

УДК 539. 75

А.І. Баштова*Сумський державний педагогічний університет ім. А.С.Макаренка***МОДЕЛЮВАННЯ ЕВОЛЮЦІЇ МІКРОСТРУКТУРИ
КРИСТАЛІЧНИХ СИСТЕМ ПІД ДІЄЮ ОПРОМІНЕННЯ**

Розвиток сучасної теорії конденсованого стану вимагає всебічного дослідження процесів упорядкування в системах значно віддалених від рівноваги. Останнім часом велику увагу в області теоретичної фізики конденсованого стану сконцентровано на дослідженні нерівноважних процесів мікроструктурних перетворень, що проходять у матеріалах, підданих опроміненню високоенергетичними частинками (електронами, іонами). Такі системи є об'єктом для вивчення процесів структуроутворення, упорядкування/розупорядкування, фазового розшарування, аморфізації та інш.

Добре відомо, що вплив високоенергетичних частинок та, загалом, опромінення твердих тіл приводить до зміни їх структурно-фазового стану. Причиною зміни фізико-механічних властивостей таких систем виступає процес формування дефектів кристалічної будови та їх просторова організація, що приводить до певних мікроструктурних перетворень [1, 576]. Серед них можна виділити формування скупчень вакансій (ді-, три- та тетра-вакансій)[2, 403-405], окремих пор та їх решіток, утворення преципітатів, стінок дефектів, упорядкування вакансійних петель [3, 149; 4, 653]. Більшість дефектів, утворюваних завдяки зовнішньому впливові, є термодинамічно нестійкими і тому їх однорідний розподіл стає нестійким також, що приводить до їх просторової організації - ефективного зменшення ентропії системи внаслідок самоорганізації, викликані зовнішніми чинниками: температурою, тиском, опроміненням. Процеси структурної організації у конденсованих системах, загалом, є актуальними та цікавими не лише з теоретичної точки зору. Для систем дефектів у твердих тілах ці задачі набирають підвищеної уваги, оскільки знання про поведінку такого статистичного ансамблю дозволяють дослідити та виявити механізми мікроструктурних перетворень в опромінюваних матеріалах. Вони є корисними задля прогнозування поведінки чистих матеріалів та сполук, що використовуються в атомній енергетиці.

У даній роботі за мету ставиться дослідження процесів формування мікроструктури в конструкційних матеріалах на прикладі нікелю при організації точкових дефектів внаслідок сталої дії опромінення в реакторних умовах.

На основі розвиненої швидкісної теорії, яка враховує процеси взаємодії точкових дефектів проводиться дослідження процесів формування скупчень дефектів вакансійного типу у припущенні про швидкоплинність процесів руху міжвузлів та вихід їх на стоки. В якості досліджуваного матеріалу вибирається нікель, як найбільш розповсюджений конструкційний матеріал, що

використовується в атомній енергетиці. Нами буде показано, що за умови врахування процесів генерації дефектів пружним полем самих дефектів в такій системі можливими стають бімодальні стаціонарні стани, які обмежують область існування стаціонарних дефектних структур. Буде проаналізовано типи структур дефектів та знайдено умови їх реалізації при варіюванні швидкості дефектоутворення та температури опромінення. Розвинута у роботі детерміністична модель буде узагальнена врахування флуктуаційного внеску відповідно до флуктуаційно-дисипаційної теореми. Буде проаналізовано флуктуаційний ефект при формуванні стаціонарних структур дефектів. Для узагальнення отриманих результатів швидкість дефектоутворення варіюватиметься від значень, що відповідають лазерному опроміненню до значень опромінення на прискорювачах.

Відомо, що при енергіях налітаючих частинок, що не перевищують енергію первинновбитого атому, що складає величину порядку 30 eV, в кристалічній системі формуються ізольовані пари Френкеля. При істотному перевищенні порогової енергії падаючої частинки, в системі формуються каскади атомових зміщень, які приводять до перерозподілу дефектів з утворенням організованої структури їх комплексів в кристалах[5, 85-87].

Ефекти структуризації дефектів також спостерігаються при лазерному опроміненні, дефекти утворюються в структурі, в якій пройшовся фронт хвилі опромінення. Характерно, що в таких процесах густина нерівноважних точкових дефектів може перевищувати рівноважні на декілька порядків.

Оскільки в реальних умовах процеси дефектоутворення та організації їх у просторі структури вакансійних пор та інших комплексів дефектів, відбувається в широкому діапазоні часових та просторових масштабів, то для адекватного опису таких процесів останнім часом використовуються методи Мультимасштабного моделювання (рис.1).

