

© 2011 М. В. Кобець¹, П. А. Селищев¹, В. И. Слисенко²¹ Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко, Киев² Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев**КИНЕТИКА ОБРАЗОВАНИЯ И НАКОПЛЕНИЯ КЛАСТЕРОВ В КРИСТАЛЛАХ ПРИ КАСКАДООБРАЗУЮЩЕМ ОБЛУЧЕНИИ**

Теоретически исследовано образование кластеров точечных дефектов при каскадообразующем облучении. Получено стационарное распределение кластеров по размерам, его зависимость от параметров задачи. Предложена упрощенная система кинетических уравнений для описания образования кластеров в квазистационарном приближении. Получены зависимости концентраций точечных дефектов и их кластеров от времени для исходной и упрощенной систем, проведен их сравнительный анализ.

Ключевые слова: облучение, вакансии, междоузельные атомы, кластеры, распределение по размерам.

Введение

Физические свойства материала, в котором образуются кластеры, испытывают существенные изменения [1 - 4]. Эти изменения зависят от концентрации кластеров, их типа (вакансионные, междоузельные, примесные кластеры), от их распределения по размерам [1]. Облучение существенно влияет как на образование кластеров, так и на их дальнейшую эволюцию, определяет распределение кластеров по размерам. В связи с этим большой интерес для нахождения оптимальных условий эксплуатации конструкционных материалов под облучением представляет исследование радиационно-индуцированного накопления кластеров.

Особенно сильно на образование и эволюцию кластеров влияет каскадообразующее облучение, поскольку в каскадах, помимо междоузельных атомов и вакансий, образуются малые вакансионные и междоузельные кластеры [5]. В областях повышенной концентрации точечных дефектов, кроме образования кластеров в каскадах, возможно их термическое зарождение. Оно зависит от температуры и критического размера зародыша, в то время как образование кластеров в каскаде связано только с характеристиками облучения. Поэтому всегда существует область параметров, например область низких температур, когда доминирует образование каскадных радиационно-индуцированных кластеров, что и рассмотрено в данной работе.

Наиболее последовательно и детально формирование кластеров при каскадном облучении исследовано численно методом молекулярной динамики [6 - 9]. Результаты проведенных вычислений показывают, что при прохождении каскадов могут образовываться малые кластеры точечных дефектов: вакансионные и междоузельные петли, их размеры ограничены сверху, их распределение по размерам, обычно, имеет

четко выраженный максимум. Наиболее вероятный и максимальный размеры кластеров зависят от энергии первично выбитого атома и в меньшей мере от структуры материала. Время прохождения каскада и образования в нем кластеров (порядка 10^{-12} с) намного меньше характерного времени их дальнейшей эволюции, которое составляет десятки - сотни секунд и более в зависимости от температуры облучения.

Экспериментально радиационно-индуцированные междоузельные кластеры в виде дислокационных петель обнаружены при воздействии нейтронного облучения [10], исследован их рост со временем, определено распределение петель в зависимости от размера. В [5] определено среднее значение диаметра радиационно-индуцированных междоузельных кластеров, образующихся в каскадах смещения в облученной нейтронами платине, которое составляет 3,2 нм. Междоузельные дислокационные петли наблюдались в алюминии, после облучения ионами ксенона в [11] установлено, что размеры петель с ростом флюенса увеличиваются, а с повышением температуры облучения - уменьшаются. Формирование междоузельных кластеров золота при воздействии электронного облучения наблюдалось в работе [12].

Результаты экспериментальных исследований показывают, что сформировавшееся в процессе облучения кластеры не превышают определенный максимальный размер, их распределение по размерам существенно зависит от температуры и часто имеет ярко выраженный максимум.

Кинетика зарождения и роста кластеров, в том числе скопления точечных дефектов в кристаллах, активно изучалась с использованием различных подходов [13 - 17]. В [13 - 15] рассматривался зарождение и рост преципитатов как следствие концентрационного распада, возможно после радиационного воздействия. Используя подход виртуальных сред из условия

термодинамического равновесия кластера с окружающей средой (сильно охлажденный расплав), в [13] получено соотношение для критического размера кластера (образования меньшего размера растворяются, большего - продолжают расти). Определено выражение для характерного времени установления квазистационарного распределения докритических частиц по размерам и квазистационарной скорости зарождения таких частиц. Однако данный подход справедлив лишь для больших размеров преципитатов, когда его можно рассматривать как каплю. В [14], используя модель диссоциативной диффузии, описано образование преципитатов точечных дефектов в процессе охлаждения материала. Начальная, превышающая равновесную, концентрация дефектов предполагалась заданной. Аннигиляцией точечных дефектов пренебрегалось. Определены критический размер преципитатов, функция их распределения по размерам. Показано, что при увеличении концентрации точечных дефектов критический размер преципитатов уменьшается, но при этом происходит более интенсивное их зарождение. В [15] рассмотрен рост преципитатов на фиксированном числе центров зарождения при диффузионном механизме роста. Определено выражение для среднего размера преципитатов и исследовано их изменение со временем. Определены критические размеры преципитатов из условия концентрационного равновесия с точечными дефектами. Подходы, описанные в [13 - 15], применимы при рассмотрении образования кластеров бездислокационных кристаллов, в которых существует сильное перенасыщение точечными дефектами, а также их расплавов. Такая система является неустойчивой и происходит выделение другой фазы в виде различных скоплений мономеров. В работе [16] численно исследовано образование и рост дислокационных петель ограниченного размера (2 - 4 междоузельных атома) под воздействием каскадообразующего облучения. Исследовано изменение концентрации петель в зависимости от дозы облучения. Подход, описанный в [16], применим лишь на стадии зарождения кластеров, когда дислокационные петли малых размеров не имеют возможности переходить в область больших размеров, или при условии малой времени жизни таких петель (при высоких температурах). В работе [17], используя соотношение Фоккера - Планка, предложена модель роста преципитатов различной формы на примесных атомах. Преципитация рассмотрена как при воздействии облучения, так и при его отсутствии. Рост и концентрация преципитатов ограничена концентрацией примесных атомов, модель исключает гомоген-

ное образование кластеров.

