+01	+ .29575 E+01	+ .10247 E+01	+ .11006 E+01
+ .74624 E-01	+ .11481 E+01	+ .24832 E+01	+ .29993 E+01	+ .10826 E+01	+ .10704 E+01
+ .79437 E-01	+ .95311 E+00	+ .26553 E+01	+ .30212 E+01	+ .11210 E+01	+ .10238 E+01
+ .84560 E-01	+ .77397 E+00	+ .27983 E+01	+ .30217 E+01	+ .11370 E+01	+ .95952 E+00
+ .90014 E-01	+ .62621 E+00	+ .29086 E+01	+ .29993 E+01	+ .11278 E+01	+ .87646 E+00
+ .95819 E-01	+ .49466 E+00	+ .29830 E+01	+ .29534 E+01	+ .10911 E+01	+ .77395 E+00
+ .10200 E+00	+ .36355 E+00	+ .30195 E+01	+ .28836 E+01	+ .10251 E+01	+ .65172 E+00

R	P (IS)	P (2S)	P (2P)	P (3S)	P (3P)
+ .10850 E+00	+ .29161 E+00	- .30167 E+01	+ .27903 E+01	- .92872 E+00	+ .31001 E+00
+ .11558 E+00	+ .21714 E+00	- .29748 E+01	+ .26746 E+01	- .80176 E+00	+ .34968 E+00
+ .12303 E+00	+ .15816 E+00	- .28949 E+01	+ .25380 E+01	- .64498 E+00	+ .17221 E+00
+ .13097 E+00	+ .11256 E+00	- .27793 E+01	+ .23830 E+01	- .46026 E+00	- .20192 E-01
+ .13942 E+00	+ .78164 E-01	- .26316 E+01	+ .22125 E+01	- .25060 E+00	- .22461 E+00
+ .14841 E+00	+ .52891 E-01	- .24565 E+01	+ .20299 E+01	- .20205 E-01	- .43743 E+00
+ .15798 E+00	+ .34825 E-01	- .22596 E+01	+ .18393 E+01	+ .22564 E+00	- .65439 E+00
+ .16817 E+00	+ .22279 E-01	- .20470 E+01	+ .16447 E+01	+ .48064 E+00	- .87066 E+00
+ .17901 E+00	+ .13823 E-01	- .18253 E+01	+ .14503 E+01	+ .73769 E+00	- .10810 E+01
+ .19056 E+00	+ .82997 E-02	- .16010 E+01	+ .12602 E+01	+ .98918 E+00	- .12800 E+01
+ .20285 E+00	+ .48073 E-02	- .13803 E+01	+ .10782 E+01	+ .12272 E+01	- .14622 E+01
+ .21593 E+00	- .26717 E-02	- .11690 E+01	+ .90756 E+00	+ .14442 E+01	- .16223 E+01
+ .22986 E+00	- .14102 E-02	- .97166 E+00	+ .75096 E+00	+ .16328 E+01	- .17557 E+01
+ .24468 E+00	+ .69114 E-03	- .79204 E+00	+ .61028 E+00	+ .17870 E+01	- .18584 E+01
+ .26046 E+00	+ .29734 E-03	- .63264 E+00	+ .48665 E+00	+ .19019 E+01	- .19274 E+01
+ .27726 E+00	+ .91306 E-04	- .49466 E+00	+ .38043 E+00	+ .19741 E+01	- .19810 E+01
+ .29514 E+00	- .97741 E-05	- .37826 E+00	+ .29125 E+00	+ .20023 E+01	- .19586 E+01
+ .31418 E+00	- .53988 E-04	- .28260 E+00	+ .21814 E+00	+ .19869 E+01	- .19213 E+01
+ .33444 E+00	- .68331 E-04	- .20606 E+00	+ .15968 E+00	+ .19304 E+01	- .18513 E+01
+ .35601 E+00	- .67584 E-04	- .14647 E+00	+ .11411 E+00	+ .18370 E+01	- .17521 E+01
+ .37897 E+00	- .59731 E-04	- .10138 E+00	+ .79507 E-01	+ .17124 E+01	- .16286 E+01
+ .40341 E+00	- .49082 E-04	- .68240 E-01	+ .53953 E-01	+ .15636 E+01	- .14862 E+01
+ .42943 E+00	- .37966 E-04	- .44607 E-01	+ .35610 E-01	+ .13981 E+01	- .13310 E+01
+ .45713 E+00	- .27627 E-04	- .28272 E-01	+ .22825 E-01	+ .12237 E+01	- .11892 E+01
+ .48661 E+00	- .18683 E-04	- .17337 E-01	+ .14182 E-01	+ .10479 E+01	- .10069 E+01
+ .51799 E+00	- .11378 E-04	- .10256 E-01	+ .85196 E-02	+ .87762 E+00	- .84950 E+00
+ .55140 E+00	- .57216 E-05	- .58225 E-02	+ .49268 E-02	+ .71831 E+00	- .70173 E+00
+ .58696 E+00	- .15844 E-05	- .31428 E-02	+ .27211 E-02	+ .57424 E+00	- .56718 E+00
+ .62482 E+00	+ .12411 E-05	- .15817 E-02	+ .14124 E-02	+ .44811 E+00	- .44825 E+00
+ .66512 E+00	+ .29947 E-05	- .70767 E-03	+ .66334 E-03	+ .34113 E+00	- .34617 E+00
+ .70801 E+00	+ .39173 E-05	- .24095 E-03	+ .25177 E-03	+ .25320 E+00	- .26108 E+00
+ .75368 E+00	+ .42314 E-05	- .72210 E-05	+ .37077 E-04	+ .18316 E+00	- .19219 E+00
+ .80228 E+00	+ .41288 E-05	- .97702 E-04	+ .66285 E-04	+ .12987 E+00	- .13802 E+00
+ .85403 E+00	+ .37659 E-05	+ .13436 E-03	- .10863 E-03	+ .88604 E-01	- .96665 E-01
+ .90911 E+00	+ .32636 E-05	+ .13631 E-03	- .11874 E-03	+ .59253 E-01	- .66014 E-01
+ .96774 E+00	+ .27099 E-05	+ .12219 E-03	- .11269 E-03	+ .38621 E-01	- .43963 E-01
+ .10302 E+01	+ .21650 E-05	+ .10195 E-03	- .99362 E-04	+ .24559 E-01	- .28565 E-01
+ .10966 E+01	+ .16662 E-05	+ .80816 E-04	- .83592 E-04	+ .15261 E-01	- .18127 E-01
+ .11673 E+01	+ .12335 E-05	+ .61364 E-04	- .67942 E-04	+ .92870 E-02	- .11254 E-01

