УДК 623.373.8

СВЯЗАННЫЕ ВОЛНЫ УПРУГИХ СМЕЩЕНИЙ, КОНЦЕНТРАЦИИ ТОЧЕЧНЫХ ДЕФЕКТОВ И ЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ В ЦЕНТРОСИММЕТРИЧНЫХ КРИСТАЛЛАХ

Ф. Х. Мирзоев, Л. А. Шелепин

Исходя из плотности свободной энергии упругого континуума, учитывающей генерацию точечных дефектов (ТД) и флексоэлектрический эффект, выведена замкнутая система уравнений, описывающая распространение самосогласованных полей упругих полей, концентрации ТД и электрической поляризации в центросимметричных кристаллах. В линейном приближении получены дисперсионные соотношения связанных линейных волн упругих смещений, концентрации ТД и поляризации. Дисперсионное уравнение имеет три корня: один из них характеризует диффузионную моду с коэффициентом диффузии, перенормированным за счет деформационного взаимодействия и флексоэлектрического эффекта, а остальные два – описывают дисперсию упругих волн, распространяющихся в противоположных направлениях.

Исследование динамики упругих волн с учетом их взаимодействия с дефектами структуры представляет несомненный теоретический и практический интерес, в частности, при анализе механизмов аномального массопереноса, обнаруженного при лазерной и ионной имплантации материалов [1], при изучении процессов механической активации компонентов при твердофазных химических реакциях. Распространяющаяся в конденсированной среде с дефектами волна упругих деформаций несет информацию об искажениях формы и скорости деформаций и о потерях энергии, связанных с дефектной структурой [2], что необходимо для оптико-акустической диагностики различных параметров и структуры твердых тел.

Локальные проявления дефектов в акустических свойствах кристалла могут быть разнообразными. Так, деформации в упругой волне вызывают перемещение точечных дефектов (ТД) (вакансий, междоузельных атомов) в кристалле (деформационно-индуцированный дрейф); модулируют вероятности генерации и рекомбинации термофлуктуационных ТД путем изменения их энергетических параметров: соответственно энергии активации образования и миграции [3].

В центросимметричных полупроводниковых кристаллах, таких как германий, кремний, наряду с перечисленными выше нелинейностями, определяющую роль может играть флексоэлектрический эффект, связанный с возникновением диэлектрической поляризации решетки, пропорциональной градиенту упругой деформации [4 – 9]. Флексоэлектрический эффект приводит к появлению дополнительных локальных токов ТД – баротоков, аналогичных деформационным, что сказывается на их кинетике. Кроме того, создается флексоэлектрический потенциал, который влияет на значения энергии активации образования и миграции дефектов, приводя к изменению локальной концентрации дефектов и, как следствие, к их пространственному перераспределению. Флексоэлектрический эффект теоретически был предсказан К. Б. Толпыго с сотрудниками [4] и впоследствии исследован другими авторами [5 – 9]. В отличие от пьезоэффекта, флексоэлектрический эффект описывает возникновение поляризации в непьезоэлектрическом кристалле под действием неэлектрического воздействия. Учет флексоэлектрического эффекта оказался существенным при исследовании взаимодействия свободных носителей (электронов) с полем деформации в непьезоэлектрических кристаллах. Согласно [9], флексоэлектрический эффект и деформационный потенциал обеспечивают одинаковую энергию взаимодействия между носителями тока и акустической волной. Исследование роли флексоэлектрического эффекта в облучаемых полупроводниках (германий, кремний) показало, что электростатический потенциал, обусловленный этим эффектом, составляет заметную величину и оказывает сравнимое с потенциалом, обусловленным свободными носителями, влияние на электрофизические свойства областей дефектообразования, а в ряде случаев полностью определяет их свойства [7].

Цель данной работы – разработка самосогласованной аналитической модели кинетики накопления ТД в облучаемых центросимметричных кристаллах с учетом упругого и флексоэлектрического взаимодействий.

