

УДК 548.4:535.343.2

## КВАЗИОСЦИЛЛИРУЮЩИЕ СВОЙСТВА НЕЙТРАЛЬНЫХ КОМПЛЕКСНЫХ ДЕФЕКТОВ ПРИ ТЕРМИЧЕСКОМ ОТЖИГЕ НЕМЕТАЛЛИЧЕСКИХ КРИСТАЛЛОВ

© 2021 г. Б. Арапов<sup>а, \*</sup>, Т. Б. Арапов<sup>а</sup>, А. О. Садыкбекова<sup>а, \*\*</sup>

<sup>а</sup>Ошский государственный университет, Ош, 723500 Кыргызстан

\*e-mail: baiysh\_arapov@yandex.ru

\*\*e-mail: sadykbekova@bk.ru

Поступила в редакцию 28.02.2020 г.

После доработки 18.05.2020 г.

Принята к публикации 22.05.2020 г.

Исследована температурная зависимость относительных диэлектрических потерь облученного кристалла KCl–Ag. Установлено, что нейтральные комплексные дефекты обусловлены различными типами релаксаторов и имеют различные структуры. Установлена температурная квазиосциллирующая зависимость относительной концентрации нейтральных комплексных дефектов, обуславливающих диэлектрические потери на различных частотах. Теоретически обоснованы образование и распад нейтральных комплексных дефектов на основе представления о трофической цепи дефектов. Введено понятие радиуса взаимодействия, когда подвижные дефекты могут входить в квазихимическую реакцию, и начинают образовываться нейтральные комплексные дефекты. Радиус такого взаимодействия будет пропорционален концентрации свободных подвижных дефектов. В стационарном режиме, когда устанавливается кинетическое равновесие по всем компонентам трофической цепи дефектов, рассмотрено уравнение для температурной зависимости радиуса взаимодействия дефектов, объясняющее осциллирующие свойства относительной концентрации нейтральных комплексных дефектов в ионных кристаллах.

**Ключевые слова:** радиационные дефекты, диэлектрические потери, нейтральные комплексные дефекты, радиус взаимодействия дефектов, трофические цепи дефектов, неметаллические кристаллы, осциллирующие свойства.

**DOI:** 10.31857/S1028096021020023

### ВВЕДЕНИЕ

При радиационном воздействии на твердое тело в нем образуются различного рода радиационные дефекты, которые диффундируют по кристаллу и вступают друг с другом в квазихимические реакции в областях регулярной решетки или в областях стоков. В результате этой реакции возникают новые дефекты, вводящие в электронный и фононный спектры новые состояния. Следовательно, квазихимическая стадия реакции кристаллов, проходящей при радиационном воздействии, является исключительно важной. Эти квазихимические реакции изучают различными способами. В последние годы особую роль при исследовании радиационных процессов в твердых телах приобрела комбинация различных методов: электрических, оптических, люминесцентных. Комбинация методов позволяет определять механизмы образования и структуры радиационно-наведенных дефектов в исследуемых кристаллах.

В настоящее время известен ряд работ [1–9], в которых обнаружены осциллирующие зависимости свойств дефектов в неметаллических кристаллах при различных релаксационных процессах, в частности, при изменении температуры отжига или интенсивности облучения кристалла. Так, в [4] исследованы различные характеристики: радиус примесных облаков, выпадающих на макродефектах при нагреве, время жизни носителей тока при отжиге и другие. Было обнаружено сложное поведение этих характеристик, имеют место квазиосциллирующие зависимости при термическом отжиге кристалла.

Авторы [5] исследовали образование зародышей золота на поверхности кристаллов NaCl при облучении ионами аргона. Было обнаружено, что стационарная концентрация зародышей, пропорциональная концентрации образующихся дефектов, зависит от величины потока ионов осциллирующим образом. В [6] исследован кристалл со сложным составом дефектов. Была обна-

ружена осцилляция постоянной Холла в зависимости от температуры отжига. В данном случае, несомненно, начальную роль играют  $F$ -центры, образующиеся при ионном облучении, и “радиационная тряска” поверхности, обусловленная упругими волнами, генерируемыми ионами при ударе о поверхность и распространяющимися вдоль нее. Радиационная тряска увеличивает подвижность адатомов и “стряхивает” их с центров зародышеобразования ( $F$ -,  $M$ -,  $R$ -центры). Суть эффекта состоит именно в реализации не одного, а нескольких отчетливых пиков. Поэтому идея трофической цепи дефектов оказывается естественной базой для теоретического анализа этого эффекта. Таким образом, существует осцилляция свойств твердых тел в зависимости от температуры и интенсивности облучения. Эти экспериментальные результаты исследователи разделяют на два класса: когда осцилляция наблюдается во времени [3, 7, 10, 11] и когда периодичность выявляется в результате получения какой энергии извне, т.е. в результате “возбуждения” кристалла [3, 5, 12]. Ранее [1, 7] изучена концепция трофической цепи дефектов с учетом ионных процессов, происходящих в твердом теле.