R P (1S) P (2S) P (2P) P (3S) P (3P)

*.12426 E+01	*.87429 E-06	*.44719 E-04	*.33720 E-04	*.53502 E-02	*.66527 E-02
*.13227 E+01	*.58765 E-06	*.31193 E-04	*.41420 E-04	*.32664 E-02	*.41866 E-02
*.14081 E+01	*.36738 E-06	*.20637 E-04	*.31238 E-04	*.18965 E-02	*.24316 E+02
*.14989 E+01	*.20451 E-06	*.12763 E-04	*.23056 E-04	*.10854 E-02	*.14284 E-02
*.15955 E+01	*.89220 E-07	*.70730 E-05	*.16657 E-04	*.60855 E-03	*.83488 E-03
*.16984 E+01	*.90498 E-08	*.31425 E-05	*.11774 E-04	*.32886 E-03	*.48588 E-03
*.18080 E+01	*.90000 E-08	*.56152 E-06	*.81332 E-05	*.16508 E-03	*.28056 E-03
*.19246 E+01	*.00000 E+00	*.10226 E-05	*.54806 E-05	*.69812 E-04	*.15933 E-03
*.20487 E+01	*.00000 E+00	*.18912 E-05	*.33924 E-05	*.15503 E-04	*.87500 E-04
*.21808 E+01	*.00000 E+00	*.22912 E-05	*.28805 E-05	*.14060 E-04	*.45058 E-04
*.23215 E+01	*.00000 E+00	*.23718 E-05	*.15923 E-05	*.12863 E-04	*.20364 E-04
*.24712 E+01	*.00000 E+00	*.22612 E-05	*.15923 E-05	*.28632 E-04	*.66036 E-05
*.26306 E+01	*.00000 E+00	*.20515 E-05	*.80813 E-06	*.34231 E-04	*.14243 E-05
*.28002 E+01	*.00080 E+00	*.17942 E-05	*.20924 E-06	*.34635 E-04	*.14243 E-05
*.29808 E+01	*.00000 E+00	*.15225 E-05	*.77452 E-07	*.32227 E-04	*.00000 E+00
*.31731 E+01	*.00000 E+00	*.12732 E-05	*.00000 E+00	*.28439 E-04	*.00000 E+00
*.33777 E+01	*.00000 E+00	*.10428 E-05	*.00000 E+00	*.20228 E-04	*.00000 E+00
*.35956 E+01	*.00000 E+00	*.84129 E-06	*.00000 E+00	*.16484 E-04	*.00000 E+00
*.38275 E+01	*.00000 E+00	*.66967 E-06	*.00000 E+00	*.13208 E-04	*.00000 E+00
*.40743 E+01	*.00000 E+00	*.52648 E-06	*.00000 E+00	*.10428 E-04	*.00000 E+00
*.45371 E+01	*.00000 E+00	*.31417 E-06	*.00000 E+00	*.81239 E-05	*.00000 E+00
*.46168 E+01	*.00000 E+00	*.23855 E-06	*.00000 E+00	*.62501 E-05	*.00000 E+00
*.49146 E+01	*.00000 E+00	*.17906 E-06	*.00000 E+00	*.47506 E-05	*.00000 E+00
*.52316 E+01	*.00000 E+00	*.13282 E-06	*.00000 E+00	*.35678 E-05	*.00000 E+00
*.55690 E+01	*.00000 E+00	*.97329 E-07	*.00000 E+00	*.26472 E-05	*.00000 E+00
*.59281 E+01	*.00000 E+00	*.78444 E-07	*.00000 E+00	*.19400 E-05	*.00000 E+00
*.63105 E+01	*.00000 E+00	*.50052 E-07	*.00000 E+00	*.14037 E-05	*.00000 E+00
*.67174 E+01	*.00000 E+00	*.37640 E-07	*.00000 E+00	*.10023 E-05	*.00000 E+00
*.71507 E+01	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.70574 E-06	*.00000 E+00
*.76119 E+01	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.48973 E-06	*.00000 E+00
*.81028 E+01	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.33464 E-06	*.00000 E+00
*.86234 E+01	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.22499 E-06	*.00000 E+00
*.91817 E+01	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.14884 E-06	*.00000 E+00
*.97738 E+01	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.10031 E-06	*.00000 E+00
*.10404 E+02	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.00000 E+00	*.00000 E+00

