Math-Net.Ru

Общероссийский математический портал

Ю. А. Кашлев, Термализация каскадов смещений в твердых телах и модель теплового пика, *ТМФ*, 2002, том 130, номер 1, 131–144

DOI: <https://doi.org/10.4213/tmf295>

Использование Общероссийского математического портала Math-Net.Ru подразумевает, что вы прочитали и согласны с пользовательским соглашением

<http://www.mathnet.ru/rus/agreement>

Параметры загрузки:

IP: 54.80.73.141

26 апреля 2023 г., 16:36:51

ТЕРМАЛИЗАЦИЯ КАСКАДОВ СМЕЩЕНИЙ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ И МОДЕЛЬ ТЕПЛОВОГО ПИКА

Методами неравновесной статистической термодинамики исследована термализация низкоэнергетических каскадов смещений в твердых телах. С учетом фононного рассеяния на выбитых атомах и термической рекомбинации дефектов рассмотрена временная эволюция квазitemпературы каскадных частиц. На основе полученного временного хода квазitemпературы изучен активированный процесс – термическое распыление в области теплового пика.

1. ВВЕДЕНИЕ

Вопросы термодинамики каскадных процессов в твердых телах рассматривались в работах [1], [2]. В них исследованы ранние этапы каскадообразования – каскадный (характерное время $\sim 10^{-13}$ с) и релаксационный (с характерным временем $\sim 10^{-12}$ с). Эти этапы завершаются установлением квазиравновесия в подсистеме первично выбитых атомов (ПВА) и вторичных атомов отдачи, т.е. в подсистеме каскадных частиц (КЧ). Поскольку квазиравновесие далеко от полного термодинамического равновесия системы, то вслед за ранними этапами идет заключительный этап – термализация. На этом этапе происходит переход системы через последовательность состояний текущего квазиравновесия, каждое из которых определяется значениями термодинамических параметров в данный момент времени. В результате состояние системы зависит от времени только через медленно меняющиеся термодинамические параметры $F_{im}(t)$. Более грубый подход использовался в работах [3]–[7], посвященных термализации позитронов. Что же касается термализации КЧ, то ее изучение на основе кинетических уравнений для параметров $F_{im}(t)$ представляется достаточно новым направлением в теории каскадообразования. К этому следует добавить, что в данной работе основным механизмом отвода тепла из каскадной зоны считается диссипация энергии за счет атом-атомных столкновений. Механизмы, связанные с электронным рассеянием, дают малый вклад [8] и не рассматриваются в дальнейшем.

*Институт металлургии и материаловедения им. А. А. Байкова РАН, Москва, Россия

2. КИНЕТИЧЕСКИЕ УРАВНЕНИЯ ДЛЯ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ НА СТАДИИ ТЕРМАЛИЗАЦИИ КАСКАДА. ПОТОК ЭНЕРГИИ

Система, состоящая из кристалла (термостат) и подсистемы КЧ, допускает сокращенное описание с помощью двух переменных: $P_{1i} = H_i$ – гамильтониан и $P_{2i} = N_i$ – число частиц ($i = 1, 2$). Неравновесное состояние такой системы описывается совокупностью средних значений переменных P_{mi} , а функционал энтропии – соотношением

$$S(t) = -\text{Sp}\{\rho_l(t) \ln \rho_l(t)\}.$$

Здесь

$$\rho_l(t) = \exp\left\{-\Phi + \sum_{mi} P_{mi} F_{im}(t)\right\}$$

– неравновесный статистический функционал, Φ – функционал Масье–Планка. Функции $F_{im}(t)$ выбираются таким образом, чтобы истинные средние $\langle P_{mi} \rangle$ были равны квазиравновесным средним $\langle P_{mi} \rangle_l^t = \text{Sp}\{\rho_l(t) P_{mi}\}$. Тогда они имеют следующий смысл: $1/F_{11} = 1/\beta_1 = T_1$ – температура термостата; $1/F_{21}(t) = 1/\beta_2(t)$ – квазitemпература КЧ; $F_{12} = -F_{11}\mu_1$, $F_{22}(t) = -F_{21}(t)\mu_2(t)$; $\mu_2(t)$ – квазихимический потенциал КЧ, μ_1 – химический потенциал термостата.

После установления квазиравновесия в подсистеме КЧ дальнейшая эволюция термодинамических параметров определяется уравнением [9]

$$\dot{F}_{im}(t) = \sum_{nj} \frac{\delta^2 S(t)}{\delta \langle P_{mi} \rangle_l^t \delta \langle P_{nj} \rangle_l^t} J_{nj}(t). \quad (1)$$

Для потоков $J_{nj}(t)$ справедливы соотношения

$$J_{nj}(t) = \langle \dot{P}_{nj} \rangle_l^t = -i \text{Sp}\{\rho_l(t) [P_{nj}, H]\},$$

где H – полный гамильтониан системы. Здесь и далее используется система единиц, в которой $\hbar = k_B = 1$. Функциональную производную в (1) нетрудно связать с корреляционной функцией

$$(P_{mi}, P_{ji})^t = \text{Sp}\{\rho_l(t) P_{mi} P_{ji}\},$$

для этого достаточно воспользоваться термодинамическими равенствами

$$\begin{aligned} \frac{\delta F_{im}(t)}{\delta \langle P_{nj} \rangle_l^t} &= \frac{\delta^2 S(t)}{\delta \langle P_{nj} \rangle_l^t \delta \langle P_{mi} \rangle_l^t} = \frac{\delta F_{jn}(t)}{\delta \langle P_{mi} \rangle_l^t}, \\ \frac{\delta \langle P_{mi} \rangle_l^t}{\delta F_{jn}(t)} &= -(P_{nj}, P_{mi})^t = \frac{\delta \langle P_{nj} \rangle_l^t}{\delta F_{im}(t)}. \end{aligned}$$