В настоящей работе проводится теоретический анализ результатов экспериментального исследования образования и распада нейтральных комплексных дефектов в кристаллах  $KCl-Ag$  с различной концентрацией серебра на основе введенного в физику дефектов представления о трофических цепях дефектов.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Проведено исследование температурной зависимости тангенса угла диэлектрических потерь для кристаллов  $KCl-Ag$  с различной концентрацией серебра на разных частотах: 0.1, 1 и 10 кГц. Сравнение температурных зависимостей относительных диэлектрических потерь при разных частотах показывает, что различные нейтральные комплексы дефектов, обуславливающие диэлектрические потери, образуются и разрушаются при различных температурах. Поэтому можно предположить, что релаксационные потери при соответствующих частотах обусловлены различными типами релаксаторов. Например, при частоте  $f = 0.1$  кГц относительные диэлектрические потери могут быть обусловлены релаксаторами I типа, при 1 кГц – II типа и при 10 кГц – III типа.

Рассмотрим влияние примеси серебра и его концентрации на температурную зависимость относительной концентрации релаксаторов определенного типа в кристаллах  $KCl-Ag$ , подверженных воздействию рентгеновского излучения. На рис. 1 приведены соответствующие данные для релаксаторов I типа (при 0.1 кГц). Как видно из [13] и полученных данных, введение примеси и

увеличение ее концентрации влияет определенным образом на температурную зависимость концентрации релаксаторов. В интервале 300–360 К с увеличением концентрации примеси возрастает концентрация релаксаторов I типа, в интервале 360–420 К она уменьшается, затем снова возрастает.

Аналогичные результаты получены и для релаксаторов II и III типов. Например, рассмотрим влияние примеси на температурную зависимость концентрации релаксаторов II типа (при 1 кГц). Введение примеси и увеличение ее концентрации приводит к возрастанию и уменьшению концентрации релаксаторов. В случае релаксаторов III типа (при 10 кГц) после введения примеси концентрация релаксаторов возрастает и достигает максимума при  $T = 330$  К. Затем концентрация уменьшается в интервале 330–390 К, и дальнейшее повышение температуры до 500 К приводит к ее возрастанию.

Из вышеприведенных экспериментальных данных следует, что температурная зависимость относительной концентрации нейтральных комплексов носит сложный характер. Однако можно заметить некое квазиосциллирующее поведение этой зависимости. Таким образом, по мере возбуждения среды, с ростом температуры происходит осцилляция свойств кристалла.

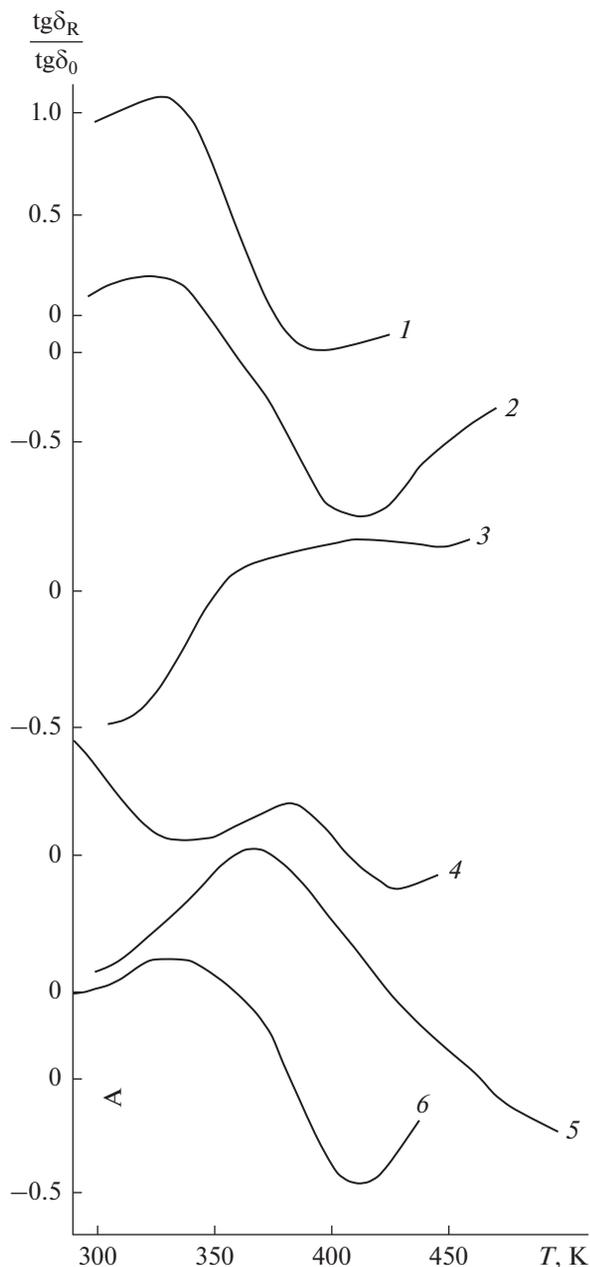
### ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Рассмотрим следующую цепь рассуждений, ориентируясь, для конкретности, на такое понятие как радиус взаимодействия дефектов. Пусть в кристалле имеются подвижные дефекты, в частности примеси, которые при достижении температуры  $T_1$  могут входить в некоторую квазихимическую реакцию, в результате которой начинают образовываться взаимодействующие дефекты. Радиус этих взаимодействий ( $R$ ) будет пропорционален некоторой степени концентрации свободных подвижных дефектов:

