

2001-251
НАЦИОНАЛЬНАЯ АКАДЕМИЯ НАУК
КЫРГЫЗСКОЙ РЕСПУБЛИКИ
ИНСТИТУТ ФИЗИКИ

На правах рукописи

Авилов Алижон Бойзакович

УДК 621.315.592

**Радиационные дефектообразования
и квазихимические реакции
в неметаллических кристаллах**

01.04.07 - Физика твердого тела

А В Т О Р Е Ф Е Р А Т

диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

БИШКЕК – 2000

В

Работа выполнена в Ошском государственном университете.

Научные руководители: доктор физико-математических наук,
профессор Б.А. Арапов
доктор физико-математических наук,
профессор Б.Л. Оксенгендлер

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,
профессор Осмоналиев К.О.,
кандидат физико-математических наук
Королева Т.С.

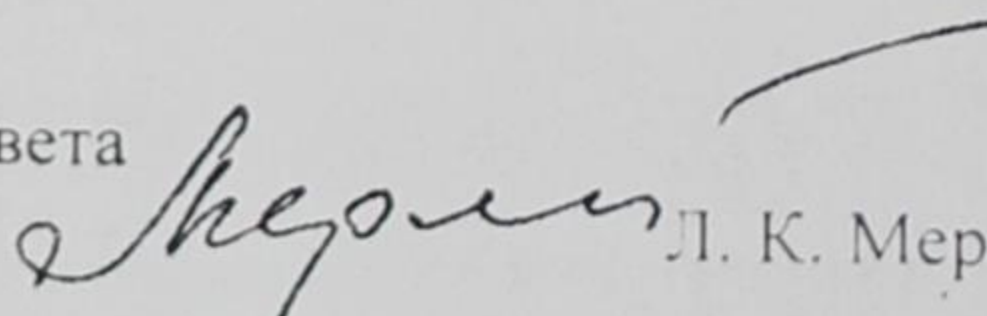
Ведущая организация: Иссык-Кульский государственный
университет имени К. Тыныстанова.

Защита состоится « 12 » января 2001 г. 14⁰⁰ часов на заседании
специализированного совета Д. 01.00.108. по присуждению
ученых степеней доктора и кандидата наук в Институте физики
Национальной Академии Наук Кыргызской Республики по
адресу: 720071. г. Бишкек, Чуйский проспект, 265 а.

С диссертацией можно ознакомиться в Центральной библиотеке
Национальной Академии Наук Кыргызской Республики.

Автореферат разослан « 10 » декабря 2000 года.

Ученый секретарь
специализированного совета
к. ф.-м. н., с. н. с.

 Л. К. Меренкова.

Общая характеристика работы.

Актуальность темы: Радиационная физика твёрдого тела (РФТТ) берёт своё начало с момента строительства атомных реакторов. За время, прошедшее с тех пор, РФТТ превратилась в мощную отрасль физики твёрдого тела. Однако РФТТ внесла в физику твёрдого тела и свои идеи, концепции, понятия, закономерности, методологию. Теоретический анализ радиационных явлений в твёрдых телах базируется в настоящее время на 8 крупных концепциях. Однако, с развитием науки, появились новые экспериментальные результаты, интерпретацию которых нельзя осуществить в рамках имеющихся теоретических моделей. Кроме того, появляются новые объекты, анализ которых на базе только имеющихся идей представляется недостаточным. Таким образом, возникла необходимость пересмотреть или существенно обобщить модели процессов, которые, казалось бы, вполне надежно описывают большой экспериментальный материал. Если конкретизировать, то к таким новым объектам следует отнести, например, пористый кремний и материалы с сильно неоднородным распределением примесей (в частности, полупроводники).

Из классических закономерностей, которые, на наш взгляд, нуждаются в новом модельном описании, следует выделить надпороговое дефектообразование. До сих пор остается актуальным решение многих вопросов подпорогового дефектообразования. Одна из таких нерешённых проблем - выяснение условий максимального перехода энергии генераций электронных возбуждений в энергию генерации решеточных дефектов. По существу, речь идет о «коэффициенте полезного действия» акта электронно - стимулированного атомного дефектообразования. Другой вопрос в подпороговой физике, остающийся до сих пор открытым, это расхождение теории и эксперимента для определения величины коэффициента конверсии энергии электронного возбуждения в фононы в рекомбинационно-стимулированных процессах. Наконец, особо следует выделить несколько появившихся в последние годы радиационных экспериментов, где обнаружены осцилляции ряда физических свойств облучаемых объектов при монотонном увеличении внешних воздействий. Анализ показывает, что ситуация с этими экспериментами настолько серьезна, что требует изменения в общем подходе при построении адекватной модели. В связи с этим, по-видимому, можно даже говорить о введении в РФТТ новой концепции.

Что касается прикладного аспекта РФТТ, то здесь ситуация весьма своеобразна. Прежде всего отметим, что можно выделить два направления в прикладных задачах РФТТ:

1. Радиационная технология материалов и приборных структур.
2. Радиационная стойкость параметров материалов и приборных структур.

Одной из интересных задач радиационной технологии является создание таких объектов (материалов и структур), которые бы на начальных этапах

радиационного воздействия «улучшали» свои свойства. Это так называемый эффект малых доз, который, несомненно, может быть реализован множеством способов. Разработка различных моделей, адекватно описывающих эти различные способы, представляет большой интерес.

Радиационная стойкость - не менее важная прикладная область РФТТ, поскольку существует огромное число задач, когда материалы или приборы, находясь в поле радиации, должны деградировать минимально возможным образом. Чтобы прогнозировать и даже управлять темпом радиационной деградации, необходимо глубоко понимать её механизмы. Важным компонентом решения этой задачи является разработка теоретических моделей радиационной стойкости.

Цель работы:

а). В фундаментальном аспекте;

- построение моделей над- и подпорогового радиационного дефектообразования (РДО), учитывающих несовершенство некоторых прежних моделей, с учетом новых, ранее незамеченных особенностей деструкционных процессов и применение этих моделей для исследования к новым объектам;

- построение теории новых радиационных эффектов;

- разработка моделей, описывающих различные пути реализации эффекта малых доз и радиационной стойкости материалов и приборных структур.

Для достижения этой цели решались следующие задачи.

1. В области надпорогового РДО:

- разработка диффузионной модели упругого радиационного дефектообразования, пригодной для описания процессов при ненулевой температуре;

- анализ на базе этой модели ряда квазихимических процессов в полупроводнике с примесными скоплениями, а также в пористом кристалле;

2. В области подпорогового РДО:

- разработка модели подпорогового дефектообразования по Оже-механизму в «луковицеподобной» атомной структуре;

- разработка диффузионной модели Оже - дефектообразования при ненулевой температуре.

3. В области радиационно - стимулированных квазихимических реакций:

- разработка теории экспериментально обнаруженных эффектов осцилляций объёмных и поверхностных свойств диэлектрика и полупроводников при монотонном возрастании внешних воздействий;

- разработка кинетической теории непрямо́й рекомбинации вакансий и междоузлий в присутствии Ян-Теллеровской примеси.

- интерпретация систематического превышения теоретического значения вероятности рекомбинационно-стимулированных реакций над экспериментальными значениями; этот эффект связан с смещаемостью режима стимулированных колебаний дефектной квазимолекулы.

б). В прикладном плане целью является разработка моделей дефектообразования, лежащих в основе эффектов малых доз и явления радиационной стойкости.

Научная новизна:

Результатов данной диссертации состоит в следующем:

1. Предложена диффузионная модель РДО для надпороговой и подпороговой области, учитывающая диффузию смещённого атома вне зоны неустойчивости.

