

СТАТЬИ

УДК 535.343.2:548.4

МОДЕЛИРОВАНИЕ КИНЕТИКИ РАСПАДА РАДИАЦИОННО-НАВЕДЕННЫХ ДЕФЕКТОВ В ИОННЫХ КРИСТАЛЛАХ

Арапов Б.А., Арапов Т.Б., Орозбаева А.А.

Ошский государственный университет, Ош, e-mail: baish-arapov@yandex.ru, bekboto-08@mail.ru

На основе математического моделирования получено кинетическое уравнение термического распада радиационных дефектов в ионных кристаллах, для коррелированных и некоррелированных пар центров и подвижных дефектов в ионных кристаллах. Для многостадийных процессов кинетика распада определяется концентрацией коррелированных и некоррелированных пар рекомбинационных дефектов. Коррелируемые с центрами окраски подвижные дефекты, вызывавшие распад на второй стадии того же типа, что и у дефектов разрушителей, вызвавших распад на первой стадии, но образующейся в ходе релаксации, тогда обе стадии распада радиационных дефектов происходят по реакции первого порядка. Если коррелируемые с центрами окраски подвижные дефекты другого типа, чем те, которые вызывали распад центров окраски на первой стадии, то вторая стадия распада радиационных дефектов также происходит по кинетике первого порядка. Некоррелированными дефектами являются дефекты того же типа, что и вызвали распад центров на первой стадии термического распада радиационных дефектов, но разлетевшиеся от центра данного типа на более далекие расстояния, чем дефекты, вызвавшие первую стадию, тогда на оставшиеся концентрации центров окраски действуют некоррелированные дефекты того же типа и вторая стадия распада радиационных дефектов происходит по кинетике второго порядка.

Ключевые слова: кинетика распада, радиационные дефекты, ионные кристаллы, коррелированные пары, некоррелированные пары, релаксационные процессы

MODELING OF THE KINETICS FOR DECOMPOSITION OF RADIATION-INDUCED DEFECTS IN ION CRYSTALS

Arapov B.A., Arapov T.B., Orozbaeva A.A.

Osh State University, Osh, e-mail: baish-arapov@yandex.ru, bekboto-08@mail.ru

Based on the mathematical modeling, kinetic equation for the thermal decomposition of radiation-induced defects in ionic crystals has been obtained for correlated and uncorrelated pairs of centers and mobile defects in ionic crystals. For two-stage processes, the decay kinetics was determined by the concentration of correlated and uncorrelated pairs of recombination defects. Mobile damage-destroyers correlated with color centers, cause disintegration at the second stage of the same type as the defects of the destroyers, which caused disintegration at the first stage, but formed during relaxation. Both stages of disintegration during radiation defects occur by the first-order reaction. If the mobile defects correlated with the color centers are destructors of a different type than those that caused the decay of the color centers at the first stage, then the second stage of the decay radiation defects also occurs according to the first-order kinetics. Uncorrelated defects are defects of the same type that caused the decay of centers in the first stage of thermal decay in radiation defects, but scattered from the center of this type to a more distant distance than the destructive defects that caused the first stage, then the remaining concentrations of color centers are affected by uncorrelated defects of the same type and the second stage of decay in radiation defects occurs by second-order kinetics.

Keywords: decay kinetics, radiation defects, ionic crystals, correlated pairs, uncorrelated pairs, relaxation processes

Радиационно-стойкие материалы являются важными средствами для применения в термоядерных реакторах. Прогнозировать, т.е. моделировать кинетику диффузионно-управляемого накопления и термического отжига радиационно-индуцированных дефектов важно в рассмотрении современного понимания процессов термического отжига в твердых телах. В настоящее время твердо установлено, что в образовании, распаде и взаимопревращении радиационно-наведенных дефектов определенную роль играют подвижные ионные дефекты, образующиеся при радиационно-стимулированных и термостимулированных процессах в ионных кристаллах [1–4]. Радиационно образованные подвижные дефекты имеют конеч-

ную длину свободного пробега, поэтому для описания кинетики накопления и термического отжига дефектов рассматривают различные подходы. В работах [5, 6] разработан и успешно применен теоретический подход, описывающих пространственное распределение сходных и разнородных дефектов, который позволяет изучать кинетику дефектов.

