На правах рукописи

Яковлев Алексей Николаевич

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ РАЗДЕЛЕНИЯ КОМПОНЕНТОВ ПАР ВЗАИМОДЕЙСТВУЮЩИХ ДЕФЕКТОВ В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

(Специальность 01.04.07 - физика конденсированного состояния)

ABTOPE PAT

диссертации на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук

Томск 2002

Работа выполнена в Томском политехническом университете на кафедре Лазерной и Световой Техники Электрофизического факультета

Научный руководитель: доктор физико-математических наук,

профессор, заслуженный деятель науки РФ

Лисицын Виктор Михайлович

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук, профессор

Алукер Эдуард Давыдович

доктор физико-математических наук, профессор

Боев Олег Владимирович

Ведущая организация: Иркутский государственный университет

Защита состоится <u>18 июня</u> 2002г. в <u>14</u> часов на заседании диссертационного Совета Д212.269.02 при Томском политехническом университете по адресу: 634034, г.Томск, пр.Ленина, 30.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Томского политехнического университета.

Автореферат разослан «14» мая 2002г.

Ученый секретарь диссертационного совета доктор физико-математических наук

Коровкин М.В.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ АКТУАЛЬНОСТЬ РАБОТЫ И СОСТОЯНИЕ ПРОБЛЕМЫ.

Воздействие ионизирующей радиации на твердые тела приводит к возникновению в них сложных процессов создания новых дефектов структуры и преобразования существовавших до облучения. Конечный результат этих процессов состоит в изменении многих физических и химических свойств материалов и изделий. Поэтому вопросы, связанные с выяснением природы радиационных дефектов и механизмов их образования в различных типах материалов занимают одно из центральных мест в радиационной физике твердого тела. Их практическая значимость определяется необходимостью прогнозирования поведения материалов для ядерной и космической техники в поле ионизирующей радиации, широким использованием методов корпускулярно-фотонных технологий получения материалов с заданными свойствами для нужд полупроводниковой, лазерной и вычислительной техники, микро- и оптоэлектроники.

Вся совокупность радиационно-стимулированных процессов в ионных кристаллах остается еще во многом неясной. На сегодняшний день наименее изученной стадией радиационного дефектообразования является стадия пространственного разделения коррелированных первичных пар дефектов, образующихся при распаде электронных возбуждений (ЭВ). Лисицыным В.М. и сотрудниками [1972, 1975] экспериментально и методами компьютерного моделирования показано, что пространственное разделение компонентов пары может эффективно происходить в ионных соединениях посредством термоактивированного движения подвижного дефекта. Было установлено [1977, 1989], что такой механизм разделения может иметь высокую эффективность и в кристаллах, имеющих различную структуру решётки (CaF₂, MgF₂, NaCl).

Однако к настоящему времени разработаны лишь наиболее общие возможности метода компьютерного моделирования для изучения эволюции первичной дефектности в идеальных ионных кристаллах. В то же время применение этого метода исследования процессов радиационного дефектообразования может быть эффективным для установления механизмов и закономерностей кинетики релаксации первичной дефектности при различных условиях возбуждения в различных

типах реальных кристаллов. Особенно актуальна такая задача для кристаллов, содержащих значительные количества дорадиационных нарушений структуры. Известно, что наличие исходной дефектности в кристаллах сильно влияет на соотношение эффективностей различных каналов распада ЭВ. В этих кристаллах могут накапливаться при облучении центры окраски иной структуры, чем в чистых кристаллах. Причиной этих эффектов является активная роль дефектов решётки в процессе захвата и распада, созданных облучением ЭВ, а также взаимодействие с ними подвижного компонента пары Френкеля в процессе пространственного разделения. Решение этой задачи эффективно может быть реализовано только путём моделирования.

ЦЕЛИ И ЗАДАЧИ РАБОТЫ.

Общей целью настоящей работы является исследование методами компьютерного эксперимента процессов разделения, аннигиляции и захвата созданных облучением компонентов взаимодействующих пар френкелевских дефектов в реальных ионных кристаллах. Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие задачи:

- 1. Выбрать физическую модель, описывающую явления, приводящие к созданию пространственно разделенных *F-H*-пар при распаде ЭВ в реальных кристаллах.
- 2. Разработать методы математического моделирования, адекватно описывающие динамику этих явлений.
- 3. Рассчитать возможные варианты функции начального распределения компонентов пар дефектов в ионных кристаллах с гранецентрированной решеткой после воздействия мгновенного импульса радиации.
- 4. Рассчитать кинетики пространственного разделения компонентов первичных пар в реальном масштабе времени и установить зависимости эффективности разделения от параметров потенциала взаимодействия, функции начального взаимного распределения пар, температуры.
- 5. Исследовать характер влияния на кинетику миграции подвижного компонента созданной пары Френкеля, находящегося в поле неподвижного, например, дорадиационного дефекта.

НАУЧНАЯ НОВИЗНА:

- 1. Методами компьютерного моделирования проведены исследования и систематизированы с учетом последних экспериментальных результатов процессы миграции подвижного дефекта в поле неподвижного на примере термоактивированного движения H-центра в поле F. Показано, что эффективность пространственного разделения компонентов пар, кинетика их аннигиляции определяются преимущественно параметрами потенциала взаимодействия между компонентами пар и слабо зависят от функции начального распределения.
- 2. Впервые изучены закономерности миграции подвижных созданных радиацией дефектов в области неподвижных, например, дорадиационного происхождения, при наличии потенциала взаимодействия между компонентами этих неаннигилирующих пар дефектов. Показано, что процесс слабо зависит от начального взаимного распределения компонентов пар, за исключением ближайших состояний, а также зависит от параметров потенциала взаимодействия между ними.
- 3. Впервые показано, что энергия активации процесса накопления F-центров есть энергия активации процесса пространственного разделения компонентов пары дефектов. Эта энергия определяется параметрами потенциала взаимодействия компонентов разделяющихся пар.

