

Опубліковано у:

Вісник Національного університету “Львівська політехніка”. Серія “Електроніка”. – 2004,
№ 514. – С. 23-32.

УДК 621

С.Б. Убізський ¹⁾, О.А. Бурій ¹⁾, П. Потера ²⁾, А.О. Матковський ¹⁾

¹⁾ Національний університет “Львівська політехніка”

²⁾ Інститут фізики, Жешувський університет, Республіка Польща

МОДЕЛІ НАКОПИЧЕННЯ РАДІАЦІЙНИХ ДЕФЕКТІВ В ОКСИДНИХ КРИСТАЛАХ

© С.Б.Убізський, О.А.Бурій, П.Потера, А.О.Матковський, 2004

S.B. Ubizskii, O.A. Buryy, P. Potera, A.O. Matkovskii

MODELS OF THE RADIATION DEFECTS ACCUMULATION IN OXIDE CRYSTALS

© S.B. Ubizskii, O.A. Buryy, P. Potera, A.O. Matkovskii, 2004

У роботі розглянуто задачу опису кінетики накопичення радіаційних дефектів в кристалах складних оксидів. Проаналізовано моделі, які описують основні процеси та явища, що мають місце при опроміненні кристала – зміну зарядового стану генетичних дефектів, обмеженість процесу перезарядки генетичних дефектів їх кількістю та процесом їх рекомбінації, утворення радіаційних дефектів зміщення та їх іонізацію, обмеженість процесу утворення радіаційних дефектів та їх іонізації процесами рекомбінації, а також утворення комплексів аніонної і катіонної вакансій

Ключові слова: радіаційне дефектоутворення, оксидні кристали.

The description problem of the radiation defects accumulation kinetics is considered. The analysis is carried out for models describing the basic processes and phenomena taking place at the crystal irradiation, namely the genetic defects recharging, the limitation of the genetic defects recharging by their quantity and recombination, the displacement defects formation and ionization of them, the limitation of the radiation defects formation and their ionization by the recombination processes as well as formation of complexes of anion and cation vacancies.

Key words: radiation defects formation, oxide crystals.

*Краще притримуватися гіпотези,
яка згодом може виявитися
невірною, аніж ніякої.*

Д.І. Менделєєв

Вступ

Дослідження впливу іонізуючих випромінювань на властивості матеріалів електронної техніки, зокрема, оксидних кристалів, є важливою задачею матеріалознавства в електроніці, оскільки вона пов'язана як із забезпеченням

функціонування електронних приладів в умовах дії значних радіаційних опромінь, так і з керуванням параметрами матеріалів, зокрема, “заліковуванням” генетичних дефектів кристалів [1-4]. Необхідною ланкою в комплексі таких досліджень є побудова адекватної математичної моделі дефектоутворення, яка дозволить передбачати результат дії на матеріал різних видів та доз опромінення. Дана робота є продовженням циклу робіт [2-7] і присвячена моделюванню процесів накопичення радіаційних дефектів в монокристалах складних оксидів. Такий вибір об’єкта досліджень пов’язаний із широким використанням, яке знаходять оксидні кристали, такі як LiNbO_3 , $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, YAlO_3 , $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ у квантовій та оптоелектроніці, що, в свою чергу, обумовлює комплекс вимог відносно оптичної якості цих кристалів, зокрема, можливості формування в них радіаційних центрів забарвлення.

Як відомо, при дії на кристал іонізуючих опромінь їх енергія витрачається головним чином на збудження електронної підсистеми кристала [2,7], що може призводити до зміни зарядового стану генетичних дефектів кристала, зокрема, появи центрів забарвлення. Крім того, деяка незначна частина енергії витрачається на збудження основної підсистеми – утворення радіаційних дефектів зміщення (френкелівських пар – вакансія–атом у міжвузлі). До основних процесів та явищ, які необхідно враховувати при моделюванні радіаційного дефектоутворення слід віднести: зміну зарядового стану генетичних дефектів з утворенням метастабільних іонізованих центрів, зокрема, центрів забарвлення; обмеженість процесу перезарядки генетичних дефектів їх кількістю та процесом рекомбінації; утворення радіаційних дефектів зміщення (пар Френкеля) і їх вторинну іонізацію, тобто зміну зарядового стану утворених при опроміненні радіаційних дефектів; обмеженість процесу утворення радіаційних дефектів, а отже, і процесу вторинної іонізації, процесами рекомбінації при утворенні френкелівської пари в зоні анігіляції компонент іншої; можливість розпаду метастабільних центрів та рекомбінації френкелівських пар внаслідок термічно активованої рухливості дефектів. В даній роботі розглянемо моделі, які враховуватимуть зазначені особливості.

Побудова та аналіз моделей накопичення радіаційних дефектів зміщення та іонізованих центрів

Нехай до початку дії опромінення концентрація генетичних дефектів в кристалі складала n_0 , а потужність флюенсу (кількість частинок опромінення, що проходять через одиницю площі кристала за одиницю часу) є постійною протягом всього часу опромінення і дорівнює P . Тоді, кінетику перезарядки генетичних дефектів у кристалі можна описати рівнянням

$$dn/dt = (n_0 - n)P\sigma_I, \quad (1)$$

де σ_I – переріз процесу зміни зарядового стану генетичних дефектів. Тут і далі дефекти вважатимемо однотипними. У випадку існування в кристалі невзаємодіючих дефектів, що належать до m різних типів, модель перезарядки міститиме m рівнянь типу (1). Розв’язком рівняння (1) є дозова залежність:

$$n(\Phi) = n_0(1 - e^{-\sigma_I\Phi}), \quad (2)$$

представлена на рис. 1 кривою 1. У (2) Φ – флюенс частинок опромінення, $\Phi = Pt$, де t – загальний час опромінення.

