

КІНЕТИКА МІГРАЦІЇ ПЕРВИННИХ РАДІАЦІЙНИХ ДЕФЕКТІВ ПРИ НЕОДНОРІДНОМУ ОПРОМІНЕННІ

І. Ю. Голіней¹, В. В. Степкова²

¹Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ

²Київський національний університет імені Тараса Шевченка, Київ

Теоретично досліджено процес міграції міжвузлових атомів і вакансій у матеріалі в умовах неоднорідного опромінення високоенергетичними частинками. Показано можливість виникнення в кристалах з невисокою концентрацією дислокацій у приповерхневій області та в області максимального дефектоутворення в кінці пробігу смуг із підвищеною концентрацією точкових дефектів одного типу. Оцінено область проникнення міжвузлових атомів за межі області опромінення. При концентрації вакансій 10^4 см^{-2} ширина цієї області порядку 0,02 см. Різниця потоків міжвузлових атомів і вакансій з ходом опромінення змінює знак, що може призводити до різних процесів утворення макроскопічних дефектів на початкових стадіях і в стаціонарному випадку.

Вступ

Розуміння процесів кінетики міграції радіаційних дефектів в опромінені матеріалах важливе для успішного розв'язання задач атомної енергетики та радіаційного матеріалознавства [1, 2]. При взаємодії потоку високоенергетичних частинок із тим чи іншим матеріалом виникає велика кількість дефектів, еволюція яких призводить до розпухання, виникнення пор, дислокацій і домішкових комплексів, що у свою чергу впливає на його фізичні властивості (пластичність, міцність, крихкість). Різноманітні неоднорідності матеріалу є концентраторами напружень. При експлуатації атомних установок, конструкційні матеріали яких перебувають під навантаженням, наявність радіаційних дефектів збільшує ймовірність виникнення та розвитку тріщин і, як наслідок, руйнування.

При розрахунку еволюції розподілу радіаційних дефектів здебільшого розглядається стаціонарне однорідне опромінення [2]. Однак при реальному опроміненні матеріалу зарядженими частинками їхній пробіг скінченний і може бути набагато меншим від товщини опромінюваного матеріалу, причому радіаційні дефекти створюються тільки у приповерхневих шарах. Створені первинні радіаційні дефекти: міжвузлові атоми та вакансії мають різну рухливість. Рухливіші з них можуть дифундувати за межі зони радіаційних пошкоджень. Таким чином, за межею зони радіаційних пошкоджень створюється область з підвищеною концентрацією рухливих дефектів, наприклад міжвузлових атомів, водночас повільніші дефекти накопичуються в приповерхневій опроміненій області. Такий нерівномірний розподіл дефектів може призвести до різних наслідків безпосередньо в опроміненій зоні та в глибині опроміненого матеріалу. Необхідно також відзначити, що релаксаційні процеси, наприклад

захоплення первинних дефектів на стоки, мають різний характерний час, і тоді, коли вже досягнута рівновага рухливіших первинних дефектів, розподіл повільніших дефектів може ще довгий час лишатися нестационарним. Тому відмінності процесів, що відбуваються при неоднорідному опроміненні, особливо важливі в перші моменти після початку опромінювання, причому тривалість цього періоду часу залежить від характеристик опромінюваного матеріалу, наприклад густини стоків у ньому.

Характерний час установлення стаціонарного розподілу густини первинних дефектів можна оцінити за формулою

$$\tau = \frac{1}{rD},$$

де r - густина стоків (дислокацій); D - коефіцієнт дифузії відповідних дефектів.

Припускаючи, що густина дислокацій може бути в межах від $r = 10^4 \text{ см}^{-2}$ для дуже чистих матеріалів до $r = 10^{10} \text{ см}^{-2}$ для металів, і вважаючи, що коефіцієнт дифузії може бути виражений активаційним законом з енергіями активацій в межах від 0 до 1 еВ при температурі від 300 до 600 К, характерний час установлення стаціонарного процесу може тривати від мікросекунд до років. При малій концентрації стоків стаціонарний розподіл первинних дефектів одного типу не встановлюється протягом годин і днів після початку опромінювання, у той час як для інших дефектів він встановлюється дуже швидко. Дана робота присвячена вивченню утворення областей підвищеної концентрації дефектів певного типу при скінченному, хоча й порівнянному з товщиною матеріалу, пробігу частинок, при якому утворюються опромінена та неопромінена область матеріалу, на перших стадіях опромінення до встановлення стаціонарного розподілу.