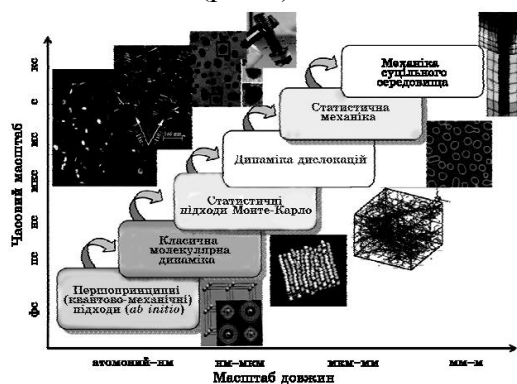


Рис. 1. Загальна схема мультимасштабного моделювання поведінки високотемпературних матеріалів

Вони включають самоузгоджені моделювання поведінки системи на різних ієрархічних рівнях починаючи з квантово-механічного і закінчуючи механікою суцільного середовища. В рамках даного підходу, можна виділити гібридні

методи, які дозволяють поєднати декілька різних рівнів опису або розширити застосування відомих підходів на декілька таких рівнів [6, 295-302]. В поданій роботі використовується теорія швидкісних реакцій, яка спрацьовує на мезоскопічному рівні з урахуванням взаємодії дефектів, яка відбувається у нанометровому діапазоні.

В рамках нашої моделі, розглядаються тверді тіла для яких приймаються до розгляду три типи квазіхімічних реакцій: утворення вакансій та міжвузлових атомів внаслідок проходження каскаду, вихід вакансій та міжвузлів на стоки, якими є границі зерен та поверхня та реакції анігіляції вакансій та міжвузлів [7, 15-18]. В такому разі можна ввести концентрації вакансій та міжвузлів стандартним чином

$$\begin{aligned} 0 \rightarrow V; V \rightarrow 0; I + V \rightarrow 0; c_v \equiv X_v/N \\ 0 \rightarrow I; I \rightarrow 0; I + V \rightarrow 0; c_i \equiv X_i/N \end{aligned} \quad (1)$$

де X_v – кількість відповідних дефектів, N – кількість дефектів в системі. Відповідно можна записати двопараметричну модель динаміки твердих тіл.

$$\begin{aligned} \partial_t c_v = K(1 - \varepsilon_v) - D_v S_v (c_v - c_{0v}) - \alpha c_i c_v - \nabla \cdot J_v^0; \\ \partial_t c_i = K(1 - \varepsilon_i) - D_v S_v c_i - \alpha c_i c_v - \nabla \cdot J_i^0. \end{aligned} \quad (2)$$

Тут перші складові описують процеси генерації дефектів зі швидкостями K та коефіцієнтами колапсу каскаду $\varepsilon_{v,i}$; другі складові описують вихід вакансій та міжвузлів на стоки, що задаються потужностями $c_{v,i}$; треті складові характерні процеси анігіляції з коефіцієнтом $\alpha = 4\pi r_0 (D_i + D_v) / \Omega$, де r_0 – радіус взаємодії дефектів, Ω – атомний об'єм. Оскільки дефекти є рухливими частинками мікроструктури, то еволюційні рівняння концентрацій мають враховувати внесок дифузійного потоків, позначених за допомогою $\nabla \cdot J_v^0$, $\nabla \cdot J_i^0$ відповідно.

Вимірюючи інтенсивність стоків через густини дислокацій та їх петель, систему (2) можна привести до знерозміреного вигляду (3).

$$\begin{aligned} \partial_t x_v = P(1 - \varepsilon_v) - \mu(x_v - x_{0v}) - x_i x_v - \nabla \cdot J_v; \\ \delta \partial_t x_i = \delta P(1 - \varepsilon_i) - (1 + B)\mu x_i - \delta x_i x_v - \delta \nabla \cdot J_v. \end{aligned} \quad (3)$$

Слід зазначити, оскільки коефіцієнт вакансій та міжвузлів істотно різняться, то можна ввести параметр малості δ , що дозволяє виділити швидкі та повільні змінні. Вочевидь швидкою змінною буде концентрація міжвузлів. В такому разі, використовуючи принцип підпорядкування систем із двох рівнянь, можна звести до одного рівняння еволюції концентрації вакансій, яке набирає вигляд (4).

$$\partial_t x = P(1 - \varepsilon_v) - \mu(x - x_0) - \frac{P(1 - \varepsilon_i x)}{(1+B)\mu + x} + G \exp(-E/T) \quad (4)$$

Тут останній доданок характеризує ефект генерації дефектів пружними полями самих дефектів [8, 28-32]. Відповідно до попередніх досліджень ця складова задається знерозміреною енергією пружного поля ϵ . Як було