На основе детального исследования установлено, что процессы термического, фототермического отжига и тушения свечения радиационно-наведенных дефектов в щелочно-галлоидных кристаллах имеют многостадийный характер. Однако кинетика и характер процессов, приводящих к многостадийному распаду радиационно-

наведенных дефектов, теоретически обоснованы недостаточно.

Для моделирования многостадийного характера термического и фототермического отжига дефектов в твердых телах необходимо сперва остановить процесс отжига на определенной стадии процесса, затем надо привести к отжигу дефектов в следующей стадии процесса.

В работах [7, 8], при использовании диффузионной теории рекомбинации, получены дифференциальные уравнения для отжига радиационных дефектов для коррелированной пары частиц. Генетически связанные, коррелированные между собой пары частиц характеризуются однокомпонентной парой N .

Однако некоррелированные, т.е. генетически не связанные между собой радиационно-наведенные центры и подвижные дефекты на основе вышеуказанной теории не рассмотрены.

Цель исследования: рассмотрение определения кинетики и механизмы термического отжига генетически не связанных некоррелированных дефектов в ионных кристаллах.

При этом было использовано дифференциальное уравнение для описания рекомбинации генетически не связанных между собой пар в следующем виде (центры окраски N и подвижные дефекты n). Для некоррелированных между собой рекомбинационных частиц каждый тип частиц характеризуется своей концентрацией $N(t)$ и $n(t)$.

Концентрации некоррелированных частиц можно теперь изменять различно, увеличивая одни и уменьшая другие. Тогда закономерности их рекомбинаций будут определяться от рекомбинации некоррелированных между собой частиц N и n . Поэтому

для длительных релаксационных процессов имеют значение рекомбинации коррелированных или некоррелированных частиц.

Материалы и методы исследования

Исходя из представлений диффузионной теории рекомбинации для генетически не связанных между собой центров и подвижных диффузионных дефектов, многостадийные кривые термического отжига, происходящие по реакции первого порядка, получить не удалось.

Для решения этого вопроса в этом случае были использованы математические методы моделирования представления диффузионной теории рекомбинации, когда корреляция подвижных дефектов с концентрацией центров окраски данного типа происходит частично и взаимодействует так же, как генетически связанные, коррелированные пары.

Если N – концентрация всех распадающихся дефектов данного типа, а $(N - \Delta N_0)$ – концентрации центров коррелированных с дефектами-разрушителями, то после рекомбинации концентрация оставшихся центров – ΔN_0 . Если исчерпается концентрация центров N_0 на концентрации $\frac{\Delta N_{01}}{N_0}$, то после первой стадии термического отжига процесс должен остановиться после первой стадии.

На основе диффузионной теории рекомбинации в работах [7, 8] предложено уравнение для скорости рекомбинации коррелированных пар $\frac{dN}{dt}$ под действием частично коррелированных дефектов-разрушителей.

$$-\frac{dN(t)}{dt} = 4\pi r_1 D_1 (N - \Delta N_{01}). \quad (1)$$

Для изотермических условий это уравнение имеет вид

$$-\frac{dN(T)}{dT} = \frac{4\pi r_0}{\beta} D_{01} e^{-\frac{\epsilon}{kT}} (N - \Delta N_{01}). \quad (2)$$

Решение этого дифференциального уравнения будет в следующем виде:

$$\frac{N}{N_0} = \left\{ \left[\left(1 - \frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \exp \left(-\frac{4\pi r_{01}}{\beta} D_{01} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\epsilon}{kT}} dT \right) \right]^{-1} + \left(\frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \right\}. \quad (3)$$

Тогда процесс, определяющийся этим выражением, приводит к распаду на первой стадии термического отжига и уменьшению относительной концентрации центров до $\left(\frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right)$, так как второй сомножитель первого слагаемого уменьшается экспоненциально с ростом температуры и стремится к нулю. Кинетика этого процесса приведена на рис. 1.