Изучение процессов распространения возмущений упругой деформации в облучаемых центросимметричных кристаллах предполагает решение связанной системы уравнений, описывающей взаимодействия в них электромагнитных и упругих колебаний, а также полей концентрации ТД. Такая система включает в себя нелинейное уравнение теории упругости с учетом сил, действующих на решетку со стороны ТД и влияния флексоэлектрического эффекта, уравнение Максвелла и уравнение баланса для концентрации ТД.

Уравнения динамики для упругих смещений решетки в приближении анизотропного упругого континуума, с учетом генерации ТД, запишем в виде:

$$\rho_0 \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial \sigma_{ik}}{\partial x_k}, \quad \frac{\partial H_i}{\partial x_i} = 4\pi \rho_q(\vec{r}), \tag{1}$$

где H_i – компонент вектора электрической индукции; $\rho_q(\vec{r})$ – плотность заряда, x_k – пространственная координата.

Для нахождения σ_{ik} и H_i воспользуемся выражением для плотности свободной энергии F.

Энергия взаимодействия ТД определяется двумя вкладами – энергией деформационного и электростатического взаимодействия. Электростатическое взаимодействие дефектов, помимо кулоновского притяжения, определяется также взаимодействием через поляризацию среды и может проявиться вследствие неоднородной деформации кристаллической решетки вокруг дефектов.

При неоднородной деформации среды ее электрическая поляризация P_i может быть представлена в виде

$$P_i = \frac{1}{2}\mu_{ijkl}\left(\frac{\partial^2 u_j}{\partial x_k \partial x_l} + \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_j \partial x_l}\right), \tag{2}$$

где μ_{ijkl} – тензор флексоэлектрических модулей.

Соответствующий вклад в свободную энергию системы можно представить в виде

$$F_{fl} = \frac{1}{2} P_i \mu_{ijkl}\left(\frac{\partial^2 u_j}{\partial x_k \partial x_l} + \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_j \partial x_l}\right).$$

Считая деформации среды достаточно малыми, ограничимся в разложении свободной энергии по инвариантам тензора деформации величинами до третьего порядка (ангармонизм третьего порядка). Таким образом, для плотности свободной энергии упругого континуума с учетом генерации ТД и флексоэлектрического эффекта, можно записать следующее выражение

$$F - F_0 = \frac{1}{2}\alpha_{iklm} u_{ik} u_{lm} + \frac{1}{3}\beta_{iklmns} u_{ik} u_{lm} u_{ns} + g_{iklmns} u_{ik} \frac{\partial^2 u_{lm}}{\partial x_n \partial x_s} -$$

$$-\sum_{j=v,i} K\Omega_{ik}^j u_{ik} n_j - \frac{1}{8\pi}\varepsilon_{ij}E_iE_j - \frac{1}{2}E_i\left(\mu_{iklm}\frac{\partial u_{ki}}{\partial x_m} + \mu_{ilkm}\frac{\partial u_{lk}}{\partial x_m}\right), \quad (3)$$

где F_0 – значение свободной энергии недеформированного кристалла, $u_{ik} = \partial u_i/\partial x_k$ – тензор деформации, λ_{iklm} и β_{iklmns} – тензоры линейных и нелинейных модулей упругости, выражающиеся через константы упругости второго и третьего порядков; g_{iklmns} – тензор дисперсионных постоянных решетки, определяющий пространственную дисперсию линейных модулей упругости; E_i – соответствующий компонент вектора электрического поля; ε_{ij} – диэлектрический тензор; Ω_{ik}^j – симметричный тензор, характеризующий деформацию решетки за счет появления в ней единичного ТД типа j, K – модуль всестороннего сжатия.