Постановка задачі

У роботі розглядається міграція міжвузлових атомів і вакансій у тонкій пластинці матеріалу в умовах, коли пробіг частинки менший за товщину пластинки, але не набагато перевищує її. Беремо пластинку товщиною L , в якій при опроміненні створюються первинні радіаційні дефекти з профілем (рис. 1). Характерна довжина пробігу протонів з енергією приблизно 10 МеВ становить залежно від матеріалу мішені від 0,1 до 0,5 мм. Вибраний модельний профіль правильно описує довжину пробігу й відтворює бреггівський пік максимальних пошкоджень у кінці пробігу.

Створені внаслідок опромінення первинні радіаційні дефекти можуть дифундувати й виходити на поверхню зразка, анігілювати, захоплюва-

тися дислокаціями, при цьому дислокації, як стоки, не змінюють свого стану при поглинанні дефекту, тобто є стоками, що не насичуються [4 - 7]. Будемо також уважати, що міжвузлові атоми можуть утворювати комплекси з домішками. Такі стоки насичуються, але можливий зворотний процес звільнення міжвузлового атома з комплексу та анігіляції вакансій з міжвузловим атомом у складі комплексу.

Кінетика зміни з часом концентрації міжвузлових атомів і вакансій з урахуванням указаних процесів описується рівняннями дифузії для кожного типу дефектів, тобто часовий і просторовий розподіли дефектів описуються системою рівнянь [2]

$$\begin{cases} \frac{\partial n_i}{\partial t} = -\text{div} \vec{j}_i - \gamma n_i n_v - \frac{n_i}{\tau_i} z_i - \gamma_1 n_i \rho_\alpha z_{i2} + \gamma_2 (\rho_{\alpha_0} - \rho_\alpha) z_{i2} + K(r) \\ \frac{\partial n_v}{\partial t} = -\text{div} \vec{j}_v - \gamma n_v n_i - \frac{n_v}{\tau_v} z_v - \gamma_3 (\rho_{\alpha_0} - \rho_\alpha) n_v z_{v2} + K(r), \end{cases} \quad (2)$$

де n_i – концентрація вільних міжвузлових атомів; n_v – концентрація вакансій; \vec{j} – густина потоку частинок; $j_{i,v} = -D_{i,v} \nabla n_{i,v}$ ($D_{i,v}$ – коефіцієнти дифузії міжвузлових атомів (вакансій)); $K(r)$ – кількість первинних дефектів, що створюються за одиницю часу в одиниці об'єму зовнішнім джерелом; γ – швидкість рекомбінації вільних дефектів; $\tau_{i(v)}$ – час життя частинок щодо захоплення на стоки, що не насичуються, z – фактори преференсу; ρ_α – густина стоків, що насичуються. Концентрація теплових дефектів вважається малою.

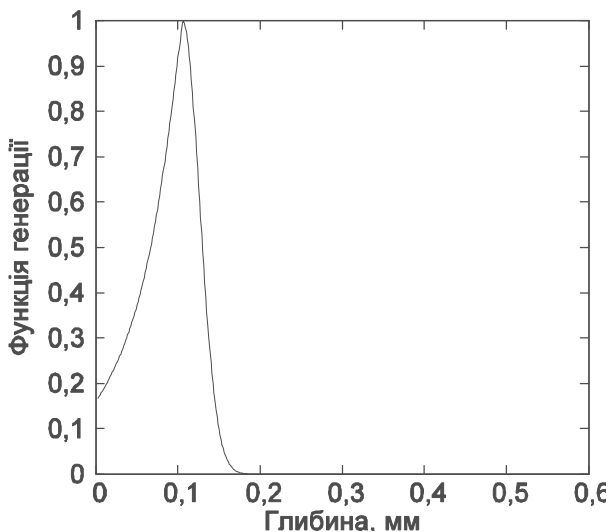


Рис. 1. Нормований на одиницю в максимумі профіль дефектоутворення, що використовувався для чисельного моделювання.