Используя эти равенства и уравнение (1), а также принимая во внимание условие термодинамического равновесия термостата $\dot{\beta}_1 = 0$, находим

$$\begin{aligned} (H_2, H_2)^t \dot{\beta}_2(t) - (H_2, N_2)^t \{\dot{\beta}_2(t) \mu_2(t) + \beta_2(t) \dot{\mu}_2(t)\} &= -J_{12}(t), \\ (N_2, H_2)^t \dot{\beta}_2(t) - (N_2, N_2)^t \{\dot{\beta}_2(t) \mu_2(t) + \beta_2(t) \dot{\mu}_2(t)\} &= -J_{22}(t). \end{aligned}$$

Воспользовавшись этой системой, находим искомое кинетическое уравнение для квази-температуры подсистемы КЧ,

$$\left\{ (H_2, H_2)^t - \frac{(N_2, H_2)^t (H_2, N_2)^t}{(N_2, N_2)^t} \right\} \dot{\beta}_2(t) = -J_{12}(t) + J_{22}(t) \frac{(H_2, N_2)^t}{(N_2, N_2)^t}. \quad (2)$$

Усредняя диссипативную функцию [1], получаем общий вид потока энергии $J_{12}(t)$ из соотношения (2),

$$J_{12}(t) = - \int d\varepsilon \tilde{p}(\beta_2(t), \varepsilon) \tilde{L}_{\dot{H}_2 \dot{H}_2}(\varepsilon) \{ \beta_1 - \beta_2(t) \}. \quad (3a)$$

Здесь

$$\tilde{L}_{\dot{H}_2 \dot{H}_2}(\varepsilon) = \frac{1}{2} \int d\omega \omega^2 \int d\mathbf{q} \frac{1}{2\pi^2} |V(q)|^2 \beta_1 \omega S^{(\text{ph})}(\mathbf{q}, \omega) \delta((\mathbf{q}\mathbf{v}) - \omega) \quad (3b)$$

– коэффициент переноса, входящий в линейное соотношение между потоком энергии и термодинамической силой [1], $V(q)$ – фурье-компонента потенциала взаимодействия КЧ с колебаниями решетки, $\mathbf{v}$ – скорость КЧ,

$$\tilde{p}(\beta_2(t), \varepsilon) = g(\varepsilon) n^{(2)}(\beta_2(t), \varepsilon)$$

– энергетическое распределение КЧ, $g(\varepsilon)$ – плотность числа состояний КЧ, $n^{(2)}(\beta_2(t), \varepsilon) = \lambda \exp\{-\beta_2(t)\varepsilon\}$. Динамический формфактор, вошедший в (3б), определим с помощью стандартного выражения

$$S^{(\text{ph})}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty dt \exp(i\omega t) \langle \rho_{-\mathbf{q}}^{(i)} \rho_{\mathbf{q}}^{(i)}(t) \rangle_0, \quad (4)$$

$$\langle \rho_{-\mathbf{q}}^{(i)} \rho_{\mathbf{q}}^{(i)}(t) \rangle_0 = \exp(-2\widetilde{W}) \sum_{\mathbf{R}} \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}) \langle (\mathbf{q}\mathbf{u}(0, t)) (\mathbf{q}\mathbf{u}(\mathbf{R}, t)) \rangle_0.$$

В формулах (4) $\rho_{\mathbf{q}}^{(i)}(t)$ – фурье-компонента плотности атомов решетки, $\mathbf{u}(\mathbf{R}, t)$ – смещения атомов из положения равновесия $\mathbf{R}$, $\exp(-2\widetilde{W})$ – фактор Дебая–Валлера, $\langle \dots \rangle_0$ – усреднение по равновесному состоянию.

Теперь преобразуем коэффициент переноса (3б). А именно, выполним интегрирование по угловым переменным вектора $\mathbf{q}$. Получаем

$$\tilde{L}_{\dot{H}_2 \dot{H}_2}(\varepsilon) = \frac{1}{2\pi^2} v \beta_1 \int d\omega \omega^2 \int dq q^3 |V(q)|^2 S^{(\text{ph})}(q, \omega) \left| \int_0^\infty dt' e^{-i\omega t'} j_1(qvt') \right|, \quad (5)$$

где $j_1(x)$ – цилиндрическая функция Бесселя. Затем проинтегрируем в (5) по dt , а также по $d\omega$, предварительно разложив (4) по степеням u . В результате кинетический коэффициент (3б) с учетом однофоонных (член, пропорциональный u) и двухфоонных (член, пропорциональный u^2) процессов рассеяния может быть представлен следующим образом:

$$\tilde{L}_{\dot{H}_2 \dot{H}_2}(\varepsilon) = \varepsilon \tilde{\Phi}, \quad \tilde{\Phi} = \tilde{\Phi}^{(1)} + \tilde{\Phi}^{(2)},$$

$$\tilde{\Phi}^{(1)} = \frac{1}{3\pi^2} \frac{1}{M} \tilde{\Omega}_a \int dq q^6 (2M\omega_q)^{-1} |V(q)|^2 \beta_1 \eta(\omega_q), \quad (6)$$

$$\tilde{\Phi}^{(2)} = \frac{4}{3\pi^2} \frac{1}{M} \tilde{\Omega}_a \int dq q^6 \left[\frac{1}{\omega_q^3} |V(q)|^2 \right]^2 \frac{1}{M} \int_0^{\Delta_q} d\tilde{\omega} \tilde{\omega} (\Delta_q - \tilde{\omega}) \beta_1 \eta(\tilde{\omega}) \eta(\Delta_q - \tilde{\omega}).$$

В (6) введены следующие обозначения: M – масса атома решетки, ω_q – энергия колебательной моды, $\tilde{\Omega}$ – объем, Δ_q – энергия, переданная при испускании (поглощении) двух фононов, $\eta(\omega_q) = (T_1/\omega_q) \gg 1$. Из (3) и (6) следует выражение для потока энергии

$$J_{12}(t) = -\langle \varepsilon \rangle^t \tilde{\Phi}(N_2, N_2)^t \{ \beta_1 - \beta_2(t) \}, \quad (7)$$

где

$$\langle \varepsilon \rangle^t = \lambda \bar{\varepsilon} \exp \{ -\beta_2(t) \bar{\varepsilon} \}$$

и вид $\bar{\varepsilon}$ зависит от формы межатомного потенциала [1].