E	*.23538 E+04	*.36131 E+03	*.33873 E+03	*.75281 E+02	*.65658 E+02
R>>>-2	*.54987 E+04	*.58809 E+03	*.19435 E+03	*.11916 E+03	*.39661 E+02
R>>>-1	*.52467 E+02	*.12064 E+02	*.12045 E+02	*.44211 E+01	*.43372 E+01
R>>> 1	*.28678 E-01	*.12331 E+00	*.12331 E+00	*.32611 E+00	*.31701 E+00
R>>> 2	*.11000 E-02	*.17861 E-01	*.15457 E-01	*.18134 E+00	*.11633 E+00

R	P(3D)	P(4S)	P(4P)	P(4Q)	P(5S)	P(5P)
+ .93938 E-03	+ .38339 E-05	+ .44517 E-01	+ .62461 E-03	+ .15773 E-05	+ .14720 E-01	+ .17022 E-03
+ .99996 E-03	+ .46196 E-05	+ .47234 E-01	+ .70664 E-03	+ .19006 E-05	+ .15619 E-01	+ .19257 E-03
+ .10645 E-02	+ .55660 E-05	+ .50106 E-01	+ .79935 E-03	+ .22899 E-05	+ .16568 E-01	+ .21784 E-03
+ .11331 E-02	+ .67057 E-05	+ .53141 E-01	+ .90414 E-03	+ .27589 E-05	+ .17572 E-01	+ .24639 E-03
+ .12062 E-02	+ .80782 E-05	+ .56346 E-01	+ .10225 E-02	+ .33235 E-05	+ .18632 E-01	+ .27866 E-03
+ .12840 E-02	+ .97308 E-05	+ .59728 E-01	+ .11563 E-02	+ .40035 E-05	+ .19730 E-01	+ .31511 E-03
+ .13668 E-02	+ .11721 E-04	+ .63297 E-01	+ .13074 E-02	+ .48221 E-05	+ .20930 E-01	+ .35628 E-03
+ .14549 E-02	+ .14116 E-04	+ .67058 E-01	+ .14780 E-02	+ .58075 E-05	+ .22174 E-01	+ .40278 E-03
+ .15488 E-02	+ .16999 E-04	+ .71021 E-01	+ .16706 E-02	+ .69936 E-05	+ .23484 E-01	+ .45527 E-03
+ .16487 E-02	+ .20468 E-04	+ .75193 E-01	+ .18880 E-02	+ .84211 E-05	+ .24864 E-01	+ .51452 E-03
+ .17550 E-02	+ .24643 E-04	+ .79582 E-01	+ .21334 E-02	+ .10139 E-04	+ .26315 E-01	+ .58139 E-03
+ .18682 E-02	+ .29666 E-04	+ .84194 E-01	+ .24102 E-02	+ .12205 E-04	+ .27840 E-01	+ .65682 E-03
+ .19887 E-02	+ .35709 E-04	+ .89037 E-01	+ .27224 E-02	+ .14691 E-04	+ .29441 E-01	+ .74190 E-03
+ .21169 E-02	+ .42976 E-04	+ .94117 E-01	+ .30744 E-02	+ .17681 E-04	+ .31121 E-01	+ .83782 E-03
+ .22535 E-02	+ .51715 E-04	+ .99442 E-01	+ .34711 E-02	+ .21276 E-04	+ .32882 E-01	+ .94593 E-03
+ .23988 E-02	+ .62221 E-04	+ .10501 E+00	+ .39181 E-02	+ .25599 E-04	+ .34724 E-01	+ .10678 E-02
+ .25535 E-02	+ .74849 E-04	+ .11084 E+00	+ .44216 E-02	+ .30794 E-04	+ .36651 E-01	+ .12050 E-02
+ .27182 E-02	+ .90025 E-04	+ .11692 E+00	+ .49885 E-02	+ .37037 E-04	+ .38662 E-01	+ .13594 E-02
+ .28935 E-02	+ .10826 E-03	+ .12326 E+00	+ .56264 E-02	+ .44538 E-04	+ .40758 E-01	+ .15333 E-02
+ .30801 E-02	+ .13016 E-03	+ .12986 E+00	+ .63440 E-02	+ .53547 E-04	+ .42940 E-01	+ .17288 E-02
+ .32788 E-02	+ .15645 E-03	+ .13672 E+00	+ .71508 E-02	+ .64366 E-04	+ .45207 E-01	+ .19487 E-02
+ .34902 E-02	+ .18802 E-03	+ .14383 E+00	+ .80574 E-02	+ .77352 E-04	+ .47558 E-01	+ .21958 E-02
+ .37153 E-02	+ .22590 E-03	+ .15119 E+00	+ .90758 E-02	+ .92937 E-04	+ .49991 E-01	+ .24733 E-02
+ .39549 E-02	+ .27135 E-03	+ .15878 E+00	+ .10219 E-01	+ .11163 E-03	+ .52503 E-01	+ .27847 E-02
+ .42100 E-02	+ .32585 E-03	+ .16661 E+00	+ .11501 E-01	+ .13405 E-03	+ .55090 E-01	+ .31342 E-02
+ .44815 E-02	+ .39119 E-03	+ .17465 E+00	+ .12938 E-01	+ .16093 E-03	+ .57747 E-01	+ .35259 E-02
+ .47706 E-02	+ .46949 E-03	+ .18287 E+00	+ .14549 E-01	+ .19314 E-03	+ .60467 E-01	+ .39647 E-02
+ .50782 E-02	+ .56328 E-03	+ .19127 E+00	+ .16351 E-01	+ .23173 E-03	+ .63243 E-01	+ .44559 E-02
+ .54058 E-02	+ .67557 E-03	+ .19980 E+00	+ .18367 E-01	+ .27792 E-03	+ .66063 E-01	+ .50052 E-02
+ .57544 E-02	+ .80995 E-03	+ .20843 E+00	+ .20620 E-01	+ .33320 E-03	+ .68917 E-01	+ .56192 E-02
+ .61255 E-02	+ .97069 E-03	+ .21713 E+00	+ .23135 E-01	+ .39932 E-03	+ .71791 E-01	+ .63046 E-02
+ .65206 E-02	+ .11629 E-02	+ .22583 E+00	+ .25941 E-01	+ .47836 E-03	+ .74667 E-01	+ .70690 E-02