Генерація радіаційних дефектів зміщення в найпростішому випадку описується рівнянням

$$\frac{dn_d}{dt} = n_a \sigma_d P, \quad (3)$$

де n_d – концентрація дефектів зміщення, n_a – концентрація атомів у кристалі, σ_d – переріз процесу утворення дефектів зміщення.

Розв'язком рівняння (3) при початковій умові $n_d(0) = n_0$ є лінійна дозова залежність

$$n_d(\Phi) = n_0 + n_a \sigma_d \Phi, \quad (4)$$

представлена на рис. 1 лінією 2 (пряма 5 на тому ж рисунку представляє залежність від флюєнса різниці $n_d(\Phi) - n_0$).

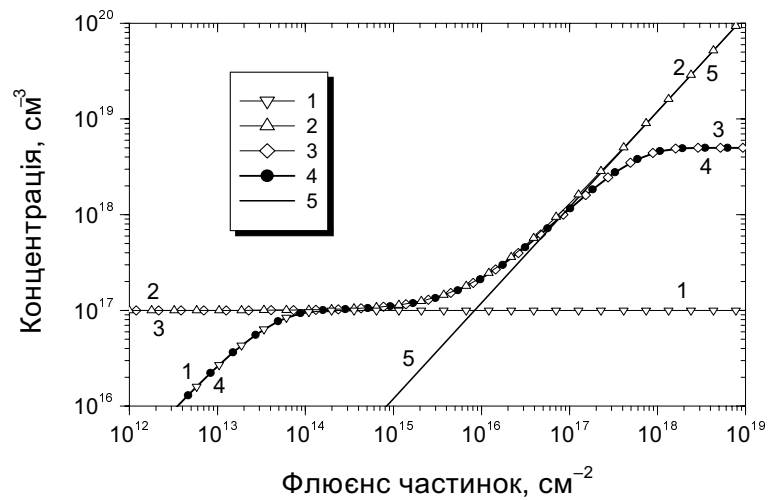


Рис. 1. Кінетика накопичення радіаційних дефектів [7]: криві 1–4 представляють розрахунок за рівняннями (2), (4), (6) та (8) відповідно. Розрахунки виконані для наступних значень параметрів: $n_0 = 10^{17} \text{ см}^{-3}$, $\sigma_i = 3 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$, $\sigma_d = 8 \cdot 10^{-21} \text{ см}^2$, $n_a = 1.5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$, $v_a = 2 \cdot 10^{-19} \text{ см}^3$.

При значній концентрації зміщень ймовірність того, що компоненти новоутвореної пари Френкеля опиняться в зоні нестійкості вже існуючих радіаційних дефектів, збільшується. Це означає, що зростання кількості дефектів буде обмежуватися анігіляцією зміщених атомів на вже існуючих вакансіях. Ймовірність опинитися у зоні нестійкості вакансій створеного зміщенням дефекту можна оцінити як відношення загального об'єму зон нестійкості всіх дефектів до об'єму кристалу. Для одиничного об'єму кристалу така ймовірність рівна $n_d v_r$, де v_r – об'єм зони нестійкості радіаційного дефекту. Накопичення радіаційних дефектів зміщення, обмежене анігіляцією, описується рівнянням:

$$dn_d/dt = n_a P \sigma_d (1 - v_r n_d), \quad (5)$$

При початковій умові $n_d(0) = n_0$ розв'язком рівняння (5) є дозова залежність

$$n_d(\Phi) = n_0 e^{-n_a \sigma_d v_r \Phi} + \frac{1}{v_r} (1 - e^{-n_a \sigma_d v_r \Phi}), \quad (6)$$

представлена на рис. 1 кривою 3. При $v_r \rightarrow 0$, тобто за умови малих розмірів зони нестійкості дефекта, рівняння (6) зводиться до (4).

Якщо на радіаційних дефектах, створених зміщенням, шляхом іонізаційної перезарядки утворюються центри забарвлення, то кінетику їх накопичення описує диференціальне рівняння, формально подібне до (1):

$$\frac{dn}{dt} = (n_d - n)\sigma_I P. \quad (7)$$

де n_d визначається рівнянням (6).

При початковій умові $n(0) = n_0$ розв'язком (7) є залежність

$$n(\Phi) = \frac{1}{v_r} \left(1 - e^{-\sigma_I \Phi}\right) + \frac{\sigma_I (n_0 v_r - 1)}{v_r (\sigma_I - n_a \sigma_d v_r)} \left(e^{-n_a \sigma_d v_r \Phi} - e^{-\sigma_I \Phi}\right), \quad (8)$$

представлена кривою 4 на рис. 1.

Оскільки, як зазначалося, основна частина енергії опромінення витрачається на створення іонізованих центрів, то $\sigma_d \ll \sigma_I$. Отже, в області флюенсів $\Phi \ll (n_a \sigma_d v_r)^{-1}$ залежність (8) спрощується і описується рівнянням (2), а у випадку $\Phi \gg \sigma_I^{-1}$ зводиться до залежності вигляду (6). Крім того, виконання умови $\sigma_d \ll \sigma_I$ вказує на швидку іонізацію всіх новоутворених радіаційних дефектів, які можуть іонізуватися в даних умовах опромінення.