ρ_α описується диференціальним рівнянням

$$\frac{\partial \rho_\alpha}{\partial t} = -\gamma_1 n_i \rho_\alpha z_{i2} + \gamma_2 (\rho_{\alpha_0} - \rho_\alpha) + \gamma_3 n_v (\rho_{\alpha_0} - \rho_\alpha). \quad (3)$$

Коефіцієнти γ_1, γ_3 можна оцінити, вважаючи, що анігіляція або утворення комплексу обов'язково відбувається, якщо віддаль між дефектами та стоками стає меншою за певний радіус захоплення:

$$\gamma_1 = 4\pi D_i R_a, \quad \gamma_3 = 4\pi D_v R_c,$$

R_a – радіус захоплення міжвузля на стоки; R_c – радіус захоплення вакансій на комплекси. Коефіцієнт γ_2 можна оцінити з принципу детальної рівноваги, вважаючи, що енергія зв'язку на комплексі дорівнює ε_1 .

$$\gamma_2 = 4\pi D_i R_c \rho_{\alpha_0} e^{-\frac{\varepsilon_1}{kT}}.$$

Член $\gamma n_i n_v$ у рівняннях (2) описує рекомбінацію міжвузлових атомів із вакансіями, у ньому $\gamma = 4\pi (D_i + D_v) R$.

Вважаємо, що залежність коефіцієнтів дифузії від температури визначається активаційним законом

$$D_{i(v)} = D_0 e^{-\frac{E_{i(v)}}{kT}}, \quad (4)$$

де $E_{i(v)}$ – енергії активації дифузії відповідних дефектів; k – стала Больцмана; D_0 – передекспоненційний множник, залежністю якого від температури можна знехтувати; T – температура.

Члени $\frac{n_i}{\tau_i}, \frac{n_v}{\tau_v}$ описують процеси захоплення

міжвузлових атомів та вакансій стоками, що не насичуються. Імовірності захоплення дефекту стоками $(1/\tau_i, 1/\tau_v)$ пропорційні коефіцієнтам дифузії цих дефектів

$$\frac{1}{\tau_{i(v)}} = 2\pi D_0 e^{-\frac{E_{i(v)}}{kT}} r, \quad (5)$$

де r – густина стоків, що не насичуються.

Розрахунки та обговорення

Розрахунки проводились для температур від 300 до 600 К, характерні параметри брались для

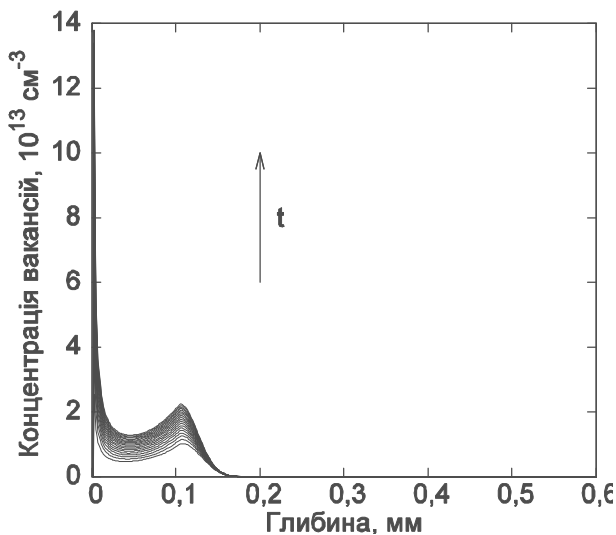


Рис. 2. Зміна профілю концентрації вакансій з часом у випадку відсутності стоків. Значення параметрів: $T = 600$ К, $E_v = 0,8$ еВ, $E_i = 0,12$ еВ, $D_0 = 4,5 \cdot 10^{-2}$ см²/с, $L = 0,6$ см. Зміна профілю відслідковувалася впродовж проміжку часу від 0 до 1800 с. Стрілка вгору вказує на те, що нижні криві відповідають меншим значенням часу.