В кристаллах без центра симметрии пьезоэлектрические модули отличны от нуля $\gamma_{ijk} \neq 0$ и при однородной деформации имеет место пьезоэлектрический эффект. Однако положение меняется для кристаллов с центром симметрии, для которых обычный пьезоэлектрический эффект отсутствует ($\gamma_{ijk} = 0$). Тем не менее неоднородная деформация может вызвать пьезоэлектрический эффект другого типа – так называемый флексоэлектрический эффект, поскольку в такой среде флексоэлектрические модули $\mu_{ijkl} \neq 0$. Для качественных оценок флексоэлектрических модулей можно воспользоваться формулой $|\mu_{ijkl}| \approx Z_{el}/d_0$ [5], где Z_{el} – заряд электрона, d_0 – параметр решетки.

Первые три слагаемых в выражении (3) описывают упругую энергию, четвертое – энергию взаимодействия дефектов с полем упругой деформации. Последние два слагаемых учитывают вклад в свободную энергию флексоэлектрического эффекта. Тензор деформации связан с компонентами упругих смещений соотношением

$$u_{ik} = 1/2\left(\frac{\partial u_i}{\partial x_k} + \frac{\partial u_k}{\partial x_i} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i}\frac{\partial u_k}{\partial x_j}\right).$$

Так как тензор механических напряжений $\sigma_{ik} = (\partial F/\partial u_{ik})_{E,T,n}$, с учетом (3) получаем

$$\sigma_{ik} = \lambda_{iklm}u_{lm} + \beta_{iklmns}u_{lm}u_{ns} + g_{iklmns}\frac{\partial^2 u_{lm}}{\partial x_n \partial x_s} - \frac{1}{2}(\mu_{iklm} + \mu_{ilkm})\nabla_l\nabla_m\varphi_{el} - \sum_{j=v,i} k\Omega_{kl}^j n_j. \quad (4)$$

В (4) второе слагаемое в правой части учитывает ангармонизм среды, третье – пространственную дисперсию, четвертое – влияние флексоэлектрического эффекта на решетку, а последнее – напряжения, обусловленные ТД; φ_{el} – электростатический потенциал.

Далее, используя соотношение (4), а также связь между H_i и F в виде $H_i = 4\pi(\partial F/\partial E_i)_{u_{kl},T,n}$, для потенциала получаем следующее уравнение

$$-\varepsilon_{ij}\nabla_i\nabla_j\varphi_{el} = 4\pi\left(\rho_q - \mu_{iklm}\frac{\partial^2 u_{kl}}{\partial x_i \partial x_m}\right). \tag{5}$$

Правая часть уравнения (5) определяется плотностью носителей заряда (ρ_q) и флексоэлектрическим эффектом.

Уравнения (1) – (5) необходимо дополнить уравнением для концентрации ТД. В рамках термофлуктуационных представлений, генерация дефектов из узлов кристаллической решетки определяется температурой и упругими напряжениями, и поэтому может изменяться под влиянием распространяющейся упругой волны. Деформация в упругой волне и флексоэлектрическое явление воздействует на характеристики самих ТД. Так, при прохождении продольных волновых возмущений упругой деформации, в областях растяжения и сжатия изменяется энергия образования ТД. Перенормированную за счет деформации и флексоэлектрического эффекта энергию активации образования дефектов ($\tilde{E}_f^j$), в линейном по деформации приближении, можно представить в виде: $\tilde{E}_f^j = E_{f0}^j - \vartheta_{dj}\mathrm{div}\vec{u} + Z_{el}\varphi_{el}$. Модуляция энергии образования приводит к соответствующей модуляции функции источника (G) дефектов

$$G_j = G_{j0} + G_{je}e + G_{j\varphi}\varphi_{el},$$

где G_{j0} – значение функции источника в отсутствие деформации.