2. Описаны особенности процесса Оже - деструкции в «луковичных» молекулярных структурах. Показано, что при этом генерируется ударная волна, способная в определённой области твёрдого тела совершать структурные перестройки материалов.

3. Предложена новая концепция - «Трофические цепи дефектов», на базе которой построены две теории, интерпретирующие парадоксальные дефектные процессы, как в объёме, так и на поверхности неметаллических кристаллов.

Личный вклад автора.

Автор участвовал в постановке задач и анализе результатов моделирования. Все расчёты выполнены автором.

Практическая ценность диссертации связана с возможностью использования разработанных кинетических моделей при анализе ряда эффектов малых доз и процессов, обуславливающих радиационную стойкость материалов и приборных структур.

Автор защищает:

1. Диффузионную модель процесса РДО в надпороговой (упругий механизм) и подпороговой (Оже-дефектообразование) областях энергий радиации, адекватно учитывающую классическую миграцию смещённого атома после его выхода за пределы зоны неустойчивости и термолизаии.

2. Предложение множителя определяющий вероятности закрепления смещённого атома, через радиус Онзагера. Описание с диффузионной моделью параметры надпорогового РДО в пористых материалах и процесса радиационного перехода (активации) электрически неактивных примесей в активное состояние.

3. Новую концепцию «Трофические цепи дефектов», позволяющую построить кинетические теории для трактовки экспериментально обнаруженных эффектов:

- осцилляции ряда свойств полупроводников при монотонном изменении температуры (эксперименты Заячука [1] и Хамраевой [2]);

- осцилляции поверхностных свойств кристалла NaCl при монотонном возрастании интенсивности облучающих ионов Ag (эксперимент М. Гусевой сотр., [3]).

- кинетическую теорию взаимодействия первичных радиационных дефектов вакансии и междоузельного атома (V и I) с Ян-Теллеровским примесным центром, позволяющую описать эффект непрямой рекомбинации V

и I, приводящую к немонотонным зависимостям в накоплении вакансий и E-центров от дозы облучения.

- результаты исследования эффекта смещенного режима в колебаниях, дефектной квазимолекулы, позволяющие устранить систематическое завышение теоретической вероятности рекомбинационно-стимулированных атомных процессов над экспериментом.

4. Ряд предложенных кинетических моделей взаимодействия радиационных, примесных и собственных дефектов, позволяющих описать эффект малых доз и процессы, обуславливающие радиационную стойкость материалов и некоторых структур.

Апробация работы. Материалы диссертации докладывались и обсуждались на ряде конференций:

1. 1-ая - международная конференция молодых физиков «Твёрдотельная электроника» (Наманган - 1994).

2. Международная научно-практическая конференция «Современные методы информационных технологий» ОшГУ (Ош - 1995).

3. 10-я международная конференция по радиационной физике и химии неорганических материалов (Томск - 1999).

4. Международная конференция по ядерной физике (Алма-Ата - 1999).

5. Конференция по радиационной физике (с международным участием) посвященная памяти член.- корр. НАН КР А.А. Алыбакова (Бишкек - 1999).

По материалам диссертации опубликовано 17 работ (12 статей и 5 тезисов), список которых приведён в конце автореферата.

Объем и Структура диссертации. Диссертационная работа состоит из введения, 4-х глав, заключения и выводов, списка цитируемой литературы (150 наименований), изложена на 156 стр. и содержит 52 рисунка.

Краткое содержание работы

Во введении кратко описано современное состояние РФТТ, обосновано актуальность работы, сформулированы цель и задачи диссертации. Произведена паспортизация работы.

В первой главе изложены актуальные проблемы надпорогового дефектообразования (НДО); показано, что, несмотря на многочисленные исследования этой проблемы, до сих пор существует ряд нерешенных вопросов (в частности, понижение порога НДР при увеличении температуры облучения). Анализ существующих подходов к расчету параметров НДО показывает, что, имеющиеся формулы не учитывают диффузию смещенного атома, т.е. не принимают во внимание температурный фактор.

Исходным для адекватного анализа этой и близкой проблематики служит формула для сечения НДО (см. рис. 1)

$$\sigma_d = \int_{v_0}^{E_m} \frac{d\sigma}{dE} dE \left\{ \int_{R_0}^{\infty} \omega(E, R) e^{-R_c/R} d^3R \right\} \quad (1).$$

Здесь U_0 - значения потенциальной энергии пары $V - I$ на границе зоны неустойчивости; R_0 - радиус этой зоны; $(d\sigma/dE)dE$ - дифференциальное сечение передачи энергии при упругом рассеянии сторонней частицы на регулярном атоме; E_m - максимальная энергия такого рассеяния при лобовом столкновении; $\omega(E, R)$ - плотность вероятности смещенного атома с энергией E , колеблющегося на расстоянии R от вакансии; $\eta = \exp(-R_c/R)$ - Онзагеровская вероятность полного разделения частиц, исходное расстояние между которыми составляет R . $R_c = e^2 / \epsilon kT$ (где ϵ - диэлектрическая проницаемость) - радиус Онзагера. Как видно из этих данных, выражение (1) зависит от температуры через радиус Онзагера [4].

Дальнейшая эволюция формулы (1) зависит от характера приближений для $d\sigma/dE$, $\omega(E, R)$ и η .

Для решения конкретных задач с помощью (1) нами были использованы следующие приближения:

$$а) \omega(E, R) \approx (\alpha / 4\pi)^{3/2} \exp(-\alpha R^2); \eta = \exp(-R_c / R); R_c \gg R_0; \alpha = \text{const};$$

$$\kappa \approx \frac{\gamma^2}{4^{1/3}} \left[\frac{R_c^2}{a^2} \left(\frac{\epsilon}{E_m - U_0} \right) \right]^{1/3}.$$

В этом случае для условий нейтронного облучения при использовании метода перевала получаем формулу (1) в следующем виде:

$$\sigma_d \approx \pi \rho_0^2 \kappa \sqrt{3} \int_{\kappa}^{\infty} e^{-x} x^{-3} dx.$$

$$б) 4\pi R^2 W(E, R) \approx \delta(R - \bar{R}); \bar{R} \approx E / (-dE/dx).$$

Для сечения НДО и энергии смещения E_d в условиях электронного облучения получаем

$$\sigma_d = 4\pi\sigma_0\varphi(\dots) \text{ и } E_d = E_m / \varphi(\dots), \quad (2)$$

$$\text{где } \varphi(\dots) = \frac{E_m}{\left(-\frac{dE}{dx}\right)R_c} \cdot \left[\exp\left\{-\frac{\left(-\frac{dE}{dx}\right)R_c}{E_m}\right\} - \exp\left\{-\frac{\left(-\frac{dE}{dx}\right)R_c}{U_0}\right\} \right] \quad (3).$$

Для температурной зависимости сечения НДО и энергии смещения получаем качественный результат

$$\frac{d\sigma_d}{dT} = \frac{d\sigma_d}{dR_c} \frac{dR_c}{dT} > 0; \quad \frac{dE_d}{dT} = \frac{dE_d}{dR_c} \frac{dR_c}{dT} < 0.$$

