

УДК 539.2 : 539.12.04

АВТОКОЛЕБАНИЯ ТЕМПЕРАТУРЫ И ПЛОТНОСТИ ДЕФЕКТОВ В ТОНКИХ ПЛАСТИНКАХ ПОД ОБЛУЧЕНИЕМ

П. А. Селищев, В. И. Сугаков

Исследуется устойчивость стационарного пространственно-однородного распределения температуры и плотности дефектов облучаемого потоком частиц кристалла, находящегося в термостате. Показано, что существует область параметров — скорости создания дефектов и температуры термостата, — в которой стационарное однородное распределение неустойчиво по отношению к возникновению периодических во времени колебаний температуры кристалла и концентрации в нем дефектов. Определена область существования автоколебаний, найдены их период, его зависимость от условий облучения и свойств кристалла.

Исследование временных и пространственных диссипативных структур является в настоящее время предметом многочисленных работ, выполненных в физике, химии, биологии [1-3]. В последние годы возможность возникновения стационарных диссипативных структур исследовалась в радиационной физике [4-7]. В представленной работе анализируется возможность появления временных диссипативных структур, периодических колебаний температуры и концентрации дефектов в однородных кристаллических средах при стационарном однородном облучении. Процесс возникновения автоколебаний можно представить следующим образом. При облучении кристалла потоком частиц происходит как нагрев образца вследствие непосредственной передачи энергии кристаллической решетке и релаксации возбуждений электронной подсистемы, так и рождение дефектов. Дефекты рекомбинируют, поглощаются стоками. При этом выделяется энергия, что также приводит к нагреванию кристалла. Последний процесс определяется подвижностью дефектов, которая обычно растет с ростом температуры. Таким образом, отжиг дефектов приводит к повышению температуры, что в свою очередь обуславливает увеличение подвижности дефектов и их отжиг. При определенных условиях такая обратная связь может привести к нарастанию флуктуаций температуры. Рост флуктуации ограничен уменьшением концентрации дефектов, вызванным отжигом. Происходит установление автоколебательного режима. Необходимой для этого нелинейной обратной связью является взаимосвязь подвижности и температуры, а незамкнутость системы обусловлена наличием облучения и тепловым контактом со средой.

В работе найдена в пространстве управляющих параметров — скорости создания дефектов K и температуры окружающей среды T , — область, в которой существуют автоколебания; получено численное решение для автоколебаний и прослежена зависимость частоты автоколебаний от условий облучения и свойств облучаемого кристалла.

1. Постановка задачи

Рассмотрим плоскопараллельную пластинку толщиной l , в которой однородно по всему объему с независимыми от времени скоростями образуются два типа подвижных дефектов: междоузельные атомы и вакансии.

Температура окружающей пластинку среды поддерживается постоянной и равной T_i . Между поверхностью пластинки и внешней средой происходит теплообмен с коэффициентом теплоотдачи h . Будем считать пластинку настолько тонкой, что ее температура практически постоянна по толщине (это возможно, когда $hl/4\kappa \ll 1$, где κ — теплопроводность образца). Тогда зависимости концентрации междоузлий C_i , вакансий C_v и температуры T от времени описываются следующей системой уравнений:

$$\frac{dC_i}{dt} = K - \beta_i C_i - \gamma C_i C_v, \quad (1)$$

$$\frac{dC_v}{dt} = K - \beta_v C_v - \gamma C_i C_v, \quad (2)$$

$$\frac{dT}{dt} = \frac{1}{c} \left[\xi \Theta_{iv} K + \Theta_i \beta_i C_i + \Theta_v \beta_v C_v + \Theta_{iv} \gamma C_i C_v - \frac{2h}{l} (T - T_i) \right], \quad (3)$$