Благодаря взаимодействию с полем упругой деформации и флексоэлектрическому эффекту, кроме модуляции скорости генерации, возникает также дрейфовое движение ТД, что приводит к их дополнительному пространственному перераспределению. Если $U_{int}^j = K\Omega_{mj}u_x$ – энергия взаимодействия ТД типа j с полем деформации [10], то сила, действующая со стороны поля деформации $F_j = -\partial U_{int}^j/\partial x$, вызывает движение дефектов со скоростью $\vec{V}_j = \vec{F}_j D_j/k_B T$ (D_j – коэффициент диффузии ТД типа j, T – температура). Следовательно, суммарный поток дефектов составляет $\vec{J}_j = \vec{J}_{j1} + \vec{J}_{j2} + \vec{J}_{j3}$, где $\vec{J}_{j1} = -D_j\nabla n_j$ – обычный диффузионный поток, $\vec{J}_{j2} = n_j\vec{V}_j$ – деформационно-индуцированный поток дефектов, $J_{j3m} = Z_{el}n_j D^j\nabla_m\varphi_{el}/k_B T$ – поток дефектов за счет действия флексоэлектрического эффекта.

С учетом вышесказанного, для концентрации n_j, в линейном по деформациям приближении, можно записать следующее диффузионно-кинетическое уравнение

$$\frac{\partial n_j}{\partial t} + \mathrm{div} J^j_\alpha = G_0 \left(\frac{\vartheta_{ik} u_{ik}}{k_B T} + \frac{Z_{el}\varphi_{el}}{k_B T} \right) - \frac{n_j}{\tau_{dj}}, \quad (6)$$

$$J^j_\alpha = -D^j_{\alpha m} \nabla_m n - \frac{Z n_{j0} D^j_{\alpha m}}{k_B T} \nabla_m \varphi_{el} + \frac{n_{j0} D^j_{\alpha m} K \Omega^j_{ik}}{k_B T} \nabla_m u_{ik}. \quad (7)$$

Здесь $D^j_{\alpha m}$ – тензор коэффициента диффузии дефекта типа j; τ_{dj} – время релаксации дефектов типа j; $n_{j0} = G_0 \tau_{dj}$ – стационарное значение концентрации ТД, G_0 – темп генерации ТД в отсутствие деформации. В правой части уравнения (6) первое слагаемое в круглых скобках учитывает деформационную добавку в генерацию, связанную с деформационным потенциалом; второе слагаемое – вклад в генерацию за счет флексоэлектрического эффекта. Последнее слагаемое в выражении (6) учитывает релаксацию дефектов, определяемую рекомбинацией на нейтральных стоках. Выражение (7) определяет α – компонент потока J^j_α дефектов типа j, в котором первое слагаемое описывает обычную диффузию; второе – деформационно-индуцированный дрейф, третье – влияние флексоэлектрического эффекта. Объемная взаимная рекомбинация разноименных дефектов не учитывается.

С целью упрощения дальнейшего изложения рассмотрим далее случай изотропных кристаллов с кубической симметрией. Дополнительно положим, что в кристалле имеется только один тип подвижных ТД, например, вакансий, и положим в (5) – (7) $n_j = n$, $D^j_{\alpha m} = D_{\alpha m}$, $\Omega^j_{ik} = \Omega_{ik}$. В системе кристаллических осей тензор диэлектрической проницаемости диагонален $\varepsilon_{ij} = \varepsilon_0 \delta_{ij}$. Также диагональны тензоры диффузии и дилатации: $D_{\alpha m} = D\delta_{\alpha m}$, $\Omega_{ik} = \Omega_m \delta_{ik}$. Тогда из (5) – (7) получаем следующую систему уравнений

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = c_\tau^2 \Delta \vec{u} + (c_l^2 - c_\tau^2)\nabla \mathrm{div}\vec{u} + \frac{\beta_N}{2\rho}\nabla(\mathrm{div}\vec{u})^2 + g\nabla\Delta\mathrm{div}\vec{u} - \mu\nabla\Delta\varphi_{el} - \frac{K\Omega_m}{\rho}\nabla n, \quad (8)$$

$$\Delta\varphi_{el} = -\frac{4\pi}{\varepsilon_0}(\rho_q(r) - \mu\Delta\mathrm{div}\vec{u}), \quad (9)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} = G_c \mathrm{div}\vec{u} + G_\varphi \varphi_{el} - \frac{n_0 D K \Omega_m}{k_B T}\Delta\mathrm{div}\vec{u} + \frac{n_0 Z_{el} D}{k_B T}\Delta\varphi_{el} + D\Delta n - \frac{n}{\tau_d}. \quad (10)$$

Здесь c_l, c_τ – продольная и сдвиговая скорости линейного звука в кристалле, $\mu = \mu_1 + 2\mu_2$ [7], $g \approx K d_0^2/\rho$.