3. ПОТОК ЧАСТИЦ ЗА СЧЕТ ТЕРМИЧЕСКОЙ РЕКОМБИНАЦИИ

В период термализации каскада процессы рекомбинации лимитируются диффузией дефектов. Поскольку выбитые атомы значительно подвижнее термодинамически равновесных вакансий, каждая вакансия представляет собой фиксированный центр, который способен захватить КЧ, движущуюся в межузельном пространстве. Вычислим ν – частоту перехода КЧ в вакансию в рамках приближения Кондона [10], когда не учитывается деформация колебательных мод, обусловленная наличием дефектов. В этом приближении допустимо дальнейшее упрощение модели, когда состояние выбитого атома, соседнего с вакансией, описывается с помощью потенциала двойной ямы. Этот потенциал имеет вид двух симметричных ям, разделенных барьером U_0 , а расстояние между потенциальными минимумами m и m' равно a . Предполагается, что $U_0 \gg T_1$. Кроме того, предположим, что в подбарьерном состоянии собственные функции и собственные значения гамильтониана выбитого атома, рассматриваемого как гармонический осциллятор с частотой Ω , определяются уравнением

$$\left[\left(\frac{1}{2M} \right) p_x^2 + U(x) \right] \psi_\lambda(x) = E_\lambda \psi_\lambda(x).$$

В рамках этой модели надбарьерный переход атома $m \rightarrow m'$ включает две стадии. На первой стадии атом в результате взаимодействия с решеткой переходит из основного состояния в возбужденное ($1 \rightarrow 2$). На второй – теряет энергию и возвращается в потенциальную яму, а поскольку промежуточное состояние не локализовано, он может перейти как в (исходную) m -яму, так и в m' -яму с вероятностью $1/2$. В результате квадрат частоты надбарьерного перехода ν^2 включает [11] средний квадрат матричного элемента p_x и множитель $1/2$,

$$\nu^2 = (Ma)^{-2} \frac{1}{2} \langle |p_{12}|^2 \rangle, \quad (8)$$

где

$$\langle |p_{12}|^2 \rangle = \sum_{\lambda\lambda'} w_\lambda \left| \int dx \psi_\lambda^*(x) p_x \psi_{\lambda'}(x) \right|^2,$$

а суммирование производится по всем начальным состояниям с весовыми множителями

$$w_\lambda = \left\{ 2 \operatorname{sh} \frac{\xi}{2} \right\}^{-1} \exp(-\xi\lambda)$$

и по всем конечным состояниям, удовлетворяющим условию $E_{\lambda'} \geq E_{\lambda}$. Если в качестве начального состояния принять квазиравновесие КЧ с квазitemпературой T_2^0 , то $\xi = (\Omega/T_2^0) \ll 1$. Тогда квадрат матричного элемента вычисляется методом производящей функции [12]. Получаем

$$\langle |p_{12}|^2 \rangle = \frac{16}{\sqrt{\pi}} M T_2^0 \left\{ \sqrt{\frac{U_0}{T_2^0}} \exp \left[-\frac{U_0}{T_2^0} \right] + \frac{\sqrt{\pi}}{2} \operatorname{Erfc} \left[\sqrt{\frac{U_0}{T_2^0}} \right] \right\}, \quad (9)$$

где $\operatorname{Erfc}(x)$ – дополнительный интеграл вероятности.

Общее выражение для коэффициента скорости диффузии по вакансионному механизму Γ не зависит от конкретного типа диффузанта. В приближении сильной связи оно имеет вид (см. приложение)

$$\Gamma = 2\nu^2 \frac{1}{\gamma(0)}, \quad (10)$$

где

$$\gamma(0) = 2\pi \sum_{KK'} |W_{KK'}|^2 \eta(\omega_K) [\eta(\omega_{K'}) + 1] \delta(\omega_K - \omega_{K'})$$

означает затухание, входящее в двухвременную (и двухчастичную) функцию Грина в теории миграции [11], $W_{KK'}$ – матричный элемент потенциала изотопического рассеяния фононов. Теперь, воспользовавшись формулами (8)–(10), коэффициент скорости Γ можно связать с вероятностью теплового перехода КЧ в соседнюю вакансию

$$P \left(\frac{U_0}{T_2^0} \right) = \frac{1}{2\pi^{\frac{3}{2}}} \Omega \left(\frac{T_2^0}{U_0} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left\{ -\frac{U_0}{T_2^0} \right\}. \quad (11)$$

А именно, справедливо соотношение

$$\Gamma = \frac{16}{\pi} \Omega \frac{1}{\gamma(0)} P \left(\frac{U_0}{T_2^0} \right).$$

Вероятность того, что в момент t любое из Z_i междоузлий, окружающих вакансию, заполнено выбитым атомом, равна $Z_i \tilde{\Omega}_a n_V (N_2, N_2)^t$, где n_V – плотность тепловых вакансий. Тогда поток КЧ равен

$$J_{22}(t) = \Gamma Z_i \tilde{\Omega}_a n_V (N_2, N_2)^t = \frac{16}{\pi} \frac{1}{\gamma(0)} \Omega Z_i \tilde{\Omega}_a n_V (N_2, N_2)^t P \left(\frac{U_0}{T_2^0} \right). \quad (12)$$

Формула (12) применима только в случае, когда нет корреляции между исходным расположением выбитых атомов и распределением вакансий. С физической точки зрения такая ситуация вполне реальна. Действительно, если КЧ первоначально имела большую энергию, то она затормаживается в области, далекой от места ее возникновения, и, следовательно, никакой пространственной корреляции быть не может.