<u>ПРАКТИЧЕСКАЯ ЗНАЧИМОСТЬ</u> заключается в разработке пакета прикладных программ и метода компьютерного моделирования, которые позволяют исследовать в ионных кристаллах различные виды миграционных процессов в реальном масштабе времени с учетом взаимодействия компонентов созданных пар френкелевских дефектов между собой и с дорадиационной дефектностью.

Полученные в результате проведенных исследований новые сведения об эволюционном процессе образования и миграции радиационных дефектов, о влиянии различных факторов (температуры и строения решетки, состояния дефектности структуры) на эволюцию первичной дефектности открывают новые возможности для разработки методов прогнозирования поведения ионных кристаллов в поле радиации, определения путей управления стойкостью материалов к воздействию ионизирующих излучений, а также более однозначно интерпретировать экспери-

ментальные результаты при исследовании различных видов стимулированных радиацией процессов.

ЗАЩИЩАЕМЫЕ ПОЛОЖЕНИЯ

- 1. Алгоритмы и программы, позволяющие рассчитывать методом Монте-Карло кинетику спада концентрации центров окраски после облучения в ионных кристаллах, значения энергии активации процессов пространственного разделения компонентов пары и накопления стабильных дефектов, а также их температурные зависимости с учетом параметров взаимодействия компонентов пары и структуры кристаллической решетки в реальном масштабе времени.
- 2. Вид функции начального взаимного распределения компонентов первичных пар радиационных дефектов определяется величиной энергии, выделяющейся в месте рождения пары в процессе распада ЭВ, а эффективность пространственного разделения и кинетика релаксации определяются параметрами потенциала взаимодействия между компонентами пары.
- 3. Из кинетических кривых релаксации первичных дефектов и температурных зависимостей нельзя получить информацию о взаимном распределении компонентов коррелированных пар, созданных при распаде ЭВ. Из кинетических кривых может быть получена информация только о наличии коррелированных и некоррелированных пар дефектов.
- 4. Энергия активации процесса накопления первичных радиационных дефектов есть энергия активации пространственного разделения компонентов пары Френкеля, если разделение происходит в результате термоактивированного движения. Эта энергия не зависит от энергии активации миграции подвижного компонента пары.
- 5. Наличие взаимодействия между компонентами неаннигилирующих пар дефектов, например, взаимодействия созданного подвижного дефекта и присутствующего в кристалле, проявляется в зависящей от температуры траектории миграции мобильного компонента, то есть в конечном итоге в изменении эффективности пространственного разделения или скорости преобразования в устойчивый центр подвижного первичного дефекта.

ЛИЧНЫЙ ВКЛАД АВТОРА.

Результаты, изложенные в диссертации, получены лично автором, а также в сотрудничестве с коллегами по кафедре лазерной и световой техники электрофизического факультета Томского политехнического университета. Участие в работе каждого сотрудника отражено в совместных публикациях. Данная диссертационная работа планировалась и выполнялась как часть комплексных исследований по разработке физических основ прогнозирования радиационной стойкости диэлектрических материалов. Исследования выполнялись при поддержке Министерства образования РФ (Грант №01980004587, 1999г., Грант №01200008652, 2000-2002гг.), а также при поддержке РФФИ проекта по исследованию нестационарных, созданных радиацией дефектов в диэлектрических материалах (Грант №01-02-18035, 2001г.) и др. Все основные выводы и результаты диссертационной работы получены лично автором. Совместно с научным руководителем профессором, д.ф-м.н. Лисицыным В.М. был определен план работы и обсуждались результаты исследований. Личный вклад автора включает разработку математической модели, алгоритма расчета и пакета прикладных программ для моделирования процессов миграции радиационных дефектов в ионных кристаллах.

АПРОБАЦИЯ РАБОТЫ.

Результаты настоящей работы были доложены на следующих конференциях и семинарах: 3^{ей} и 4^{ой} областных научно-практических конференциях студентов, аспирантов и молодых ученых (Томск,1997,1998), Школе-семинаре "Люминесценция и сопутствующие явления" (Иркутск,1997,1999,2000,2001), Конференции "Твердотельные детекторы ионизирующих излучений" (Екатеринбург,1997), 10^{ой} и 11^{ой} международных конференциях по радиационной физике и химии неорганических материалов (Томск,1999,2000), 10th International Conference «Radiation Effects in Insulators» (Jena,Germany,1999), 2^{ой} Международной конференции "Радиационно-термические эффекты и процессы в неорганических материалах" (Томск,2000), 6^{ой} Казахстанской конференции по физике твердого тела (Актобе,2000), Уральском семинаре "Сцинтилляционные материалы и их применение" (Екатеринбург,2000), Международной конференции "Физико-химические процессы в неорганических материалах" (Кемерово,2001).

ПУБЛИКАЦИИ.

Результаты диссертации изложены в 16 основных печатных работах. Список публикаций приведен в конце автореферата.

ОБЪЁМ И СТРУКТУРА.

Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и списка цитируемой литературы из 166 наименований. Общий объем диссертации 191 страница машинописного текста, 47 рисунков и 10 таблиц.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы, сформулированы цели и задачи исследований, научная новизна полученных результатов, приведены практическая значимость, защищаемые положения и личный вклад автора, структура диссертации.

В первой главе дан обзор литературных данных по элементарным процессам взаимодействия точечных дефектов в ионных кристаллах. Проведен анализ литературных данных по пространственному разделению компонентов первичных пар дефектов и влиянию дефектов структуры на топографию их распределения. Описаны известные результаты экспериментальных и теоретических исследований кинетики и динамики процессов, обусловленных миграцией подвижного дефекта в поле неподвижного. Наиболее явные проявления этих процессов наблюдаются в кинетике создания и эволюции первичной радиационной дефектности, образующейся при распаде ЭВ, и во влиянии исходных дефектов на топографию локализации ЭВ и радиационных дефектов в поле ионизирующей радиации.

