Письма в ЖЭТФ, том 37, вып. 6, стр. 278 –281 *20 марта 1983 г.*

ВОСХОДЯЩАЯ ДИФФУЗИЯ ВАКАНСИЙ И НЕУСТОЙЧИВОСТЬ ОБЛУЧАЕМОГО ВЕЩЕСТВА

Ю.Н.Девятко, В.Н.Тронин

В работе предложен механизм восходящей диффузии вакансий против градиента примеси замещения. Влияние этого механизма диффузии проявляется в возможности возникновения неустойчивого поведения облучаемого вещества.

При длительном воздействии на вещество ионизирующих излучений, энергия которых достаточна для образования вакансий (V), экспериментально наблюдаются проявления неустойчивого поведения облучаемого вещества, такие как образование вакансионных пор и выделения других фаз. Естественно ожидать, что неустойчивость является следствием возникновения в системе подвижных точечных дефектов. Однако в существующую теорию неустойчивость вводится феноменологически [1], поскольку используемые для описания подвижных точечных дефектов кинетические уравнения [2] не приводят к возникновению неустойчивых решений для концентраций точечных дефектов.

Основными механизмами, определяющими поведение точечных дефектов являются: диффузия, процессы аннигиляции, образования и распада комплексов точечных дефектов, простейшим из которых является примесь замещения – чужой атом в вакантном узле. У кинетических уравнений, включающих указанные механизмы, в области малых концентраций будут существовать только устойчивые решения, если не учитывать механизм восходящей диффузии вакансий против градиента примеси замещения. Механизм восходящей диффузии вакансий связан с тем, что комплексы (примесь замещения), с подавляющей вероятностью движутся только по вакансиям и их движение сопровождается противотоком вакансий. Тогда наличие в системе неоднородного распределения комплексов автоматически приведет к движению вакансий, даже если начальное распределение вакансий было однородным. Это движение вакансий, не связанное с градиентом их концентрации, и представляет собой восходящую диффузии вакансий. Именно этот механизм совместно с механизмом восходящей диффузии примеси по вакансиям, введенный в [3] для описания профилей распределения примесей, автоматически приводит к возникновению неустойчивостей в облучаемом веществе.

Для выяснения механизма возникновения неустойчивостей из общей системы кинетических уравнений, описывающей поведение точечных дефектов в облучаемом веществе, достаточно оставить только два уравнения – это кинетические уравнения для концентраций вакансий (n_V) и комплексов – примеси замещения (n_m) :

$$\frac{\partial n_V}{\partial t} = D_V\,\Delta n_V - d_0 n_V \Delta n_m + (d_1 - d_0)(\nabla n_V, \nabla n_m) - \alpha\, n_V n_I - \beta\, n_V n_p + \gamma\, n_0 n_m + Q, \qquad (1)$$

$$\frac{\partial n_m}{\partial t} = d_0 n_V\,\Delta n_m - d_1 n_m\,\Delta n_V + (d_0 - d_1)(\nabla n_V, \nabla n_m) + \beta\, n_V n_p - \gamma n_0\, n_m + Q_m . \qquad (2)$$

Здесь n_I, n_p – концентрации междоузельных атомов среды и примеси; D_V – коэффициент диффузии вакансий по градиенту их концентрации; Q – источник рождения вакансий; Q_m – эффективный источник рождения комплексов; α, β, γ – коэффициенты аннигиляции, распада и образования упомянутых точечных дефектов; n_0 – плотность узлов среды. Слагаемое вида $d_0\, n_V\, \Delta\, n_m$ в уравнении (1) отвечает предлагаемому механизму диффузии вакансий против градиента концентрации комплексов. Слагаемое $d_1 n_m \Delta\, n_V$ описывает диффузию комплексов против градиента концентрации вакансий [3]. Коэффициенты d_0 и d_1, вообще говоря, не совпадают, в отличие от [3]. В уравнениях (1), (2) опущены слагаемые, описывающие возникновение и распад более сложных образований точечных дефектов.

Предположим, что источники точечных дефектов таковы, что существуют однородные и квазистационарные решения для концентраций точечных дефектов $n_l^{(0)}$ $(l = V, I, p, m)$. Предполагая, что отклонения от квазистационарных решений малы, проведем линейный анализ системы уравнений (1), (2), для чего будем искать решения в виде, соответствующем вариации плотности вакансий:

$$n_m = n_m^{(0)} \equiv Q_m t; \quad n_V = n_V^{(0)} + \delta n_V = \frac{Q}{\alpha n_I^{(0)}} + \sum_{\mathbf{k}} \delta n_V(\mathbf{k})\; e^{\lambda(\mathbf{k})\, t}\, \phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}), \qquad (3)$$

где $\Delta\,\phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = -k^2\phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$, а t – время облучения. Складывая уравнения (1), (2) и учитывая (3), получим кинетическое уравнение для вариации плотности вакансий:

$$\frac{\partial\,\delta\, n_V}{\partial t} = (D_V - d_1\, n_m^{(0)})\;\Delta\,\delta\, n_V - \alpha n_I^{(0)}\,\delta\, n_V . \qquad (4)$$

