

УДК 669.018.6

**ФИЗИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ РАДИАЦИОННОЙ СТОЙКОСТИ МАТЕРИАЛОВ**

Н.Т. КВАСОВ, В.В. УГЛОВ, И.Л. ДОРОШЕВИЧ\*

*Белорусский государственный университет  
Независимости, 7, Минск, 220072, Беларусь**\*Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники  
П. Бровка, 6, Минск, 220013, Беларусь**Поступила в редакцию 5 июня 2015*

Работа посвящена выяснению физической природы пороговой энергии смещения  $E_d$  – одной из важнейших характеристик радиационной стойкости материалов. Физическим объектом, на котором построен физико-математический формализм  $E_d$ , является неустойчивая пара «вакансия – междоузельный атом», так называемый динамический дефект, время существования которого в облучаемом материале составляет  $10^{-12} \dots 10^{-11}$  с. В рамках закона сохранения энергии получено аналитическое выражение для  $E_d$  и установлена его структура на основе анализа процессов, сопровождающих подпороговое движение выбитого из узла решетки атома: электростатического и упругого взаимодействия с собственной вакансией междоузельного атома, а также диссипативными потерями его энергии при движении в области зоны неустойчивости. Имеет место удовлетворительное соответствие результатов расчета с данными эксперимента.

*Ключевые слова:* радиационная стойкость материалов, пороговая энергия смещения, радиационные дефекты, неустойчивая пара «вакансия – междоузельный атом», внутрикристаллическое трение.

**Введение**

Обеспечение высокой стабильности свойств материалов при радиационном воздействии является одной из актуальных проблем в ядерной и термоядерной энергетике, космической технике и других областях. Можно указать два основных направления повышения радиационной стойкости материалов.

1. Увеличение пороговой энергии смещения  $E_d$  (это минимальная энергия, необходимая для создания устойчивой пары Френкеля).

2. Создание материалов, обладающих свойством «самозалечивания»: твердых растворов вычитания (имеющих исходную дефектность), наноструктурированных материалов.

Наноструктурирование материалов предполагает «включение» новых физических процессов и явлений, сопровождающих взаимодействие ионизирующих излучений с веществом, и позволяющих уменьшить уровень радиационного повреждения. Это, в первую очередь, динамические эффекты, обусловленные реакцией решетки на внедрение ускоренных ионов и приводящие к перераспределению дефектов в наночастице. Границы нановключений и наночастиц являются эффективными стоками для радиационных дефектов. В таких материалах имеют место также интересные коллективные эффекты, связанные с передачей энергии первично выбитого атома совокупности окружающих его атомов (небинарность столкновений). В этом случае повреждаемость материала существенно снижается.

Несмотря на большое количество теоретических и экспериментальных исследований по определению одного из основных параметров в радиационной физике кристаллов – пороговой энергии смещения  $E_d$  для различных материалов, – физическая природа этой величины

окончательно не выяснена, что, в свою очередь, затрудняет поиск способов ее повышения. Решению проблемы структуры пороговой энергии смещения и физической природы ее слагаемых может способствовать анализ динамики подпорогового движения междоузельного атома ( $i$ ), когда он не покидает пределы зоны неустойчивости – области, находясь в пределах которой междоузельный атом безактивационно аннигилирует с собственной вакансией ( $v$ ). Изучение подпорогового движения выбитого из узла атома представляется значимым не только в теоретическом аспекте, но и практическом, поскольку размер зоны неустойчивости  $R$  наряду с пороговой энергией смещения является одним из основных критериев оценки радиационной стойкости: чем больше  $R$  материала, тем выше его радиационная стойкость. Согласно [1], причиной возникновения зон неустойчивости в металлах является упругое, а в диэлектриках и полупроводниках – электростатическое взаимодействие вакансии и собственного междоузельного атома. При этом размеры зоны неустойчивости определяются потенциалом взаимодействия этих дефектов и энергиями миграции междоузельных атомов. Следует отметить, однако, что для интервалов времени  $10^{-13} \dots 10^{-11}$  с, характерных для динамики неустойчивых пар, такое разделение взаимодействий весьма условно. Ведь очевидно, что за время жизни динамического дефекта в металле вакансия своим электрическим полем будет препятствовать релаксационным процессам в электронной подсистеме в области зоны неустойчивости, в связи с чем здесь необходимо учитывать также и электростатическое взаимодействие. Кроме этого, численные оценки свидетельствуют, что упругое взаимодействие «включается» лишь на значительных расстояниях  $r$  между вакансией и движущимся междоузельным атомом – более постоянной решетки  $a$ . Вместе с этим при  $r > a$  сила упругого взаимодействия, пропорциональная  $r^{-4}$ , крайне мала и недостаточна для возврата междоузельного атома в свою вакансию. В этой связи утверждение об определяющей роли этого взаимодействия между компонентами неустойчивой пары  $v-i$  в металлах [1] вызывает сомнения. Следует отметить также, что электростатическое поле между  $v$  и  $i$  в неустойчивой паре энергетически поднимает «летающий» междоузельный атом над потенциальным рельефом, поэтому его движение можно рассматривать как движение в среде с сопротивлением.