4. УРАВНЕНИЕ ДЛЯ КВАЗИТЕМПЕРАТУРЫ КЧ С ПОСТОЯННЫМИ КОЭФФИЦИЕНТАМИ

Используя формулы для потока энергии $J_{12}(t)$ (7) и потока КЧ $J_{22}(t)$ (12), можно из кинетического уравнения (2) получить уравнение эволюции для обратной квазitemпературы КЧ

$$\dot{\beta}_2(t) = \frac{1}{c(t)} \{\beta_2(t)\}^2 \langle \varepsilon \rangle^t (N_2, N_2)^t \{ \tilde{\Phi}[\beta_1 - \beta_2(t)] + \Gamma Z_i \tilde{\Omega}_a n_V \}. \quad (13)$$

Оно одновременно описывает отвод энергии по фононному механизму (первый член) и скорость изменения энергии в каскадной зоне за счет термического отжига дефектов (второй член). В уравнение (13) вошла неравновесная теплоемкость газа КЧ

$$c(t) = \{\beta_2(t)\}^2 \left\{ (H_2, H_2)^t - \frac{(H_2, N_2)^t (N_2, H_2)^t}{(N_2, N_2)^t} \right\}.$$

Корреляционную функцию

$$(N_2, N_2)^t = \int_0^{\varepsilon_0} d\varepsilon g(\varepsilon) n^{(2)}(\beta_2(t), \varepsilon) \quad (14)$$

вычислим для случая каскада, созданного одним первично выбитым атомом. Воспользуемся выражением для плотности числа состояний КЧ, полученным в работе [1], использующей потенциал Борна–Майера,

$$g(\varepsilon) = \frac{7}{15} \alpha \{ \exp(-C_1^3 \chi^4) \} \{ \exp(3C_1 \chi^2) - 1 \} \nu(\varepsilon_0),$$

где $\alpha = 2MR^2$, R – параметр потенциала Борна–Майера, $\chi = (\varepsilon/\varepsilon^*)^{3/4}$ – безразмерная энергия КЧ, $\varepsilon^* = (12)^{1/3} \alpha^{-1}$, $\nu(\varepsilon_0) = \varepsilon_0/2\varepsilon_d$ – среднее число выбитых атомов, образуемых одним ПВА с энергией ε_0 [13], ε_d – пороговая энергия смещения, $C_1 = \text{const}$ (здесь и далее C_i обозначают численные коэффициенты, значения которых даны в приложении).

Интеграл (14) невозможно вычислить аналитически, так как функция $g(\varepsilon)$ имеет очень сложный вид. В связи с этим напомним одно обстоятельство. При исследовании диффузионных функций [14] и некоторых кинетических коэффициентов [15] было установлено, что форма плотности числа состояний допускает существенные аппроксимации при условии, что аппроксимирующая функция достаточно точно воспроизводит ту энергию, на которой расположен максимум плотности. Мы установили, что при аппроксимации плотности числа состояний $g(\varepsilon)$ гауссовой функцией

$$\tilde{g}(\varepsilon) = \pi \alpha \nu(\varepsilon_0) \exp \left\{ -\frac{1}{2} (C_2 \chi - 3)^2 \right\}$$

это условие выполняется.

На рисунке показаны кривые $g(\varepsilon)/\alpha\nu(\varepsilon_0)$ (сплошная линия) и $\tilde{g}(\varepsilon)/\alpha\nu(\varepsilon_0)$ (штриховая линия). Они вычислены при значениях $R = 0.3 \text{ \AA}$, $\alpha = 3.6 \text{ эВ}^{-1}$. Подставив в (14) вместо $g(\varepsilon)$ функцию $\tilde{g}(\varepsilon)$ и выполнив интегрирование, получим

$$(N_2, N_2)^t = \lambda\nu(\varepsilon_0) \exp \left\{ -\frac{1}{2} \beta_2(t) \varepsilon^* \right\}. \quad (15)$$

Теперь уравнение (13) с корреляционной функцией (15) может быть преобразовано к виду

$$\dot{\beta}_2(t) = \{ \beta_2(t) \}^2 A(t) \{ \beta_1 - \beta_2(t) \} + \{ \beta_2(t) \}^2 B(t), \quad (16)$$

где

$$A(t) = \frac{1}{c(t)} \langle \varepsilon \rangle^t \lambda \tilde{\Phi} \nu(\varepsilon_0) \exp \left\{ -\frac{1}{2} \beta_2(t) \varepsilon^* \right\},$$

$$B(t) = \frac{1}{c(t)} \langle \varepsilon \rangle^t \lambda \Gamma Z_i \tilde{\Omega}_a \nu(\varepsilon_0) n_V \exp \left\{ -\frac{1}{2} \beta_2(t) \varepsilon^* \right\}.$$