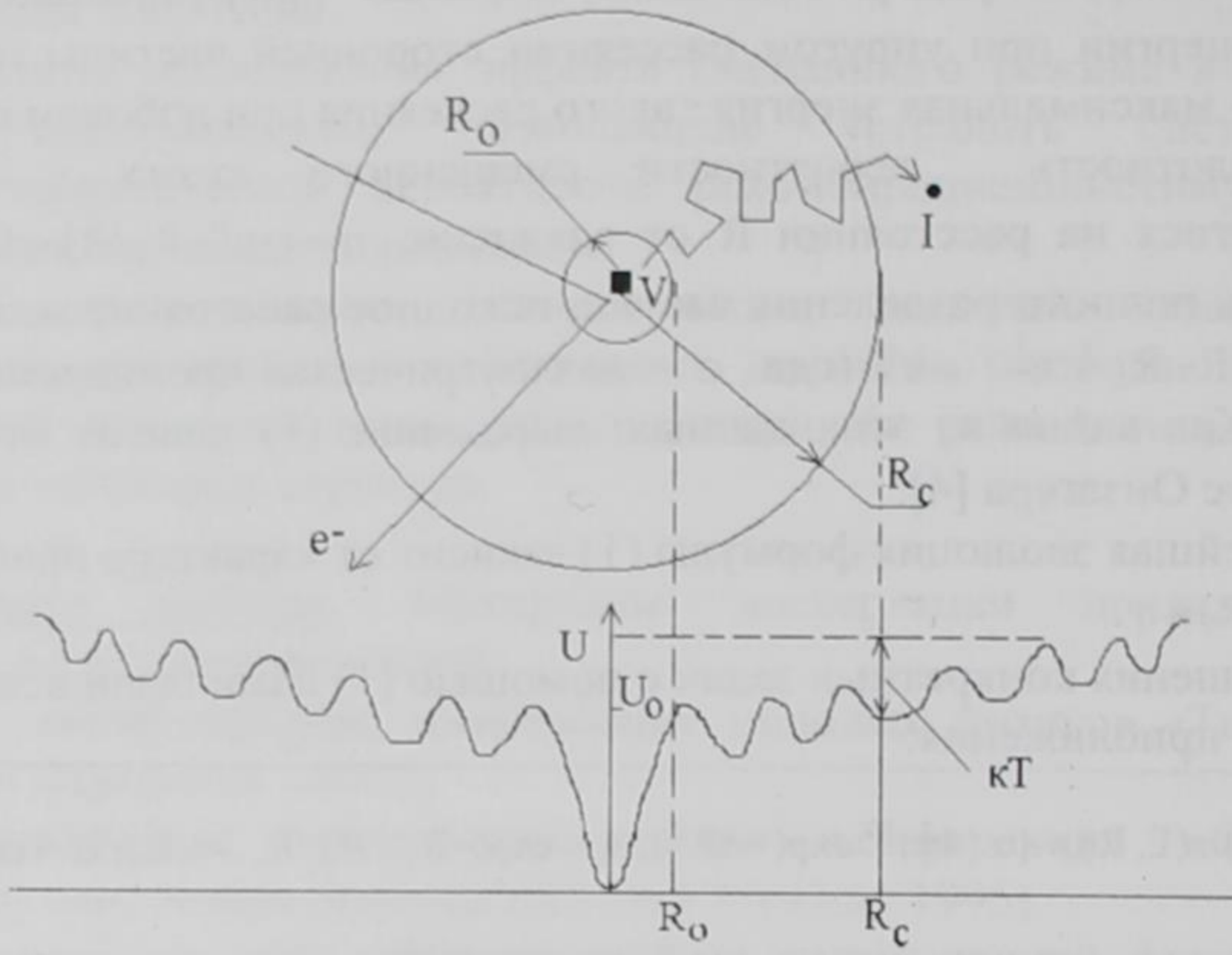


Рис. 1. Зона неустойчивости при смещении регулярного атома из узла.

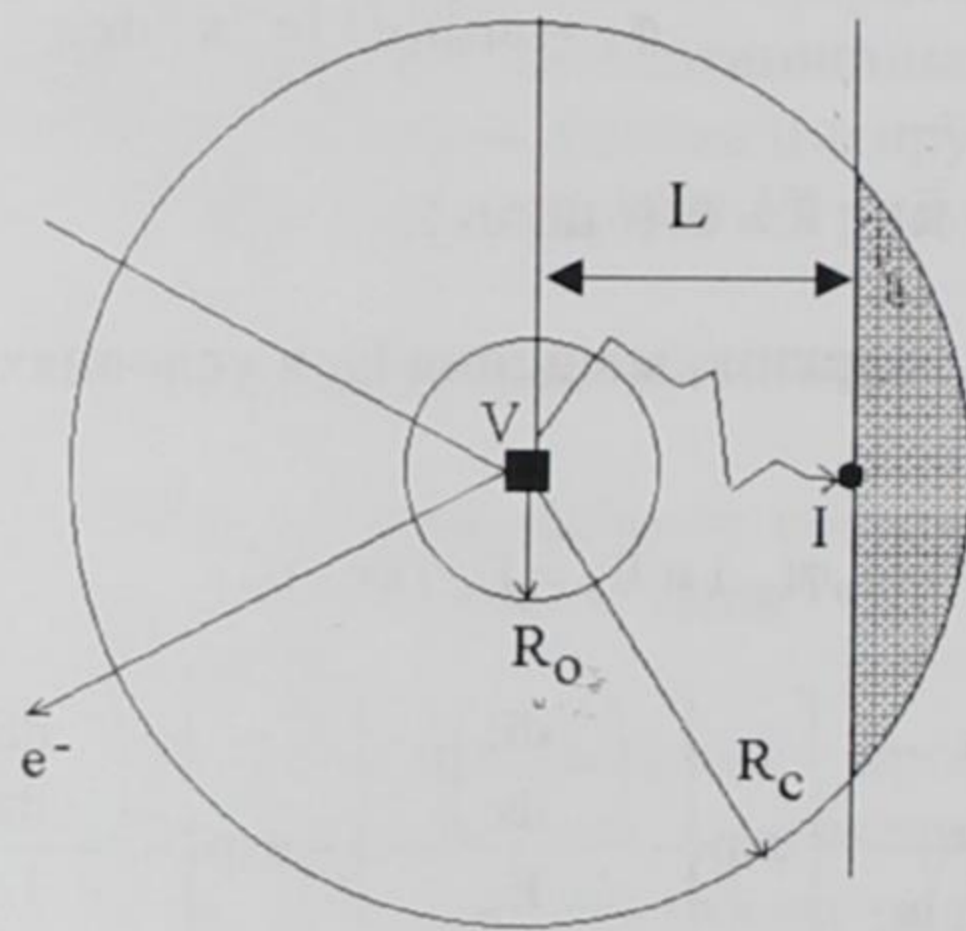


Рис.2. Дефектообразование у поверхности.