Характерною особливістю залежності (8) в загальному випадку є наявність двох областей насичення. Перша з них відповідає області флюенсів, при яких всі генетичні дефекти перезарядилися, а концентрація радіаційних дефектів зміщення, здатних до іонізації, є незначною, а друга – області, в якій процес утворення нових дефектів зміщення компенсується взаємною анігіляцією френкелівських пар.

Врахування процесів термічно активованої рекомбінації френкелівських пар можливе на основі уявлень про квазіхімічні реакції. Зокрема, якщо концентрація однієї з компонент пар Френкеля є суттєво більшою від концентрації іншої компоненти, то їх рекомбінація відбуватиметься як квазіхімічна реакція першого порядку ($-dn/dt \sim n^{-1}$), а при співмірній концентрації (ситуація, що більш ймовірно має місце безпосередньо при опроміненні) – як реакція другого порядку ($-dn/dt \sim n^{-2}$).

Якщо відпал радіаційних дефектів, утворених за ударним механізмом, відбувається у процесі опромінення, то вклад рекомбінації компонент пар Френкеля у зміну їх концентрації внаслідок квазіхімічної реакції першого порядку можна описати:

$$dn_d/dt = -K_1 n_d, \quad (9)$$

аналогічно для реакції другого порядку

$$dn_d/dt = -K_2 n_d^2, \quad (10)$$

де K_1 і K_2 – константи швидкості реакції, що є обернено пропорційними до часу життя дефекту τ_d , залежність якого від температури кристалу T описується рівнянням типу рівняння Арреніуса:

$$\tau = \tau_0 \exp(E_a / kT), \quad (11)$$

де τ_0 – характерний час, що має зміст періоду власних термофлуктуаційних коливань, які призводять до можливості перескокової рухливості дефекту, E_a – енергія активації рекомбінаційного процесу.

Враховавши (9) та (10) у (3), можна отримати часові залежності, що описують накопичення дефектів зміщення. При початковій умові $n_d(0) = n_0$ у першому і другому випадках відповідно отримуємо:

$$n_d(t) = n_0 e^{-K_1 t} + \frac{n_a \sigma_d P}{K_1} (1 - e^{-K_1 t}), \quad (12)$$

$$n_d(t) = \frac{n_0 + \sqrt{n_a \sigma_d P / K_2} \tanh(\sqrt{n_a \sigma_d P K_2} \cdot t)}{1 + n_0 \sqrt{K_2 / n_a \sigma_d P} \tanh(\sqrt{n_a \sigma_d P K_2} \cdot t)}. \quad (13)$$

Залежність (12) по своїй структурі подібна до залежності (6), тобто характер дозової залежності буде аналогічним до представленого на рис. 1 кривою 3. Суттєва відмінність полягає лише у тому, що рівень концентрації радіаційних дефектів при насиченні дозової залежності при $\Phi \rightarrow \infty$, згідно з (12), відповідає величині $n_a \sigma_d P / K_1$, тобто залежить від потужності флюенсу, а також в силу (11) від температури опромінення. У випадку релаксаційного процесу, що відповідає кінетиці другого порядку, рівень насичення дозової залежності відповідає величині $\sqrt{n_a \sigma_d P / K_2}$, і, знову ж таки, залежить від потужності флюенсу і від температури опромінення, однак у відмінний спосіб. Залежності (12) і (13) представлено на рис. 2 для параметрів, що відповідають однаковому рівню насичення.

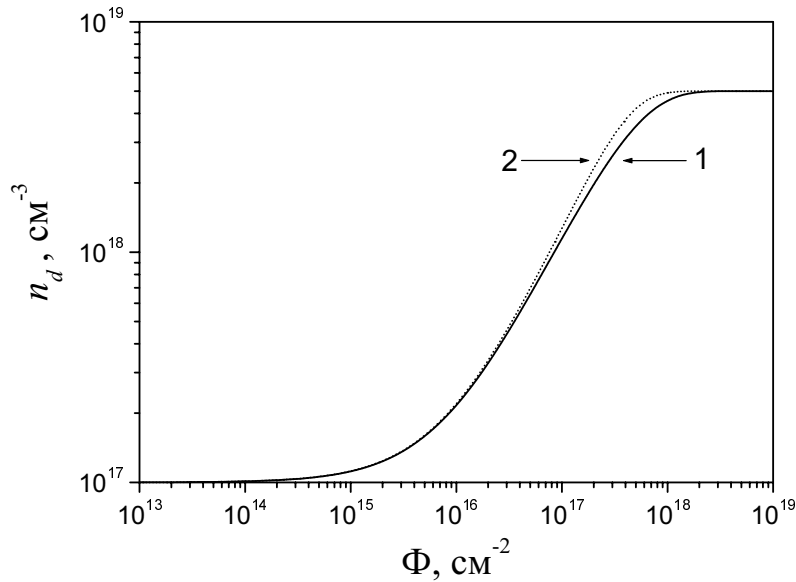


Рис. 2. Кінетика накопичення радіаційних дефектів при врахуванні термічно активованої рекомбінації френкелівських пар за кінетикою першого (1) та другого порядку (2). Розрахунки виконані для значень параметрів: $K_1 = 2.4 \cdot 10^{-5} \text{ c}^{-1}$, $K_2 = K_1^2 / (n_a \sigma_d P) = 4.8 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^3 \cdot \text{c}^{-1}$.