где K — скорость создания дефектов; β_i (β_v) — обратные времена по отношению к захвату междоузлий (вакансий) на стоки; γ — скорость рекомбинации; c — теплоемкость единицы объема; $\beta_{i(v)} = z_{i(v)} \rho_d D_{i(v)}$; $\gamma = \mu D_i$; $D_{i(v)} = D_{i(v)}^0 \exp(-E_{i(v)}^m/T)$; $z_{i(v)}$, $E_{i(v)}^m$, ρ_d — факторы предпочтения, энергии миграции и плотность стоков; Θ_i , Θ_v , Θ_{iv} — энергии, выделяемые в единичном объеме при захвате в нем междоузлий, вакансий и рекомбинации; они близки энергиям образования соответствующих дефектов ($\Theta_i + \Theta_v < \Theta_{iv}$). Первый член в правой части (3) описывает радиационный разогрев, связанный с непосредственным возбуждением кристаллической решетки и электронной подсистемы. Коэффициент ξ описывает распределение энергии облучения и показывает, во сколько раз больше энергии идет на разогрев образца через возбуждение кристаллической решетки и электронной подсистемы, чем на образование в нем дефектов. Обычно $\xi \gg 1$. Этот член может быть объединен с другим постоянным членом $2hT_i/l$ и фактически приводит к замене T_i на $T_i^* = T_i + l\xi K \Theta_{iv}/2$. При выводе (1), (2) учтено, что при исследуемых параметрах уходом дефектов на поверхность по сравнению с уходом на внутренние стоки можно пренебречь.

Единственные стационарные значения концентраций и температуры определяются из соотношений

$$\beta_i C_i = \beta_v C_v = -\frac{\beta_i \beta_v}{2\gamma} + \sqrt{\left(\frac{\beta_i \beta_v}{2\gamma}\right)^2 + K \frac{\beta_i \beta_v}{2\gamma}}, \quad (4)$$

$$(\Theta_i + \Theta_v - \Theta_{iv}) \beta_i C_i - \frac{2h}{l} (T - T_i) + (\xi + 1) \Theta_{iv} K = 0. \quad (5)$$

Декремент затухания для малой флуктуации (ΔC_i , ΔC_v , $\Delta T \sim \exp(\lambda t)$) удовлетворяет уравнению

$$\lambda^3 + a\lambda^2 + b\lambda + d = 0, \quad (6)$$

где

$$a = \frac{1}{c} \left[c(\beta_i + \beta_v + \gamma(C_i + C_v)) + \frac{2h}{l} - \Theta_v \beta_v C_v \frac{E_v^m}{T^2} - (\Theta_i \beta_i C_i + \Theta_{iv} \gamma C_i C_v) \frac{E_i^m}{T^2} \right], \quad (7)$$

$$b = \frac{1}{c} \left[c(\beta_i \beta_v + 2\gamma \beta_i C_i) + \frac{2h}{l} (\beta_i + \beta_v + \gamma(C_i + C_v)) + \beta_v C_v \frac{\gamma C_i}{T^2} (\Theta_{iv} - \Theta_v) (E_v^m - E_i^m) - (\beta_i + \gamma C_v) \Theta_v \beta_v C_v \frac{E_v^m}{T^2} - (\beta_v + \gamma C_i) \Theta_i \beta_i C_i \frac{E_i^m}{T^2} \right], \quad (8)$$

$$d = \frac{1}{c} \left[\frac{2h}{l} (\beta_i \beta_v + \gamma(\beta_i C_i + \beta_v C_v)) + \left(\frac{\beta_i C_i}{T}\right)^2 \gamma E_v^m (\Theta_{iv} - \Theta_v - \Theta_i) \right]. \quad (9)$$

Из анализа соотношений (7)—(9) следует, что при $K \rightarrow \infty$ и $T_i \rightarrow \infty$, $a, b, d > 0$, $ab > d$ и стационарное решение устойчиво. При уменьшении T_i для некоторых значений K условие $ab > d$ может нарушаться и стационарное решение становится неустойчивым, затухающие осцилляции флуктуаций становятся нарастающими.