В настоящей работе рассматривается кинетика гомогенного роста и накопления радиационно-индуцированных кластеров междоузельных атомов, образованных при каскадном повреждении. Размеры растущих кластеров не ограничены рамками модели (но могут быть ограничены физикой происходящих процессов). Последовательное описание образования и накопления кластеров приводит к системе зацепляющихся уравнений для изменения концентраций кластеров различного размера во времени. В работе показано, что при определенных условиях она может быть сведена к упрощенному виду: к двум уравнениям для кластеров максимального и минимального размеров. Определены условия применимости такого приближения, с помощью численных методов получены решения полной и упрощенной систем уравнений, проведен их сравнительный анализ. Найдено стационарное распределение кластеров по размерам.

Физическая модель и основные уравнения

Образующиеся в каскадах кластеры, присоединяя точечные дефекты, могут увеличиваться в размерах или, наоборот, растворяться. Исходя из результатов компьютерного моделирования [7], будем считать, что под облучением создаются точечные дефекты и кластеры, состоящие из j междоузельных атомов (j -кластер). Кластеры, состоящие из меньшего числа междоузельных атомов, предполагались неустойчивыми, распад j -кластера приводит к появлению j междоузельных атомов. Будем предполагать, что кластер растет путем последовательных присоединений одного междоузельного атома: например, $k + 1$ -й образуется при присоединении междоузельного атома к k -му (в уравнениях это описывается слагаемым $\alpha_{k-1}n_{k-1}n_i$). Если кластер испускает междоузельный атом ($-n_k/\tau_k$) или с ним рекомбинирует вакансия ($-\gamma_k n_k n_v$), то размер кластера уменьшается. Форма кластера не уточняется.

В приведенной модели кинетика изменения концентраций кластеров описывается следующей системой уравнений:

$$\begin{aligned} \frac{dn_j}{dt} &= K' - \alpha_j n_j n_i - \frac{n_j}{\tau_j} + \frac{n_{j+1}}{\tau_{j+1}} + \\ &+ \gamma_{j+1} n_{j+1} n_v - \gamma_j n_j n_v, \\ \frac{dn_{j+1}}{dt} &= \alpha_j n_j n_i - \alpha_{j+1} n_{j+1} n_i - \frac{n_{j+1}}{\tau_{j+1}} + \frac{n_{j-1}}{\tau_{j-1}} + \\ &+ \gamma_{j+2} n_{j+2} n_v - \gamma_{j+1} n_{j+1} n_v, \end{aligned} \quad (1)$$

$$\frac{dn_k}{dt} = \alpha_{k-1}n_{k-1}n_i - \alpha_k n_k n_i - \frac{n_k}{\tau_k} + \frac{n_{k+1}}{\tau_{k+1}} - \gamma_k n_k n_v + \gamma_{k+1} n_{k+1} n_v.$$

Здесь n_k - концентрация k -кластеров; α_k - коэффициент, который характеризует скорость образования $k + 1$ -кластеров; γ_k - коэффициент, характеризующий скорость аннигиляции k -кластеров с вакансией; τ_k - время жизни k -кластера; K' - скорость образования кластеров минимального размера (j -кластеров); n_v и n_i -

$$\frac{dn_i}{dt} = K - \frac{n_i}{\tau_i} - \gamma n_i n_v - \sum_{k=j+1} (\alpha_{k-1} n_{k-1} n_i - \frac{n_k}{\tau_k}) + j \frac{n_j}{\tau_j} + (j-1) \gamma_j n_j n_v,$$

$$\frac{dn_v}{dt} = K_v - \frac{n_v}{\tau_v} - \gamma n_i n_v - \sum_{k=j} \gamma_k n_k n_v,$$

$$K_v = K + jK'.$$

Здесь K_v - скорость генерации вакансий, предполагалось, что под облучением создаются одинаковые количества междоузельных атомов (свободных и связанных в j -кластерах) и вакансий; $\tau_i = (z_d \rho_d D_i)^{-1}$, $\tau_v = (\rho_d D_v)^{-1}$ - времена жизни междоузельных атомов и вакансий по отношению к уходу на стоки; ρ_d - плотность этих стоков; z_d - фактор предпочтительного поглощения ими междоузельных атомов; $D_i = D^0 \exp(-E_m^i/T)$ и $D_v = D^0 \exp(-E_m^v/T)$ - коэффициенты диффузии междоузельных атомов и вакансий; E_m^i и E_m^v - соответствующие энергии миграции; T - температура образца в энергетических единицах.

Третье слагаемое в первом уравнении системы (2) описывает рекомбинацию свободных дефектов, четвертое - захват междоузельного атома кластером и образование более крупного кластера, увеличение числа междоузельных атомов в результате распада кластеров, последнее два - увеличение междоузельных атомов при распаде j -кластера и аннигиляции того же кластера с вакансией. Слагаемые во втором уравнении системы (2) имеют аналогичный смысл, за исключением последнего, которое описывает уменьшение вакансий вследствие их рекомбинации с атомами кластера.

Система уравнений (1) - (2) является замкнутой по отношению к концентрациям кластеров и точечных дефектов. До облучения они равны термодинамическим равновесным значениям, которые в случае низких температур близки к нулю.

Образование и накопление кластеров зависит от кинетических коэффициентов, определение которых представляет сложную и до конца нерешенную задачу. Не претендуя на ее исчерпы-

концентрации вакансий и междоузельных атомов соответственно.

Вакансии и междоузельные атомы генерируются облучением со скоростью K , мигрируют, рекомбинируют между собой, захватываются стоками (дислокациями, границами зерен), междоузельные атомы образуют малоподвижные кластеры, а вакансии на этих кластерах аннигилируют. Уравнения, описывающие изменение концентраций точечных дефектов, имеют следующий вид:

вающее решение, оценим для кластеров в твердом теле (междоузельных дислокационных петель) зависимость кинетических коэффициентов от их размера.