При количественном сопоставлении теории с экспериментом (Смирнов с сотр., [5]) получается 10 % расхождение. Приближение (б) позволяет написать условия оптимального выбора температуры для подавления первичного дефектообразования:

$$\frac{T}{T_0} < \left(-\frac{dE}{dx} \right) \frac{e^2}{\epsilon k T_0} \frac{M}{4m_{e,n} E_{e,n}} = \begin{cases} 5 \cdot 10^2 \frac{A}{E_n} & \text{- При нейтронном облучении} \\ 0,5 \frac{A}{E_e} & \text{- При электронном облучении} \end{cases} \quad (\text{здесь } T_0 = 300 \text{ К}).$$

в) Приближение $\exp(-R_c/R) = \Theta(R - R_c)$; $R_c > R_0$, где $\Theta(x)$ - функция Хэвисайда, позволяет рассчитать параметры НДО вблизи поверхности, считая её стоком для смещенного атома $E_d(L) = E_d^0 - \Delta E_d$,

$$\text{где } \Delta E_d = \frac{\gamma}{\alpha} \left[1 - \exp \left[-\frac{a^2 (E_m - U_0)}{R_c^2 \epsilon} \right] \right] - \frac{L^2}{R_c^2} \left[1 - \exp \left[-\frac{a^2 (E_m - U_0)}{R_c^2 \epsilon} \right] \right], \quad (4);$$

Здесь $\gamma = \frac{1}{4} \frac{\left(1 - \frac{L}{R_c}\right) \left(2 - \frac{L}{R_c}\right)}{1 + \frac{L}{R_c} + \frac{L^2}{R_c^2}}$; $\alpha = \frac{a^2}{R_c^2 \epsilon}$; L - расстояние между образующейся

вакансией и поверхностью. Этот результат позволяет рассчитать параметры НДО в пористых материалах. Если усреднить (4) по распределению расстояния L между образующейся вакансией и ближайшей поверхностью поры (рис. 2.), получим

$$\Delta \tilde{E} = \int \Delta E(L) \varphi(\rho) d\rho.$$

Полученные результаты позволяют развить модельные представления о радиационно-стимулированном переходе электрически неактивного состояния примесей в полупроводниках в электрически активное состояние. Для этого рассматривается акт НДО в области скопления примесных атомов. Если одновременно с выходом смещённого атома в пределах сферы Онзагера окажется хотя бы один примесной атом, притягивающийся к вакансии, то произойдет рекомбинация атома и вакансии. Тогда сечение активации будет иметь вид

$$\sigma_{\text{акт}} = \sigma_d \sum_{j=1}^{\infty} \frac{\exp\left(-\frac{4}{3} \pi R_c^3 N_n\right) \left(\frac{4}{3} \pi R_c^3 N_n\right)^j}{j!}, \quad (5)$$

где N_n - концентрация примесных атомов в скоплении. Существенно, что $\sigma_{\text{акт}}$ зависит от температуры через радиус Онзагера.

Во второй главе рассмотрены основные аспекты подпорогового дефектообразования в полупроводниках по механизму Оже-деструкции. Сделаны выводы о некоторых новых аспектах этих деструкционных процессов.

Изучены вопрос о влиянии температуры на характер разделения пар Френкеля при Оже-деструкции. Записано общее выражение для сечения Оже-деструкции

$$\sigma_d = \sigma_d^0 \exp(-R_c/R), \quad (6)$$

где σ_d^0 - сечение Оже-дефектообразования при нулевой температуре [6], R_c - радиус Онзагера, R - расстояние выброса исходного регулярного атома, в котором развивался Оже-каскад. Температурная зависимость (6) обусловлена зависимостью радиуса Онзагера $R_c = e^2/\epsilon kT$.

Вторая задача, решаемая во второй главе, связана с особенностями деструкционного процесса в специальной «луковичной» атомной структуре с иерархическим строением. Суть состоит в том, что в «луковичной» структуре центральное положение занимает самый тяжелый атом, вокруг которого располагается слой более легких атомов, окружённых в свою очередь слоем ещё более лёгких атомов. В такой структуре возможен горизонтальный Оже-каскад. Действительно, если весь каскад начинается с K - ионизации центрального атома, так что энергия Оже-электрона для 1-го слоя составляет $E_{K-LL}^{(1)} \approx 3E_K^{(2)}$, для второго слоя $E_{K-LL}^{(2)} \approx 3E_K^{(3)}$, то каждый Оже-электрон с большой эффективностью вызывает K - ионизацию следующего слоя. В результате наблюдается сочетание вертикального и горизонтального Оже-каскада с быстрым выделением большого количества энергии, пропорционального $E_K^{(1)}$. Сечение этого процесса оказывается равным

$$\sigma_{tot} \approx \sigma_K^{(1)} \prod_{i=2}^n W_i, \quad (7)$$

где W_i - вероятность K - ионизации в i -слое. Быстрое выделение большого количества энергии приводит к генерации ударной волны с избыточным давлением на фронте $\Delta p \sim [E_K^{(1)}]^{6/5}$. Такие волны могут приводить к структурным изменениям. Этот факт важно учитывать при использовании ионизирующих излучений для целей радиобиологии и медицины.

В третьей главе изложены результаты исследования некоторых новых аспектов квазихимических реакций происходящих в объёме и на поверхности неметаллических кристаллов.

Здесь изложены формулировка и результаты решения 3-х задач.

Первая задача связано недавно обнаруженным и описанным в работах [1,2] эффектам осцилляции ряда свойств полупроводниковых кристаллов, содержащих большую концентрацию дефектов и примесей при монотонном возрастании температуры (рис. 3). Предложена новая идея трофические цепи дефектов в твёрдых телах. Суть идеи состоит в том, что каждый тип дефектов (j) становится химически активным при температурах, выше некоторой пороговой температуры $T > T_j$ (T_j - температура активации). При этом эти j -дефекты реагируют только с предыдущем ($j-1$) и последующим ($j+1$)- типами дефектов, так что система кинетических уравнений имеет вид

$$\begin{cases}
 N_1 = \lambda_1 - K_1 N_1 - K_{12} N_1 N_2 - N_1 / \tau_1, \\
 N_2 = \lambda_2 - K_{12} N_1 N_2 - K_{23} N_2 N_3 - N_2 / \tau_2, \\
 \dots \dots \dots \\
 N_j = \lambda_j - K_{j-1,j} N_{j-1} N_j - K_{j,j+1} N_j N_{j+1} - N_j / \tau_j, \\
 \dots \dots \dots \\
 t = 0 \rightarrow N_j = N_j^0, j = 1, 2, \dots, m.
 \end{cases} \quad (8)$$

Здесь $\lambda_j = \lambda_j^0 \exp(-T_j/T)$, K_{ij} - параметры «трофических» реакций. Крайне важным случаем решения этих уравнений является решение при условии отсутствия стоков ($1/\tau_j \rightarrow 0$). Тогда, ориентируясь на свойство R, которое определяется только 1 - типом дефектов ($R = K_1 N_1^\gamma$, где $\gamma = \text{const}$), ограничиваясь температурным диапазоном $T \leq T_m$, получим

$$R = \text{const} \left\{ \sum_{j=1}^m (-1)^{j+1} \lambda_j^0 \exp(-E_j/kT) \right\}^\gamma \quad (9)$$

Получена характерная математическая структура, из которой видно, что каждый член ряда подключается при определенной температуре $T \geq T_j = E_j/K$, так что при монотонном возрастании температуры в диапазоне $0 \leq T \leq T_m$ наблюдаются характерные осцилляции, зависящие от значения $R(T)$, что качественно соответствует эксперименту (см. рис. 3).