Без дальнейших упрощений найти аналитическое решение уравнения (16) не представляется возможным. Будем пренебрегать слабой временной зависимостью коэффициентов $A(t)$ и $B(t)$, точнее, запишем их в предельном случае $\beta_2^{-1}(t) \rightarrow \infty$. Выполнение такого предельного перехода [16] приводит к переходу от величин, вычисленных в рамках статистической термодинамики [9], к соответствующим величинам теории Линдхарда [17]. В результате получаем:

$$A = \lim_{\beta_2^{-1} \rightarrow \infty} A(t) = \frac{1}{c} \bar{\varepsilon} \tilde{\Phi} \nu(\varepsilon_0) = \frac{2}{3} \bar{\varepsilon} \tilde{\Phi},$$

$$B = \lim_{\beta_2^{-1} \rightarrow \infty} B(t) = \frac{1}{c} \bar{\varepsilon} \Gamma Z_i \tilde{\Omega}_a \nu(\varepsilon_0) n_V = \frac{2}{3} \bar{\varepsilon} \Gamma Z_i \tilde{\Omega}_a n_V, \quad (17)$$

$$\bar{\varepsilon} = \lim_{\beta_2^{-1} \rightarrow \infty} \langle \varepsilon \rangle^t = \frac{\pi}{2} (C_1 \alpha)^{-1}, \quad c = \lim_{\beta_2^{-1} \rightarrow \infty} c(t) = \frac{3}{2} \nu(\varepsilon_0).$$

Здесь s означает теплоемкость КЧ, рассматриваемых как газ твердых сфер.

Если теперь ввести в (16) величины (17) и новую функцию

$$u(t) = \frac{1}{\beta_2(t)} + at,$$

где $a = \beta_1 A + B$, то функция $u(t)$ будет удовлетворять нелинейному обыкновенному дифференциальному уравнению с постоянными коэффициентами

$$\{u(t) - at\} \dot{u}(t) + p = 0.$$

Здесь использовано обозначение $p = -A$. Выполнив замену $\zeta = -pt$ и $u(t) = y(\zeta)$, представим последнее уравнение в виде

$$\left\{ y(\zeta) + \frac{a}{p}\zeta \right\} y'(\zeta) = 1. \quad (18)$$

Точное решение уравнения (18) существует, однако оно не может быть дано в явном виде. Действительно, получаем

$$\zeta = C_2 \exp \left\{ \frac{a}{p} y(\zeta) \right\} - \frac{p}{a} \left\{ y(\zeta) + \frac{p}{a} \right\}. \quad (19)$$

Указанный недостаток решения (19) нетрудно “исправить”, принимая во внимание следующие обстоятельства. Во-первых, термализация каскадов завершается за конечное время $t_p \sim (10^{-11} \div 10^{-10})$ с [8], [18]. Во-вторых, рекомбинация дефектов в каскадной зоне вносит малый вклад в общий процесс охлаждения КЧ. С учетом этого, используя решение (19), методом последовательных приближений получаем

$$\frac{1}{\beta_2(t)} = (T_2^0 - at) - T_1 \ln \left\{ 2 \left(\frac{a + p\beta_1}{T_2^0 - T_1} \right) t + 1 \right\}, \quad (20)$$

где последний член в правой части является поправкой к члену нулевого приближения. Разумеется, при записи (20) мы учитывали конечное время термализации и начальное условие: квазitemпература КЧ равна T_2^0 при $t = 0$.

5. ВРЕМЕННОЙ ХОД КВАЗИТЕМПЕРАТУРЫ КЧ ПРИМЕНИТЕЛЬНО К АКТИВИРОВАННЫМ ПРОЦЕССАМ В ОБЛАСТИ ТЕПЛОВОГО ПИКА

В результате бомбардировки ионами с энергией порядка нескольких МэВ в решетке возникают локальные возбуждения – тепловые пики. Физическая картина этого явления имеет большое сходство с быстрым нагревом ограниченной области твердого тела, включающей примерно 10^3 атомов.

В качестве источника теплового пика (ТП) принимаются выбитые атомы с энергией порядка нескольких сотен эВ [18], [19]. В типичном ТП, точнее, внутри сферы радиуса

$r_0 \sim (10 \div 20) \text{ \AA}$ существует несколько “горячих” атомов, вся энергия которых в конечном счете переходит в энергию колебаний решетки. В результате внутри ТП решетка разогревается до очень высоких температур, вплоть до температуры плавления. Однако благодаря быстрому подъему температуры и влиянию окружающей среды вещество внутри сферы радиуса r_0 остается в состоянии нагретого (или перегретого) твердого тела [18].

В феноменологической теории [18], [19] температурное поле ТП имеет вид

$$T(r, t) = \tilde{T}(t) \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt}\right),$$

где D – коэффициент термической диффузии, r – расстояние от центра сферы. Однако в работах [18], [19] используется не само поле $T(r, t)$, а только функция $\tilde{T}(t) \sim t^{-3/2}$. При этом считается [8], что распределение температуры внутри сферы является пространственно-однородным. В микроскопической теории, основанной на уравнении термодинамики (2), величине $\tilde{T}(t)$ естественно сопоставить квазitemпературу $1/\beta_2(t)$ (20).

Наличие высокой температуры в области ТП стимулирует ряд активированных процессов: разупорядочение [20], осаждение [21], кристаллизацию. Кроме того, ТП может вносить дополнительный вклад в явления, обусловленные динамическими эффектами столкновений, в такие как электронные возбуждения [22], десорбция [23], термическое распыление [24]. В этой статье в качестве примера использования решения (20) рассматривается термическое распыление – испарение атомов решетки из ТП, расположенного в приповерхностном слое твердого тела. В модели Эйнштейна атом представляет собой гармонический осциллятор, колеблющийся с собственной частотой Ω в потенциальной яме глубиной E_b . Предполагается, что $E_b \gg T_2^0$. Тогда элементарный акт испарения – это переход атома с уровня основного состояния в яме на уровень поглощающего барьера, а энергетическая разность этих уровней E_b может быть интерпретирована как энергия связи с поверхностью. Известно, что временная зависимость нормальной функции распределения в гидродинамическом режиме всегда определяется зависимостью температуры от времени. Точно так же зависимость вероятности теплового перехода (11) от времени полностью определяется временным ходом квазitemпературы (20). Тогда

$$P(\beta_2(t)) = (2\pi^{\frac{3}{2}})^{-1} \Omega (E_b \beta_2(t))^{-\frac{1}{2}} \exp\{- (E_b \beta_2(t))\}.$$