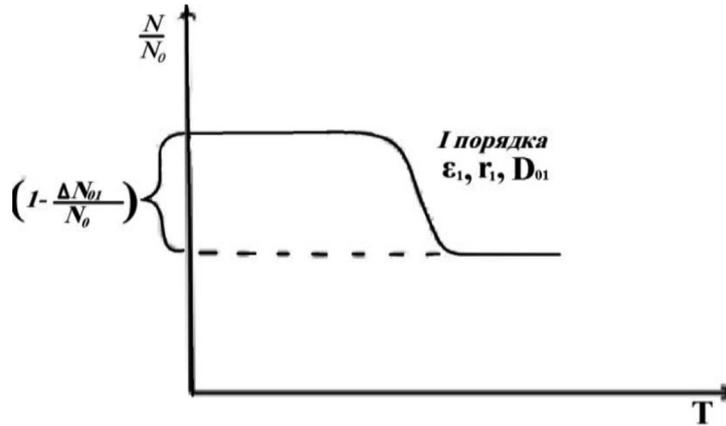


Рис. 1. Кинетика процесса

Для дальнейшего распада центров окраски, оставшихся после первой стадии ТО, необходимо дальнейшее действие ионов-разрушителей.

Результаты исследования и их обсуждение

Характер дальнейшего распада центров зависит от таких факторов, какие значения имеют величины ΔN_{01} , т.е. от концентрации центров, оставшихся после первой стадии термического отжига дефектов.

Рассмотрим отдельные случаи:

1) Если ΔN_{01} – коррелированная пара центров и подвижных дефектов, тогда вторая стадия кинетики процесса термического отжига происходит по реакции первого порядка.

В этом случае для коррелированных пар центров окраски возможны два случая.

1а) Коррелируемые с центрами окраски дефекты-разрушители вызывают распад центров окраски на второй стадии ТО того же типа, что и у дефектов разрушителей, вызвавших распад центров окраски на первой стадии. Но дефекты-разрушители, вызывающие распад центров окраски на второй стадии, образуются в ходе релаксации.

В этом случае на оставшиеся концентрации центров окраски $\frac{\Delta N_{01}}{N_0}$ действуют коррелированные дефекты того же типа, но оставшиеся из комплементарных микродефектов. Они доведут эту корреляцию до нуля, и термический отжиг доходит до конца. Тогда имеем двухстадийные кривые ТО, обе стадии которого происходят по реакции первого порядка.

В этом случае кинетическое уравнение имеет следующий вид:

$$\frac{N}{N_0} = \left[\left(1 - \frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \exp \left(- \frac{4\pi r_{01}}{\beta} D_{01} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\epsilon}{kT}} dT \right) + \left(\frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \right] \times \left[\exp \left(- \frac{4\pi r_{02}}{\beta} D_{01} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\epsilon_1}{kT}} dT \right) \right]. \quad (4)$$

Вторая стадия ТО идет по реакции первого порядка до конца, некоррелированными дефектами того же типа, но образующейся из коррелированных дефектов образующихся в ходе релаксации, из комплементарных микродефектов (рис. 2, 1а случай).

1б) Коррелируемые с центрами данного типа дефекты-разрушители другого типа, чем те, которые вызвали распад центров окраски на первой стадии ТО, и имеют характеристики $\epsilon_2, r_{02}, D_{02}$. В этом случае вторая стадия тоже происходит по кинетике первого порядка.