Второй задачей являлось разработка теоретической модели образования вакансионно-подобных дефектов на поверхности кристалла NaCl при его облучении ионами Ag^+ с энергией 500-1750 эВ (см., работы [3]). На поверхности NaCl находились атомы Au, которые декорировали вакансионно-подобные дефекты. При монотонном усилении интенсивности облучения были обнаружены осцилляции в концентрации декорирующих островков Au (см., рис. 4). Суть теоретической модели сводится к следующему. Ионы Ag^+ , обладающие достаточно большой энергией, бомбардируя твёрдое тело, генерируют там электроны и дырки, а также упругие волны. При автолокализации таких дырок образуются F-центры. Увеличение концентрации F-центров в объеме твердого тела приводит к их агрегатированию и образованию M- и R-центров. На каждом из этих типов дефектов (F-, M- и R-центры) могут быть локализованы атомы Au, инициируя зародышеобразование островков золота (коллоидов). Однако в начальный момент времени атомы Au могут быть сброшены вследствие так называемого эффекта радиационной тряски. Пусть, кроме временной иерархии ($F \rightarrow M \rightarrow R$) имеется и иерархия порогов стряхивания ($E_F < E_M < E_R$). Такая двойная иерархия характерна для трофической цепи дефектов, что отражено в кинетических уравнениях

$$\begin{aligned}
 \dot{N}_1 &= (K_{01}h + \lambda)N_0 - K_{12}hN_1 - K_1N_1; \\
 \dot{N}_2 &= K_{12}hN_1 - K_{23}hN_2 - K_2N_2; \\
 \dot{N}_3 &= K_{23}hN_2 - K_{34}hN_3 - K_3N_3.
 \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь λ - эффективность создания F - центров при упругом смещении; N_1, N_2, N_3 - концентрации F -, M - и R - центров, соответственно; h - концентрация дырок, K_{ji} - константы «трофических» реакций; K_j - константы реакций, по которым F -, M - и R - центры «уходят из игры» за счет создания на их основе агрегатных центров окраски, в состав которых входят примесные ионы Au (зародышей). Из (10) находим стационарные величины N_j^0 (при $\dot{N}_j = 0$), с помощью которых можно вывести выражение для концентрации зародышей

$$N_{\text{зар}} = \sum_{j=1}^3 K_j W_j N_j^0 \quad (11)$$

Здесь W_j - вероятность того, что несмотря на радиационную тряску, атом Au не будет «сброшен» с j - центра. Полагая, что процесс стряхивания происходит по пуассона, получим

$$W_i = 1 - \sum_{j=\alpha_i}^{\infty} e^{-\gamma} \gamma^{\alpha_j} / \alpha_j!, \quad (\alpha_1 < \alpha_2 < \alpha_3 - \text{иерархия порогов});$$

$\gamma = \text{const } I$, (I - поток ионов Ar^+).

Очевидно, что (11) имеет знакопеременную структуру. Это даёт осциллирующую зависимость $N_{\text{зар}}(I)$, что качественно совпадает с экспериментом. Сравнение $N_{\text{зар}}(I)$ с экспериментом позволяет найти соотношение $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$.

Третья задача: исследования эффекта непрямой рекомбинации на Ян-Теллеровских примесях. Известно, что при определённом строении электронных орбит примесей, геометрия последних в кристаллической решётке искажается, что приводит к сосуществованию вблизи этих примесей сжатой и разряженной областей кристалла. Такие области, притягивая вакансии (V) и междоузельные атомы (I) в примесную область, стимулируют рекомбинацию V и I по квазихимической реакции $V + I + \text{Пр} \rightarrow \text{Пр}$.

Примесь является катализатором непрямой рекомбинации V и I , препятствуя, тем самым, взаимодействию V и I с легирующими примесями.

Кинетические уравнения этого процесса таковы

$$\begin{cases} \dot{N}_I = \lambda - k_1 N_V N_I - k_3 N_I - k^I N_I N_V - k^I N_I N^V \\ \dot{N}_V = \lambda - k_1 N_V N_I - k_3 N_V N_P - k^I N_I N - k^V N_V N^I \\ \dot{N}^V = k^V N_V N - k^I N_I N^V \\ \dot{N}_E = k_2 N_V N_P \\ N^0 = N + N^I + N^V \end{cases} \quad (12)$$

В этой системе N_E означает концентрацию E - центров, образующихся в результате взаимодействия V и атома примеси (фосфора); λ - скорость генерации дефектов Френкеля;

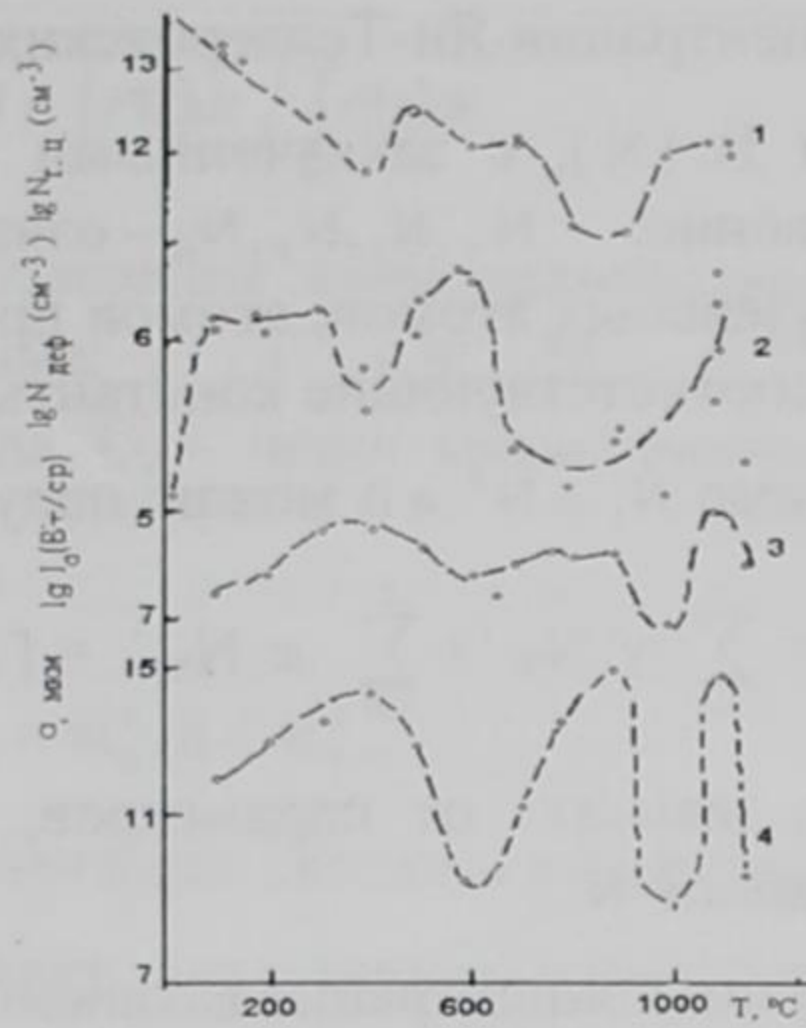


Рис. 3. Зависимости концентрации глубоких центров (1), микродефектов структуры выявляемых травлением (2), интенсивности рассеяния света примесными облаками (3) и радиуса примесных облаков (4) от температуры отжига.