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)	P (4D)	P (5S)	P (5P)
+ .69411 E-02	+ .13925 E-02	+ .23448 E+00	+ .29066 E-01	+ .57280 E-03	+ .77528 E-01	+ .79207 E-02
+ .73888 E-02	+ .16666 E-02	+ .24303 E+00	+ .32545 E-01	+ .68557 E-03	+ .80352 E-01	+ .88685 E-02
+ .78653 E-02	+ .19938 E-02	+ .25138 E+00	+ .36411 E-01	+ .82012 E-03	+ .83113 E-01	+ .99220 E-02
+ .83726 E-02	+ .23839 E-02	+ .25947 E+00	+ .40702 E-01	+ .98057 E-03	+ .85784 E-01	+ .11091 E-01
+ .89126 E-02	+ .28488 E-02	+ .26719 E+00	+ .45460 E-01	+ .11718 E-02	+ .88334 E-01	+ .12388 E-01
+ .94874 E-02	+ .34023 E-02	+ .27443 E+00	+ .50725 E-01	+ .13994 E-02	+ .90726 E-01	+ .13822 E-01
+ .10099 E-01	+ .40608 E-02	+ .28108 E+00	+ .56543 E-01	+ .16702 E-02	+ .92923 E-01	+ .15407 E-01
+ .10751 E-01	+ .48436 E-02	+ .28701 E+00	+ .62960 E-01	+ .19921 E-02	+ .94880 E-01	+ .17156 E-01
+ .11444 E-01	+ .57732 E-02	+ .29208 E+00	+ .70026 E-01	+ .23743 E-02	+ .96551 E-01	+ .19081 E-01
+ .12182 E-01	+ .68761 E-02	+ .29613 E+00	+ .77789 E-01	+ .28277 E-02	+ .97884 E-01	+ .21196 E-01
+ .12968 E-01	+ .81831 E-02	+ .29899 E+00	+ .86300 E-01	+ .33650 E-02	+ .98824 E-01	+ .23514 E-01
+ .13804 E-01	+ .97304 E-02	+ .30049 E+00	+ .95608 E-01	+ .40009 E-02	+ .99313 E-01	+ .26050 E-01
+ .14694 E-01	+ .11560 E-01	+ .30044 E+00	+ .10376 E+00	+ .47528 E-02	+ .99286 E-01	+ .28816 E-01
+ .15642 E-01	+ .13720 E-01	+ .29863 E+00	+ .11681 E+00	+ .56406 E-02	+ .98680 E-01	+ .31825 E-01
+ .16651 E-01	+ .16268 E-01	+ .29487 E+00	+ .12879 E+00	+ .66874 E-02	+ .97424 E-01	+ .35088 E-01
+ .17725 E-01	+ .19269 E-01	+ .28894 E+00	+ .14174 E+00	+ .79199 E-02	+ .95451 E-01	+ .38615 E-01
+ .18868 E-01	+ .22797 E-01	+ .28062 E+00	+ .15569 E+00	+ .93688 E-02	+ .92689 E-01	+ .42413 E-01
+ .20085 E-01	+ .26939 E-01	+ .26972 E+00	+ .17065 E+00	+ .11069 E-01	+ .89069 E-01	+ .46487 E-01
+ .21380 E-01	+ .31793 E-01	+ .25603 E+00	+ .18664 E+00	+ .13062 E-01	+ .84524 E-01	+ .50838 E-01
+ .22759 E-01	+ .37471 E-01	+ .23936 E+00	+ .20363 E+00	+ .15391 E-01	+ .78991 E-01	+ .55462 E-01
+ .24227 E-01	+ .44101 E-01	+ .21953 E+00	+ .22159 E+00	+ .18111 E-01	+ .72415 E-01	+ .60351 E-01
+ .25789 E-01	+ .51826 E-01	+ .19642 E+00	+ .24047 E+00	+ .21277 E-01	+ .64750 E-01	+ .65487 E-01
+ .27453 E-01	+ .60806 E-01	+ .16992 E+00	+ .26018 E+00	+ .24957 E-01	+ .53962 E-01	+ .70847 E-01
+ .29223 E-01	+ .71223 E-01	+ .13996 E+00	+ .28061 E+00	+ .29222 E-01	+ .46033 E-01	+ .76399 E-01
+ .31108 E-01	+ .83274 E-01	+ .10657 E+00	+ .30158 E+00	+ .34154 E-01	+ .34965 E-01	+ .82098 E-01
+ .33114 E-01	+ .97182 E-01	+ .69809 E-01	+ .32290 E+00	+ .39841 E-01	+ .22783 E-01	+ .87889 E-01
+ .35250 E-01	+ .11318 E+00	+ .29837 E-01	+ .34433 E+00	+ .46378 E-01	+ .95396 E-02	+ .93703 E-01
+ .37523 E-01	+ .13154 E+00	- .13093 E-01	+ .36555 E+00	+ .53870 E-01	- .46794 E-02	+ .99457 E-01
+ .39943 E-01	+ .15254 E+00	- .58618 E-01	+ .38622 E+00	+ .62428 E-01	- .19753 E-01	+ .10505 E+00
+ .42520 E-01	+ .17647 E+00	- .10626 E+00	+ .40590 E+00	+ .72168 E-01	- .35521 E-01	+ .11037 E+00
+ .45262 E-01	+ .20365 E+00	- .15540 E+00	+ .42413 E+00	+ .83210 E-01	- .51778 E-01	+ .11529 E+00
+ .48181 E-01	+ .23439 E+00	- .20529 E+00	+ .44035 E+00	+ .95677 E-01	- .68274 E-01	+ .11965 E+00
+ .51288 E-01	+ .26903 E+00	- .25505 E+00	+ .45397 E+00	+ .10969 E+00	- .84711 E-01	+ .12329 E+00
+ .54596 E-01	+ .30787 E+00	- .30364 E+00	+ .46432 E+00	+ .12537 E+00	- .10074 E+00	+ .12603 E+00