встановлено раніше, в рамках наближення самоузгодження, дифузійний потік може бути переписаний у вигляді (5),

$$J(x; T) \equiv -[\nabla x - \varepsilon(T)x\nabla(x + l^2\nabla^2 x)]; l \equiv \frac{r_0}{L_d} \quad (5)$$

де просторовий масштаб l подається через радіус взаємодії дефектів та дифузійною довжиною. У такому разі загальна модель еволюції вакансій концентрації x має вигляд (6) і відноситься до класу систем реакційно-дифузійного типу.

$$\partial_t x = R(x; K; T) - \nabla \cdot J \quad (6)$$

Для проведення кількісного аналізу, в якості досліджуваної системи вибрано нікель, параметри якого подані в табл. 1.

Табл. 1 – Основні матеріальні константи для нікеля.

Параметр	Символ	Значення	Розмірність
Енергія формування вакансії	E_v^f	1.8	eV
Енергія міграції вакансій	E_v^m	1.04	eV
Енергія міграції міжвузлів	E_i^m	0.3	eV
Енергія пружної взаємодії	E_0^e	0.01 ÷ 0.2	eV
Коеф. дифузії вакансій	D_v	$6 \cdot 10^{-5} e^{-E_v^m/T}$	м ² /с
Коеф. дифузії міжвузлів	D_i	$10^{-7} e^{-E_i^m/T}$	м ² /с
Рівнов. конц. вакансій	c_{0v}	$e^{-E_v^f/T}$	—
Частота Дебая	ω_D	$1.11 \cdot 10^{13}$	с ⁻¹
Радіус вакансійної петлі	r_0	$1.5 \cdot 10^{-9}$	м
Ефективність колапсу каскаду	$\varepsilon_v, \varepsilon_i$	0.1, 0.01	—
Густина дислокацій	ρ_N	$10^{12} \div 10^{15}$	м ⁻²
Атомний об'єм	Ω	$1.206 \cdot 10^{-29}$	м ³

В наших дослідженнях розглядається інтервали та набори дози від реакторних до прискорювачів. Нами було проаналізовано стаціонарні однорідні стани, з поведінки яких встановлено, що за наявності ефекту пружних полів приводить до появи бістабільних станів. Відповідно до отриманих залежностей, нами торимано фазову діаграму існування бістабільних станів в площині «температура-швидкість набору дози».

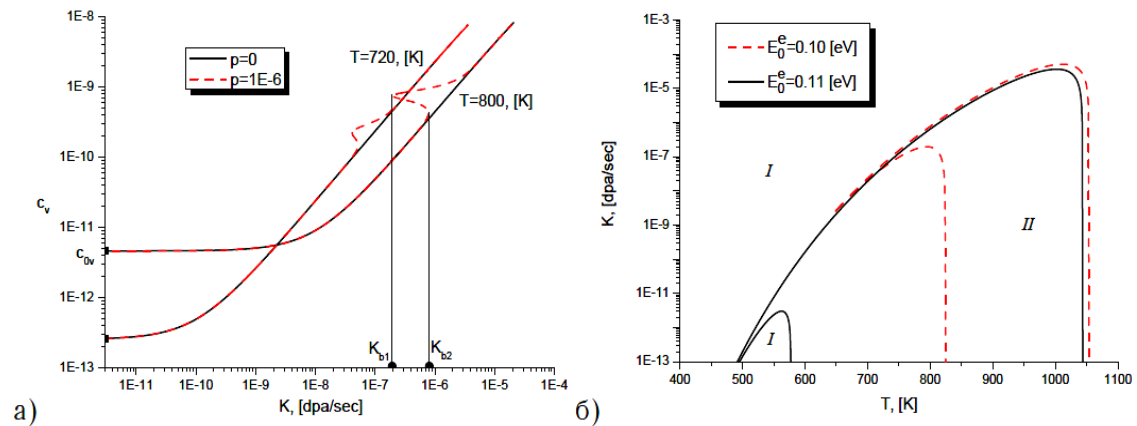


Рис. 2. (а) Стаціонарні залежності концентрації вакансій при різних значеннях температури

та ймовірності. (б) Фазова діаграма існування бімодального режиму при та різних значеннях енергії