На оставшиеся концентрации центров окраски $\frac{\Delta N_{01}}{N_0}$ действуют коррелированные дефекты-разрушители другого типа: $\epsilon_2, r_{02}, D_{02}$. Тогда также имеем двухстадийную кривую, в которой обе стадии происходят по кинетике первого порядка (рис. 2, 1б случай).

$$\frac{N}{N_0} = \left[\left(1 - \frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \exp \left(- \frac{4\pi r_{01}}{\beta} D_{01} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\epsilon_1}{kT}} dT \right) + \left(\frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \right] \times \left[\exp \left(- \frac{4\pi r_{02}}{\beta} D_{02} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\epsilon_2}{kT}} dT \right) \right] \quad (5)$$

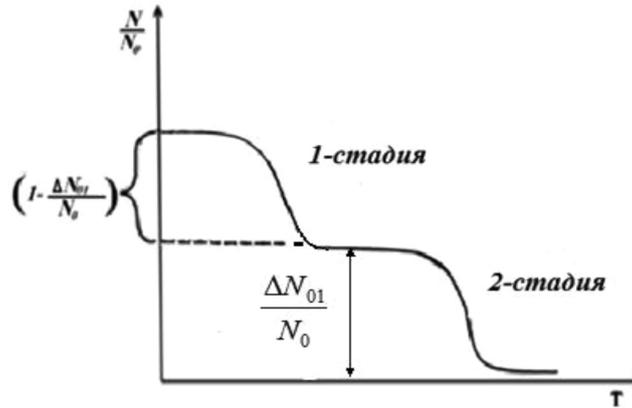


Рис. 2. Температурная зависимость относительной концентрации центров окраски для некоррелированных и коррелированных дефектов: 1а – случай: 1 – стадия: 1 – порядка; 2 – стадия: 1 – порядка; 1б – случай: 1 – стадия: 1 – порядка; 2 – стадия: 1 – порядка; 2а случай: 1 – стадия: 1 – порядка; 2 – стадия: II – порядка; 2б – случай: 1 – стадия: 1 – порядка; 2 – стадия: II – порядка; 2в – случай: 1 – стадия: 1 – порядка; 2 – стадия: II – порядка

2) Если ΔN_{01} – некоррелированная пара центров и дефектов-разрушителей, тогда вторая стадия ТО протекает по реакции второго порядка. В случае для некоррелированных пар центров и дефектов-разрушителей возможны три случая.

2а) Некоррелированными дефектами являются дефекты того же типа, что и вызвали распад центров на первой стадии термического отжига, но разлетевшиеся от центра данного типа на более далекие расстояния, чем дефекты-разрушители, вызвавшие первую стадию.

В этом случае на оставшиеся концентрации центров $\frac{\Delta N_{01}}{N_0}$ действуют некоррелированные дефекты того же типа, что и вызвавшие первую стадию, но разлетевшиеся друг от друга более далекие расстояния (рис. 2, 2а случай). Тогда имеем

$$\frac{N}{N_0} = \left[\left(1 - \frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \exp \left(- \frac{4\pi r_{01}}{\beta} D_{01} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\varepsilon_1}{kT}} dT \right) + \left(\frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \right] \times \left[1 + \frac{4\pi r_{02}}{\beta} D_{01} \Delta N_{01} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\varepsilon_1}{kT}} dT \right]. \quad (6)$$

2б) Некоррелированными дефектами являются дефекты того же типа, что и те, которые вызвали распад центров данного типа на первой стадии ТО, но которые образуются от микродефектов, некоррелированных с центрами, имеющими очень большую концентрацию. Тогда вторая стадия ТО, образующаяся от некоррелированных дефектов большой концентрации, идет по реакции второго порядка.

В этом случае на оставшиеся концентрации центров окраски действуют некоррелированные дефекты того же типа, образующиеся в ходе релаксации, отщепленные от некоррелированных микродефектов, концентрации которых достаточно большие (рис. 2, 2б случай). Тогда имеем

$$\frac{N}{N_0} = \left[\left(1 - \frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \exp \left(- \frac{4\pi r_{01}}{\beta} D_{01} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\varepsilon_1}{kT}} dT \right) + \left(\frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \right] \times \exp \left(- \frac{4\pi r_{02}}{\beta} D_{02} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\varepsilon_2}{kT}} dT \right). \quad (7)$$