$$R = K_1 N_1^\gamma. \quad (1)$$

Показатель степени  $\gamma$  зависит от геометрии радиуса взаимодействующих дефектов и порядка реакции выпадения. Повысим температуру кристалла до  $T_2$ . Пусть в кристалле появляются подвижные дефекты типа  $A_2$ , эффективно взаимодействующие с примесями  $A_1$ , и создаются комплексы  $[A_1, A_2]$ , которые не могут участвовать в образовании нейтральных комплексов:  $A_1 + A_2 \rightarrow [A_1, A_2]$ .

Естественно, в этом случае концентрация свободных примесей  $A_1$  уменьшится, т.е. уменьшится и радиус взаимодействия дефектов. Повысим



**Рис. 1.** Температурная зависимость относительных диэлектрических потерь при частоте 0.1 кГц в возбужденных кристаллах KCl с различной концентрацией примеси Ag: 1 – 0; 2 – 0.01; 3 – 0.05; 4 – 0.1; 5 – 0.5; 6 – 1.0 моль %.

снова температуру кристалла до  $T_3$ . Пусть при этой температуре появляются подвижные дефекты типа  $A_3$ , которые эффективно взаимодействуют с дефектами  $A_2$  по реакции:  $A_2 + A_3 \rightarrow [A_2, A_3]$ .

В результате образуются комплексы  $[A_2, A_3]$ , которые не могут взаимодействовать ни с  $A_1$ , ни с  $A_2$ . С понижением концентрации свободных дефектов  $A_2$  возрастает концентрация  $A_1$ , а следова-

тельно, и радиус  $R$ . При дальнейшем повышении температуры  $T_4$  появятся дефекты  $A_4$ , взаимодействующие с  $A_3$  по реакции:  $A_3 + A_4 \rightarrow [A_3, A_4]$ .

После реализации всех реакций уменьшится радиус  $R$ . При дальнейшем росте температуры взаимодействующая цепь дефектов, получивших название “трофической цепи дефектов” в силу того, что между каждым последующим их типом и предыдущим устанавливаются взаимосвязи, будет удлиняться, вызывая осцилляции исследуемого свойства кристалла. Математически эволюцию всей системы дефектов можно описать системой дифференциальных уравнений:

$$\begin{cases} N_1 = \lambda_1 - K_1 N_1 - K_{12} N_1 N_2 - N_1 / \tau_1 \\ N_2 = \lambda_2 - K_{12} N_1 N_2 - K_{23} N_2 N_3 - N_2 / \tau_2 \\ \dots \\ N_j = \lambda_j - K_{i-1,j} N_{j-1} N_j - K_{j,j+1} N_j N_{j+1} - N_j / \tau_j \\ \dots \end{cases} \quad (2)$$

$$t = 0 \rightarrow N_j = N_j^0, \quad j = 1, 2, \dots, m.$$

То, что дефекты каждого типа генерируются из последовательной трофической цепи при более высокой температуре, означает следующее: вид решения системы уравнений существенно зависит от того, имеется ли независимый сток для каждого из типов дефектов, т.е. присутствуют ли в уравнениях члены типа  $N_j / \tau_j$ . Наиболее простым, по крайней мере, важным вариантом решений будет случай, когда этими стоками можно пренебречь:  $1/\tau_j \rightarrow 0$ . Тогда в случае стационарного режима, когда успевает установиться кинетическое равновесие по всем компонентам трофической цепи дефектов, получим:

$$R = \text{const} \left\{ \sum_{j=1}^m (-1)^{j+1} \lambda_j^0 \exp(-E_j/kT) \right\}^\gamma \quad (3)$$

Остановимся на дефектах типа  $A$ , т.е. данная запись и все решения справедливы вплоть до температуры  $T_M$ , но не выше, иначе пришлось бы увеличить число уравнений в системе.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Из вышеизложенных данных можно сделать следующее заключение. Различные нейтральные комплексы дефектов, обуславливающие диэлектрические потери на различных частотах внешнего поля, обусловленных различными релаксаторами, образуются и разрушаются в различных интервалах температур. Температурная зависимость относительной концентрации нейтральных комплексов носит сложный, квазиосциллирующий характер. Представлено теоретическое обоснование процесса образования и распада нейтральных комплексных дефектов, основанное на представ-