Це рівняння має вигляд рівняння дифузії з джерелом, що визначається крутизою зміни потоку міжвузлових атомів. Там, де потік сталий, концентрація вакансій не росте. Вона росте тільки в тих областях, де потік міжвузлових атомів змінюється. Ці області знаходяться на глибині максимального пробігу частинок і біля поверхні зразка. Імовірність анігіляції вакансій менша в приповерхневій області, завдяки швидкій міграції міжвузлових атомів на поверхню. Таким чи-

міді [8]. Такі параметри, як товщина пластинки, густина стоків, варіювалися. Проводилися також розрахунки при інших значеннях енергій активації дифузії, характерних для твердотільних матеріалів.

На рис. 2 показано зміну профілю концентрації вакансій з часом.

Оскільки міжвузлові атоми мігрують набагато швидше від вакансій, при відсутності внутрішніх стоків за час розрахунку міжвузлові атоми встигають досягнути обох поверхонь зразка, у той час як вакансії встигають переміститись лише на невелику віддаль, а тому їхня концентрація в кожній точці зумовлена двома факторами: генерацією та анігіляцією з міжвузловими атомами. У квазістаціонарному випадку, коли розподіл міжвузлових атомів уже встановився, еволюція розподілу вакансій може бути описана наближеним рівнянням

$$\frac{\partial n_v}{\partial t} = D_v \frac{\partial^2 n_v}{\partial x^2} - D_i \frac{\partial^2 n_i}{\partial x^2}.$$

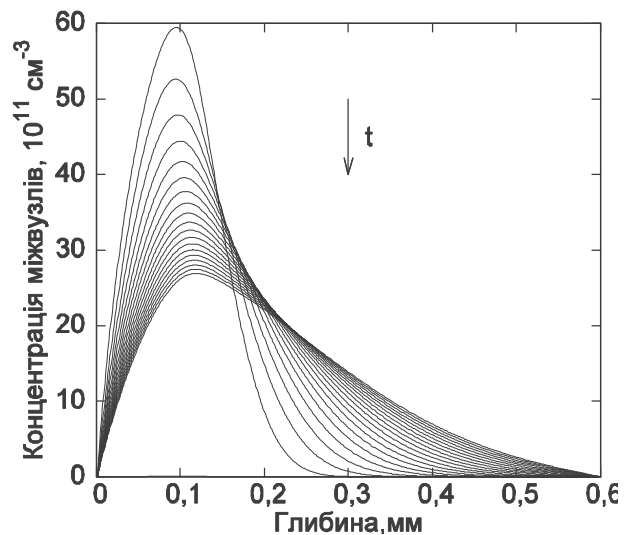


Рис. 3. Зміна профілю концентрації міжвузлових атомів з часом у випадку відсутності стоків. Параметри ті ж, що й для рис. 1. Стрілка вниз вказує на те, що верхні криві відповідають меншим значенням часу.

ном, як видно з рис. 2, у початковий момент часу концентрація вакансій має два піки. Така картина характерна тільки для початкових стадій опромінення. Згодом устанавлюється стаціонарний профіль розподілу концентрації вакансій, який відтворює профіль опромінення, однак час устанавлення стаціонарного розподілу великий і значно перевищує ті часи, для яких показано криві на рис. 2. З рис. 3 видно, що концентрація міжвузлових атомів не нульова за межами області

опромінення. Це означає, що навіть у зазпробіжній області міжвузлові атоми можуть, завдяки взаємодії між собою та іншими дефектами кристалічної ґратки, розгляд якої виходить за рамки даної роботи, утворювати дислокаційні петлі чи інші складні дефекти. Можливо, це є причиною утворення дефектів за областю опромінення, що спостерігались, наприклад, при опроміненні кремнію [3].

В області за довжиною пробігу іонізуючих частинок вакансій немає, тому якщо відсутня рекомбінація та будь-які стоки для міжвузлових атомів, їхній потік залишається сталим, що пояснює майже лінійну залежність концентрації міжвузлових атомів від глибини. Це характерно тільки для випадку відсутності дислокацій та домішок, що можуть утворювати комплекси з міжвузловими атомами.