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)	P (4D)	P (5S)	P (5P)
+ .58117 E-01	+ .35125 E+00	- .34989 E+00	+ .47072 E+00	+ .14281 E+00	- .11598 E+00	+ .12767 E+00
+ .61866 E-01	+ .39942 E+00	- .39252 E+00	+ .47242 E+00	+ .16212 E+00	- .12999 E+00	+ .12802 E+00
+ .65856 E-01	+ .45265 E+00	- .43011 E+00	+ .46866 E+00	+ .18336 E+00	- .14231 E+00	+ .12687 E+00
+ .70103 E-01	+ .51113 E+00	- .46121 E+00	+ .45871 E+00	+ .20658 E+00	- .15244 E+00	+ .12401 E+00
+ .74624 E-01	+ .57497 E+00	- .48430 E+00	+ .44185 E+00	+ .23176 E+00	- .15988 E+00	+ .11925 E+00
+ .79437 E-01	+ .64421 E+00	- .49789 E+00	+ .41741 E+00	+ .25887 E+00	- .16413 E+00	+ .11241 E+00
+ .84560 E-01	+ .71876 E+00	- .50056 E+00	+ .38484 E+00	+ .28780 E+00	- .16472 E+00	+ .10334 E+00
+ .90014 E-01	+ .79842 E+00	- .49103 E+00	+ .34374 E+00	+ .31837 E+00	- .16122 E+00	+ .91924 E-01
+ .95819 E-01	+ .88280 E+00	- .46822 E+00	+ .29387 E+00	+ .35032 E+00	- .15328 E+00	+ .78111 E-01
+ .10200 E+00	+ .97136 E+00	- .43137 E+00	+ .23522 E+00	+ .38330 E+00	- .14065 E+00	+ .61407 E-01
+ .10858 E+00	+ .10634 E+01	- .38009 E+00	+ .16809 E+00	+ .41685 E+00	- .12320 E+00	+ .43395 E-01
+ .11558 E+00	+ .11579 E+01	- .31447 E+00	+ .93075 E-01	+ .45040 E+00	- .10098 E+00	+ .22751 E-01
+ .12303 E+00	+ .12537 E+01	- .23513 E+00	+ .11130 E-01	+ .48327 E+00	- .74228 E-01	+ .25273 E-03
+ .13097 E+00	+ .13495 E+01	- .14332 E+00	- .76389 E-01	+ .51465 E+00	- .43370 E-01	+ .23712 E-01
+ .13942 E+00	+ .14437 E+01	- .40929 E-01	- .16772 E+00	+ .54362 E+00	- .90733 E-02	+ .48641 E-01
+ .14841 E+00	+ .15346 E+01	+ .69473 E-01	- .26071 E+00	+ .56915 E+00	+ .27762 E-01	- .73917 E-01
+ .15798 E+00	+ .16290 E+01	+ .18465 E+00	- .35280 E+00	+ .59011 E+00	+ .66009 E-01	- .98814 E-01
+ .16817 E+00	+ .16982 E+01	+ .30076 E+00	- .44111 E+00	+ .60532 E+00	+ .10433 E+00	- .12251 E+00
+ .17901 E+00	+ .17669 E+01	+ .41344 E+00	- .52248 E+00	+ .61353 E+00	+ .14120 E+00	- .14411 E+00
+ .19056 E+00	+ .18242 E+01	+ .51796 E+00	- .59359 E+00	+ .61350 E+00	+ .17499 E+00	- .16266 E+00
+ .20285 E+00	+ .18680 E+01	+ .60939 E+00	- .65107 E+00	+ .60404 E+00	+ .20398 E+00	- .17722 E+00
+ .21593 E+00	+ .18966 E+01	+ .68285 E+00	- .69165 E+00	+ .58404 E+00	+ .22647 E+00	- .18686 E+00
+ .22986 E+00	+ .19086 E+01	+ .73373 E+00	- .71233 E+00	+ .53255 E+00	+ .24089 E+00	- .19073 E+00
+ .24468 E+00	+ .19027 E+01	+ .75795 E+00	- .71054 E+00	+ .50883 E+00	+ .24584 E+00	- .18914 E+00
+ .26046 E+00	+ .18785 E+01	+ .75229 E+00	- .68430 E+00	+ .45239 E+00	+ .24026 E+00	- .17855 E+00
+ .27726 E+00	+ .18356 E+01	+ .71455 E+00	- .63244 E+00	+ .38307 E+00	+ .22347 E+00	- .16168 E+00
+ .29514 E+00	+ .17746 E+01	+ .64384 E+00	- .55464 E+00	+ .30106 E+00	+ .19327 E+00	- .13751 E+00
+ .31418 E+00	+ .16964 E+01	+ .54072 E+00	- .45164 E+00	+ .20700 E+00	+ .15603 E+00	- .10635 E+00
+ .33444 E+00	+ .16026 E+01	+ .40728 E+00	- .32524 E+00	+ .10193 E+00	+ .10673 E+00	- .68865 E-01
+ .35601 E+00	+ .14953 E+01	+ .24717 E+00	- .17834 E+00	- .12613 E-01	+ .48934 E-01	- .26045 E-01
+ .37897 E+00	+ .13771 E+01	+ .65525 E-01	- .14919 E-01	- .13466 E+00	- .15167 E-01	+ .20753 E-01
+ .40341 E+00	+ .12510 E+01	- .13121 E+00	+ .16012 E+00	- .26181 E+00	- .82858 E-01	+ .69857 E-01
+ .42943 E+00	+ .11202 E+01	- .33558 E+00	+ .34106 E+00	- .39124 E+00	- .15099 E+00	+ .11933 E+00
+ .45713 E+00	+ .98797 E+00	- .53947 E+00	+ .52168 E+00	- .51987 E+00	- .21611 E+00	+ .16703 E+00