2. Результаты и обсуждение

Для лучшего понимания явления рассмотрим сначала более простую модель, когда появление автоколебаний связано с дефектами одного типа: или вакансиями, или междоузлиями. Это возможно, если концентрация одного из дефектов и связанное с ним выделение энергии малы. Например, в металлах концентрация междоузлий много меньше концентрации вакансий. Тогда рекомбинационным членом и вкладом междоузлий в энерговыделение можно пренебречь и от концентрации междоузлий не зависит ни температура, ни концентрация вакансий. Стационарное решение в этом случае имеет вид

$$C_i = \frac{K}{\beta_i}, \quad C_v = \frac{K}{\beta_v},$$

$$T = T_i + \frac{l\theta_p}{2h} (\xi + 1) K, \quad (10)$$

а левая часть (6) распадается на произведение двух сомножителей

$$(\lambda + \beta_i)(\lambda^2 + p\lambda + q) = 0, \quad (11)$$

где

$$q = \frac{2h}{cl} \beta_v,$$

$$p = \frac{1}{c} \left(\frac{2h}{l} - K\theta_p \frac{E_v^m}{T^2} + c\beta_v \right).$$

Поскольку p может менять знак, а q положительно, переход из области устойчивости стационарных решений в область неустойчивости всегда будет проходить через устойчивый фокус к неустойчивому. Система имеет охватывающий стационарную точку цикл без контакта с входящими фазовыми траекториями. Как известно, в этом случае следует ожидать появления автоколебаний [8].

На рис. 1 представлено разбиение пространства управляющих параметров T_i, K на области с различными типами устойчивости стационарных точек для системы с параметрами свинца, взятыми из [9, 10]. Предельный цикл имеет место в областях 3 и 4. Существуют максимальные значения $K = K_{\max}$ (при $T_i = 0$ К) и $T_i = T_i^{\max}$ (при $K = K^*$), при которых устанавливаются автоколебания. Например, при $T_i = T_i^{\max} = 173$ К и $K = K^* = 1.3 \cdot 10^{-3}$ смещ./ат.·с температура пластинки 273 К, концентрация вакансий $C_v = 6 \cdot 10^{-2}$ и частота автоколебаний $\omega = i\lambda = 0.12$ с⁻¹. В точке $T_i = 0$ К и $K = K_{\max} = 4.2 \cdot 10^{-3}$ смещ./ат.·с $T = T_{\max} = 322$ К, $C_v = 4.2 \cdot 10^{-3}$ и $\omega = 0.84$ с⁻¹.

Для алюминиевого образца [9, 10] диаграмма устойчивости подобна представленной на рис. 1, при этом $T_i^{\max} = 216$ К, $K^* = 2.3 \cdot 10^{-1}$, $K_{\max} = 6 \cdot 10^{-1}$ смещ./ат.·с, $T_{\max} = 465$ К ($\rho_d = 10^{14}$ м⁻², $\xi = 9$, $2h/l = 10^6$ Вт·м⁻³·град⁻¹).

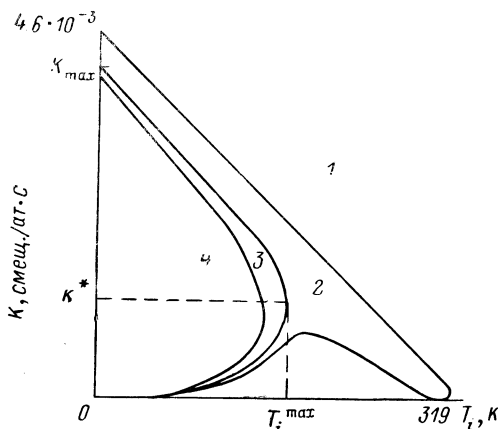


Рис. 1. Диаграмма устойчивости стационарных состояний температуры и концентрации вакансий в облучаемой свинцовой пластинке. $\rho_d = 10^{14}$ м⁻², $\xi = 9$, $2h/l = 10^6$ Вт·м⁻³·град⁻¹.

Области: 1 — устойчивого узла, 2 — устойчивого фокуса, 3 — неустойчивого фокуса, 4 — неустойчивого узла.

Численный анализ области управляющих параметров, при которых устанавливаются автоколебания, и бифуркационной кривой, ограничивающей эту область, обнаруживает следующие закономерности. С уменьшением теплоотода до $5 \cdot 10^2 \text{ Вт} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{град}^{-1}$ частота автоколебаний монотонно убывает до 10^{-2} с^{-1} , T_i^{max} практически не меняется, а K^* убывает до 10^{-6} смещ./ат.·с. Частота автоколебаний зависит от предэкспоненциального множителя коэффициента диффузии, но практически не зависит от энергии миграции и энергосвыделения при захвате на сток, понижается с ростом теплоемкости. В материалах с большей плотностью стоков область неустойчивости уже, а частоты более высоки. Снижение ρ_l в алюминии на четыре порядка приводит к уменьшению частоты в три раза.