Время жизни кластера и коэффициент его скорости роста связаны принципом детального равновесия

$$\alpha_k = \left(\frac{k}{N(k+1)} e^{\frac{E_f^i - \xi_{k+1}}{KT}} \right) / \tau_{k+1}, \quad (3)$$

где E_f^i - энергия образования междоузельного атома; N - количество узлов в единице объема; $\xi_{k+1} = E_f^{k+1} - E_f^k$ - энергия связи атома в $k + 1$ -кластере; E_f^k - энергия образования k -кластера.

Исходя из того, что распад кластера имеет активационный характер и связан с отрывом одиночного междоузельного атома и его уходом на расстояние порядка радиуса дислокационного ядра (r_0), для времени жизни кластеров имеем

$$\tau_k = \frac{r_0^2}{D_i} \sqrt{\frac{2bk}{\pi a}} e^{\frac{\mu b^2 \sqrt{\frac{\pi a^3}{2b}} (\sqrt{k} - \sqrt{k-1})}{KT}}, \quad (4)$$

где a - межатомное расстояние; b - вектор Бюргера; μ - коэффициент упругой деформации. При выводе формулы (4) предполагалось, что вероятность распада кластера пропорциональна доле атомов на границе дислокационной петли (линии дислокации) и энергия образования дислокационной петли большей частью является ее упругой энергией [18]. Тогда коэффициент скорости роста кластера примет вид

$$\alpha_k = \frac{k D_i}{N(k+1)^{3/2} r_0^2} \sqrt{\frac{\pi a}{2b}} e^{\frac{-2\mu b^2 \sqrt{\frac{\pi a^3}{2b}} (\sqrt{k} - \sqrt{k-1}) - E_f^i}{KT}}. \quad (5)$$

Считая, что коэффициент рекомбинации определяется диффузией и реакцией присоединения вакансий, имеем [17]

$$\gamma_k = \frac{D_v \sqrt{2\pi k b a^3}}{b + 2ae \frac{E_a^v}{kT}}, \quad (6)$$

где энергия активации присоединения вакансии имеет вид

$$E_a^v = - \frac{\Delta V_v}{\Delta V_i} \ln \left(\frac{b(D_i + D_k) N(k+1)^{3/2} \tau_0^2}{D_i C' \sqrt{k}} e^{\frac{2\mu b^2 \sqrt{\frac{\pi a}{2b}(\sqrt{k+1} - \sqrt{k})}}{kT}} - \frac{b}{2a} \right).$$

Анализ изменения параметров как функции размеров (время жизни растет с увеличением размера кластера, коэффициент скорости роста уменьшается с увеличением размера кластера, коэффициент аннигиляции растет по мере увеличения размера кластера) показывает, что начиная с какого-то m , скорость роста кластера становится отрицательна (кластеры распадаются). Кластер, для которого скорость роста равна нулю, определяются соотношением

$$\alpha_k n_k n_i \leq \frac{n_{k+1}}{\tau_{k+1}} + \gamma_{k+1} n_{k+1} n_v. \quad (7)$$

Но так как время жизни кластера возрастает с его ростом, соответственно первое слагаемое правой части соотношения (7) будет намного меньше второго, тогда соотношение (7) примет вид

$$\alpha_k n_k n_i \leq \gamma_{k+1} n_{k+1} n_v \rightarrow \frac{\alpha_k}{\gamma_{k+1}} = \frac{n_{k+1} n_v}{n_k n_i} = \text{const.}$$

Принимая во внимание, что отношение $\frac{\alpha_k}{\gamma_{k+1}}$ всегда по-

стоянное, оно должно быть таким же, когда система находится в равновесном состоянии, тогда

получим выражение $\frac{\alpha_k}{\gamma_{k+1}} = \frac{n_{k+1}^e n_v^e}{n_k^e n_i^e}$, после решения

которого получим величину $k_{max} = m$.

Как показывает анализ формулы (5), функция α имеет резкий максимум при малых ($k = k^*$), порядка нескольких атомов. Согласно [7], в каскаде могут образовываться малые кластеры с размерами порядка k^* и больше, поэтому кластеры, имеющие размер порядка k^* будут быстро возрастать до размера j , для которого α меняется слабо, а меньшие k^* будут распадаться. Следовательно, если α_k большое, можно считать, что в каскаде образуются только междоузельные атомы и кластеры размера j , что и будет использовано в дальнейшем.

Стационарные концентрации дефектов и их кластеров

В условиях стационарного облучения значения концентраций точечных дефектов и их малых кластеров могут быть стационарными. Ста-

ционарные значения концентраций удовлетворяют уравнения (1) и (2) при равных нулю производных по времени. Для нахождения стационарного решения положим все производные (1) и (2) равными нулю и из последнего уравнения системы (1) выразим n_m как функцию n_{m-1} , n_{m-1} через n_{m-2} и т. д. Таким образом, с учетом предыдущих уравнений, выразим все последующие значения концентраций кластеров до n_j и получим $n_j = \frac{K'}{\tau_j + \gamma_j n_v}$. Затем, выразим все n_k че-

рез концентрацию j -кластеров. Для этого подставим по очереди $n_j \rightarrow n_{j+1}$, $n_{j+1} \rightarrow n_{j+2}$, $n_{j+2} \rightarrow n_{j+3}$ и так до n_m . Таким образом, получим соответствующие значения концентраций k -кластеров ($j \leq k \leq m$) в зависимости от концентраций вакансий n_v (поскольку стационарное значение n_j не зависит от концентраций кластеров, а стационарные значения точечных дефектов связаны соотношением $\frac{n_i}{\tau_i} = \frac{n_v}{\tau_v}$):

$$n_k = K' \left(n_v \frac{\tau_i}{\tau_v} \right)^{k-j} \frac{\prod_{l=j+1}^k \alpha_{l-1}}{\prod_{s=j}^k \left(\frac{\tau_s}{\tau_s} + \gamma_s n_v \right)}. \quad (8)$$

В случае, когда можно пренебречь рекомбинацией кластеров с вакансиями, могут быть записаны аналитические выражения для стационарных концентраций (для простоты пренебрежем также рекомбинацией свободных дефектов, но ее учет не представляет трудностей):

$$n_v = (K + jK') \tau_v, \quad n_i = (K + jK') \tau_i, \\ n_k = K' (K + jK')^{k-j} \tau_j \tau_i^{k-j} \prod_{l=j+1}^k \tau_l \alpha_{l-1}.$$