Коэффициент термического распыления S_{therm} характеризует число испущенных атомов, приходящихся на один налетающий ион. Если поток испарившихся атомов через свободную поверхность записать в форме [25] $j(t) = N_1 r_s P(\beta_2(t))$, то коэффициент распыления имеет вид

$$S_{\text{therm}} = \Pi(E_0) \int_0^{t_p} dt j(t) = (2\pi^{\frac{3}{2}})^{-1} N_1 r_s \Pi(E_0) \Omega E_b \frac{1}{K} \Gamma\left(-\frac{3}{2}, \frac{E_b}{T_2^0}\right). \quad (21)$$

В формуле (21) использованы следующие обозначения: E_0 – энергия падающего иона; $(4\pi/3)r_s^3 = 1/N_1$; $\Pi(E_0) = \pi r_0^3 / \lambda(E_0)$ – средняя величина нагретой площади, приходящейся на один падающий ион, в условиях хаотического падения пучка [26]; $\lambda(E_0) =$

$\{\sigma(E_0)N_1\}^{-1}$ – длина свободного пробега бомбардирующих ионов; $\sigma(E_0)$ – сечение рассеяния; $\Gamma(\alpha, x)$ – неполная гамма-функция. Последнее равенство в (21) получено в пределе $t_p \rightarrow \infty$, поскольку величина интеграла в (21) в основном формируется на нижнем пределе. Что касается величины $\tilde{K}$, также вошедшей в (21), то ее удастся вычислить в том же приближении, которое использовалось при выводе (20), т.е. пренебрегая малым вкладом рекомбинации. В области высоких температур основной вклад дает двухфотонный процесс. Тогда, учитывая (6), (17) и (20), получаем

$$\tilde{K} = \frac{2}{3}\beta_1\bar{\varepsilon}\tilde{\Phi} = C_3\tilde{\Omega}_a\bar{\varepsilon}\frac{1}{M^2}\int dq q^6\Delta_q\left[\frac{1}{\omega_q^3}|V(q)|^2\right]^2.$$

В феноменологической теории активированных процессов [18], [19], [24] вводится дополнительная физическая величина n_j – число реализаций активированного процесса за время жизни ТП. Эта величина связана с количеством тепла Q_2 , высвободившимся внутри сферы радиуса r_0 , соотношением [19]

$$n_j = \frac{1}{\pi^2}\left(\frac{Q_2}{E_b}\right)^{\frac{2}{3}}\tilde{\rho}. \quad (22)$$

Предварительно выразив энергию связи через упругую постоянную $\bar{g}$ [11], $E_b = (1/\pi^2)\bar{g}r_s^2$, запишем величину $\tilde{\rho}$ в принятых нами обозначениях

$$\tilde{\rho} = \Omega r_s^2 \left(\frac{\tilde{K}}{\bar{g}}\right)^{-1}.$$

Используя (20) и (22), получаем искомое соотношение

$$S_{\text{therm}} = C_4 N_1 r_s \Pi(E_0) \{\nu(\varepsilon_0)\}^{-\frac{2}{3}} f_1\left(\frac{E_b}{T_2^0}\right) n_j. \quad (23)$$

Оно связывает коэффициент распыления с числом реализаций n_j и функцией, зависящей от начальной квазitemпературы ТП,

$$f_1\left(\frac{E_b}{T_2^0}\right) = \left(\frac{E_b}{T_2^0}\right)^{-\frac{11}{6}} \exp\left(-\frac{E_b}{T_2^0}\right).$$

6. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

6.1. Два подхода в теории термализации. При решении задачи термализации каскадов в твердых телах возможны два направления исследования: феноменологический подход [18], [19], основанный на уравнении теплопроводности, и подход, предложенный в данной работе, в рамках которого система описывается на термодинамическом уровне с использованием представлений микроскопической теории.

Основная трудность феноменологической теории заключается не столько в отыскании решения ее основного уравнения, сколько в применимости самой концепции теплопроводности. Дело в том, что в качестве источника теплового пика рассматриваются

выбитые атомы, причем энергия, которую они передают решетке, высвобождается в небольшом объеме среды. Можно ли в таком случае считать, что линейное уравнение теплопроводности, которое описывает распространение тепла в так называемой непрерывной модели, применимо в этих условиях? Тем более, что наличие процессов, протекающих в широком интервале температур, казалось бы неминуемо должно приводить к квазилинейному уравнению теплопроводности.

Однако это еще не все. Чтобы достигнуть более заметного спада температуры, в стандартном решении уравнения теплопроводности отбрасывается множитель $\exp\{-(r^2/4Dt)\}$. Теперь временная эволюция температуры каскада определяется функцией $\tilde{T}(t) \sim t^{-3/2}$, которая имеет сингулярность при $t = 0$. Чтобы “исправить” ситуацию, предлагается [19] либо ввести стартовое время $t_0 = r_s^2/4D$ и использовать решение вида [26] $(t + t_0)^{-3/2}$, либо ограничить во всех интегральных преобразованиях нижний предел. Все это вносит в теорию дополнительную неясность.

Представленная выше термодинамическая теория не подтверждает постулаты работ [18], [19], [24]. Во-первых, на основе системы уравнений для термодинамических параметров (1) установлено, что квазitemпература КЧ удовлетворяет уравнению Абеля первого рода (18), а не линейному уравнению параболического типа. Во-вторых, найдено точное решение (19) уравнения Абеля. Показано, что в условиях слабой рекомбинации спад квазitemпературы (20) близок к линейному, а отклонение от линейности описывается слабоменяющейся (логарифмической) функцией. Решение в виде алгебраических функций, которое используется в [18], [19], [24], не найдено.