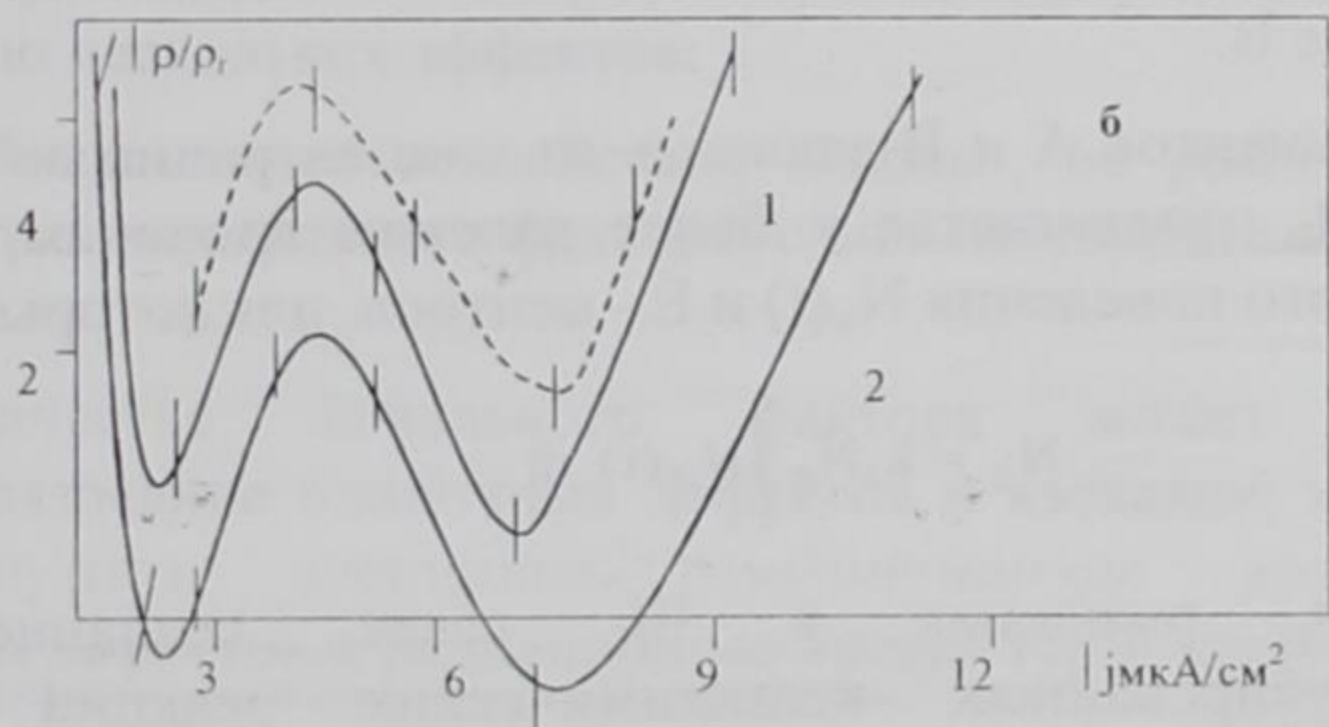
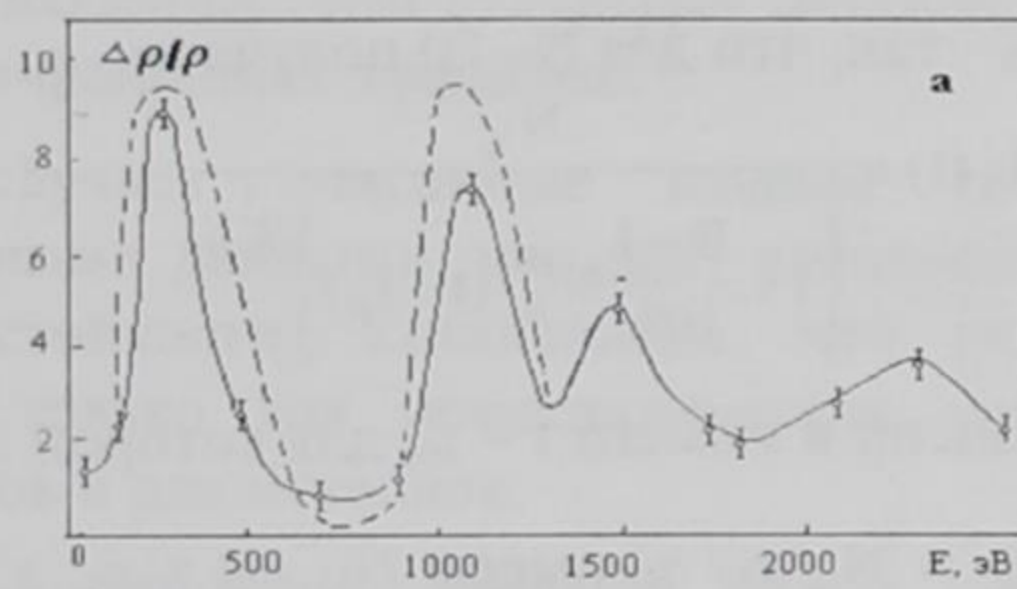


Рис. 4. Зависимость избыточной концентрации островков-зародышей $\Omega = \Delta\rho/\rho_r$

золото ($d = 5 \text{ \AA}$) на поверхности (100) NaCl. а) от энергии ионного облучения (Ag^+ , $j = 3 \cdot 10^{13}$ ион $\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$); б) от плотности ионного тока;

1- $E = 500, 1100$ эВ, 2- $E = 1750$ эВ. Пунктир – концентрация

2- дырок (а) и вакансионных дефектов (б).

величины N^0, N, N^I, N^V – концентрации Ян-Теллеровских центров: их общее число (N^0), пустых (без V и I) (N), с захваченными междоузлиями (N^I) и вакансией (N^V), соответственно; N_V, N_I, N_P, N_E – означает концентрации вакансий, собственных междоузельных атомов, атомов примеси (фосфора) и E – центров соответственно; k_j – соответствующие константы реакций.

В квазистационарном режиме $\dot{N}_I = \dot{N}^V = 0$ можно получить

$$\text{уравнение для } N_V \quad dN_V/dt = \sum_{i=0}^3 \gamma^i N_V^i / \sum_{i=0}^2 \alpha_i N_V^i = f(N_V),$$

причем коэффициенты γ^i и α_i зависят от параметров, входящих в систему кинетических уравнений, а также от N^0 .

В начальный момент времени концентрация вакансий будет следующая:

$$N_V \approx t \gamma_0 / \alpha_0, \text{ причем } \gamma_1 / \alpha_0 > 0.$$

С течением времени ситуация резко меняется, т.к. $\gamma_1 < 0$ и $\gamma_2 < 0$ при больших концентрациях N^0 , причем хорошо работает аппроксимация

$\text{Lg } f(N_V) = -A + B \text{ Lg } N_V$ так, что для $N_V(t)$ получаем.

$$N_V(t) = \frac{N_{V_0}}{\left[1 + \frac{B-1}{10^A} N_{V_0}^{B-1} (t-t_0) \right]^{\frac{1}{B-1}}}$$

Здесь N_{V_0} – концентрация вакансий в момент $t = t_0$, для которой $N_V \approx N_{V_0} > \gamma_0 / \gamma_1$,

Таким образом, при $0 < t < t_0 \approx N_{V_0} \alpha_0 / \gamma_0$ имеем $N_V \approx t \gamma / \alpha_1$, т.е. концентрация вакансий растет со временем; при $t > t_0$ имеем падение $N_V(t)$, т.е. $dN_V/dt < 0$, причем при любом знаке B.

Величины коэффициентов A и B зависят от концентрации N^0 . С ростом N^0 значения времени t_0 отодвигаются к более далеким временам, определяя диапазоны немонотонного поведения $N_V(t)$ и E – центров, для которых

$$N_E = k_3 N_P \int_0^t N_V(t) dt.$$

Четвертая задача, решаемая в III- главе: создание модели рекомбинационно-стимулированных квазихимических реакций (РСКХР). Модель призвана объяснить факт регулярного превышения теоретической оценки вероятности РСКХР над экспериментом ($W_{th}^0 > W_{exp}$). Идея основана на следующем: в результате рекомбинации электрона и (или) дырки с дефектной квазимолекулой (ДК) в ДК возбуждаются колебания, которые, интерферируя, концентрируются на координате реакции. Последнему процессу, однако, мешает стохастизация этих колебаний. Предложенная в работе модель позволяет подсчитать коэффициент стохастизации

$$\beta = \frac{\int_{t^*}^{\infty} P(t) dt}{\int_{t_0}^{\infty} P(t) dt}, \quad (13)$$

где $P(t)$ – распределение длин «ламинарных» участков колебаний ДК в смещаемом режиме; $t^* = t_0 [E_{ex} / (E_{ex} - Q_d)]^{S-1}$ ($t_0 \approx 10^{-13}$ с), E_{ex} – энергия электронного перехода, Q_d – порог квазихимической реакции, S – число атомов ДК.