Когда же основным процессом уменьшения размеров кластеров выступает рекомбинация с вакансиями ($\frac{1}{\tau_k} \ll \gamma_k n_v$), уравнение для вакансий примет вид $\gamma \frac{\tau_i}{\tau_v} n_v^2 + \frac{n_v}{\tau_v} - (K - B + jK') = 0$, где $B = \sum_{k=j}^m \gamma_k n_k n_v$ и, как следует из формулы (12), не является функцией концентрации дефектов и их кластеров. Как показывают численные оценки при малых температурах, вторым слагаемым в полученном выражении можно пренебречь, то-

гда $n_v \approx \sqrt{\frac{\tau_v}{\gamma \tau_i} (K - B + jK')}$ и выражение для

стационарной концентрации кластеров принимает вид

$$n_k = \frac{K' \left(\frac{\tau_i}{\tau_v}\right)^{k-j}}{\gamma_j \sqrt{\frac{\tau_v}{\gamma \tau_i} (K-B+jK')}} \prod_{l=j+1}^k \frac{\alpha_{l-1}}{\gamma_l}.$$

Уравнения для концентраций кластеров в квазистационарном приближении

В некоторых случаях, определяющую роль играют кластеры максимального размера, а знание распределения кластеров по размерам, которое дает система уравнений (1) – (2), является избыточным. В связи с этим представляет интерес получения упрощенной системы уравнения меньшей размерности.

Замкнутую систему четырех уравнений для точечных дефектов и кластеров минимального и максимального размеров можно получить, когда изменения концентраций всех промежуточных кластеров являются более быстрыми процессами (квазистационарное приближение). В этом случае во всех уравнениях системы (1), кроме первого и последнего, производные по времени можно положить равными нулю. В результате получим систему $m - j - 1$ алгебраических уравнений и двух дифференциальных.

$$\begin{aligned} \frac{dn_j}{dt} &= K' - \alpha_j n_j n_i - \frac{n_j}{\tau_j} + \frac{n_{j+1}}{\tau_{j+1}} + \\ &+ \gamma_{j+1} n_{j+1} n_v - \gamma_j n_j n_v, \\ 0 &= \alpha_j n_j n_i - \alpha_{j+1} n_{j+1} n_i - \frac{n_{j+1}}{\tau_{j+1}} + \frac{n_{j+2}}{\tau_{j+2}} + \\ &+ \gamma_{j+2} n_{j+2} n_v - \gamma_{j+1} n_{j+1} n_v, \\ \dots \\ 0 &= \alpha_{m-2} n_{m-2} n_i - \alpha_{m-1} n_{m-1} n_i - \frac{n_{m-1}}{\tau_{m-1}} + \frac{n_m}{\tau_m} + \\ &+ \gamma_{m-1} n_{m-1} n_v - \gamma_m n_m n_v, \\ \frac{dn_m}{dt} &= \alpha_{m-1} n_{m-1} n_i - \frac{n_m}{\tau_m} - \gamma_m n_m n_v. \end{aligned} \quad (9)$$

Из алгебраических уравнений выразив $n_{j+1}, n_{j+2}, \dots, n_{m-1}$ через n_i, n_v, n_j и n_m и подставив их в оставшиеся дифференциальные уравнения, получим замкнутую систему четырех уравнений.

Из второго уравнения системы (9) запишем $n_{j+1} = n_{j+1}(n_j, n_{j+2})$. Подставив полученное выражение в третье уравнение, запишем $n_{j+2} = n_{j+2}(n_j, n_{j+3})$. Аналогичным образом получим все последующие концентрации кластеров до n_{m-1} .

$$n_{m-1} = \left\{ n_j \frac{\prod_{l=j}^{m-2} p_l}{\prod_{s=j}^{m-3} \Delta_s} + n_m q_m \right\} / \Delta_{m-2}, \quad (10)$$

$$\text{где } p_k = \frac{\alpha_k n_i}{\alpha_{k+1} n_i + \frac{1}{\tau_{k+1}} + \gamma_{k+1} n_v}, \quad q_k = \frac{\frac{1}{\tau_k} + \gamma_k n_v}{\alpha_{k-1} n_i + \frac{1}{\tau_{k-1}} + \gamma_k n_v},$$

$$\Delta_k = 1 - \frac{\beta_k}{\Delta_{k-1}}, \quad \Delta_j \equiv 1, \quad k > j, \quad \beta_k = p_k q_{k+1}.$$

Таким образом, при учете того, что в квазистационарном приближении концентрации кластеров минимального и максимального размеров связаны соотношением

$$\frac{dn_j}{dt} + \frac{dn_m}{dt} = K' - n_j \left(\frac{1}{\tau_j} + \gamma_j n_v \right), \quad (11)$$

имеем

$$\begin{aligned} \frac{dn_j}{dt} &= K' - n_m \left\{ \alpha_{m-1} n_i \frac{q_m}{\Delta_{m-2}} - \frac{1}{\tau_m} - \gamma_m n_v \right\} - \\ &- n_j \left\{ \alpha_{m-1} n_i \prod_{l=j}^{m-2} \frac{p_l}{\Delta_l} + \frac{1}{\tau_j} + \gamma_j n_v \right\}, \\ \frac{dn_m}{dt} &= n_m \left\{ \alpha_{m-1} n_i \frac{q_m}{\Delta_{m-2}} - \frac{1}{\tau_m} - \gamma_m n_v \right\} + \\ &+ n_j \left\{ \alpha_{m-1} n_i \prod_{l=j}^{m-2} \frac{p_l}{\Delta_l} \right\}. \end{aligned} \quad (12)$$