Кинетический подход к изучению неравновесных явлений в период термализации представляется более глубоким. Он может давать обоснование приближений, используемых при более формальной постановке проблемы, в частности, в ее феноменологической трактовке.

6.2. Кинетика термического распыления. Как видно из соотношений (22), (23), коэффициент распыления пропорционален $\tilde{\rho}$. Аналогом величины $\tilde{\rho}$ в феноменологической теории [18], [19] является отношение атомной диффузионной способности к термической диффузионной способности решетки, которое в ряде случаев, например, при изучении радиационного разупорядочения сплавов, может считаться равным единице [18], [19]. Для того чтобы воспользоваться представлениями химической кинетики, упростим нашу задачу, предполагая $\tilde{\rho} = 1$. Тогда остается только одно взаимодействие бомбардирующего иона с атомом решетки, а, следовательно, и одно сечение рассеяния $\sigma(E_0)$. В этом случае интересующая нас “квазихимическая” реакция описывает превращение одних частиц в другие:

где A_1 – бомбардирующий ион, $S\{A_2\}$ – совокупность атомов решетки в области ТП, $k(1/\beta_2)$ – коэффициент скорости термического распыления. Принимая во внимание (22), (23), находим

$$S_{\text{therm}} \sim k(T_2^0), \quad k(T_2^0) = \tilde{B} \left(\frac{T_2^0}{E_b} \right)^{\frac{5}{2}} \exp \left\{ -\frac{E_b}{T_2^0} \right\} \quad (24)$$

(выражения для S_{therm} и $\tilde{B}$ в частном случае рассеяния по законам твердых шаров даны в приложении). Сравнивая (24) с модифицированным уравнением для реакции с энергией активации E_b в форме Аррениуса [27]

$$k_n(T) = \tilde{B} \left(\frac{T}{E_b} \right)^n \exp \left\{ -\frac{E_b}{T} \right\},$$

видим, что формулы совпадают при $n = 5/2$ и $T = T_2^0$.

Вблизи равновесия сложных систем аррениусова кинетика хорошо изучена [27]. Однако в условиях ТП, когда имеется разрыв термодинамических параметров кристалла и подсистемы КЧ, теоретическое понимание кинетики на столь же высоком уровне отсутствует. Поэтому обоснование модифицированной кинетики Аррениуса следует считать основным результатом приложения теории термализации, точнее, температурного хода (20) к активированному процессу – термическому распылению. Отметим также, что другими примерами реализации модифицированной кинетики могут быть бимолекулярные химические реакции в газовой фазе, когда временная эволюция системы (типа плазмы) обусловлена бинарными столкновениями [27].

6.3. Краткое заключение. В данной работе, посвященной исследованию термализации каскада смещений в твердом теле, получены следующие результаты:

1. Квазitemпература КЧ удовлетворяет уравнению Абеля первого рода (18), которое одновременно описывает отвод энергии по фононному механизму и изменение энергии внутри каскадной зоны за счет термической рекомбинации дефектов.
2. Точное решение уравнения (18) может быть дано только в неявном виде. Однако в условиях слабой рекомбинации спад квазitemпературы КЧ в период термализации аппроксимируется функцией (20), близкой к линейно спадающей функции.
3. Временная зависимость квазitemпературы КЧ (20) использована для анализа активированного процесса – распыления атомов в приповерхностном слое. Показано, что коэффициент скорости этого процесса описывается модифицированным выражением Аррениуса $k_n(T_2^0)$ с показателем степени $n = 5/2$.

ПРИЛОЖЕНИЕ

Из-за математических трудностей не будем рассматривать диффузию атома в реальных кристаллах по вакансионному механизму, а ограничимся обсуждением упрощенной модели [28]. В качестве такой модели принимается цепочка атомов с одной вакансией. Она может использоваться и в задаче о каскаде смещений, если принять, что вокруг вакансии находится только один выбитый атом. Предполагается также, что на стадии термализации, после того как выбитый атом затормозился, его скорость достаточно мала и энергия меньше высоты потенциального барьера вблизи вакантного узла. В противном случае никакого захвата атома вакансией не произойдет.

Введение гамильтониана миграции T_A [28] в полный гамильтониан системы дает возможность исследовать диффузионную подвижность в рамках теории линейной реакции [9]. В этом случае коэффициент скорости диффузии Γ определяется соотношением

$$n_V \left(\frac{a^2}{2} \right) \Gamma = \int_0^\infty dt \langle \dot{d}(-t) \rangle_0 \exp(-\varepsilon t), \quad \varepsilon \rightarrow +0.$$

Здесь $\dot{d} = i[T_A, d]$ – скорость мигрирующего атома, d – его дипольный момент. Записав $\dot{d}$ в операторах Паули $\hat{a}_m, a_m$ [11], имеем

$$\dot{d} = \frac{1}{2}a\nu \sum_m (\rho_m + \rho_m^+),$$

где $\rho_m = \hat{a}_{m+1}^+ a_m$, и для коэффициента переноса получаем

$$n_V \Gamma = \nu^2 \sum_{mm'} \int dt \langle \rho_{m'}^+ \rho_m(-t) \rangle_0 \exp(-\varepsilon t). \quad (\text{П.1})$$

Используя спектральную теорему, выразим корреляционную функцию в (П.1) через спектральную интенсивность $J_{mm'}$. Тогда

$$n_V \Gamma = \nu^2 \sum_{mm'} \int d\omega J_{mm'}(\omega) \int_0^\infty dt' \exp(i\omega t' - \varepsilon t'). \quad (\text{П.2})$$