З рис. 2 видно, що релаксаційні процеси обох типів не впливають на швидкість росту концентрації радіаційних дефектів на початку опромінення (він є лінійним) і погано розрізняються при наближенні до насичення дозової залежності. Це означає, що лише з вигляду дозової залежності не можна встановити, який з процесів – анігіляція пар Френкеля у процесі опромінення, рекомбінаційні процеси першого чи другого порядку – обмежує накопичення радіаційних дефектів зміщення. Для встановлення відповідального процесу слід провести опромінення при різних інтенсивностях потоку частинок та при різних температурах і порівняти рівні насичення дозової залежності. Альтернативним способом є дослідження процесу ізотермічного відпалу накопичених дефектів, оскільки для рекомбінаційного процесу першого порядку часова залежність при ізотермічному відпалі буде експоненціальною, а при рекомбінації за реакцією другого порядку – гіперболічною. Слід також відзначити, що при аналіз утворення парних асоціатів дефектів, наприклад, комплексних центрів катіонна вакансія, об'єднана з аніонною, ріст концентрації таких дефектів при створенні їх по ударному механізму теж є лінійним за часом.

Оскільки енергії активації розпаду метастабільних іонізованих центрів переважно нижчі, ніж енергія активації процесу міграції точкових дефектів, то важливо встановити вплив цих процесів на характер накопичення іонізованих центрів, утворених на радіаційних дефектах зміщення. Оскільки, при $\sigma_I \gg \sigma_d$ слід очікувати іонізації всіх новоутворених радіаційних дефектів, то ми надалі не будемо враховувати можливість обмеження росту концентрації радіаційних дефектів зміщення процесами анігіляції чи рекомбінації компонент пар Френкеля. Врахувавши розпад іонізованих центрів, подібно до того, як в рівняннях (9) і (11), отримаємо диференціальні рівняння для часової залежності концентрації іонізованих центрів з релаксацією за реакціями першого і другого порядку відповідно:

$$\frac{dn}{dt} = (n_0 + n_a \sigma_d P t - n) \sigma_i P - K_1^* n, \quad (14)$$

$$\frac{dn}{dt} = (n_0 + n_a \sigma_d P t - n) \sigma_i P - K_2^* n^2, \quad (15)$$

де K_1^* і K_2^* – константи швидкості реакції розпаду іонізованих центрів за кінетикою першого та другого порядку відповідно.

З рівнянь (14) і (15) випливає, зокрема, що досягнення стаціонарного рівня насичення росту концентрації, при якому $dn/dt = 0$, в обох випадках за рахунок розпаду іонізованих центрів відбутися не може, і причиною насичення можуть виступати лише процеси, які обмежують ріст концентрації дефектів зміщення, тобто миттєва анігіляція компонент пар Френкеля у місцях їх утворення або дифузійно-контрольована рекомбінація пар Френкеля за рахунок міграції її компонент.

Рівняння (14) має розв'язок виду:

$$n(t) = \left(n_0 \sigma_i P - \frac{n_a \sigma_d \sigma_i P^2}{K_1^* + \sigma_I P} \right) \frac{(1 - e^{-(K_1^* + \sigma_I P)t})}{K_1^* + \sigma_I P} + \frac{n_a \sigma_d \sigma_i P^2}{K_1^* + \sigma_I P} t, \quad (16)$$

в якому перший доданок відповідає іонізації генетичних дефектів, а другий – іонізації дефектів зміщення. У відсутності дефектоутворення за ударним механізмом

перезарядка генетичних дефектів насичується при досягненні рівня концентрації іонізованих дефектів $n_0 \sigma_i P / (K_1^* + \sigma_i P)$. Таким чином, максимальна кількість іонізованих генетичних дефектів зменшується при збільшенні величини K_1^* (або в силу (12) температури T) та асимптотично наближається до n_0 при збільшенні потужності флюенсу частинок опромінення P .

На рис. 3 наведено графіки залежностей концентрації іонізованих центрів від флюенса, розраховані за (16) для тих самих параметрів, що для рис. 1 та для різних значень константи швидкості реакції K_1^* . Як видно з рис. 3, розпад іонізованих центрів, що відбувається за кінетикою першого порядку, не веде до зміни нахилу залежності $n(\Phi)$ у подвійному логарифмічному масштабі (величина нахилу залежностей $n(\Phi)$ визначає порядок реакції [7]). Тангенс кута нахилу залежностей 1 – 4 на рис.3 є близьким до 1, що відповідає нахилу прямої 5 на рис. 1.