При получении системы (8) – (10) учитывалось, что для изотропных сред [11]

$$\lambda_{iklm} = \lambda_1 \delta_{ik}\delta_{lm} + \lambda_2(\delta_{il}\delta_{mk} + \delta_{im}\delta_{kl}), \;\; \mu_{iklm} = \mu_1 \delta_{ik}\delta_{lm} + \mu_2(\delta_{il}\delta_{mk} + \delta_{im}\delta_{kl}),$$

где δ_{ij} – символ Кронекера; λ_1, λ_2 – упругие модули Ламе; μ_1 и μ_2 – флексоэлектрические модули.

Система уравнений (8) – (10) замкнута и полностью определяет взаимообусловленное поведение полей упругих смещений, флексоэлектрического потенциала и концентрации ТД в нелинейных упругих средах.

В случае продольных одномерных волн система (8) – (10) принимает вид

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - c_1^2 \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} - \frac{\beta_N}{\rho}\frac{\partial^2 u}{\partial x^2}\frac{\partial u}{\partial x} - g\frac{\partial^4 u}{\partial x^4} + \frac{K\Omega_m}{\rho}\frac{\partial n}{\partial x} + \mu\frac{\partial^3 \varphi_{el}}{\partial x^3} = 0, \tag{11}$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} - D\frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + \frac{n}{\tau_d} = G_e\frac{\partial u}{\partial x} - G_\varphi \varphi_{el} - q_D\frac{\partial^3 u}{\partial x^3} + q_F\frac{\partial^2 \varphi_{el}}{\partial x^2}, \tag{12}$$

$$\varepsilon_0 \frac{\partial^2 \varphi_{el}}{\partial x^2} = -4\pi\rho_q(x) + 4\pi\mu\frac{\partial^3 u}{\partial x^3}, \tag{13}$$

где $u = u_x$ – проекция вектора смещения на ось x, $q_F = DZ_{el}n_0/k_BT$, $q_D = Dn_0K\Omega_m/k_BT$.

Рассмотрим решение системы уравнений (11)–(13) в виде плоской волны

$$n, u, \varphi_{el} \sim \exp[i(kx - \omega t)] \tag{14}$$

в пренебрежении ангармонизмом упругого континуума (k, ω – волновой вектор и частота волны соответственно). После подстановки (14) в (11)–(13) получим дисперсионное уравнение

$$(Dk^2 + \tau_d^{-1} - i\omega)(c_1^2k^2 - \omega^2 - \tilde{g}_F k^4) = \tilde{q}_D K\Omega_m \rho^{-1} k^4. \tag{15}$$

Здесь

$$\tilde{g}_F = g \quad 4\pi\varepsilon_0^{-1}\mu^2, \; \tilde{q}_D = q_D - q_F 4\pi\mu/\varepsilon_0,$$

c_l^2 – квадрат скорости продольного звука в отсутствие ТД и флексоэлектрического эффекта. При выводе (15) мы пренебрегли модуляцией скорости генерации дефектов за счет деформационного потенциала и флексоэлектрического эффекта ($G_e = G_\varphi = 0$).

В предельном случае $\tilde{q}_D = 0$ (отсутствие взаимодействия ТД с полем деформации и флексоэлектрического эффекта) уравнение (15) распадается на два независимых закона дисперсии:

$$\omega = -i(Dk^2 + \tau_d^{-1}),\ \omega^2 = c_1^2 k^2 (1 - d_0^2 k^2). \tag{16}$$

Первое из них в (16) описывает диффузионную моду, второе соответствует распространению акустических волн в среде с дисперсией в отсутствие дефектов и флексоэлектрического эффекта.