На основе проведенного анализа теоретических и экспериментальных исследований и описанных в литературе моделей, разработаны модели и алгоритмы для моделирования эволюции первичной радиационной дефектности в ионных кристаллах, проведен анализ полученных результатов.

Во второй главе выполнен анализ существующих моделей расчёта миграции взаимодействующих дефектов, изложены методика и модель, используемые для статистического моделирования процессов миграции подвижных дефектов посредством термоактивированного движения в поле неподвижного дефекта.

Процесс миграции подвижного компонента созданной радиацией пары в поле неподвижного посредством термоактивированного движения представляется как последовательность скачков подвижного компонента, то есть случайные блуждания компонента пары в поле сил, возникающих за счёт взаимодействия дефектов.

До настоящего времени закон взаимодействия между двумя элементарными дефектами в ионных кристаллах точно неизвестен. Однако большинство литературных данных свидетельствует о том, что основной вклад в энергию взаимодействия точечных дефектов вносят три составляющих. Это упругое взаимодействие атомов, диполь-дипольное взаимодействие, обусловленное искажением электронных оболочек остова решетки и, если дефекты заряжены, кулоновское взаимодействие. С учётом вышесказанного потенциал взаимодействия между парами дефектов можно представить в виде: $E(r) = E_{\textit{кул}}(r) + E_{\textit{ynp}}(r) + E_{\textit{dun}}(r)$. Потенциал электростатического взаимодействия изменяется с расстоянием между дефектами как: $E_{\textit{кул}}(r) \sim r^{-1}$, а упругого и диполь-дипольного- $E_{\textit{dun}}(r) \sim r^{-3}$.

Таким образом, мы могли бы остановить свой выбор на законе взаимодействия вида: $E(r) = a \, r^{-b}$, где a - величина взаимодействия, b - жесткость (дальнодействие), r - расстояние между компонентами пары дефектов. Однако, в такой зависимости коэффициенты потенциала взаимодействия имеют различную размерность при их разных значениях. Это затрудняет установление связи между параметрами потенциала и результатами расчёта процессов со взаимодействующими дефектами. Для того, чтобы избежать при моделировании зависимости потенциала взаимодействия подвижного дефекта с неподвижным от размерности, удобнее всего использовать для описания потенциала взаимодействия экспоненциальную зависимость вида: $E(r) = a \, exp(-b \, r)$. (1)

Параметры потенциала (1) подбирались таким образом, чтобы вид функции был подобен виду степенных функций описанных выше.

Тогда движение подвижного дефекта в поле неподвижного может быть представлено как движение в поле периодически изменяющегося потенциала, искаженного полем взаимодействия. В настоящей работе изучалась миграция подвижного дефекта в поле неподвижного для следующих ситуаций:

- ◆ движение подвижного дефекта в поле неподвижного при наличии притяжения между ними и возможности аннигиляции;
- ◆ движение подвижного дефекта в поле неподвижного при наличии притяжения между ними и запрете аннигиляции;
- ◆ движение подвижного дефекта в поле неподвижного при наличии отталкивания между ними и запрете аннигиляции.

Схематически возможные профили потенциальных поверхностей, описывающиеся выражением (1) изображены на Рис.1. Потенциальный рельеф для движения мигрирующего дефекта представляет собой суперпозицию периодического потенциала идеальной кристаллической решётки и потенциала взаимодействия.

Предполагается, что вероятность скачка подвижного дефекта определяется только величиной барьера. Направление скачка может быть любым. Такая ситуация обычно выполняется для миграции радиационных дефектов в ЩГК. Например, энергия активации процесса реориентации H-центра обычно ниже энергии

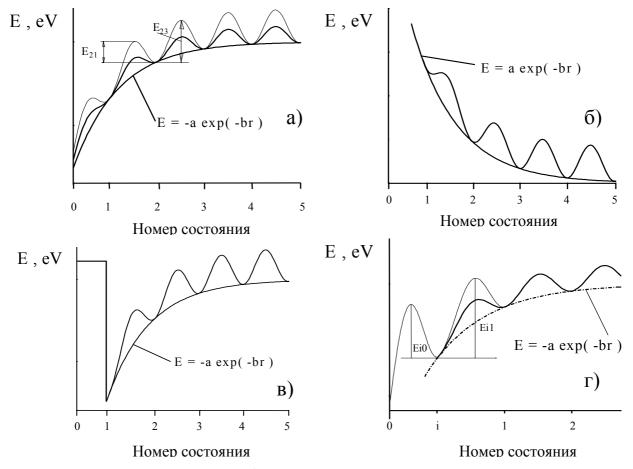


Рис.1 Различные рельефы потенциала взаимодействия пары дефектов: а) взаимное притяжение с аннигиляцией; б) взаимное отталкивание; в) взаимное притяжение без аннигиляции; г)распад ЭВ через преддефектное состояние.

активации его скачка. Следовательно, направление скачка *H*-центра является случайным, а вероятность скачка определяется величиной барьера.

Вероятность направления перехода подвижного дефекта в один из соседних узлов решётки однозначно определяется существующим в окрестности неподвижного дефекта потенциальным рельефом. Если дефект (H-центр) движется в идеальной кристаллической решётке, то все направления для его перехода в ближайшие соседние эквивалентные состояния равновероятны, P=1/n, и определяются числом n соседних состояний в решётке.