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)	P (4D)	P (5S)	P (5P)
+ .48661 E+00	+ .85766 E+00	- .73456 E+00	+ .69550 E+00	- .64441 E+00	- .27466 E+00	+ .21072 E+00
+ .51799 E+00	+ .73225 E+00	- .91285 E+00	+ .85619 E+00	- .76150 E+00	- .32318 E+00	+ .24818 E+00
+ .55140 E+00	+ .61441 E+00	- .61671 E+01	+ .99789 E+00	- .86792 E+00	- .35850 E+00	+ .27732 E+00
+ .58696 E+00	+ .50627 E+00	- .11915 E+01	+ .11156 E+01	- .96070 E+00	- .37800 E+00	+ .29632 E+00
+ .62482 E+00	+ .40934 E+00	- .12817 E+01	+ .12054 E+01	- .10373 E+01	- .37975 E+00	+ .30372 E+00
+ .66512 E+00	+ .32454 E+00	- .13354 E+01	+ .12650 E+01	- .10958 E+01	- .36266 E+00	+ .29855 E+00
+ .70801 E+00	+ .25210 E+00	- .13523 E+01	+ .12932 E+01	- .11350 E+01	- .32659 E+00	+ .28033 E+00
+ .75368 E+00	+ .19173 E+00	- .13341 E+01	+ .12909 E+01	- .11542 E+01	- .27233 E+00	+ .24915 E+00
+ .80228 E+00	+ .14265 E+00	- .12842 E+01	+ .12599 E+01	- .11538 E+01	- .20152 E+00	+ .20566 E+00
+ .85403 E+00	+ .10375 E+00	- .12074 E+01	+ .12036 E+01	- .11346 E+01	- .11662 E+00	+ .15097 E+00
+ .90911 E+00	+ .73700 E-01	- .11095 E+01	+ .11261 E+01	- .11083 E+01	- .20704 E-01	+ .86650 E-01
+ .96774 E+00	+ .51095 E-01	- .99687 E+00	+ .10324 E+01	- .10470 E+01	+ .82719 E-01	+ .14608 E-01
+ .10302 E+01	+ .34542 E-01	- .87579 E+00	+ .92759 E+00	- .98302 E+00	+ .18987 E+00	- .62991 E-01
+ .10966 E+01	+ .22751 E-01	- .75228 E+00	+ .81673 E+00	- .90926 E+00	+ .29688 E+00	- .14382 E+00
+ .11673 E+01	+ .14587 E-01	- .63162 E+00	+ .70465 E+00	- .82855 E+00	+ .40002 E+00	- .22548 E+00
+ .12426 E+01	+ .90964 E-02	- .51816 E+00	+ .59554 E+00	- .74377 E+00	+ .49581 E+00	- .30559 E+00
+ .13227 E+01	+ .55120 E-02	- .41512 E+00	+ .49287 E+00	- .65764 E+00	+ .58117 E+00	- .38190 E+00
+ .14081 E+01	+ .32416 E-02	- .32458 E+00	+ .39926 E+00	- .57264 E+00	+ .65369 E+00	- .45233 E+00
+ .14989 E+01	+ .18469 E-02	- .24753 E+00	+ .31642 E+00	- .49095 E+00	+ .71119 E+00	- .51507 E+00
+ .15955 E+01	+ .10161 E-02	- .18399 E+00	+ .24522 E+00	- .41432 E+00	+ .75275 E+00	- .56864 E+00
+ .16984 E+01	+ .53622 E-03	- .13322 E+00	+ .18574 E+00	- .34410 E+00	+ .77780 E+00	- .61195 E+00
+ .18080 E+01	+ .26752 E-03	- .93903 E-01	+ .13745 E+00	- .28118 E+00	+ .78657 E+00	- .64431 E+00
+ .19246 E+01	+ .12184 E-03	- .64417 E-01	+ .99342 E-01	- .22601 E+00	+ .77992 E+00	- .66545 E+00
+ .20487 E+01	+ .45673 E-04	- .43005 E-01	+ .70114 E-01	- .17867 E+00	+ .75926 E+00	- .67550 E+00
+ .21808 E+01	+ .76803 E-05	- .27955 E-01	+ .48330 E-01	- .13890 E+00	+ .72647 E+00	- .67499 E+00
+ .23213 E+01	- .98897 E-05	- .17718 E-01	+ .32551 E-01	- .10618 E+00	+ .68371 E+00	- .66471 E+00
+ .24712 E+01	- .16826 E-04	- .10978 E-01	+ .21443 E-01	- .79813 E-01	+ .63328 E+00	- .64575 E+00
+ .26306 E+01	- .18408 E-04	- .66811 E-02	+ .13839 E-01	- .59002 E-01	+ .57755 E+00	- .61936 E+00
+ .28002 E+01	- .17443 E-04	- .40228 E-02	+ .87733 E-02	- .42909 E-01	+ .51878 E+00	- .58686 E+00
+ .29808 E+01	- .15400 E-04	- .24217 E-02	+ .54841 E-02	- .36713 E-01	+ .45904 E+00	- .54965 E+00
+ .31731 E+01	- .13035 E-04	- .14771 E-02	+ .33968 E-02	- .27653 E-01	+ .40015 E+00	- .50905 E+00
+ .33777 E+01	- .10726 E-04	- .92561 E-03	+ .20975 E-02	- .15053 E-01	+ .34362 E+00	- .46635 E+00
+ .35956 E+01	- .86429 E-05	- .60234 E-03	+ .12996 E-02	- .10333 E-01	+ .29065 E+00	- .42269 E+00
+ .38275 E+01	- .68495 E-05	- .40849 E-03	+ .81275 E-03	- .70171 E-02	+ .24211 E+00	- .37910 E+00