На рис. 4 показано зміну профілю концентрації міжвузлових атомів за наявності дислокацій як стоків, що не насичуються, і домішок, які можуть утворювати комплекси з первинними раді-

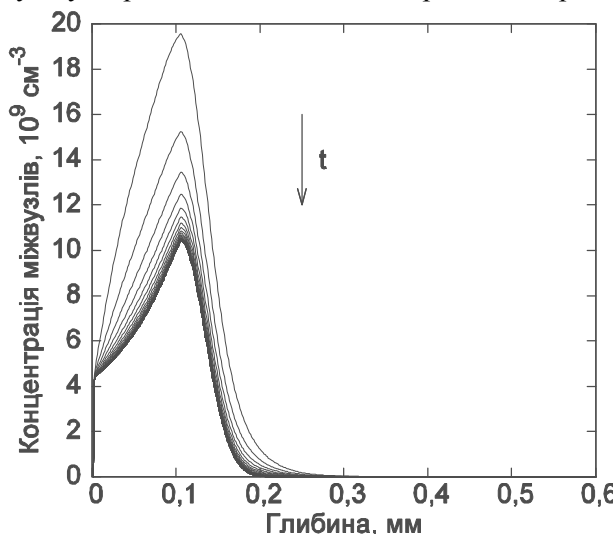


Рис. 4. Зміна профілю концентрації міжвузлових атомів з часом при врахуванні стоків. Значення параметрів: $T = 600$ К, $E_v = 0,8$ еВ, $E_i = 0,12$ еВ, $D_0 = 4,5 \cdot 10^{-2}$ см²/с, $L = 0,6$ см, $r = 10^4$ см⁻², $\rho_{\alpha_0} = 10^{15}$ см⁻³. Розрахунок проводився впродовж проміжку часу від 0 до 9900 с. Стрілка вниз вказує на те, що верхні криві відповідають меншим значенням часу.

Цікавою особливістю в розподілі дефектів у початковий момент опромінення при виході на стаціонар є зміна знака різниці потоків міжвузлових атомів і вакансій.

$$W = n_i D_i - n_v D_v . \quad (6)$$

При стаціонарному опроміненні ця величина від'ємна завдяки преференсу захоплення між-

вузлових атомів на стоки. Оскільки міжвузлові атоми захоплюються на стоки швидше, ніж вакансії, то створюються умови утворення вакансійних пор, адже потік міжвузлових атомів у будь-якій точці опромінюваного матеріалу менший, ніж потік вакансій. У початковий момент опромінення різниця потоків додатна, оскільки міжвузлові атоми та вакансії створюються в однаковій кількості, а коефіцієнт дифузії міжвузлових

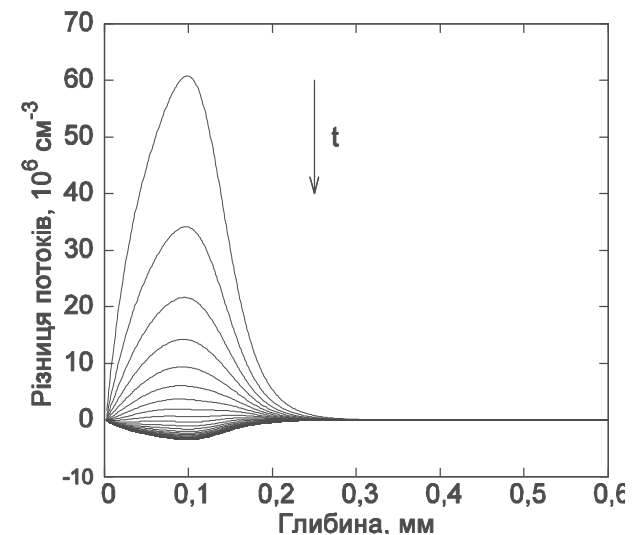


Рис. 5. Різниця потоків міжвузлових атомів і вакансій. Параметри ті ж, що й на рис. 3. Стрілка вниз вказує на те, що верхні криві відповідають меншим значенням часу.

вузлових атомів на стоки. Оскільки міжвузлові атоми захоплюються на стоки швидше, ніж вакансії, то створюються умови утворення вакансійних пор, адже потік міжвузлових атомів у будь-якій точці опромінюваного матеріалу менший, ніж потік вакансій. У початковий момент опромінення різниця потоків додатна, оскільки міжвузлові атоми та вакансії створюються в однаковій кількості, а коефіцієнт дифузії міжвузлових

атомів набагато більший. Це ілюструє рис. 5, на якому показано, як міняються потоки з часом. При параметрах, указаних у підпису до рис. 5, зміна знака потоку відбувається приблизно через 3700 с. Таким чином, на початкових стадіях опромінення (у першу годину опромінення в наведеному випадку) повільні процеси утворення таких дефектів, як дислокаційні петлі, вакансійні пори тощо, проходять в умовах, що докорінно відрізняються від стаціонарного випадку.