Поскольку переход подвижного компонента из одного анионного узла в другой совершается за счёт флуктуации тепловой энергии, то вероятность перехода P_{ij} подвижного дефекта из i-го положения возможной локализации в одно из соседних положений j с учётом нормировки на единицу задаётся выражением:

$$P_{ij} = \frac{\exp(-E_{ij}/kT)}{\sum_{i=1}^{n} \exp(-E_{ij}/kT)}$$
 (2)

где n - число соседних эквивалентных состояний расположенных на одинаковых расстояниях от исходного; E_{ij} — энергетический барьер для перехода из i-го положения возможной локализации в одно из соседних положений j, k - постоянная Больцмана; T - температура кристалла. Это соотношение позволяет установить преимущественное направление и вероятность перехода в соседние состояния возможной локализации мигрирующего центра при заданной температуре кристалла. С помощью формулы (2) можно моделировать процесс миграции компонентов пары дефектов с целью получения любых необходимых параметров и характеристик их эволюции (эффективность разделения, эффективность аннигиляции, температурные зависимости этих параметров, кинетики релаксации). Число скачков, совершаемых подвижным дефектом за определённый интервал времени t, зависит от температуры кристалла и траектории движения подвижного дефекта по кристаллу. Траектория, в свою очередь, определяется потенциальным рельефом, существующим в окрестности неподвижного компонента.

Частота скачков v_i , совершаемых дефектом в кристалле из i-го положения за счёт тепловых флуктуаций его энергии, определяется выражением:

$$v_i = \sum_{j=1}^{n} v_{ij} = \sum_{j=1}^{n} v_0 \cdot \exp(-E_{ij}/kT)$$

где $v_{ij} = v_0 \cdot \exp(-E_{ij}/kT)$ - частота скачков H центра из i-го в j, а v_0 - частота его колебаний в неискажённой решётке при $T \rightarrow \infty$.

Определив время одного скачка, как $t_i = \frac{1}{\nu_0 \cdot \exp(-\mathrm{E_{ij}/kT})}$ можно утверждать, что скачок произойдёт при условии: $t_i \le t = \frac{1}{\nu_0 \cdot \exp(-\mathrm{E_a/kT})}$ В противном случае подвижный компонент пары дефектов останется на время t_I на месте.

Тогда вероятность того, что подвижный дефект в результате совершения одного скачка перейдёт из состояния i в состояние j определяется следующим выра-

жением:
$$P_{ij} = \frac{v_{ij}}{\sum_{j=1}^{n} v_{ij}} = \frac{v_0 \cdot \exp(-E_{ij}/kT)}{\sum_{j=1}^{n} v_0 \cdot \exp(-E_{ij}/kT)}$$
 (3)

В этой формуле учитывается то обстоятельство, что подвижному дефекту не безразлично, в каком направлении он совершает свои скачки. Число скачков, совершаемых подвижным дефектом, зависит от траектории его движения по кристаллу и температуры кристалла T, а также от величины деформации потенциального рельефа вблизи неподвижного дефекта, определяющей значение E_{ij} .

Соотношение (3) однозначно определяет траекторию движения подвижного дефекта и, в конечном итоге, температурно-временные кинетические зависимости связанных с миграцией процессов, так как $t=m/v_{ij}$ определяет число скачков m, которые дефект успевает выполнить за время t.

Разработанный и предложенный в диссертации автором алгоритм на основе метода Монте-Карло и пакет прикладных программ позволяют моделировать наблюдаемые экспериментально температурно-временные кинетические зависимости эффективности разделения взаимодействующих пар дефектов в ионных кристаллах при распаде ЭВ, созданных импульсом радиации.

<u>В третьей главе</u> изложена методика моделирования и результаты расчетов процессов миграции подвижных дефектов посредством термоактивированного

движения в поле неподвижного дефекта на примере F-H-пар центров окраски, созданных мгновенным импульсом радиации.

Основы модели составляют следующие положения:

- 1. Образование первичной пары экспериментально различимых структурных дефектов (F-H-пар) происходит в результате преобразования высокоэнергетических ЭВ и полностью определяется эффективностью этого процесса. Распад ЭВ в ЩГК завершается образованием пары экспериментально различимой F-H-пары.
- 2. Компоненты пары генетически связанных дефектов рождаются в сильной степени коррелированными. Степень корреляции задается потенциалом взаимодействия представленном на рис.1а, г.
- 3. Пространственное разделение коррелированных пар осуществляется посредством серии последовательных скачков подвижного компонента *H*-центра. В процессе пространственного разделения происходит аннигиляция первичных пар дефектов или преобразование их в устойчивые центры окраски.

Эффективность процесса распада ЭВ зависит от энергетики кристалла, его структуры, температуры образца при облучении, плотности и вида возбуждения. Последние обстоятельства в ранних моделях не учитывались, хотя имеют важное значение. Например, при высокой плотности электронного возбуждения увеличивается вероятность образования ЭВ с низкой степенью релаксации дырочного компонента, т.к. его ядро оказывается колебательно-возбужденным в большей степени. Аналогичная ситуация реализуется при облучении тяжелыми частицами. В треке частицы создается очень высокая плотность возбуждения, поэтому, при равной средней мощности поглощенной дозы облучение тяжелыми частицами эквивалентно облучению дозами значительно более высокой мощности. Совершенно иные условия генерации ЭВ реализуются при оптическом создании экситонов при избирательном возбуждении в полосах собственного поглощения кристалла.

Корректное исследование процессов генерации первичных структурных дефектов и их дальнейшей эволюции возможно только при условии понимания процессов разделения и аннигиляции компонентов первичных пар. Экспериментальное изучение таких процессов в настоящее время осуществить трудно из-за очень высокой скорости их протекания. Однако современные компьютерные технологии

позволяют с достаточно высокой степенью достоверности и детально изучить такого рода процессы. Нами разработана модель описывающая эти процессы.

С учетом изложенного образование первичной пары дефектов можно представить в виде совокупности следующих процессов:

- 1) релаксация зонных электрона и дырки (или экситона) до энергетического состояния экситона, способного распадаться на первичную пару дефектов (преддиссационное состояние);
- 2) переход ЭВ из преддиссационного состояния в состояние, представляющее собой уже структурный дефект, но с ещё неразличимыми экспериментально компонентами пары (преддефектное состояние);
- 3) возникновение из преддефектного состояния первичной пары в результате перескока подвижного компонента в удалённый от неподвижного дефекта узел решетки.