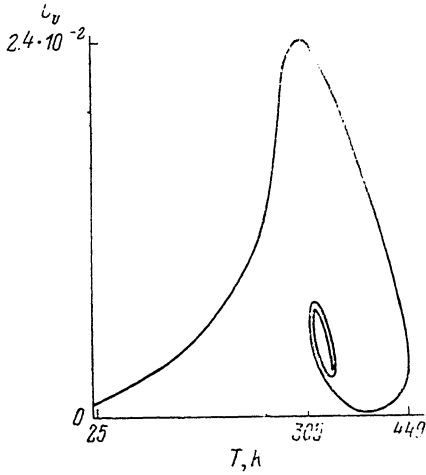


Рис. 2. Фазовый портрет развития автоколебаний в свинцовой облучаемой пластинке с начальными условиями: $C_v=0$, $T=T_i$, $\rho_d=10^{14} \text{ м}^{-2}$, $\xi=9$, $2h/l=10^6 \text{ Вт} \times \text{м}^{-3} \cdot \text{град}^{-1}$, $K=K_{\text{max}}=4.2 \cdot 10^{-3}$ смещ./ат.·с, $T_i=0 \text{ К}$.

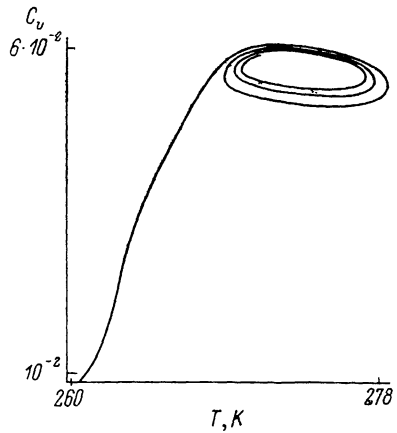


Рис. 3. Фазовый портрет развития автоколебаний в свинцовой облучаемой пластинке с начальными условиями: $C_v=0$, $T=T_i$, $\rho_d=10^{14} \text{ м}^{-2}$, $\xi=9$, $2h/l=10^6 \text{ Вт} \cdot \text{м}^{-3} \cdot \text{град}^{-1}$, $K=K^*=1.3 \times 10^{-3}$ смещ./ат.·с, $T_i=T_i^{\text{max}}=173 \text{ К}$.

Перераспределение энергии облучения между долями, идущими непосредственно на нагрев и создание дефектов (это достигается изменением энергии частиц облучения), изменяет и частоты автоколебаний и область неустойчивости. С увеличением доли энергии, идущей на создание дефектов, растет частота автоколебаний и расширяется область неустойчивости.

Результат численного решения системы уравнений для C_v и T в области параметров, при которых существуют автоколебания, представлен на рис. 2, 3. В процессе установления автоколебаний при малых T_i и $K \ll K_{\text{max}}$ концентрация дефектов и температура могут превышать стационарные соответственно на порядок и на 100—150 К, после чего происходит резкий отжиг дефектов (рис. 2). Для вышеприведенных систем алюминия и свинца амплитуды установившихся колебаний температуры и концентрации дефектов $\sim 10 \text{ К}$ ($\sim 3\%$ от среднего значения, близкого к стационарному неустойчивому) и $\sim 10^{-3}$ ($\sim 50\%$ от среднего). При $T_i \ll T_i^{\text{max}}$ и $K \sim K^*$ превышение стационарных значений в процессе установления автоколебаний порядка амплитуд установившихся, равных $\sim 3.5 \text{ К}$ ($\sim 1\%$) и $\sim 2 \cdot 10^{-3}$ ($\sim 10\%$) — рис. 3.