Висновки

У роботі проведено розрахунки кінетики міграції первинних радіаційних дефектів в умовах, коли опромінення не однорідне, а обмежене гли-

биною проникнення високоенергетичних частинок. Показано, що швидкі первинні дефекти (міжвузлові атоми) можуть проникати за межі області опромінення в кристалах з малою концентрацією дислокацій (менше ніж 10^4 см^{-2}). Показано також, що на початкових стадіях опромінення різниця потоків міжвузлових атомів і вакансій має протилежний знак порівняно зі стаціонарним випадком. Кінетика утворення великих мікроскопічних дефектів за межами області опромінення, а також у перші моменти опромінення вимагає подальшого вивчення.

Автори вдячні В. Й. Сугакову за плідне обговорення результатів.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Зеленский В.Ф., Неклюдов И.М., Черняева Т.П.* Радиационные дефекты и распухание металлов. - К.: Наук. думка, 1988. - 256 с.
2. *Воеводин В.Н., Неклюдов И.М.* Эволюция структурно-фазового состояния и радиационная стойкость конструкционных материалов. - К.: Наук. думка, 2006. - 375 с.
3. *Гроза А.А., Литовченко П.Г., Старчик М.И.* Эффекты радиации в инфракрасном поглощении та структурі кремнію. - К.: Наук. думка, 2006. - 123 с.
4. *Кирсанов В.В., Суворов А.И., Трушин Ю.В.* Процессы радиационного дефектообразования в металлах. - М.: Энергоатомиздат, 1985.
5. *Томпсон М.* Дефекты и радиационные повреждения в металлах. - М.: Мир, 1971.
6. *Лейман Кристиан.* Взаимодействие излучения с твердым телом и образование элементарных дефектов. - М.: Атомиздат, 1979.
7. *Сугаков В.Й.* Основы синергетики. - К.: Обереги, 2001. - 287 с.
8. *Corbett J.W., Smith R.B., Walker R.M.* Recovery of Electron - Irradiated Copper. Interstitial Migration // Phys. Rev. - 1959. - Vol. 114. - P. 1460 - 1479.

КИНЕТИКА МИГРАЦИИ ПЕРВИЧНЫХ РАДИАЦИОННЫХ ДЕФЕКТОВ ПРИ НЕОДНОРОДНОМ ОБЛУЧЕНИИ

И. Ю. Голиней, В. В. Степкова

Теоретически исследован процесс миграции межузельных атомов и вакансий в материале в условиях неоднородного облучения высокоэнергетическими частицами. Показана возможность возникновения областей с повышенной концентрацией точечных дефектов одного типа в кристаллах с невысокой концентрацией дислокаций в области около поверхности и области брегговского пика. Оценена область проникновения межузельных атомов за границу области облучения. При концентрации вакансий 10^4 см^{-2} ширина этой области порядка 0,02 см. Разница потоков межузельных атомов и вакансий в процессе облучения меняет знак, что может привести к разным условиям для образования макроскопических дефектов на начальных стадиях и в стационарном случае.

MIGRATION KINETIC OF PRIMARY RADIATION DEFECTS AT NONUNIFORM IRRADIATION

I. Yu. Goliney, V. V. Stepkova

The migration of interstitial atoms and vacancies under nonuniform irradiation is theoretically studied. The possibility of the formation of regions with increased concentration of point defects of certain kind in crystals with low concentration of dislocations at the surface and at Bragg peak is demonstrated. The region of the penetration of interstitials beyond the irradiated area is estimated. It might be of order of 0.02 sm at the dislocation density 10^4 cm^{-2} . The difference of the flows of interstitials and vacancies changes its sign in process of irradiation which can lead to different processes of macroscopic defect formation at the imitial stages of irradiation and in the stationary state.

Надійшла до редакції 19.02.09,
після доопрацювання – 25.03.09.