В случае, когда рекомбинацией можно пренебречь, система уравнений (12) упрощается и принимает вид

$$\begin{aligned} \frac{dn_j}{dt} &= K' - \frac{n_j}{\tau_j} - \frac{n_j n_i^{m-j} \prod_{s=j}^{m-1} \alpha_s \tau_{s+1}^{-n_m}}{\tau_m \left\{ \sum_{k=j+1}^{m-1} (n_i^{m-k} \prod_{l=k}^{m-1} \alpha_l \tau_l) + 1 \right\}}, \\ \frac{dn_m}{dt} &= \frac{n_j n_i^{m-j} \prod_{s=j}^{m-1} \alpha_s \tau_{s+1}^{-n_m}}{\tau_m \left\{ \sum_{k=j+1}^{m-1} (n_i^{m-k} \prod_{l=k}^{m-1} \alpha_l \tau_l) + 1 \right\}}. \end{aligned} \quad (13)$$

Для того чтобы замкнуть систему, воспользуемся уравнением для междоузельных атомов (2), которое в квазистационарном приближении принимает вид

$$\begin{aligned} K - \frac{n_i}{\tau_i} + j \frac{n_j}{\tau_j} - \\ - (m-j) \left\{ \frac{n_j n_i^{m-j} \prod_{s=j}^{m-1} \alpha_s \tau_{s+1}^{-n_m}}{\tau_m \left\{ \sum_{k=j+1}^{m-1} (n_i^{m-k} \prod_{l=k}^{m-1} \alpha_l \tau_l) + 1 \right\}} \right\} = 0. \end{aligned}$$

Численные расчеты и их обсуждение

Используя уравнение (8) для концентраций кластеров в стационарном состоянии, исследовано влияние изменения параметров системы на распределение концентрации кластеров по размерам. При больших начальных размерах кластеров соотношения для кинетических коэффициентов упрощаются

$$\tau_k = A\sqrt{k}, \alpha_k = C \frac{\sqrt{k}}{k+1}, \gamma_k = L \frac{k\sqrt{k}}{k+1},$$

где $A \approx 7 \cdot 10^2$, $C \approx 2 \cdot 10^{10}$, $L \approx 7 \cdot 10^4$.

При изменении в широких пределах значений всех α_k видно, что существует узкая область зна-

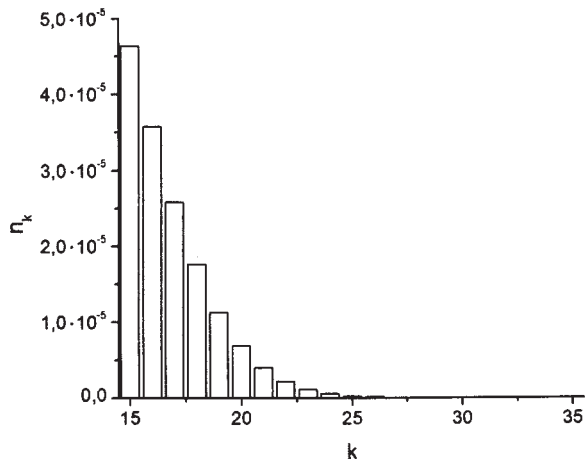


Рис. 1. Распределение концентрации кластеров по размерам при доминировании процессов распада.

Исследовано изменение распределения концентрации кластеров по размерам при варьировании параметров для кластеров определенных размеров. Отклонение какого-либо одного из этих параметров ($\alpha_{k'}$) приводит к изменению распределения кластеров по размерам (по k) вблизи k' , порождая ступеньку концентрации (рис. 3 и 4). Вид ступеньки зависит от началь-

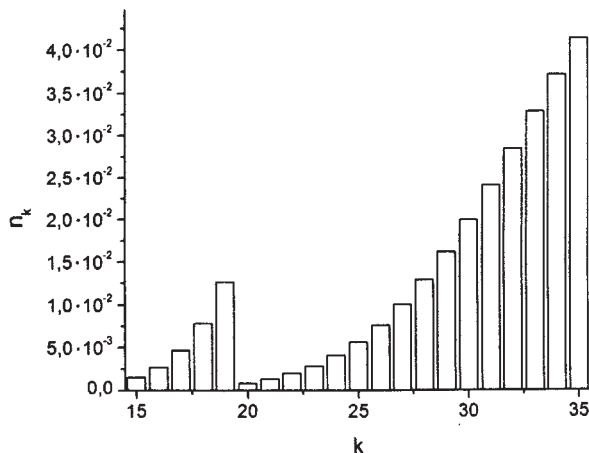


Рис. 3. Распределение концентрации кластеров по размерам при уменьшенном α_{20} в 10 раз по отношению к начальному распределению.

Варьирование γ_k приводит к аналогичным изменениям распределения концентрации кластеров по размерам.

чений, когда распределение, при котором доминировали концентрации кластеров малых размеров (рис. 1), сменялось распределением, при котором доминируют кластеры максимального размера (рис. 2) и наоборот. Это обусловлено конкурированием процессов образования и распада кластеров.

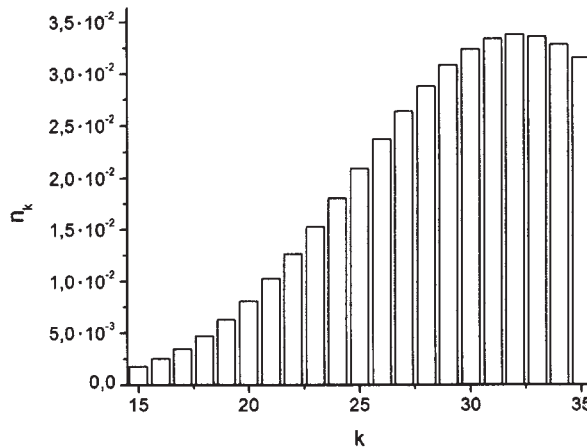


Рис. 2. Распределение концентрации кластеров по размерам при доминировании процессов образования кластеров.

го распределения, а также от величины изменения параметра. Изменение нескольких параметров приводит к образованию нескольких концентрационных ступенек и может приводить к тому, что максимум функции распределения может сместиться от минимального размера кластера к максимальному и наоборот (рис. 5 и 6).