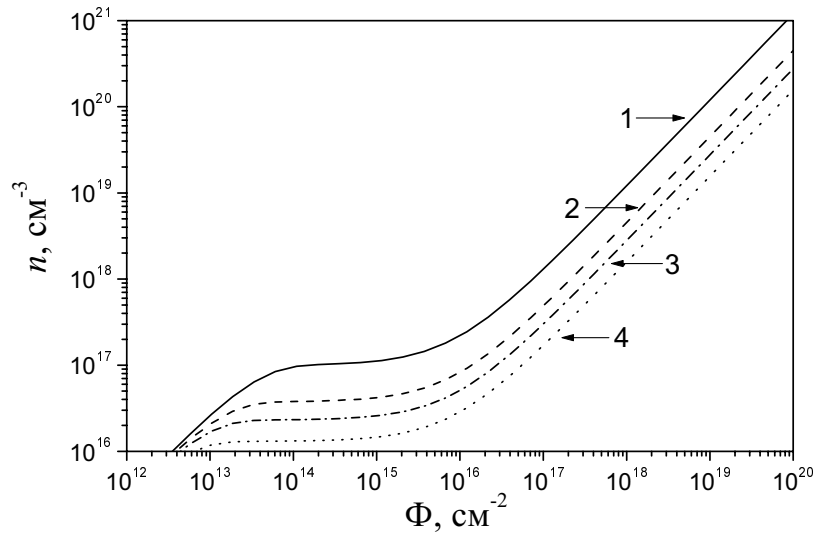


Рис. 3. Кінетика накопичення радіаційних дефектів при врахуванні термічно активованої рекомбінації іонізованих центрів за кінетикою першого порядку при значеннях константи швидкості реакції $K_1^* = 0$ (1), 0.5 (2), 1 (3), 2 (4) с^{-1} .

Рівняння (15) відноситься до рівнянь типу узагальненого рівняння Рікатті і його розв'язок записується через спеціальні функції Ейрі $Ai(z)$, $Bi(z)$ [8]:

$$n(t) = -\frac{n_0}{2} \frac{2(ad)^{1/3} Bi'(z) + bBi(z) + 2C_0(ad)^{1/3} Ai'(z) + C_0 bAi(z)}{C_0 Ai(z) + Bi(z)}, \quad (17)$$

$$\text{де } a = n_0 K_2^*, \quad b = \sigma_i P, \quad c = -\sigma_i P, \quad d = -\sigma_i \sigma_d \frac{n_a}{n_0} P, \quad C_0 = -\frac{2(ad)^{1/3} Bi'(z_0) + bBi(z_0)}{(ad)^{1/3} Ai'(z_0) + bAi(z_0)},$$

$$z_0 = \frac{b^2 + 4ac}{4(ad)^{2/3}}, \quad z = z_0 - (ad)^{1/3} t,$$

$$Ai(z) = \frac{1}{3^{2/3} \Gamma\left(\frac{2}{3}\right)} \sum_{j=0}^{\infty} f_j \frac{z^{3j}}{(3j)!} - \frac{1}{3^{1/3} \Gamma\left(\frac{1}{3}\right)} \sum_{j=0}^{\infty} g_j \frac{z^{3j+1}}{(3j+1)!}, \quad Ai'(z) \equiv \frac{dAi(z)}{dz},$$

$$Ai(z) = \frac{1}{3^{1/6} \Gamma\left(\frac{2}{3}\right)} \sum_{j=0}^{\infty} f_j \frac{z^{3j}}{(3j)!} + \frac{1}{3^{-1/6} \Gamma\left(\frac{1}{3}\right)} \sum_{j=0}^{\infty} g_j \frac{z^{3j+1}}{(3j+1)!}, \quad Bi'(z) \equiv \frac{dBi(z)}{dz},$$

$$f_j = \prod_{i=1}^j (3i-2) \quad g_j = \prod_{i=1}^j (3i-1)$$

Розв'язок рівняння (15), записаний у вигляді (17), є достатньо складним для аналізу, проте і в цьому випадку слід очікувати ситуації якісно подібної тої, що мала місце при аналізі рівнянь (12), (13). Зокрема, з (15) випливає, що у відсутності генерації радіаційних дефектів зміщення процес іонізації ростових дефектів при наявності рекомбінації другого порядку насичується на рівні $n = \sqrt{\frac{n_0 \sigma_I P}{K_2^*} + \frac{\sigma_I^2 P^2}{4K_2^{*2}}} - \frac{\sigma_I P}{2K_2^*}$, який

прямує до n_0 при $\frac{\sigma_I P}{K_2^*} \rightarrow \infty$.

На рис. 4 наведено графіки залежностей концентрації іонізованих центрів від флюенса, розраховані за (17) для тих самих параметрів, що і для попереднього рисунку та для різних значень константи швидкості реакції.

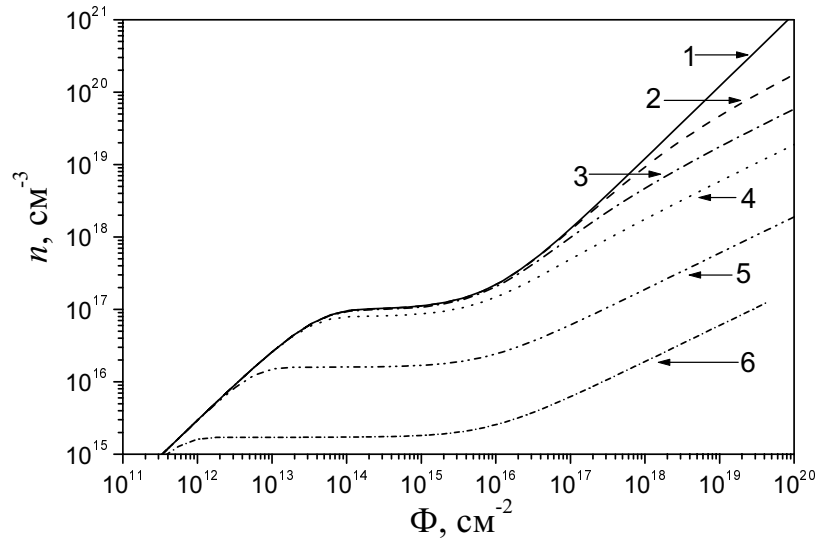


Рис. 4. Кінетика накопичення радіаційних дефектів при врахуванні термічно активованої рекомбінації іонізованих центрів за кінетикою другого порядку при значеннях константи швидкості реакції $K_2^* = 0$ (1), 10^{-20} (2), 10^{-19} (3), 10^{-18} (4), 10^{-16} (5), 10^{-14} (6) $\text{см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$.