Условие неустойчивости ($\lambda \geqslant 0$) имеет вид

$$d_1 n_m^{(0)} \geqslant D_V + \frac{\alpha\, n_I^{(0)}}{k^2} . \qquad (5)$$

Способ получения уравнения (4) отражает компенсационный характер механизма рассматриваемой неустойчивости: восходящая диффузия вакансий компенсирует диффузию комплексов по градиенту их концентрации. При этом в роли эффективного коэффициента диффузии выступает величина ($D_V - d_1 n_m^{(0)}$), а наступление неустойчивости фактически эквивалентно локальному изменению знака этого коэффициента. Поскольку слева в условии (5) стоит величина, пропорциональная времени облучения (3), то условие появления неустойчивости может быть выполнено. Из условия (5) следует, что неустойчивость возникнет на конечных размерах: $0 < k < a^{-1}$. Нижнее ограничение на величину k непосредственно вытекает из условия (5), а верхнее ограничение связано с наличием в кристалле минимального размера – постоянной решетки a.

Отметим, что уравнение (4) является достаточно общим, так как может быть получено суммированием общей системы кинетических уравнений, описывающих поведение точечных дефектов в среде. При суммировании уравнений происходит взаимное уничтожение слагаемых описывающих различные процессы с участием точечных дефектов, поскольку кинетические уравнения являются уравнениями локального баланса. Вкладом в уравнение (4) более сложных комплексов, нежели примесь замещения, можно пренебречь: их диффузия мала вследствие большой эффективной массы. Использование всей совокупности кинетических уравнений для получения условия неустойчивости приводит к перенормировке последнего слагаемого в уравнении (4) и, тем самым, к уточнению условия неустойчивости (5). Так в системе, включающей в себя только четыре вида дефектов: вакансии, междоузельные атомы, комплексы и атомы примесей, находящихся в междоузельных положениях, условие неустойчивости имеет вид

$$d_1 n_m^{(0)} \geqslant D_V + \frac{D_I}{D_I k^2 + \alpha n_V^{(0)}} \alpha n_I^{(0)}, \qquad (6)$$

где D_I – коэффициент диффузии междоузельных атомов среды;

$$n_V^{(0)} = \sqrt{\frac{Q}{\alpha(1+z)}}\ ;\ n_I^{(0)} = \sqrt{\frac{Q}{\alpha}(1+z)}\ ;\ n_m^{(0)} = z n_V^{(0)};\ z = \frac{\beta}{\gamma n_0}\int_0^t Q_p\, d\tau \qquad (7)$$

Q_p – однородный источник примесных атомов. Подобную систему можно рассматривать как модель среды, однородно и равномерно облучаемой примесными атомами. При этом решения для междоузельных атомов среды и примесей квазистационарны: $n_p = n_p^{(0)}$; $n_I = n_I^{(0)}$, а для вакансий и комплексов имеют вид (при $\lambda = 0$):

$$n_V = n_V^{(0)} + \frac{\delta n_V}{\sqrt{1+d_V/d_n}}\phi_{\mathbf{k}_c}(\mathbf{r})\ ;\quad n_m = n_m^{(0)} + \frac{\delta n_V}{\sqrt{1+d_V/d_n}}\frac{d_V}{d_n}\phi_{\mathbf{k}_c}(\mathbf{r}), \qquad (8)$$

$$\text{где}\quad d_V \equiv D_V k_c^2 + \alpha n_I^{(0)} + \beta n_p^{(0)};\quad d_n \equiv \gamma n_0 + d_0 n_V^{(0)} k_c^2;\quad n_p^{(0)} = \int_0^t Q_p\, d\tau. \qquad (9)$$

Из вида решений (8) вытекает, что в рассматриваемой модели возможны два типа неустойчивости. Так в случае $d_V \ll d_n$ решение для комплексов совпадает с квазистационарным, в то время как вариации плотности вакансий не рассасывается ($\lambda = 0$): $n_V = n_V^{(0)} + \delta n_V \phi_{\mathbf{k}_c}(\mathbf{r})$, а за точкой неустойчивости ($\lambda > 0$) локальное изменение плотности вакансий растет. В обратном случае: $d_V \gg d_n$ – исходная вариация плотности вакансий приводит к росту (для $\lambda > 0$) локальной плотности комплексов:

$$n_m = n_m^{(0)} + \sqrt{\frac{d_V}{d_n}}\delta n_V \phi_{\mathbf{k}_c}(\mathbf{r}).$$

Исследование поведения облучаемой среды вблизи точки неустойчивости, выполненное без предположений о малости отклонений от квазистационарных решений, позволяет изучить структуру возникающих неустойчивостей. Так, например, в случае $d_V \ll d_n$ в среде возникают вакансионные поры, распределение которых по размерам близко к полученному феноменологически [1].

Авторы выражают благодарность И.С.Шапиро за ценные замечания.

Литература

1. *Лифшиц И.М., Слезов В.В.* ЖЭТФ, 1958, 35, 479.

2. Взаимодействие атомных частиц с твердым телом. Материалы VI Всесоюзной конференции. Минск, 1981 г., Часть II.

3. *Kurata M. et al*. Jpn. Journ Appl. Phys., 1973, 12, 472.

Московский
инженерно-физический институт

Поступила в редакцию
7 января 1983 г.