R	P (3D)	P (4S)	P (4P)	P (4D)	P (5S)	P (5P)
+ .40743 E+01	- .53524 E-05	- .28737 E-03	+ .51512 E-03	- .47255 E-02	+ .19853 E+00	- .33645 E+00
+ .43371 E+01	- .41305 E-05	- .20764 E-03	+ .33125 E-03	- .31640 E-02	+ .16021 E+00	- .29547 E+00
+ .46168 E+01	- .31505 E-05	- .15236 E-03	+ .21572 E-03	- .21122 E-02	+ .12718 E+00	- .25672 E+00
+ .49146 E+01	- .23761 E-05	- .11246 E-03	+ .14168 E-03	- .14097 E-02	+ .99250 E-01	- .22063 E+00
+ .52316 E+01	- .17722 E-05	- .82910 E-04	+ .93363 E-04	- .94264 E-03	+ .76108 E-01	- .18751 E+00
+ .55690 E+01	- .13068 E-05	- .60774 E-04	+ .61412 E-04	- .3228 E-03	+ .57312 E-01	- .15752 E+00
+ .59281 E+01	- .95254 E-06	- .44162 E-04	+ .40149 E-04	- .42548 E-03	+ .42357 E-01	- .13075 E+00
+ .63195 E+01	- .68595 E-06	- .31753 E-04	+ .26001 E-04	- .28696 E-03	+ .30703 E-01	- .10718 E+00
+ .67174 E+01	- .48776 E-06	- .22559 E-04	+ .16641 E-04	- .19359 E-03	+ .21816 E-01	- .86709 E-01
+ .71507 E+01	- .34224 E-06	- .15821 E-04	+ .10508 E-04	- .13029 E-03	+ .15187 E-01	- .69187 E-01
+ .76119 E+01	- .23713 E-06	- .10941 E-04	+ .65391 E-05	- .87235 E-04	+ .10352 E-01	- .54408 E-01
+ .81028 E+01	+ .00000 E+00	- .74541 E-05	+ .40075 E-05	- .37944 E-04	+ .69061 E-02	- .42134 E-01
+ .86254 E+01	+ .00000 E+00	- .49985 E-05	+ .24171 E-05	- .38083 E-04	+ .45077 E-02	- .32103 E-01
+ .91817 E+01	+ .00000 E+00	- .32957 E-05	+ .14338 E-05	- .24707 E-04	+ .28779 E-02	- .24043 E-01
+ .97738 E+01	+ .00000 E+00	- .21341 E-05	+ .83405 E-06	- .15791 E-04	+ .17967 E-02	- .17681 E-01
+ .10404 E+02	+ .00000 E+00	- .13557 E-05	+ .45801 E-06	- .99231 E-05	+ .10968 E-02	- .12752 E-01
+ .11075 E+02	+ .00000 E+00	- .84365 E-06	+ .00000 E+00	- .61203 E-05	+ .65460 E-03	- .90101 E-02
+ .11789 E+02	+ .00000 E+00	- .51373 E-06	+ .00000 E+00	- .36986 E-05	+ .38190 E-03	- .62282 E-02
+ .12550 E+02	+ .00000 E+00	- .30252 E-06	+ .00000 E+00	- .21856 E-05	+ .21776 E-03	- .42062 E-02
+ .13359 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .12561 E-05	+ .12138 E-03	- .27711 E-02
+ .14221 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .67103 E-06	+ .65970 E-04	- .17781 E-02
+ .15138 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .34993 E-04	- .11094 E-02
+ .16114 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .18080 E-04	- .67180 E-03
+ .17154 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .90825 E-05	- .39407 E-03
+ .18260 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .44248 E-05	- .22346 E-03
+ .19438 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .20781 E-05	- .12222 E-03
+ .20691 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .90893 E-06	- .64329 E-04
+ .22026 E+02	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	+ .00000 E+00	- .32500 E-04
E	+ .47984 E+02	+ .13901 E+02	+ .10361 E+02	+ .42162 E+01	+ .11126 E+01	+ .25832 E+00
<R>...-2	+ .21923 E+02	+ .24954 E+02	+ .80795 E+01	+ .37413 E+01	+ .27462 E+01	+ .73216 E+00
<P>...-1	+ .41942 E+01	+ .17820 E+01	+ .16790 E+01	+ .14387 E+01	+ .39655 E+00	+ .47890 E+00
<R>...+1	+ .28796 E+00	+ .76911 E+00	+ .80477 E+00	+ .91349 E+00	+ .21523 E+01	+ .27013 E+01
<R>...+2	+ .97830 E-01	+ .66653 E-00	+ .73592 E+00	+ .97287 E+00	+ .52946 E+01	+ .86256 E+01