Як видно з рис. 4, при наявності рекомбінації іонізованих центрів за реакцією другого порядку в області великих флюенсів спостерігається відхилення величини тангенса кута нахилу від одиниці у подвійному логарифмічному масштабі. При цьому збільшення константи швидкості реакції веде до того, що в області відносно малих

значень K_2^* нахил змінюється при практично сталій величині концентрації іонізованих центрів в області насичення, тоді як при більших K_2^* тангенс кута нахилу лишається постійним і в широкому діапазоні зміни параметрів задачі близьким до 0.5, а величина концентрації насичення починає помітно зменшуватися. Оскільки при зростанні K_2^* величина тангенсу кута нахилу проходить всі значення між 1 та 0.5, то саме наявністю рекомбінації іонізованих центрів за реакцією другого порядку можуть бути пояснені результати досліджень накопичення радіаційних дефектів в кристалах $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ та $\text{LiNbO}_3:\text{Cr}$ [7] при опроміненні швидкими нейтронами, в яких тангенс кута нахилу залежності $n(\Phi)$ складав ~ 0.8 . Іншим можливим поясненням може бути наявність кількох механізмів рекомбінації з різними порядками реакцій. Дійсно, якщо припустити, що можливою одночасно є рекомбінація за реакціями як першого, так і другого порядку, то відповідне рівняння матиме вигляд

$$\frac{dn}{dt} = (n_0 + n_a \sigma_d P t - n) \sigma_i P - K_1^* n - K_2^* n^2, \quad (18)$$

а його розв'язки будуть визначатися виразом (17) при $b = \sigma_i P + K_1^*$. На рис. 5 наведено результати розрахунків дозової залежності при різних значеннях констант швидкості реакцій K_2^* та K_1^* .

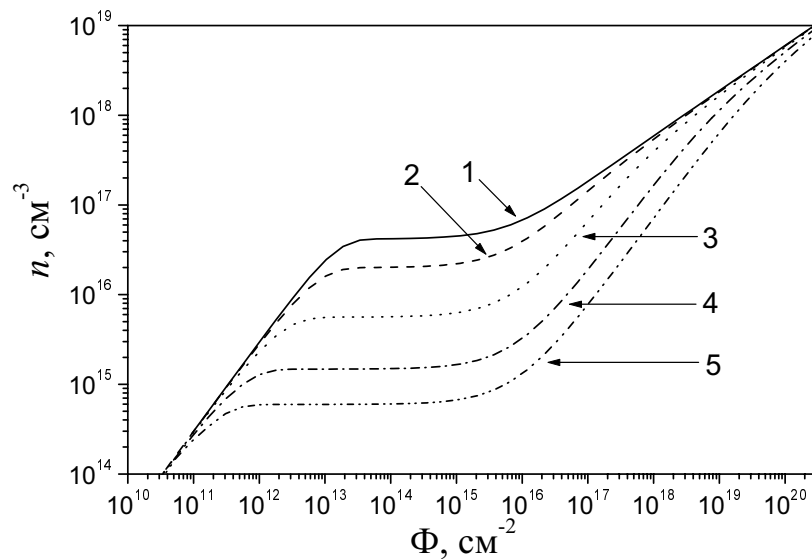


Рис. 5. Кінетика накопичення радіаційних дефектів при врахуванні термічно активованої рекомбінації іонізованих центрів за змішаною кінетикою першого та другого порядку при $K_2^* = 10^{-17} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ та $K_1^* = 0$ (1), 1 (2), 5 (3), 20 (4), 50 (5) с^{-1} .

Як випливає з розрахунків, в області великих флюєнсів $\Phi \sim 10^{20} \text{ см}^{-2}$ важливішу роль у процесі накопичення радіаційних дефектів грає рекомбінація за реакцією другого порядку, тоді як при менших флюєнсах $\Phi \sim 10^{16} \div 10^{20} \text{ см}^{-2}$ – рекомбінація за реакцією першого порядку.

При існуванні в кристалі взаємодії дефектів різного типу, дозові залежності для цих дефектів будуть визначатися з системи диференціальних рівнянь. Для прикладу

розглянемо утворення при опроміненні комплексу з протилежно заряджених вакансій. Концентрації аніонної (1) та катіонної (2) вакансій повинні задовольняти рівнянням

$$\begin{cases} \frac{dn_1}{dt} = n_a \sigma_{d1} P - K_c n_1 n_2 \\ \frac{dn_2}{dt} = n_a \sigma_{d2} P - K_c n_1 n_2 \end{cases}, \quad (19)$$

де K_c – швидкість бімолекулярної реакції комплексоутворення, контрольована дифузиею.