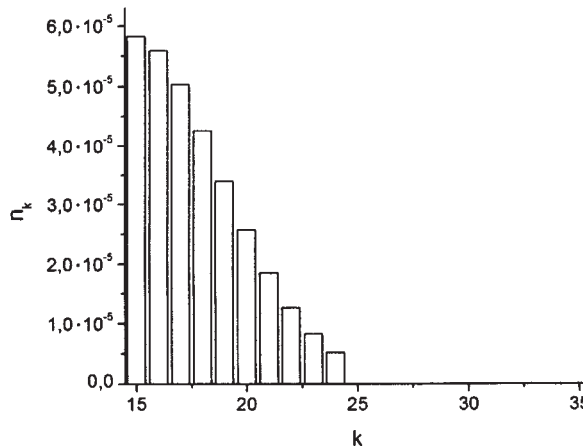


Рис. 4. Распределение концентрации кластеров по размерам при увеличенном γ_{25} в 10 раз по отношению к начальному распределению.

Для определения области применимости используемого приближения и, соответственно, системы уравнений (12) с помощью численных

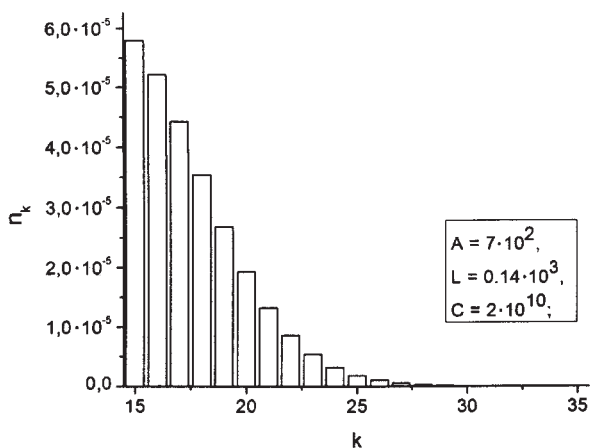


Рис. 5. Начальное распределение концентрации кластеров по размерам для распределения на рис. 6.

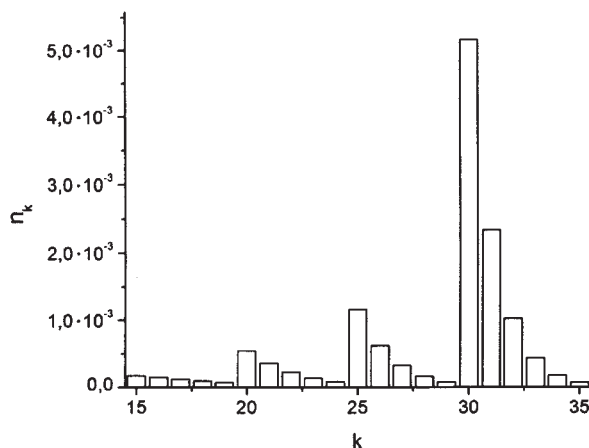


Рис. 6. Распределение концентрации кластеров по размерам при увеличенных значениях $\alpha_{20}, \alpha_{25}, \alpha_{30}$ в 10 раз по отношению к начальному распределению.

методов были получены решения исходной и упрощенной систем уравнений. Расчеты проводились методом Рунге - Кутты для системы уравнений, которая описывает возникновение нанокластеров четырех сортов.

Для расчетов использовались следующие зна-

чения параметров: $K = 10^{-4}$ [сна/с], $K' = 10^{-8}$ [1/с], $\alpha_k = 10^{10} - 10^{11}$ [1/с], $\tau_k = 10^2 - 10^3$ [с], $\tau_i = 10^{-3}$ [с], $\tau_v = 10^4$ [с], $\gamma = 10^{12}$ [1/с], $\gamma_k = 10^5 - 10^6$ [1/с].

Полученные результаты представлены в виде графиков на рис. 7 - 11.

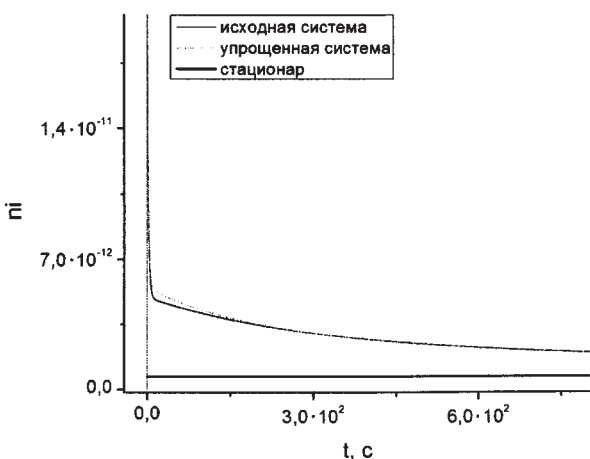


Рис. 7. Временное изменение концентрации междоузельных атомов.

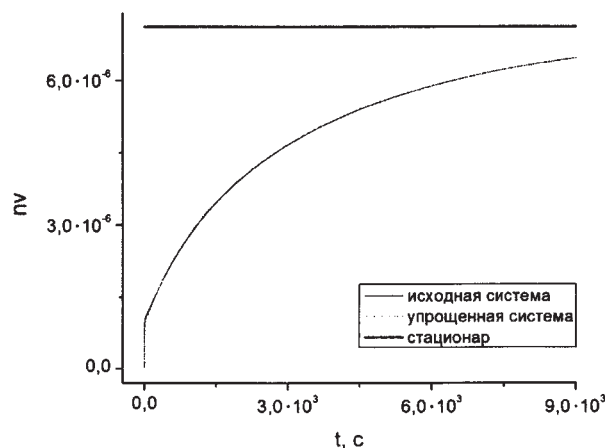


Рис. 8. Временное изменение концентрации вакансий.

Значения τ_i, τ_v, γ рассчитаны для параметров Al [19, 20] при температуре $T = 300$ К. Величина $\gamma_k = R_v^k D_v$, где R_v^k - радиус рекомбинации k-кластера с вакансией, $\alpha_k = R_i^k D_i$, где R_i^k - радиус взаимодействия k-кластера с междоузельным атомом.