Преддефектное состояние диссоциирует на пару структурных экспериментально различимых F, H или α , I центров в основном за счет энергии, выделяющейся при релаксации экситона в месте рождения пары. Эта энергия расходуется на создание колебательно-возбужденных состояний ядра АЛЭ, колебательных состояний окружающих место рождения пары ионов в решетке. В разработанной нами модели создания первичной пары предполагается, что диссоциация преддефектного состояния происходит в результате термоактивированного движения его ядра (H-центра) при температуре локального разогрева $T_{\rm n}$, существующей в течение заданного времени. За счёт этой же энергии подвижный компонент пары может за время ее релаксации совершить не один, а несколько скачков, что приводит к пространственному разделению компонентов первичной пары, но на близкие расстояния. Распределение подвижного компонента пары относительно неподвижного, сформированное только за счёт энергии распадающегося экситона, называется функцией начального распределения (ФНР). Формирование ФНР происходит за время $10^{-10}...10^{-12}$ с. Отметим, что начальное реальное распределение должно зависеть и от температуры образца при облучении, поскольку эта температура аддитивно налагается на локальную.

После формирования ФНР происходит релаксация дефектности: часть созданных коррелированных пар аннигилирует, часть пространственно разделяются посредством термоактивированного движения подвижного компонента пары. Соотношение процессов аннигиляции и разделения зависит от температуры.

В модели создания ФНР предполагается, что из начального преддефектного состояния H-центр может перейти в нулевое или первое ближайшее. Переход в нулевое состояние означает создание экситона в излучательном состоянии, который распадается без образования пары дефектов. В первом и последующих состояниях H-центр и соответствующий ему F-центр проявляются как различимые экспериментально F-, H- центры. Каждое состояние означает сферу возможных размещений H-центров относительно F- по мере их удаления. H-центр находится в поле F-центра, потенциал их взаимодействия задается в виде суперпозиции периодического потенциала кристаллической решётки и потенциала взаимодействия вида: E(r)=-a-exp(-b-r). Параметр a в расчетах позволял изменять величину взаимодействия, а параметр b - жесткость (дальнодействие). Вид потенциального рельефа для расчета ФНР представлен на Puc.1.г.

Поскольку структура преддефектного состояния неизвестна, то барьеры для переходов из преддефектного состояния в ближайшие задавались вне зависимости от потенциала взаимодействия компонентов пары. Например, барьер для перехода H-центра из преддефектного состояния в нулевое состояние принимался в приведенных ниже результатах равным E_{i0} =0,02эB, барьер для перехода в первое состояние принимался E_{i1} =0,03эB.

Нами выполнены исследования зависимости ФНР от потенциала взаимодействия, энергии активации движения H-центра, барьеров для распада преддефектного состояния. В работе выполнены расчеты формирования ФНР для параметров взаимодействия: a - варьировался в диапазоне от 0,1 до 0,3, b - от 0,5 до 3, E_a - от 0,02 до 0,08 эВ, E_{i0} - от 0,01 до 0,04 эВ, E_{i1} - от 0,01 до 0,04 эВ. В модели количество скачков задавалось температурой локального разогрева T_n в диапазоне (190 - 220) К, существующей в течение заданного времени t_n в диапазоне (1 - 100) пс. Дальнейшее движение H-центра могло происходить за счет температуры образца со

стартом из состояний ФНР. Указанные диапазоны T_{π} и t_{π} выбраны как наиболее соответствующие реальной ситуации.

Установлено, что с ростом величины локальной температуры или времени ее существования увеличивается количество состояний, в которые может попасть мобильный дефект, а вид ФНР становится пространственно более распределенным по всему выделенному объему кристалла. При меньших t_{π} или T_{π} ФНР представляется в виде дискретной функции с размещением H-центра в первой сфере относительно F-центра. С повышением t_{π} или T_{π} ФНР остается дискретной, но сильно пространственно распределенной.

Обращает на себя внимание то обстоятельство, что небольшое изменение t_{π} или T_{π} приводит к резкому изменению вида ФНР. Как показали расчеты, изменение T_{π} на единицы градусов или времени t_{π} в несколько раз приводят к резкому изменению ФНР. Резкое изменение вида ФНР определяется тем, что каждый дополнительный скачок проводит к значительному изменению числа возможных состояний для размещения H-центра относительно F-. Особенно сильно это сказывается в начальные моменты скачкообразного разделения.

Исследована зависимость кинетики релаксации первичных F-H-пар от параметров потенциала взаимодействия и взаимного исходного состояния компонентов пары (Рис.2). Стартовая вероятность расположения H-центра означает задаваемую для расчетов функцию начального взаимного распределения (ФНР) первичных пар, образующихся при распаде ЭВ (см. табл.1).

Параметры потенциала взаимодействия, соответственно, выбирались таким образом, чтобы H-центр мог находиться в метастабильном состоянии даже в ближайшем к F-центру узле. Это означает, что предполагалось наличие барьера для скачка H-центра в сторону F- из ближайшего к F-центру состояния.

Значения параметров потенциала взаимодействия выбирались из диапазонов: a=0,1...0,25, b=0,5...2,0. Расчеты выполнялись для температуры образца, равной 100К, соответствующей области, при которой H-центр с энергией активации его движения, равной 0,04эВ, является подвижным.