Спектральная интенсивность $J_{mm'}$, в свою очередь, может быть выражена через массовый оператор $M(\omega)$ и затухание $\gamma(\omega)$ двухвременной (и двухчастичной) функции Грина

$$J_{mm'}(\omega) = \frac{1}{\pi} F(\omega) [\exp(\beta_1 \omega) + 1]^{-1} (n_m + n_{m+1}) \delta_{mm'}, \quad (\text{П.3})$$

где

$$F(\omega) = \gamma(\omega) [(\omega - M(\omega))^2 + \gamma^2(\omega)]^{-1}.$$

Здесь n_m – собственные значения оператора плотности вакансий [28]. Отметим также, что функция Грина построена на основе антикоммутирующего оператора. Теперь, подставляя (П.3) в (П.2), в предельном случае сильного взаимодействия $\gamma^2(0) \gg \omega_k^2$ получаем искомое соотношение (10).

В заключение запишем в полном виде коэффициент распыления (24)

$$S_{\text{therm}} = C_5 N_1 r_0^3 \frac{r_s}{v(E_0)} k(T_2^0). \quad (\text{П.4})$$

Предэкспоненциальный множитель $\tilde{B}$ в выражении для $k(T_2^0)$ пропорционален сечению упругого рассеяния $\sigma(E_0)$. Поэтому явный вид $\tilde{B}$ зависит от модели атом-атомного потенциала и интервала энергий, к которому относится энергия налетающего иона E_0 . В случае облучения кристалла тяжелыми ионами (Ar^+, Xe^+) с энергией в интервале $(10 \div 10^2)$ КэВ сечение рассеяния можно вычислить в приближении твердых шаров. В этом приближении имеем

$$\tilde{B} = \frac{1}{2} a_B^2 N_1 \frac{E_R}{E_0^{\frac{1}{2}}} \frac{Z_0 Z}{(Z_0^{\frac{2}{3}} + Z^{\frac{2}{3}})^{\frac{1}{2}}} \frac{M_0 + M}{M M_0^{\frac{1}{2}}},$$

где a_B – радиус Бора, Z_0 и M_0 – заряд и масса бомбардирующего иона, Z – заряд атома решетки, E_R – постоянная Ридберга.

Ниже приведены значения численных коэффициентов C_i , вошедших в некоторые из представленных в статье формул.

$$C_1 = \frac{4}{7} = 0.57; \quad C_2 = 2.6; \quad C_3 = 9 \cdot 10^{-2}; \quad C_4 = 4 \cdot 10^{-2}; \quad C_5 = 3 \cdot 10^{-2}.$$

Список литературы

- [1] Ю. А. Кашлев. ТМФ. 2000. Т. 123. № 3. С. 485.
- [2] Ю. А. Кашлев. ТМФ. 2001. Т. 126. № 2. С. 311.
- [3] W. Brandt. Appl. Phys. 1974. V. 5. № 1. P. 1.
- [4] Y. Jkari. J. Phys. Soc. Japan. 1979. V. 46. P. 97.
- [5] T. Mc. Mullen. J. Phys. 1977. V. 7. P. 2041.
- [6] A. P. Mills (Jr.), L. Pfeiffer. Phys. Rev. Lett. 1979. V. 43. P. 1961.
- [7] W. Prandt, R. Paulin. Phys. Rev. B. 1972. V. 5. P. 2430.
- [8] M. W. Thompson, R. S. Nelson. Phil. Mag. 1962. V. 7. № 84. P. 2015.
- [9] Д. Н. Зубарев. Неравновесная статистическая термодинамика. М.: Наука, 1971.
- [10] M. Lagos. Solid State Comm. 1984. V. 50. № 8. P. 777; 1989. V. 69. № 1. P. 11.
- [11] Ю. А. Кашлев. ТМФ. 1975. Т. 24. № 2. С. 265.
- [12] R. Kubo. Phys. Rev. 1952. V. 86. № 6. P. 929.
- [13] Г. Н. Кунчин, Р. С. Пуз. УФН. 1956. Т. 60. № 4. С. 590.
- [14] D. K. Brice, B. L. Doyle. J. Nucl. Mat. 1984. V. 120. № 2. P. 230.
- [15] Ю. А. Кашлев. ТМФ. 1998. Т. 116. № 3. С. 442.
- [16] Ю. А. Кашлев, Н. М. Садыков. ТМФ. 1997. Т. 111. № 3. С. 483.
- [17] Й. Линдхард. УФН. 1969. Т. 99. Вып. 2. С. 249.
- [18] Д. Динс, Д. Винйард. Радиационные эффекты в твердых телах. М.: ИЛ, 1960.
- [19] F. Seitz, J. S. Kochler. Solid State Physics. 1956. V. 2. P. 305.
- [20] H. Blank. Phys. Stat. Sol. 1972. V. 10(a). P. 465.
- [21] R. Chang. Acta Metallur. 1957. V. 5. P. 257.
- [22] C. A. Andersen, J. R. Hinthorne. Annal. Chem. 1973. V. 45. P. 1421.
- [23] G. H. Vineyard. Rad. Effects. 1976. V. 29. P. 245.
- [24] R. Kelly. Rad. Effects. 1977. V. 32. P. 91.
- [25] G. M. Pound. J. Phys. Chem. Ref. Data. 1972. V. 1. P. 135.
- [26] R. S. Nelson. Phil. Mag. 1965. V. 11. № 110. P. 291.
- [27] В. Штиллер. Уравнение Аррениуса и неравновесная кинетика. М.: Мир, 2000.
- [28] L. P. Kadanoff, J. Swift. Phys. Rev. 1968. V. 168. № 3. P. 310.

Поступила в редакцию 22.III.2001 г.,
после доработки 7.VI.2001 г.