лении о трофической цепи дефектов. Предложено математическое уравнение для радиуса взаимодействия дефектов в зависимости от температуры, качественно объясняющее осциллирующие свойства дефектов.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Авилов А.Б., Арапов Б.А., Оксенгендлер Б.Л., Гусева М.Б.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2006. № 5. С. 103.
2. *Авилов А., Оксенгендлер Б.Л., Юнусов М.С., Хамраева Р.* // Узбекский физ. журн. 1992. № 5. С. 47.
3. *Арапов Б., Авилов А.Б., Оксенгендлер Б.Л.* Радиационные дефектообразования и квазихимические реакции в неметаллических кристаллах. Бишкек: Илим, 2003. 120 с.
4. *Хамраева Р.* Электрофизические и структурные свойства без дислокационного кремния. Автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук. Ташкент: ИЯФ АН РУз, 1991. 16 с.
5. *Гусева М.Б.* Ионная стимуляция процессов на поверхности твердого тела. Автореф. дис. ... д-ра физ.-мат. наук. М.: МГУ, 1988. 32 с.
6. *Заячук Д.М.* // Письма в ЖЭТФ. 1991. Т. 54. № 7. С. 398.
7. *Арапов Т.Б., Садыкбекова А.О., Арапов Б.* // Междунар. журн. прикл. и фунд. исслед. 2016. № 8-1. С. 106.
8. *Николис Дж., Пригожин И.* Самоорганизация в равновесных системах. М.: Мир, 1979. 512 с.
9. *Кучинский П.В., Ломако В.М., Шахлевич Л.Н.* // Письма в ЖЭТФ. 1987. Т. 45. С. 350.
10. *Абрахманов Б.М., Адиллов М.М., Ашууров Х.Б. и др.* Термоэлектрические свойства гранулированного кремния: материаловедческий и радиационный аспекты // Матер. IX междунар. конф. по актуальным проблемам физики, материаловедения, технологии и диагностики кремния, наноразмерных структур и приборов на его основе "Кремний 2012". Санкт-Петербург, 2012. С. 273.
11. *Ашууров М.Х., Абрахманов Б.М., Ашууров Х.Б., Адиллов М.М.* Проблемы и перспективы технологии кремниевых преобразователей фотоактивного и теплового излучения // Матер. конф. "Микроэлектроника, нанозаррлар физикаси ва технологиялари Республика илмий-амалий анжумани". Андижон, 2015. С. 171.
12. *Адиллов М.М., Ашууров М.Х., Ашууров Х.Б., Абрахманов Б.М.* Влияние внешнего давления и температуры на некоторые свойства гранулированного кремния // Матер. 7 междунар. конф. по физической электронике IPES-7. Ташкент, 2018. С. 100.
13. *Арапов Б., Орозбаева А.А., Садыкбекова А.* Методы измерения ионной электропроводности диэлектрических потерь в ионных кристаллах и полупроводниках // Матер. 12-й Респ. науч.-практ. конф. "Актуальные проблемы образовательного процесса в школе и ВУЗе". Бишкек, 2015. С. 363.

## Quasi-Oscillating Properties of Neutral Complex Defects during Thermal Annealing of Non-Metallic Crystals

**B. Arapov<sup>1,\*</sup>, T. B. Arapov<sup>1</sup>, A. O. Sadykbekova<sup>1,\*\*</sup>**

<sup>1</sup>*Osh State University, Osh, 723500 Kyrgyzstan*

*\*e-mail: baiysh\_arapov@yandex.ru*

*\*\*e-mail: sadykbekova@bk.ru*

The temperature dependence of the relative dielectric losses of the irradiated KCl–Ag crystal is investigated. It is established that neutral complex defects are caused by different types of relaxators and have different structures. The temperature quasi-oscillating dependence of the relative concentration of neutral complex defects, which cause dielectric losses at different frequencies, is established. The formation and decay of neutral complex defects based on the concept of the trophic chain of defects are theoretically substantiated. The concept of interaction radius is introduced, when mobile defects can enter a quasi-chemical reaction, and neutral complex defects begin to form. The radius of this interaction will be proportional to the concentration of free mobile defects. In the stationary mode, when kinetic equilibrium is established for all components of the trophic chain of defects, the equation for the temperature dependence of the radius of interaction of defects is considered, which explains the oscillating properties of the relative concentration of neutral complex defects in ionic crystals.

**Keywords:** radiation defects, dielectric losses, neutral complex defects, trophic chains of defects, nonmetallic crystals, oscillating properties.