Изменение концентраций отслеживалось до того момента (время t_{st}), когда относительная разность между текущим и стационарным значениями концентрации вакансий становилась менее 10%. Для использованных параметров t_{st} составляло несколько часов. Для более наглядного представления результатов численного моде-

лирования на графиках приведены малые временные интервалы изменения концентраций точечных дефектов и их кластеров.

Отклонение решения упрощенной системы от решения исходной описывалось относительным временем сходимости $\frac{\tau}{t_{st}}$, после которого решения отличались на величину менее 1%.

Для кластеров $\frac{\tau}{t_{st}}$ составляет примерно 0,034. Концентрации точечных дефектов и кластеров, для исходной и упрощенной систем, на всем временном отрезке ($t > \tau$) в среднем отличаются на величину меньше 1%.

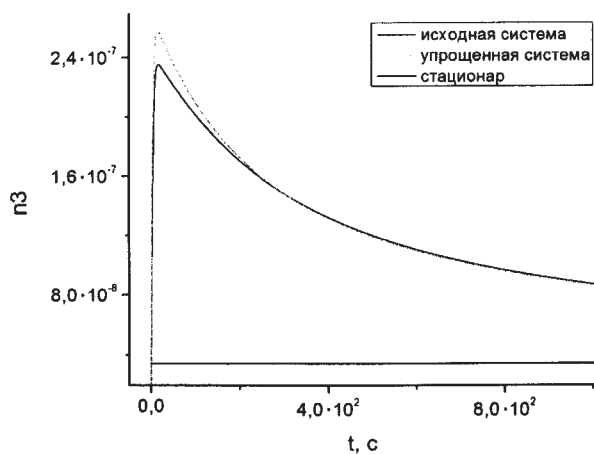


Рис. 9. Временное изменение концентрации кластеров, состоящих с трех междоузлий.

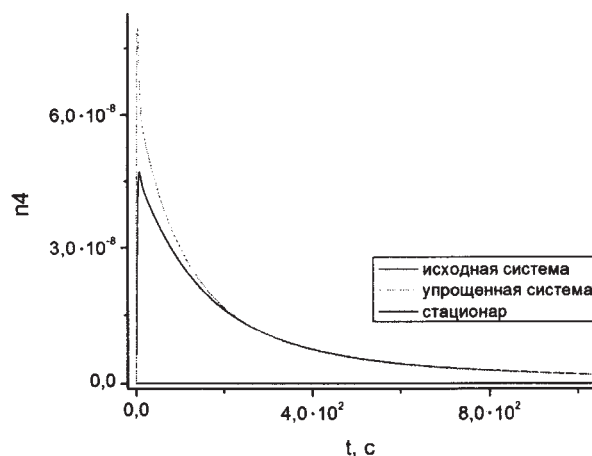


Рис. 10. Временное изменение концентрации кластеров, состоящих с четырех междоузлий.

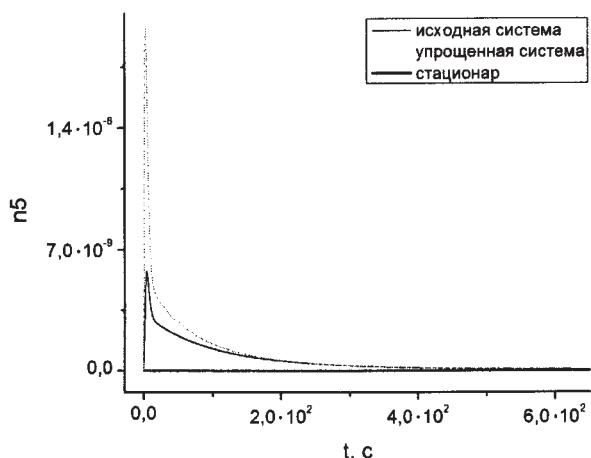


Рис. 11. Временное изменение концентрации кластеров максимального размера.

Проведенные вычисления позволили установить динамику накопления вакансий, междоузельных атомов и их кластеров. Характерное время достижения стационарного значения концентрации для междоузельных атомов значительно меньше, чем для вакансий и кластеров. Как видно из рис. 7, концентрация междоузельных атомов с начала облучения имеет резкий всплеск, в несколько раз превышающий стационарное значение и имеющий длительность порядка секунды, затем монотонно стремится к своему стационарному значению. Резкий спад концентрации междоузельных атомов вызван образованием кластеров междоузельных атомов, а также увеличением скорости рекомбинации с вакансиями.

В отличие от междоузельных атомов и их кластеров концентрация вакансий не испытывает резких изменений, она монотонно стремится к своему стационарному значению. Это обусловлено отсутствием образования вакансионных кластеров, малой диффузионной подвижностью вакансий и соответственно меньшей скоростью

их убыли за счет поглощения стоками и рекомбинации.

Для формирования кластеров при каскадообразующем облучении характерно отсутствие всплесков концентраций всех промежуточных кластеров в начале облучения в отличие от случая низкоэнергетического облучения, когда генерируются лишь пары Френкеля [21].

Заключение и выводы

Исходя из кинетики образования кластеров при каскадообразующем облучении, исследовано изменение функция распределения кластеров по размерам от начала облучения до установления стационарного состояния. Получено аналитическое выражение для стационарного распределения кластеров по размерам.

При резком отличии кинетических параметров ($\alpha_k, \gamma_k, \tau_k$), характерных для кластеров какого-то одного или нескольких размеров, функция распределения кластеров по размерам испытывает резкие изменения вблизи размеров, соответствующих данным кластерам.

Показано, что временные зависимости концентраций междоузельных атомов и их кластеров имеют характерные всплески, связанные с нелинейной динамикой их накопления, а именно с началом интенсивного образования кластеров большего размера.