Как видно из представленных на Рис.2 результатов расчетов кинетика релаксации первичных пар имеет явновыраженные три стадии. Первая стадия проявляется в виде резкого спада числа разделяющихся компонентов пары в результате первых одного... трех скачков подвижного дефекта. Вторая стадия релаксации дефектов в теоретически рассчитанных кривых является, вероятнее всего, первой стадией наблюдающейся экспериментально кинетической кривой релаксации дефектов, наведенных коротким, нано и субнаносекундным импульсом возбуждения. Третья стадия означает завершение процесса пространственного разделения или аннигиляции и преобразования подвижного дефекта в устойчивый неподвиж-

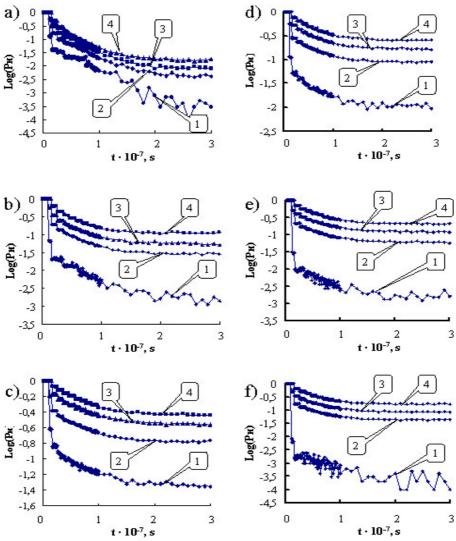


Рис.2 Кинетические зависимости релаксации *F-H* пар для разных первоначальных распределений компонентов пар в ближайших трех координационных сферах при параметрах потенциала взаимодействия: E_a =0,04eV : a) - a=0,15; b=0,5; b) - a=0,15; b=1,0; c) - a=0,15; b=2,0; d) - a=0,15; b=1,5; e) - a=0,2; b=1,5; f) - a=0,25; b=1,5. Цифрами 1,2,3,4 обозначен порядковый номер ФНР из табл.1.

Табл.1 Стартовые вероятности размешения *H*-центра относительно *F*

_ щения и центра, относительно и .									
№ п/п	1 сфера	2 сфера	3 сфера						
1	1	0	0						
2	0,5	0,5	0						
3	0	1	0						
4	0	0	1						

ный.

Сопоставление и анализ кинетических кривых релаксации на второй стадии показали, что нет явно заметных различий кинетики для различных исходных ФНР. Следова-

тельно, из кинетических кривых релаксации первичных дефектов и из температурной зависимости кинетических кривых релаксации нельзя получить информацию о взаимном распределении компонентов коррелированных пар, созданных при распаде ЭВ. Из кинетических кривых может быть получена информация только о наличии коррелированных и некоррелированных пар дефектов.

Табл. 2 Зависимость E_p от параметров потенциала взаимодействия F-H-пар a,b и энергии активации миграции H-центра в кристалле с решёткой NaCl (E_p , эВ). H-центр стартует из первой координационной сферы с вероятностью 1,0.

$E_{\scriptscriptstyle m H}$,эВ	b	0,5	1,0	1,5	2,0	2,5	3,0
0,02	0,1	0,029	0,0256	0,0175	0,0109	0,0067	0,0044
	0,15	0,0571	0,0477	0,0318	0,0205	0,012	0,0074
	0,2	0,0891	0,0705	0,0482	0,0312	0,0189	0,011
	0,25	0,1266	0,0999	0,065	0,0426	0,0262	0,0156
	0,3	0,1396	0,1215	0,0852	0,0538	0,0352	0,0206
0,04	0,1	0,029	0,0256	0,0175	0,0109	0,0067	0,0044
	0,15	0,0571	0,0477	0,0318	0,0205	0,012	0,0074
	0,2	0,0891	0,0705	0,0482	0,0312	0,0189	0,011
	0,25	0,1266	0,0999	0,065	0,0426	0,0262	0,0156
	0,3	0,1396	0,1215	0,0852	0,0538	0,0352	0,0206
0,06	0,1	0,029	0,0256	0,0175	0,0109	0,0067	0,0044
	0,15	0,0571	0,0477	0,0318	0,0205	0,012	0,0074
	0,2	0,0891	0,0705	0,0482	0,0312	0,0189	0,011
	0,25	0,1266	0,0999	0,065	0,0426	0,0262	0,0156
	0,3	0,1396	0,1215	0,0852	0,0538	0,0352	0,0206
0,08	0,1	0,029	0,0256	0,0175	0,0109	0,0067	0,0044
	0,15	0,0571	0,0477	0,0318	0,0205	0,012	0,0074
	0,2	0,0891	0,0705	0,0482	0,0312	0,0189	0,011
	0,25	0,1266	0,0999	0,065	0,0426	0,0262	0,0156
	0,3	0,1396	0,1215	0,0852	0,0538	0,0352	0,0206

Температурная зависимость роста эффективности накопления центров окраски в области выше температуры делокализации H-центра характеризуется энергией активации процессов накопления и определяется по наклону температурной зависимости. Исследования изложенные в диссертации позволяют утверждать, что энергия активации процесса накопления F-центров, определяемая из температурной зависимости эффективности накопления F-центров при изодозном облучении, есть энергия активации процесса пространственного разделения. Энергия активации процесса пространственного разделения зависит от вида Φ HP. Чем выше степень корреляции, то есть чем ближе находятся компоненты взаимодействующей F-H-пары, тем больше энергия активации при тех же параметрах потенциала взаимодействия.

Энергия активации процесса пространственного разделения (E_p) определяется в основном параметрами потенциала взаимодействия (табл.2). Увеличение взаимодействия в 3 раза (параметр a) приводит к росту E_p в 3...4 раза; уменьшение жесткости взаимодействия (параметр b) в 5...6 раз приводит к росту E_p в 5...8 раз.

В четвертой главе описаны проведенные исследования миграции подвижного дефекта в поле неподвижного методами компьютерного моделирования для случая неаннигилирующих пар. Это соответствует случаю рождения первичных структурных нарушений в кристаллах с дефектом и движению созданного компонента в окрестности существующего дорадиационного неподвижного дефекта. Были выполнены расчеты миграции посредством серии последовательных перескоков подвижного дефекта в поле неподвижного при различных исходных взачимных стартовых положениях такой пары дефектов, различных параметрах их взаимодействия, температуры образца.