Таким образом

$$W_{exp} = W_{th}^0 \cdot \beta < W_{th}^0, \quad (14)$$

причем β зависит от близости системы к бифуркации.

В четвертой главе представлены результаты построения кинетических моделей таких проблем, радиационного материаловедения как радиационная стойкость и эффект малых доз. Материал изложен цельно для удобства его непосредственного использования. В разделе, посвящённом радиационной стойкости, описаны 10 моделей, которые естественно делятся на две категории: 1) связанные с особенностями структуры объекта, 2) связанные с различными типами электрон-фононных эффектов.

В ряде случаев описанные модели соотнесены с имеющимися экспериментальными данными, что даёт возможность говорить о механизмах радиационной стойкости. Установлено, что ряд полученных результатов справедлив не только для неметаллических кристаллов, но также и для сверхпроводников и для металлов.

В разделе, посвящённом эффекту малых доз сначала излагается общая концепция радиационного дефектообразования учитывающая воздействие на твердое тело нескольких эффектов:

1. Одновременное воздействие слабого, но реализующегося с большой вероятностью нелокального фактора, с сильнодействующим, но маловероятным фактором.

В качестве локального фактора может выступать упругое дефектообразование одиночных дефектов и каскадов; нелокальным фактором может служить электронно-стимулированное воздействие, например, перезарядка дефектов и радиационная тряска термоупругими волнами.

2. Радиационное воздействие на многокомпонентную систему может привести к перераспределению одного и того же компонента по неэквивалентным позициям, причем слабо и сильно связанные позиции вносят неодинаковый (противоположный) вклад в измеряемые характеристики.

3. Изменение степени стабильности радиационных дефектов может контролироваться постепенному смещению уровня Ферми, положение которого зависит от протекания малоэффективных процессов.

В целом можно видеть, что во всех случаях реализуется важнейшее условие: при облучении в исследуемых объектах появляются характерные временные параметры, имеющие существенно различный масштаб. Это обстоятельство гармонирует с известной теоремой Корзухина, согласно которой сложное кинетическое поведение системы, в том числе и не монотонность, появляется в том случае, если в исследуемой системе имеются три вида характеристик: «быстрые» $U_i(t)$, «обычные»- $U_j(t)$ и «медленные» - $U_k(t)$. Дифференциальные уравнения для этих переменных могут быть записаны с помощью малого параметра ε следующим образом:

$$\dot{U}_i(t) = \varepsilon \varphi(U_i, U_j, U_k, t)$$

$$\dot{U}_j(t) = f(U_i, U_j, U_k, t)$$

$$\dot{U}_k(t) = \frac{1}{\varepsilon} \chi(U_i, U_j, U_k, t)$$

В принципе, эффекты малых доз с одним экстремумом возможны и при сочетании двух типов переменных:

1. $U_i(t)$ и $U_j(t)$
2. $U_i(t)$ и $U_k(t)$
3. $U_j(t)$ и $U_k(t)$

Аналогичные эффекты могут реализоваться и при сочетании сразу 3-х типов переменных.

Затем излагаются концептуальные эксперименты, после чего описаны четыре базовые модели, по которым рассчитана кинетика радиационных эффектов и показано существование немонотонной зависимости различные параметры дефектов от дозы.

Выводы:

1. Установлено, что в области надпорогового радиационного дефектообразования при ненулевых температурах выражение для вероятности смещения атома из узла кристаллической решетки зависит от радиуса Онзагера.
2. Доказано, что в области подпорогового радиационного дефектообразования по механизму Оже - деструкции, множитель, определяющий вероятность закрепления смещенного атома, выражается через радиус Онзагера R_c . При Оже - каскаде, развивающемся в «луковицеобразной» иерархической молекулярной структуре, кроме обычных подпороговых атомных смещений, развивается мощная ударная волна, способная деструктурировать материал.
3. В области стимулированных квазихимических реакций выдвинута новая концепция «трофические цепи дефектов», на базе которой разработаны следующие положения:

- дана интерпретация экспериментально обнаруженным осцилляциям ряда объёмных свойств полупроводников при монотонном возрастании температуры;

- дана интерпретация экспериментально обнаруженному на поверхности кристалла NaCl эффекту осцилляции числа образующихся островков Au при монотонном возрастании интенсивности облучения ионами Ag^+ .

- предложена кинетическая модель эффекта непрямо́й рекомбинации вакансии и междоузельного атома через «Ян - Теллеровский примесный центр». Показано, что конкуренция процессов образования E - центров при взаимодействии вакансий с атомами примеси (фосфора) и захвата вакансий Ян -Теллеровским центром приводит к немонотонной кинетике вакансии.

- предложена интерпретация систематическому превышению теоретического значения вероятности рекомбинационно-стимулированной реакции над экспериментальными значениями; установлено, что эффект связан с режимом смещаемости стимулированных колебаний дефектной квазимолекулы.

4. В области прикладных аспектов РФТТ:

- рассмотрен ряд эффектов малых доз в полупроводниках и построены базовые кинетические модели, описывающие немонотонную кинетику дефектов;

- предложен ряд кинетических моделей, описывающих взаимодействия между генерированными радиацией дефектами, примесями и собственными неоднородностями кристаллической решетки.

Литература

1. Заячук Д.М. Колебательной характер процесса установления равновесия в системе собственных дефектов нестехиометрических кристаллов теллуридов свинца и олова // Письма в ЖЭТФ, 1991. Т. 54, № 7, с. 398-400.
2. Хамраева Р. Электрофизические и структурные свойства бездислокационного кремния // Автореф. Дисс. ... канд. физ.-мат. наук. - Ташкент. ИЯФ АН РУз, 1991. - 16 с.
3. Гусева М.Б. Ионная стимуляция процессов на поверхности твёрдого тела. Автореф. дис. ... д-ра. физ.-мат. наук. - М., МГУ. 1988. - 32 с.
4. Onzager L. Initial recombination of Ions./Phys. Rev. 1938. V 54. N 8. -P 554-557.
5. Панов В.И., Смирнов Л.С. О роли коллективных процессов при образовании первичных радиационных дефектов // ФТП, 1973. - Т.7. - № 1. - С. 212-215.
6. Юнусов М.С., Оксенгендлер Б.Л. О времени жизни многозарядных состояний и подпорогового дефектообразования в твердых телах.// Докл АН УзССР, 1975. - № 6. - С. 25-28