СО Д Е Р Ж А Н И Е

- I. БОГАН Я.Р., ГАЙЛИТИС А.А., ЛЕЙНЕРТЕ-НЕЙЛАНДЕ И.Ф. Туше-
ние туннельной люминесценции фотостимуляцией 3
2. ВИТОЛ И.К., ГАЙЛИТИС А.А., ГРАБОВСКИС В.Я. Закон Беккереля
и оценка распределения изолированных пар электронно-
дырочных центров по расстояниям между их компонентами... 16
3. ГРАБОВСКИС В.Я., ВИТОЛ И.К. Туннельная люминесценция в
КВr - КJ 31
4. МИЛЛЕРС Д.К., ТАЛЕ И.А. Определение некоторых параметров
туннельной рекомбинации 36
5. ТАЛЕ И.А., МИЛЛЕРС Д.К., КОТОМИН Е.А. Роль туннельной
рекомбинации в низкотемпературном накоплении F-центров 43
6. БУЛА В.Г., ТАЛЕ И.А. Определение спектров фракционного
термовывесчивания в кристаллах КВr и КВr-П 52
7. ГАЙЛИТИС А.А., КУЛИС П.А. Определение феноменологических
параметров ловушек при сложной кинетике, включающей пе-
реход от кинетики первого порядка к кинетике второго по-
рядка и наоборот 66
8. ФАБРИКАНТ И., КОТОМИН Е.А. Теория диффузионно-контролиру-
емой рекомбинации донорно-акцепторных пар. I. Квазистаци-
онарное решение 76
9. КОТОМИН Е.А. Теория диффузионно-контролируемой рекомбина-
ции донорно-акцепторных пар. II. Применение к V_K -центрам
в щелочно-галлоидных кристаллах 93
10. ФАБРИКАНТ И., КОТОМИН Е.А. Теория диффузионно-контроли-
руемой рекомбинации донорно-акцепторных пар. III. Учет
кулоновского взаимодействия 108
11. МЕДИК В.М., ПОЛОГРУДОВ В.В., ШУРАЛЕВА Е.И. О свойствах
собственных и примесных центров окраски, образованных при
фотовозбуждении щелочно-галлоидных кристаллов с Eu^{++} 123

12. ГОРОХОВАТСКИЙ Ю.А. Ток термостимулированной деполяризации, обусловленный эффектом сильного поля 129
13. ГАЙЛИТИС А.А. Уравнения состояния ионных кристаллов в квазигармоническом приближении и приближенная теория кривой плавления 135
14. БРАНТС Ю.К. Численное решение уравнений Хартри-Фока, усредненных по термам..... 158

Ученые записки, том 208

ЭЛЕКТРОННЫЕ И ИОННЫЕ ПРОЦЕССЫ
В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

Выпуск II

Редактор А.Годкалн
Технический редактор В.Полмане
Корректор В.Полмане

Редакционно-издательский отдел ЛГУ им. Петра Стучки
Рига 1974

Подписано к печати 26.08.1974. ЯТ 21198. Зак. № 905.
Ф/б 60x84/16. Бумага №1. Физ.п.л.13,5. Уч.-и.л.10,4
Тираж 500 экз. I р. 4 к.

Отпечатано на ротапринте, Рига-50, ул.Вейденбаума,5
Латвийский государственный университет, им. П.Стучки

LU bibliotēka



200027146

85

Цена 1 р. 04 коп.

W

PT-45

208

Учен. зап. (ЛГУ им. П. Стучки), 1974, т. 208. 1-216.