Перейдем к исследованию системы трех уравнений (1)—(3), учитывающей и рекомбинацию, и тепловыделение, связанное с дефектами обоих типов. Исследование при разных параметрах показало, что наблюдается сильная зависимость размеров области неустойчивости от разности энергий миграции вакансий и междоузлий. Если их отношение равно единице, то область неустойчивости максимальна, а если порядка нескольких единиц (в зависимости от значения остальных параметров), то исчезает совсем и стационарное состояние становится единственно возможным. Детальный

анализ проведен для случая кремния. При радиационно-стимулированной диффузии значения энергий миграции вакансий и междоузлий в кремнии близки ($E_v^m \approx 0.33$ и $E_i^m \approx 0.35$ эВ) [11]. Рассмотрение показало, что вид диаграммы устойчивости в области управляющих параметров T и K близок к случаю двух уравнений. При $\rho_i = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $\xi = 9$ и $2h/l = 10^3 \text{ Вт} \cdot \text{м}^{-3} \times \text{град}^{-1}$ максимальное значение температуры, когда еще возможна потеря устойчивости, равно 80 К при скорости создания дефектов 10^{-6} смещ./ат.·с. Температура пластинки при этом ~ 105 К, стационарная концентрация дефектов $\sim 10^{-2}$, а частота возникающих автоколебаний $\omega \approx 10^{-2} \text{ с}^{-1}$. При $2h/l = 10^5 \text{ Вт} \cdot \text{м}^{-3} \cdot \text{град}^{-1}$ $\omega \approx 10^{-2} \text{ с}^{-1}$.

Зависимости величины и расположения области неустойчивости от изменения теплоемкости образца, теплоотода с его границ, энерговыделения при уходе на стоки вакансий и междоузлий, плотности стоков и энергии миграции более подвижного дефекта аналогичны случаю двух уравнений. Но частота автоколебаний уже не остается постоянной при изменении энергии миграции, проходя через минимум с увеличением последней, а с ростом плотности стоков ведет себя немонотонно. С возрастанием энерговыделения при рекомбинации область неустойчивости смещается в сторону более низких K , а частота понижается.

Таким образом, выполненные в данной работе исследования показывают, что в кристаллах при стационарном облучении возможно возникновение периодических во времени колебаний температуры и концентрации дефектов. Для реальных параметров кристаллов автоколебания возникают при температурах окружающей среды порядка комнатной и ниже. Поэтому наблюдение их требует специального охлаждения образца. Экспериментальное наблюдение автоколебаний дало бы тонкий инструмент изучения свойств облучаемых кристаллов: коэффициента диффузии вакансий и междоузлий, вероятностей их захвата, рекомбинации и др.

Литература

- [1] Николис Г., Пригожин И. Самоорганизация в неравновесных системах. М.: Мир, 1979. 512 с.
- [2] Хакен Г. Синергетика. М.: Мир, 1980. 406 с.
- [3] Полак Л. С., Михайлов А. С. Самоорганизация в неравновесных физико-химических системах. М.: Наука, 1983. 288 с.
- [4] Krishan K. Phil. Mag., 1982, vol. 45, N 3, p. 401—407.
- [5] Максимов Л. А., Рязанов А. И. ЖЭТФ, 1980, т. 79, № 6, с. 2311—2327.
- [6] Сугаков В. И. Препринт ИТФ-84-70 р. Киев, 1984.
- [7] Сугаков В. И., Селищев П. А. ФТТ, 1986, т. 28, № 10, с. 2921—2926.
- [8] Баутин Н. Н., Леонтович Е. А. Методы и приемы качественного исследования динамических систем на плоскости. М.: Наука, 1976. 496 с.
- [9] Орлов А. Н., Трушин Ю. В. Энергии точечных дефектов в металлах. М.: Энергоиздат, 1983. 80 с.
- [10] Таблицы физических величин. Справочник / Под ред. И. К. Кикоина. М.: Атомиздат, 1976. 1006 с.
- [11] Винецкий В. Л., Холодарь Г. А. Радиационная физика полупроводников. Киев: Наукова думка, 1979. 336 с.

Институт ядерных исследований АН УССР
Киев

Поступило в Редакцию
10 февраля 1988 г.