СПИСОК ПУБЛИКАЦИЙ АВТОРА ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. А.Б. Авилов, Б.Л. Оксенгендлер, Р. Хамраева, М.С. Юнусов. О природе осциллирующих зависимостей свойств дефектных кристаллов. УФЖ. - 1992. - № 5. - С. 47-50.
2. М.С. Юнусов, Б.Л. Оксенгендлер, А. Ахмадалиев, А.Б. Авилов, А. Султонов. Эффекты малых доз. - Препринт ИЯФ АН РУз. Р-9-581. - Т. - 1992. - 16 с.
3. Авилов А.Б. Трофические цепи дефектов в твёрдых телах. /Прог., сб. тезисы и доклады, 1-я международная конференция молодых физиков по Твёрдотельной электронике - 1994, - г. Наманган - С. 67.
4. А.Б. Авилов, Б.А. Арапов, Б.Л. Оксенгендлер. Об оптимизации радиационной стойкости полупроводников/ Сб. научных трудов БТУ «Дастан» - Бишкек, 1997. - С. 9-11.
5. Авилов А.Б. Эффект непрямой рекомбинации на Ян-Теллеровских примесях. УФЖ, - 1998. - № 6. - С. 30-34.
6. А.Б. Авилов, Б.А. Арапов, Б.Л. Оксенгендлер, М.С. Юнусов. Трофические цепи дефектов в условиях радиационной тряски. Наука и новая технология. - Бишкек, - 1999. № 2. - С. 11-14.
7. А.Б. Авилов, М. Каримов, Б.Л. Оксенгендлер. К проблемам температурной зависимости параметров упругого радиационного дефектообразования. УФЖ. - 1999. - № 3. Т. 1.- С. 238-241.
8. А.Б. Авилов, Б.А. Арапов, Б.Л. Оксенгендлер, чл-кор. АН РУз М.С. Юнусов. О возможности образования разделённых пар Френкеля при подпороговом облучении// Ташкент. Док. АН РУз. - 1999. - № 5. - С. 12-13.
9. А.Б. Авилов, З. Каримов, Б.Л. Оксенгендлер. Модели радиационной стойкости в полупроводниках. Препр. ИЯФ АН РУз. Р-2-641.-Т.- 1999. -20 с.
10. Б.А. Арапов, А.Б. Авилов, Б.Л. Оксенгендлер. О роли динамического хаоса в рекомбинационно-стимулированных атомных процессах// Письма в ЖТФ. - 2000.Т.26. Вып 2. - С. 23-27.
11. М. Ашуров, А.Б. Авилов, Б.А. Арапов, Б.Л. Оксенгендлер. О роли динамического хаоса в рекомбинационно - стимулированных атомных процессах// Науч. труды. ОшГУ. Физ.-мат. науки. - Ош 1999. Вып. 2. - С. 296-301.
12. А.Б. Авилов, Б.А. Арапов, Б.Л. Оксенгендлер, М.С. Юнусов. Теоретические исследования радиационно-стимулированных процессов в компенсированных полупроводниках: Модель радиационной активации электрически неактивных примесей// Науч. тр. ОшГУ. Физ.-мат. науки. - Ош: ОшГУ 1999. Вып. 2. - С. 302-305.
13. А.Б. Авилов, Б.А. Арапов, Б.Л. Оксенгендлер. Диффузионная модель радиационного дефектообразования в твёрдых телах при ненулевых температурах/ Тезисы Докладов 2-ой международной конференции «Ядерная и радиационная физика» - Алма-Ата. - 1999. - С. 203.
14. А.Б. Авилов, Б.А. Арапов, Б.Л. Оксенгендлер, М.С. Юнусов. Образование разделённых пар Френкеля при подпороговом облучении. /Сборник тезисов

- и докладов. Конференция по радиационной физике (с международным участием) КФР – 99. Бишкек - Каракол. –1999 - С. 81
15. А.Б. Авилов, Б.А. Арапов, Б.Л. Оксенгендлер, А. Ким. Усиления эффекта Оже-деструкции в молекулярных иерархических системах./ Сборник тезисов и докладов. Конференция по радиационной физике (с международным участием) КФР – 99. Бишкек - Каракол. –1999 - С. 82.
16. А.Б. Авилов, Б.А. Арапов, Б.Л. Оксенгендлер, М.С. Юнусов. Трофические цепи дефектов в условиях радиационной тряски. /Сб. тезисов и докладов 10-ой международной конференции по радиационной физике и химии неорганических материалов (РФХ –10). - Томск - 1999. – С. 58-60.
17. Б.А. Арапов, А.Б. Авилов, Б.Л. Оксенгендлер, А. А. Ким. Об одном пути усиления эффекта Оже-деструкции в молекулярных системах. Известия вузов «Физика» - Томск, -2000. - Т. 43. - № 1. - С. 98-100.

ANNOTATION

Avilov Alijon Boyzakovich

Radiation defectformation and quasichemical Reactions in Nonmetallic crystals.

In this theses we propose some new models of radiation effects in solids. We developed the theory of overthreshold defects formation (ODF) where thermal migration of the displaced atom over zone of nonstability is taken into account. The decrease of displacement energy with temperature is explained. The model of ODF in porous materials is proposed. The model of Auger-defect formation (where diffusion of displaced atom is taken into account) is proposed. We investigated the ways of initial Auger-electron energy utilization and the role of elastic wave in destructive processes.

Basing on idea of trophics chain of defects we proposed the theory of periodical change of properties of crystals with temperature and intensity of irradiation.

The theory of indirect recombination of primary defects in crystals with Jahn-Teller- impurities is constructed.

Basing on notation of intermittence of phonon excitations we proposed the model of recombination-stimulated reactions.

We analyzed the problems of radiation stability and small doze defects/Some models are proposed for this cases.

Резюме

Авилов Алижон Бойзакович

Радиационные дефектообразования и квазихимические реакции в неметаллических кристаллах

В диссертационной работе построены модели некоторых радиационных эффектов в твёрдых телах.

С учётом термической миграции смещённого за зону неустойчивости атома развита теория надпорогового дефектообразования (НДО). Объяснено температурное уменьшение энергии смещения, построена модель НДО в пористых кристаллах.

Построена модель Оже-дефектообразования с учётом диффузии смещённого атома. Исследована возможность утилизации энергии первичного Оже-электрона и определена роль генерации упругой волны в деструкционных процессах.

На базе представлений о трофических цепях дефектов сформулирована теория периодической зависимости свойств кристаллов от температуры и интенсивности облучения.

Разработана теория непрямой рекомбинации первичных дефектов в кристаллах с Ян-Теллеровскими примесями.

На базе представлений о смещаемости фононных возбуждений предложена модель рекомбинационно-стимулированных процессов в неметаллических кристаллах.

Предложены новые интерпретации моделей 2-х радиационно-материаловедческих эффектов: модели радиационной стойкости и модели эффекта малых доз.

Резюме

Авилов Алижон Бойзакович

Металл эмес кристаллдардагы радиациялык дефекттин пайда болушу жана квазихимиялык реакциялар

Диссертациялык иште катуу заттардагы айрым радиациялык эффекттердин модели тузулгон. Атомдордун туруктуу эмес тилкесинен ары жылышынын термикалык миграциясын эске алуу менен чектин устундогу (надпороговой) дефекттердин пайда болуу теориясы оркундотулгон жана жылыш энергиясынын температуралык азайышы тушундурулгон.

Жылган атомдун диффузиясын эске алуу менен Оже-дефекттин пайда болуусунун модели тузулгон жана биринчи Оже-электрондун энергиясынын коромжусуздук мумкунчулугу жана деструкциялык процесстерде серпилгичтуу толкундун пайда кылуу ролу изилденген.

Дефекттердин трофикалык чынжыры жонундогу тушунуктун негизинде кристаллдардын касиеттеринин температурадан жана нурдануунун интенсивдуулугунон мезгилдуу коз карандылыгынын теориясы берилген.

Кристаллдардагы алгачкы дефекттердин Ян-Теллердик кошулмалар менен туз эмес биригуусунун теориясы жана фонондук дуулугуулордун аралашуусу жонундогу коз караштын базасында рекомбинациялык туртку болгон процесстердин модели сунуш кылынган.

Эки радиациялык эффекттин: радиациялык туруктуулук жана аз доза эффектисинин модели каралган.