Для исследования уравнения (15) в общем случае $\tilde{q}_D \neq 0$, решение представим в виде $\omega(k) = c(k)k$. Тогда из (15) получим следующее уравнение для фазовой скорости звуковой волны

$$(c')^3 + ia_1(c')^2 - a_2 c' - ia_3 = 0. \tag{17}$$

Здесь введены следующие безразмерные переменные

$$c' = c/c_1,\ a_1 = (Dk^2 + \tau_d^{-1})(kc_1)^{-1},\ a_2 = 1 - \tilde{q}_D k^2 c_1^{-2},$$

$$a_3 = (Dk^2 + \tau_d^{-1})(c_1^2 - \tilde{g}_F k^2)k^{-1} - \tilde{q}_D K\Omega_m \rho^{-1} k.$$

Решая (17) с помощью формул Кардано и учитывая малость параметров a_1, a_2, a_3, приходим к следующим выражениям для частот колебаний (после перехода к размерным величинам)

$$\omega_1 = -i[(Dk^2 + \tau_d^{-1})(1 - \tilde{g}k^2 c_1^{-2}) - q_D K\Omega_m k^2/\rho c_1^2],$$

$$\omega_{2,3} = \pm c(k)k - i\Gamma(k).$$

Первое из этих решений характеризует диффузионную моду с перенормированным за счет дефектно-деформационного взаимодействия и флексоэлектрического эффекта коэффициентом диффузии, а остальные два – описывают дисперсию упругих волн, распространяющихся вдоль и против оси x.

Коэффициент затухания акустических волн (Γ) определяется формулой

$$\Gamma(k) = \left(Dk^2 + \tau_d^{-1}\right)\frac{\tilde{g}k^2}{c_1^2} + \tilde{q}_D \frac{K\Omega_m k^2}{\rho c_1^2}. \tag{18}$$

Заметим, что как затухание, так и дисперсия определяются дилатационным объемом, модулем упругости и флексоэлектрическими модулями, а также температурой и концентрацией дефектов.

Таким образом, предложена и развита самосогласованная модель кинетики накопления ТД в облучаемых центросимметричных кристаллах, с учетом упругого и флексоэлектрического взаимодействий. Получены дисперсионные соотношения для связанных линейных волн упругих смещений, концентрации ТД и диэлектрической поляризации.

ЛИТЕРАТУРА

[1] Быковский Ю. А., Неволин В. Н., Фоминский Ю. В. Ионная и лазерная имплантация металлических материалов. М., Энергоатомиздат, 1991.

[2] Мирзоев Ф. Х., Шелепин Л. А. ЖТФ, **71**, N 8, 23 (2001).

[3] Мирзоев Ф. Х., Панченко В. Я., Шелепин Л. А. УФН, **166**, N 1, 3 (1996).

[4] Машкевич В. С., Толпыго К. Б. ЖЭТФ, **32**, вып. 3, 520 (1957).

[5] Таганцев А. К. ЖЭТФ, **88**, вып. 6, 2108 (1985).

[6] Инденбом В. Л., Логинов Е. Б., Осипов М. А. Кристаллография, **26**, вып. 6, 1157 (1981).

[7] Емцев В. В., Машовец Т. В., Михнович В. В. ФТП, **26**, вып. 1, 22 (1992).

[8] Коган Ш. М. Физика твердого тела, **5**, 2829 (1963).

[9] Желудев И. С. Кристаллография, **14**, 514 (1969).

[10] Косевич А. М. Основы механики кристаллической решетки. М., Наука, 1972.

[11] Лурье А. И. Нелинейная теория упругости. М., Наука, 1980.

Поступила в редакцию 11 марта 2005 г.