Увівши змінну $z = n_1 - n_2$ та віднімаючи друге рівняння системи від першого, отримуємо рівняння відносно z

$$dz / dt = n_a (\sigma_{d1} - \sigma_{d2}) P, \quad (20)$$

яке має розв'язок $z = z(0) + n_a (\sigma_{d1} - \sigma_{d2}) P t$. Далі, виразивши n_2 через n_1 та z , та враховуючи, що $z(0) = 0$, отримуємо рівняння відносно n_1 :

$$\frac{dn_1}{dt} = n_a \sigma_{d1} P - K_c n_1^2 - K_c n_a (\sigma_{d2} - \sigma_{d1}) P n_1 t. \quad (21)$$

Рівняння для n_2 є однотипним:

$$\frac{dn_2}{dt} = n_a \sigma_{d2} P - K_c n_2^2 - K_c n_a (\sigma_{d1} - \sigma_{d2}) P n_2 t. \quad (22)$$

У випадку, коли перерізи процесів утворення аніонної та катіонної вакансій є близькими, $\sigma_{d1} \approx \sigma_{d2}$, останніми доданками у (21), (22) можна знехтувати. При цьому розв'язки рівнянь (21), (22) описуватимуться залежністю (13), яку представлено на рис. 2. Як видно з рис. 2 і впливає безпосередньо з (21), (22) лише у цьому випадку на дозових залежностях спостерігатиметься насичення.

У загальному випадку розв'язки рівнянь (21), (22) записуються через функції Уїттекера $M_{k,m}(z)$ та $W_{k,m}(z)$ [9]:

$$n_{1,2}(z) = \frac{(ac + b)C_0 M_{k+1,m}(z) - ac C_0 M_{k,m}(z) - 2b W_{k+1,m}(z) - ac W_{k,m}(z)}{abt(C_0 M_{k,m}(z) + W_{k,m}(z))}, \quad (23)$$

де $z = \frac{1}{2} b t^2$, C_0 – постійна інтегрування, $a = K_c$, $b = K_c n_a (\sigma_{d1} - \sigma_{d2}) P$, $c = -n_a \sigma_{d1} P$

для рівняння (21) та $c = -n_a \sigma_{d2} P$ для (22), $k = \frac{1}{4} \left(\frac{2ac}{b} - 1 \right)$, $m = \frac{1}{4}$.

Концентрація утворених комплексів n_c визначається з одного з двох еквівалентних рівнянь

$$\frac{dn_c}{dt} = n_a \sigma_{d1} P - \frac{dn_1}{dt}, \quad \frac{dn_c}{dt} = n_a \sigma_{d2} P - \frac{dn_2}{dt}. \quad (24)$$

За початкової умови $n_c(0) = 0$ з (24) отримуємо:

$$n_c = n_a \sigma_{d1} \Phi + n_{10} - n_1 = n_a \sigma_{d2} \Phi + n_{20} - n_2. \quad (25)$$

У частковому випадку, коли всі дефекти одного типу приймають участь у комплексоутворенні (наприклад, коли, $dn_2/dt = 0$), то

$$n_c = n_a \sigma_{d2} \Phi, \quad (26)$$

тобто концентрація комплексів зростає лінійно, як і у випадку одиночних радіаційних дефектів зміщення (4). При цьому, вочевидь, і концентрація дефектів іншого типу (тобто n_1) зростатиме лінійно у відповідності до співвідношення

$$n_1 = n_{10} - n_{20} + n_a (\sigma_{d1} - \sigma_{d2}) \Phi. \quad (27)$$

Результати розрахунків концентрацій аніонної та катіонної вакансій n_1 , n_2 та комплексів n_c наведено на рис. 6, при цьому, оскільки розв'язки у вигляді (23) є достатньо незручними для аналізу, система (19) розв'язувалася чисельно.

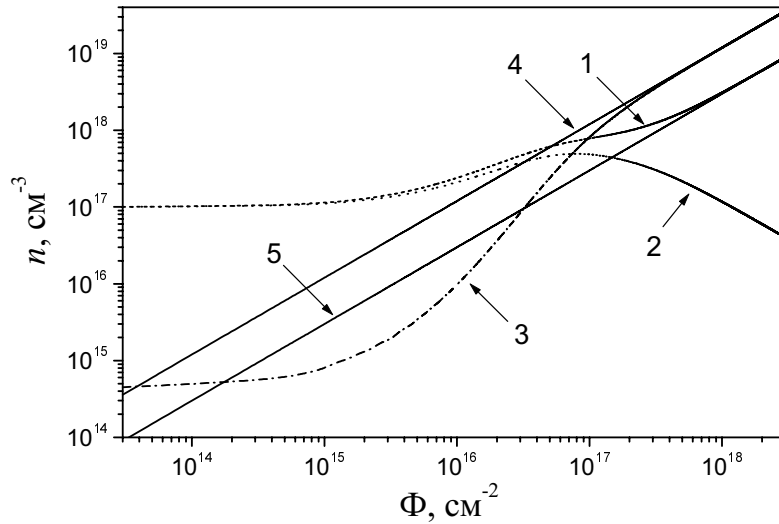


Рис. 6. Кінетика накопичення радіаційних дефектів зміщення – аніонних n_1 (1) та катіонних вакансій n_2 (2) та їх комплексів n_c (3) при $n_{10} = n_{20} = 10^{17} \text{ см}^{-3}$, $\sigma_{d1} = 1 \cdot 10^{-20} \text{ см}^2$, $\sigma_{d2} = 8 \cdot 10^{-21} \text{ см}^2$, $n_a = 1.5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$, $K_c = 1 \cdot 10^{-21} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^3$. Прямі 4 та 5 представляють залежності (26) та (27) відповідно.