Для исследования была принята следующая модель. В качестве подвижного дефекта был выбран H-центр, миграционные параметры которого в щелочногалоидных кристаллах хорошо известны. Неподвижным дефектом был выбран дефект подобный иону замещения в анионном узле решетки с зарядом, равным заряду основы — гомологическая примесь. Предполагалось, что ион замещения искажает потенциальный рельеф для движения H-центра в его окрестности. Для этого случая потенциал взаимодействия компонентов пары конструировался в виде суперпозиции потенциала взаимодействия неподвижного дефекта с H-центром - $E(r) = -a \cdot exp(-b \cdot r)$ и рельефа идеальной решетки. H-центру разрешалось термоакти-

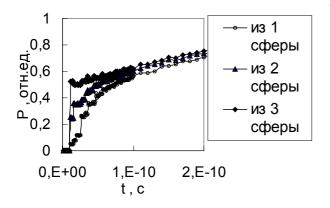


Рис.3 Кинетики разделения пар взаимодействующих дефектов в зависимости от начального взаимного расположения подвижного компонента пары указанного в легенде.

вированное движение посредством последовательных перескоков в любые соседние узлы решетки.

Исследования были выполнены для двух случаев: в первом предполагалось, что *H*-центр и дефект решетки взаимно притягиваются друг к другу, а во втором отталкиваются. По результатам исследований можно сделать следующие выводы: 1. Наличие притягивающего потенциала взаимодействия между подвижным и не-

подвижным компонентами неаннигилирующей пары приводит к существенному замедлению процесса их пространственного разделения. Это означает, что наличие дефектов решетки, взаимодействующих с подвижным, должно приводить к уменьшению дрейфовой подвижности дефектов в кристалле.

- 2. Кинетика пространственного разделения посредством термоактивированного движения любых комплексных дефектов (пар дефектов) слабо зависит от начального их взаимного распределения (Рис.3). Исключением является случай, когда в исходном состоянии компоненты находятся в соседних узлах. Следовательно, из кинетических кривых пространственного разделения (диссоциации комплексных) дефектов нельзя получить информацию о начальном взаимном распределении компонентов пар.
- 3. Наличие потенциала отталкивания между подвижным и неподвижным дефектами приводит к тому, что вероятность обнаружения подвижного дефекта в области неподвижного уменьшается (Рис.4). Этот вывод соблюдается как для случая старта подвижного дефекта из ближайших состояний, так и для старта из далеких состояний. Это означает, что движущийся подвижный дефект, в среднем, огибает неподвижный, если между ними есть потенциал отталкивания. Таким образом, наличие дефектов решетки как притягивающих, так и отталкивающих мигрирующий дефект приводит к уменьшению дрейфовой подвижности последнего. Это может проявляться в увеличении времени релаксации генерируемых в кристаллах с до-

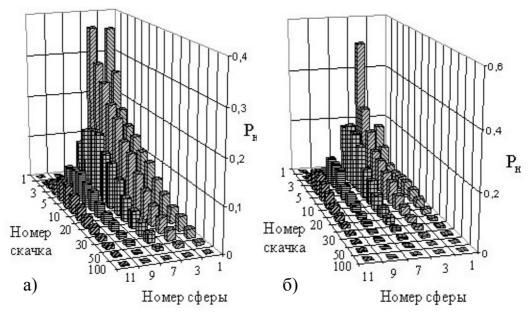


Рис.4 Зависимость вероятности распределения H-центров по сферам относительно иона замещения от числа скачков при различных конфигурациях потенциального рельефа вблизи иона замещения: а) взаимодействие отсутствует; б) имеется потенциал отталкивания между дефектами.

радиационными дефектами пар френкелевских дефектов.

4. Процесс разделения компонентов неаннигилирующей пары зависит от параметров потенциала взаимодействия между ними. Однако следует подчеркнуть, что зависимость процесса от параметров потенциала взаимодействия выражена только в том случае, если разделение идет из ближайших состояний, а контроль за процессом разделения осуществляется путем изменения концентрации в ближайших сферах.

<u>В заключении</u> к диссертационной работе сформулированы основные результаты и выводы.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ:

1. Разработаны физическая и математическая модели анализа процессов миграции подвижного компонента в поле неподвижного для случаев взаимодействующих аннигилирующих и неаннигилирующих пар дефектов. В моделях предполагается, что подвижный дефект движется посредством термоактивированных скачков. Потенциальный рельеф для движения представляется в виде наложения на рельеф идеального кристалла потенциала взаимодействия в области не-

- подвижного дефекта. Миграция подвижного дефекта рассчитывалась с использованием метода Монте-Карло.
- 2. Впервые проведены теоретические исследования зависимости миграции созданного радиацией подвижного дефекта в поле неподвижного на примере термоактивированного движения *H*-центра. Изучена зависимость пространственного разделения компонентов первичных пар Френкеля в ионных кристаллах от параметров потенциала взаимодействия между компонентами пар.
- 3. Вид функции начального взаимного распределения компонентов первичных нейтральных пар радиационных дефектов определяется исходным энергетическим состоянием распадающегося электронного возбуждения. Вывод основан на результатах исследований зависимости вида ФНР от локальной температуры T_n и времени действия локальной температуры t_n . Незначительное изменение T_n и t_n приводит к резкому изменению вида ФНР. Величины T_n и t_n определяются разностью энергий распадающегося ЭВ и запасенной на F-H паре.
- 4. Энергия активации процесса накопления *F*-центров в ионных кристаллах есть энергия пространственного их разделения, если разделение происходит в результате термоактивированного движения подвижного компонента пары. Впервые показано, что энергия активации пространственного разделения компонентов пар дефектов определяется только параметрами потенциала их взаимодействия.
- 5. Из кинетических кривых релаксации первичных дефектов и из температурной зависимости релаксации нельзя получить информацию о взаимном начальном распределении компонентов коррелированных пар, созданных при распаде ЭВ. Из кинетических кривых может быть получена информация только о наличии коррелированных и некоррелированных пар дефектов.
- 6. Наличие потенциала взаимодействия между подвижными и неподвижными компонентами неаннигилирующих пар дефектов приводит к уменьшению дрейфовой подвижности мобильного компонента. Наличие притягивающего потенциала взаимодействия между подвижным и неподвижным компонентами неаннигилирующей пары также приводит к существенному замедлению процесса их пространственного разделения. Движущийся дефект огибает непод-