В области исследованных параметров решение упрощенной системы совпадает с решением исходной системы, начиная с времен, составляющих примерно 3,5 % от характерного времени достижения стационарного состояния. Или как только концентрации точечных дефектов и их кластеров отличаются от своих стационарных значений менее чем на 90 - 80 %, дальнейшая кинетика их накопления, в пределах заданной точности, может описываться упрощенной системой.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Мильвидский М.Г., Чалдышев В.В. Наноразмерные атомные кластеры в полупроводниках - новый подход к формированию свойств материалов // Физика и техника полупроводников. - 1998. - Т. 32, № 5. - С. 513.
2. Поклонский Н.А., Гусаков Г.А., Баев В.Г., Ланчук Н.М. Оптические и парамагнитные свойства облученных электронами и отожженных кристаллов синтетического алмаза // Там же. - 2009. Т. 43, вып. 5. - С. 595.
3. Litovchenko P.G., Wahl W., Groza A.A. et al. Influence of preliminary irradiation on radiation hardness of silicon and indium antimonide // Semiconductor Physics, Quantum Electronics and Optoelectronics. - 2001. - Vol. 4, No. 2. - P. 85 - 90.
4. Terentyev D., Malerba L., Barashev A.V. On the correlation between self-interstitial cluster diffusivity and irradiation-induced swelling in Fe-Cr alloys // Philos. Mag. Lett. - 2005. - Vol. 85, No. 11. - P. 587 - 594.
5. Ивченко В.А., Попова Е.В., Овчинников В.В., Козлов А.В., Пространственное распределение и атомное строение радиационных повреждений в облученной нейтронами платине // Изв. Томск. политехн. ун-та. - 2005. - Т. 308, № 7.
6. Gao F., Bacon D.J., Calder A.F. et al. Computer simulation study of cascade overlap effects in γ -iron // J. Nucl. Mater. - 1996. - Vol. 230. - P. 47 - 56.
7. Bacon D.J., Diaz de la Rubia T. Molecular dynamics computer simulations of displacement cascades in metals // J. Nucl. Mat. - 1994 - Vol. 216. - P. 275 - 290.
8. Koyanagi M., Ohsawa K., Kuramoto E. MD study of the dynamic behavior of small interstitial clusters in Fe // J. Nucl. Mater. - 1999. - Vol. 271 & 272. - P. 205 - 208.
9. Rodney D., Martin G. Dislocation Pinning by Small Interstitial Loops: A Molecular Dynamics Study // Phys. Rev. Lett. - 1999. - Vol. 82, No. 16. - P. 3272 - 3275.
10. Horiki M., Yoshiie T., Iseki M., Kiritani M. Invisible and visible point defect clusters in neutron irradiated Iron // J. Nucl. Mater. - 1999. - Vol. 271 & 272. - P. 256 - 260.
11. Хофман А., Дидык А.Ю. Эволюция структурных дефектов в алюминии, облученном ионами ксенона // Физика и химия обработки материалов. - 2002. - № 4. - С. 5 - 8.
12. Тимофеев А.А., Кванин А.Л. Кинетика роста нанокластеров золота под электронным пучком // Химия твердого тела и современные микро- и нанотехнологии: VII Междунар. конф. Кисловодск - Ставрополь: СевКавГТУ, 2007. - 510 с.
13. Слезов В.В., Остапчук П.Н. Кинетика зарождения твердой фазы в переохлажденных расплавах или жидкостях в теплоизолированных условиях // Физика твердого тела. - 2011. - Т. 53, вып. 3.
14. Таланин В.И., Таланин И.Е. Кинетика процесса высокотемпературной преципитации в бездислокационных монокристаллах кремния // Там же. - 2010. - Т. 52, вып. 10.
15. Таланин В.И., Таланин И.Е. Кинетическая модель роста и коалесценции преципитатов кислорода и углерода во время охлаждения кристалла кремния // Там же. - 2011. - Т. 53, вып. 1.
16. Gan J., Was G. S., Stoller R.E. Modeling of microstructure evolution in austenitic stainless steels irradiated under light water reactor condition // J. Nucl. Mater. - 2001. - Vol. 299, Issue 1. - P. 53 - 67.
17. Светухин В.В. Кинетическая модель роста скопления точечных дефектов с учетом их объемной генерации // Сб. докл. седьмой Российской конф. по реакторному материаловедению, Димитровград, 8 - 12 сент. 2003 г.
18. Фридель Ж. Дислокации. - М.: Мир, 1967. - 644 с.
19. Орлов А.Н., Трушин Ю.В. Энергии точечных дефектов в металлах. - М.: Энергоиздат, 1982. - 70 с.
20. Таблицы физических величин. Справочник / Под ред. И. К. Кикоина. - М.: Атомиздат, 1976. - 607 с.
21. Кобец М.В., Селищев П.А., Слисенко В.И. Упрощенные уравнения для описания образования кластеров в материалах под облучением // Тр. XIX Междунар. конф. по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению. - Алушта, 2010. - С. 32 - 34.

М. В. Кобець, П. О. Селищев, В. І. Слісенко

КИНЕТИКА УТВОРЕННЯ ТА НАКОПИЧЕННЯ КЛАСТЕРІВ У КРИСТАЛАХ ПРИБИ КАСКАДОУТВОРЮЮЧОМУ ОПРОМІНЕННІ

Теоретично досліджено утворення кластерів точкових дефектів при каскадоутворюючому опроміненні. Отримано стаціонарний розподіл кластерів за розмірами, його залежність від параметрів задачі. Запропоновано спрощену систему кінетичних рівнянь для опису утворення кластерів у квазістаціонарному наближенні. Отримано залежності концентрацій точкових дефектів та їхніх кластерів від часу для початкової та спрощеної системи, наведено їхній порівняльний аналіз.

Ключові слова: опромінення, вакансії, міжвузлові атоми, кластери, розподілення за розмірами.

M. V. Kobets, P. O. Selyshchev, V. I. Slisenko

KINETICS OF CLUSTERS FORMATION AND ACCUMULATION IN CRYSTAL UNDER CASCADE-GENERATING IRRADIATION

Formation of point defect clusters under cascade-generating irradiation is theoretically investigated. Steady-state size distribution of cluster and its dependence on parameters is obtained. A simplified system of kinetic equations for describing of clusters formation in quasi-stationary approximation was proposed. Time dependencies of point defects concentrations and their clusters for original and simplified systems were plotted, their comparative analysis was performed.

Keywords: irradiation, vacancies, interstitial atoms, clusters, size distribution.

Поступила в редакцію 14.02.11,
после доработки - 30.05.11.