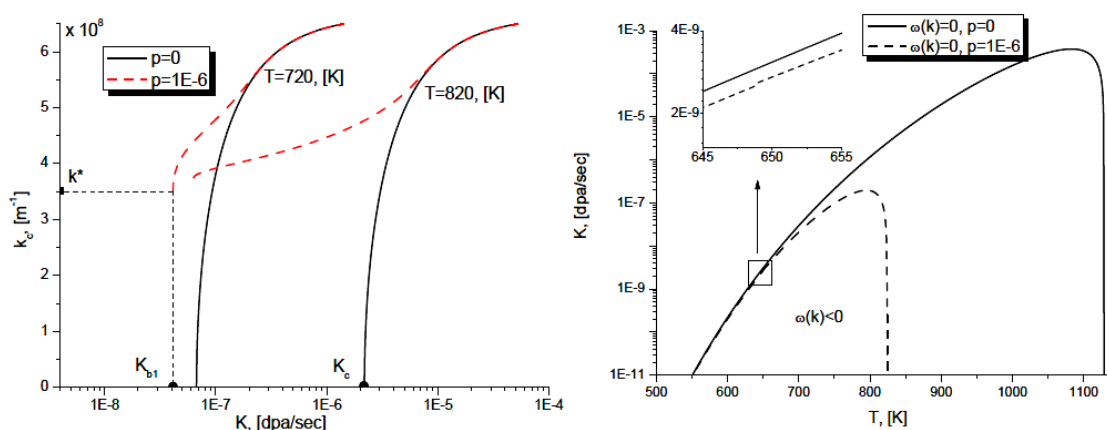


Рис. 3. (а) Залежність критичного хвильового числа від швидкості набору дози при різних значеннях p та T . (б) Діаграма стійкості в лінійному наближенні.

Встановлено, що зростання механічних напружень приводить до істотного розширення області бістабільності Π в бік низьких температур. При дослідженні стійкості стаціонарних станів в неоднорідній системі встановлено, що за наявності пружних полів перша нестійка мода, що задає поштовх процесам структуроутворення, характеризується ненульовим хвильовим числом. Із аналізу на стійкість встановлено діаграму просторового упорядкування з якої виявлено, що структуроутворення в системі дефектів можливе лише з області бістабільності при зростанні дози та температури. Отримані результати було узагальнено введенням в розгляд внутрішніх флуктуацій, які відповідно до ФДТ представляють внутрішній шум. В такому разі приходимо до рівняння Ланжевена (8), де ξ внутрішній шум, що розуміється в сенсі Стратуновича.

$$\partial_t x = -\frac{1}{M(x)} \frac{\delta U}{\delta x} + \sqrt{\frac{1}{M(x)}} \xi(r, t). \quad (8)$$

При аналізі найбільш ймовірних значень, нами біло встановлено, що стохастичне генерування дефектів здатне не лише перевищити рівноважні концентрації на декілька порядків. Але і істотно розширити область бістабільності. При моделюванні було показано, що залежні від температури та швидкості набору дози, тип структури дефектів може істотно змінюватися. Тут можливими стають скупчення вакансій, утв надграток вакансійних пор та формування протяжних дефектів у вигляді дислокацій, надграток пор та стінок дефектів.

При статистичному аналізі нами досліджено динаміку процесів структуроутворення при спостеріганні за статистичними середніми, які задають густину, дисперсію, асиметрію та ексцес. При дослідженні кореляційної функції та проведеного фур'є-аналізу, встановлено, що як швидкість набору дози так і

температура приводять до зменшення періоду утворюваної структури, що наведено на рисунку (4).

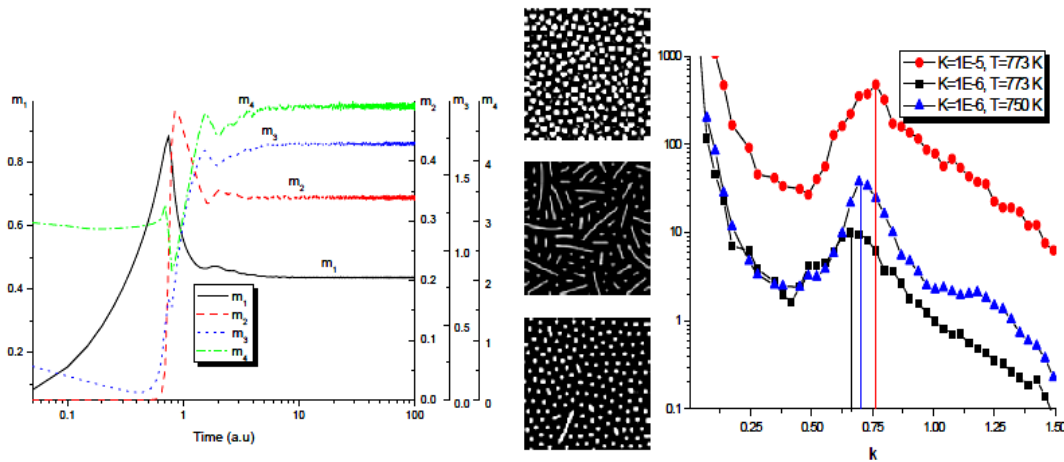


Рис.4 Динаміка середнього, дисперсії, асиметрії та ексесу (суцільна, штрихова, пунктирна та штрих-пунктирна лінії, відповідно) при $T=778\text{K}$, $K=10^{-6}$ з.н.а, $E^e=0,1$ eВ, $p=10^{-6}$