2в) Некоррелированными дефектами являются дефекты другого типа, чем те, которые привели к первой стадии ТО и имеют характеристики $\varepsilon_2, r_{02}, D_{02}$. В этом случае на оставшиеся концентрации центров действуют некоррелированные пары дефектов другого сорта. Тогда имеем

$$\frac{N}{N_0} = \left[\left(1 - \frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \exp \left(- \frac{4\pi r_{01}}{\beta} D_{01} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\varepsilon_1}{kT}} dT \right) + \left(\frac{\Delta N_{01}}{N_0} \right) \right] \times \left(1 + \frac{4\pi r_{02}}{\beta} \frac{D_{02}}{\Delta N_{01}} \int_{T_0}^T e^{-\frac{\varepsilon_2}{kT}} dT \right)^{-1}. \quad (8)$$

В этом случае вторая стадия ТО происходит по кинетике второго порядка до конца, некоррелированными дефектами другого типа, чем на стадии первой стадии термического отжига (рис. 2, 2в случай).

Заключение

Из вышеизложенных данных следуют выводы:

1. Получены кинетические уравнения и их решения для изотермического случая, для коррелированных и некоррелированных пар рекомбинационных дефектов в ионных кристаллах. Кинетика и механизм термического распада радиационных дефектов определяется коррелированностью с центрами окраски подвижных дефектов и соотношениями между начальными концентрациями радиационных центров и подвижных диффузионных дефектов.

2. Коррелируемые с центрами окраски подвижные дефекты, вызывавшие распад на второй стадии того же типа, что и у дефектов-разрушителей, вызвавших распад на первой стадии, но образующейся в ходе релаксации, тогда обе стадии распада радиационных дефектов происходят по реакции первого порядка.

3. Если подвижные дефекты другого сорта, чем тех дефектов которые вызывали распад центров окраски на первой стадии, однако коррелируемые с центрами окраски, тогда вторая стадия распада радиационных дефектов также происходит по кинетике первого порядка.

4. Если подвижные диффузионные дефекты, вызвавших термический распад

во второй стадии некоррелированы с центрами окраски, тогда вторая стадия распада радиационных дефектов происходит по кинетике второго порядка.

Список литературы

1. Лушик Ч.Б., Лушик А.Ч. Распад электронных возбуждений с образованием дефектов в твердых телах. М.: Наука, 1989. 264 с.
2. Singh N., Singh V., Watanabe S., T.K. Gundu Rao, J.F.D. Chubaci, Cano N.F., Pathak M.S., Singh Pramod K., Dhoble S.J. Studies of Radiation-Induced Defects in Li₂SiO₃:Sm Phosphor Material. *Journal of Electronic Materials*. 2017. V. 46. P. 451–457.
3. Abulova F., Useinov A., Akilbekov A.T., Kotomin E.A., Piskunov S., Lisitsyn V.M. First-principles calculations of radiation defects in magnesium fluorite. *Izv. vuzov fizika (Russian Journal of Physics)* 2012. 55 № 11. P. 9–12.
4. Popov A.I., Kotomin E.A., Kuzovkov V.N., Lushchik A. Thermal annealing of F-type centers in irradiated solids: A critical analysis of experimental and theoretical studies. *Europhysical conference on defects in insulation materials-2018*. Poland. 2018. P. 27–28.
5. Kotomin E., Kuzovkov V., Popov A., Vila R. Kinetics of F center annealing and colloid formation in Al₂O₃. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B Beam Interactions with Materials and Atoms*. B. 374. 2016. P. 107–110.
6. Kuzovkov V., Kotomin E., Popov A. Kinetics of the electronic center annealing in Al₂O₃ crystals. *Journal of Nuclear Materials*. 2018. V. 502. P. 295–300.
7. Арапов Б., Орозбаева А.А., Арапов Т.Б. Кинетика ионно-диффузионных процессов распада радиационных дефектов в ионных кристаллах // *Международный журнал прикладных и фундаментальных исследований*. 2016. № 8–1. С. 30–32.
8. Орозбаева А.А., Аманбай К.А., Арапов Т.Б. Кинетика процесса моно- и бимолекулярного тушения свечения центров в облученных кристаллах // *Сборник трудов XI Исык-Кульской международной школы-конференции по радиационной физике твердого тела SCORPh-2015*. Бишкек, 2015. С. 43–45.