вижный, если между ними есть потенциал отталкивания, то есть проходит существенно больший путь. Разработанный алгоритм позволяет анализировать процесс миграции подвижного дефекта в поле неподвижного, соответствующий миграции H-центра, например, в области дорадиационного дефекта, и изучать влияние потенциала взаимодействия на дрейфовую скорость подвижного дефекта.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ДИССЕРТАЦИОННОЙ РАБОТЫ ОТРАЖЕ-НЫ В СЛЕДУЮЩИХ ПУБЛИКАЦИЯХ:

- 1. Лисицын В.М., Яковлев А.Н. Влияние температуры образца при облучении на взаимное распределение компонентов пар Френкеля. // Труды школы-семинара "Люминесценция и сопутствующие явления". -Иркутск.- 1997.- с.163-167.
- 2. Лисицын В.М., Корепанов В.И., Яковлев А.Н. Энергия активации пространственного разделения компонентов взаимодействующих пар.//ФТТ.-1998.-т.40.- №1.-с.79-80.
- 3. Яковлев А.Н. Моделирование процесса динамики взаимодействия структурных дефектов в щелочно-галоидных кристаллах. // Труды 4^{ой} обл. науч.-практ. конф. студентов, аспирантов и молодых ученых. Томск.- 1998.-с. 203-205.
- 4. Лисицын В.М., Яковлев А.Н. О миграции подвижного дефекта в поле неподвижного. // Труды первого всероссийского симпозиума "Твердотельные детекторы ионизирующих излучений" .- Екатеринбург.- 1998.-с. 93-99.
- 5. V. Lisitsyn, A. Yakovlev Modelling of special separation of a pair of (radiation) defects in ionic crystals using the Monte-Carlo method.// Abstracts of 10th International Conference «Radiation Effects in Insulators», Jena, Germany, 1999, p.233
- 6. Лисицын В.М., Корепанов В.И., Яковлев А.Н. Образование и эволюция первичной радиационной дефектности в щелочно-галоидных кристаллах. // Труды IV школы-семинара "Люминесценция и сопутствующие явления". -Иркутск.-1999.- с.5-14.
- 7. Яковлев А.Н. Моделирование кинетики релаксации первичных пар дефектов, образующихся при распаде электронных возбуждений. // Материалы $10^{\frac{00}{10}}$ международной конференции по радиационной физике и химии неорганических материалов (РФХ-10) Томск.- 1999.- с.345-346.
- 8. Яковлев А.Н. Моделирование кинетики релаксации первичных пар дефектов в кристаллах с решеткой NaCl. //Сцинтилляционные материалы и их применение: Материалы уральского семинара .- Екатеринбург.- УГТУ.- 2000.- с.41-42.
- 9. V.M. Lisitsyn, V.I. Korepanov, A.N. Yakovlev Kinetics of primary defects relaxation in ionic crystals after pulse of irradiation. // Proceedings of 11th International conference on Radiation physics and chemistry of condensed matter.- Tomsk .- Russia.-2000.-p.125-128.
- 10.A. Yakovlev. Monte-Carlo simulation of relaxation kinetics of a pair of defects in ionic crystals.// Proceedings of 11th International conference on Radiation physics and chemistry of condensed matter.- Tomsk .- Russia.- 2000.- p.155-158.

- 11. Лисицын В.М., Яковлев А.Н. Анализ температурно-временной зависимости релаксации пар радиационных дефектов в ионных кристаллах после компьютерного моделирования. // Тезисы докладов 2-ой Международной конференции "Радиационно-термические эффекты и процессы в неорганических материалах". Томск: Изд. ТПУ, 2000.- с.222-224.
- 12. Лисицын В.М., Яковлев А.Н. Зависимость кинетики релаксации первичных пар радиационных дефектов в ионных кристаллах от параметров потенциала взаимодействия.// Вестник КазГУ, Серия физическая.-№2(9).-Алматы.-2000.- с.56-63.
- 13. Лисицын В.М., Яковлев А.Н. Моделирование процесса миграции радиационных дефектов в ионных кристаллах. // Труды VI школы-семинара "Люминесценция и сопутствующие явления". -Иркутск. 2001. с.157-162.
- 14. Галкин В.М., Лисицын В.М., Яковлев А.Н. Использование одномерного приближения для моделирования методом Монте-Карло термоактивированного движения Н-центра в ЩГК с гранецентрированной решеткой.// Тезисы докладов конференции "Физико-химические процессы в неорганических материалах". - Кемерово.-2001.- с.38.
- 15. Галкин В.М., Лисицын В.М., Яковлев А.Н Моделирование методом Монте-Карло термоактивированного движения Н-центра в гранецентрированной решетке ЩГК с использованием одномерного приближения. // Труды XI межнационального совещания "Радиационная физика твердого тела". - Севастополь.-2001. - с.186-189.
- 16. Лисицын В.М., Яковлев А.Н. Кинетика релаксации первичных пар радиационных дефектов в ионных кристаллах. //ФТТ.-2002.-т.44.-№9.-с.79-80.