Моделювання динаміки мікроструктури проводилися на ГРІД-кластері ПІФ. Отримані результати добре узгоджуються з відомими експериментальними та дають можливість вик даний формалізм для дослідження ефектів кластеризації дефектів в опромінюваних системах. Результати роботи направлено для публікації в Український Фізичний журнал.

В результаті проведеної роботи дослідження процесів формування просторових структур дефектів вакансійного типу в чистому нікелі, що знаходився в умовах реакторного опромінювання можна зробити такі висновки.

1. Вперше проведено застосування узагальненої швидкісної моделі для дослідження процесів формування вакансійних кластерів для чистого нікелю, що опромінюється в реакторних умовах.

2. Із аналітичного дослідження втрати стійкості однорідного розподілу дефектів, встановлено зміну періоду розподілу вакансійних кластерів в нікелі при варіюванні температури та швидкості набору дози.

3. В рамках використання стохастичного підходу для дослідження процесів формування дефектних структур вакансійного типу, встановлено, що дія джерела внутрішніх флуктуацій приводить до дестабілізації однорідного розподілу дефектів на початкових стадіях еволюції системи, у стаціонарному випадку приводить до ентропійно-керованих процесів структуроутворення.

4. За результатами числового моделювання встановлено, що дефекти формуються у пори з характерним розміром порядку 100 нм; при зростанні температури відбувається зміна мікроструктури з формуванням протяжних дефектів типу стінок або вакансійних петель.

Література

1. Onuki A. Phase transition dynamics/ A.Onuki.-Cambridge: Cambridge University Press. – 2004. – 726 p.

2. Evans J. Observations of regular void array in high purity molybdenum irradiated with ions//Nature. – 1971. – V.229. – N 5284. – P.403-405.
3. Johnson P.B., Mazey D.J., Evans J.H. Harwell report AERE R-10874//Rad.Effects. – 1983. – V.78. – P.147-156.
4. Steigler J.O., Farrel K. Alignment of dislocation loops in irradiated metals / Steigler J.O., Farrel K. // Scr.Metall. – 1974. – V.8. – P.651-655.
5. Углов В.В. Радиационные эффекты в твердых телах.– Минск: БГУ. – 2007. – 167 с.
6. Daniel Walgraef. Spatio-Temporal Pattern Formation. – Springer-Verlag, New York, Berlin, Heidelberg. – 1996. – 324 p.
7. Мирзоев Ф.Х., Панченко В.Я, Шелепин Л.А. Лазерное управление процессами в твердом теле // УФН. – 1996. – Т.166. – В.1. – С.3-32.
8. Мирзоев Ф.Х., Шелепин Л.А. Распространение фронта волны генерации дефектов в твердом теле при лазерном воздействии // Письма в ЖТФ. – 1996. – Т.22. – В.13. – С.28-32.

Анотація. Баштова А.І. Моделювання еволюції мікроструктури кристалічних систем під дією опромінення. У роботі розглянуто процеси структуроутворення точкових дефектів вакансійного типу у кристалічних системах, підданих сталій дії опромінення, на прикладі нікелю. Отримані результати узгоджуються з експериментальними спостереженнями за процесами дефектоутворення при опромінюванні в реакторних умовах.

Ключові слова. Опромінення, дефекти, шум, структуроутворення, моделювання.

Аннотация. Баштовая А.И. Моделирование эволюции микроструктуры кристаллических систем под действием облучения. В работе рассмотрены процессы структурообразования точечных дефектов вакансионного типа в кристаллических системах, подверженных постоянному действию облучения, на примере никеля. Полученные результаты согласуются с экспериментальными наблюдениями за процессами дефектообразования при облучении в реакторных условиях.

Ключевые слова. Облучения, дефекты, шум, структурообразование, моделирование.

Abstract. Anna I. Bashtova. Modeling the evolution of the microstructure of crystalline systems under irradiation. The paper discusses the processes of structure formation of point defects in crystalline vacancy type systems subjected to constant exposure, to the example of nickel. These results are consistent with experimental observations of defect formation during irradiation processes in reactor conditions.

Key words. Irradiation, defects, noise, structure, modeling.