Як видно з рис. 6, при різних значеннях перерізу радіаційного дефектоутворення аніонної та катіонної вакансій в області великих флюєнсів спостерігається зростання концентрації вакансій, що характеризуються більшим перерізом дефектоутворення σ_d та зменшення концентрації вакансій з меншим σ_d . Це зв'язано з тим, що зростання концентрації дефектів з більшим σ_d веде до збільшення імовірності зв'язування дефектів другого типу у комплекс, яка при деякому значенні флюєнсу починає перевищувати імовірність їх утворення. При цьому на дозовій залежності спостерігатиметься максимум (див. криву 2 на рис. 6), що може розглядатися як характерна особливість дозової залежності, яка має місце при утворенні в опромінену кристалі комплексів дефектів.

Висновки

У роботі розглянуто задачу опису кінетики накопичення радіаційних дефектів – іонізованих центрів та дефектів зміщення в кристалах складних оксидів. Розглянуто моделі, які описують основні процеси та явища, що мають місце при опроміненні кристала – зміну зарядового стану генетичних дефектів з утворенням метастабільних іонізованих центрів, зокрема, центрів забарвлення; обмеженість процесу перезарядки генетичних дефектів їх кількістю та процесом рекомбінації; утворення радіаційних дефектів зміщення (пар Френкеля) і їх вторинну іонізацію, тобто зміну зарядового стану утворених при опроміненні радіаційних дефектів; обмеженість процесу утворення радіаційних дефектів, а отже, і процесу вторинної іонізації, процесами рекомбінації при утворенні френкелівської пари в зоні анігіляції компонент іншої; можливість розпаду метастабільних центрів та рекомбінації френкелівських пар за рахунок термоактивованої рекомбінації.

Показано, що в загальному випадку, але за відсутності утворення комплексів дефектів, дозові залежності містять дві області насичення, перша з яких відповідає повній перезарядці генетичних дефектів кристалу, друга – насиченню процесу утворення радіаційних дефектів зміщення внаслідок їх взаємної анігіляції.

За наявності термоактивованої рекомбінації радіаційних дефектів зміщення характер дозових залежностей не дозволяє визначити порядок реакції рекомбінації. Для встановлення відповідального процесу слід визначити величину рівня насичення при різних інтенсивностях потоку частинок та при різних температурах.

Термоактивована рекомбінація іонізованих центрів, що відбувається за кінетикою першого порядку, не веде до зміни нахилу дозової залежності у подвійному логарифмічному масштабі.

При рекомбінації іонізованих центрів за реакцією другого порядку при зростанні швидкості реакції нахил дозової залежності зменшується. Саме рекомбінацією іонізованих центрів за реакцією другого порядку (або наявністю кількох механізмів рекомбінації з різними порядками реакцій) можуть бути пояснені результати досліджень накопичення радіаційних дефектів в кристалах $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ та $\text{LiNbO}_3:\text{Cr}$ при опроміненні швидкими нейтронами.

За умови утворення комплексів дефектів, зокрема, комплексу, що складається з аніонної та катіонної вакансій, при достатньо великих флюенсах відбуватиметься збагачення кристалу дефектами з більшим значенням перерізу радіаційного дефектоутворення σ_d та збіднення його дефектами з меншим перерізом. При цьому на залежності концентрації дефектів останнього типу від флюенса спостерігається максимум, що може розглядатися як характерна особливість дозової залежності, яка вказує на утворенні в опроміненому кристалі комплексів дефектів. Отримані математичні моделі можуть бути використані для аналізу особливостей дозових залежностей для різних кристалів твердотільної електроніки та фотоніки.

Література

1. Матковський А.О. Матеріали квантової електроніки. – Львів: Ліга-Прес, 2000.
2. Матковский А.О., Сугак Д.Ю, Узбиский С.Б. и др. Воздействие ионизирующих излучений на материалы электронной техники. – Львов: Світ, 1994.
3. Sugak D., Matkovskii A., Durygin A. et al. // J. Luminescence. – 1999. – V. **82**. – P. 9-15.
4. Ubizskii S.B., Matkovskii A.O., Kholyavka R.M., Rak M.M. // J. Magn. & Magn. Mat. – 1993. – V. **125**. – P. 110-112.

5. Ubizskii S.B., Matkovskii A.O., Kuzma M. // J. Magn. & Magn. Mat. – 1996. – V. **157/158**. – P. 279-280.
6. Убізський С.Б. // Вісник ДУ “Львівська політехніка”, Сер. Електроніка. – 1998, № 357, С. 88–98.
7. Ubizskii S.B., Matkovskii A.O., Mironova-Ulmane N. et al. Phys. Stat. Sol. (a) – 2000. – **177**. – P. 349-366.
8. Справочник по специальным функциям. Под ред. Абрамовица М., Стиган И. – Москва, 1979.
9. Камке Э. Справочник по обыкновенным дифференциальным уравнениям. – Москва, 1976.