### Результаты и их обсуждение

В предлагаемой модели подпороговое движение выбитого из узла решетки иона (атома) обусловлено его кулоновским и упругим взаимодействием с собственной вакансией, а также внутрикристаллическим трением. Пусть атом массы  $m$  в узле решетки получает от налетающей частицы (или другого смещенного атома) энергию  $W$ , не превышающую пороговую энергию смещения  $E_d$ . Движение такого атома можно описать следующим динамическим уравнением:

$$m \frac{d^2 r}{dt^2} = -m\xi \frac{dr}{dt} + F_r(r) \cdot \Theta \left( F_r(r) - \frac{2U_m}{a} \right), \quad (1)$$

где  $\xi$  – коэффициент внутрикристаллического трения,  $\Theta$  – функция Хевисайда,  $U_m$  – энергия миграции ( $U_m = 0,01 \dots 0,1$  эВ),

$$F_r(r) = -\frac{dU(r)}{dr}, \quad (2)$$

$$U(r) = -\frac{1}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \cdot \frac{|q_i \cdot q_v|}{r} - \frac{B|\Delta V_i \cdot \Delta V_v|}{r^3} \cdot \Theta(r-a), \quad (3)$$

где  $\epsilon$  – диэлектрическая проницаемость (для металлов  $\epsilon$  полагается равным единице),  $\epsilon_0$  – электрическая постоянная,  $q_i$  и  $q_v$  – электрический заряд междоузельного атома и его вакансии;  $B$  – модуль всестороннего сжатия,  $\Delta V_i$  и  $\Delta V_v$  – объем упругой дилатации междоузельного атома и его вакансии.

Первое слагаемое в уравнении (3) учитывает кулоновское взаимодействие выбитого из узла решетки атома с собственной вакансией. Непростой задачей здесь является определение зарядового состояния компонент неустойчивой пары, существующей не более  $10^{-11}$  с.

На сегодняшний день на этот счет нет аргументированного мнения, и авторы в своих расчетах полагали для металлов

$$|q_i| = |q_v| = |e|, \quad (4)$$

а для полупроводников

$$|q_i| = |q_v| = \nu |e|, \quad (5)$$

где  $e$  – заряд электрона,  $\nu$  – валентность.

Второе слагаемое в уравнении (3) описывает упругое взаимодействие междуузельного атома его вакансией [1], а введение функции Хевисайда позволяет учесть то, что такое взаимодействие начинает проявляться лишь на достаточно большом расстоянии  $r$  между ними.

Ранее [2] авторами в качестве минимального расстояния между  $v$  и  $i$ , на котором начинают действовать силы упругости, использовалось значение  $a/2$  – первое междуузельное положение выбитого из узла решетки атома. Однако, как показывает более детальное рассмотрение ситуации, компоненты пары  $v-i$  становятся «полноценными» центрами отрицательной и положительной упругой дилатации на расстоянии  $r$  между ними, по крайней мере, не менее одной постоянной решетки  $a$ . В связи с этим результаты численного анализа формулы (17) из [2] существенно изменятся, и в данной публикации приведены уточненные расчеты. Также в настоящей работе использованы уточненные значения объемов упругой дилатации [3]:

$$\Delta V_i = 2,5\Omega_0 = \frac{2,5}{n}, \quad (6)$$

$$\Delta V_v = -0,5\Omega_0 = -\frac{0,5}{n}, \quad (7)$$

где  $\Omega_0$  – атомный объем,  $n$  – концентрация атомов вещества матрицы (решетки).

При расчете коэффициента внутрискристаллического трения  $\xi$  предполагалось, что для малых скоростей  $v$  движения выбитого из узла решетки атома диссипативные потери энергии на единицу длины связаны с  $\xi$  как

$$-\frac{dE}{dr} = m\xi v, \quad (8)$$

а диссипативные потери энергии  $S$  на единицу длины и в расчете на один атом единицы объема будут пропорциональны  $v$  [4]:

$$S = -\frac{dE}{dr} \cdot \frac{1}{n} = \alpha v, \quad (9)$$

где  $\alpha$  – коэффициент пропорциональности.

Тогда из выражений (8) и (9) следует

$$\xi = \frac{n}{m} \alpha. \quad (10)$$

Для полупроводников и диэлектриков величина  $\alpha$  оценивалась в рамках модели Фирсова (см., например, [5]):

$$\alpha = \frac{13,88 \cdot e^2 a_0 Z}{4\pi\epsilon_0 v_B}, \quad (11)$$

где  $a_0$  – первый борковский радиус,  $Z$  – порядковый номер химического элемента в таблице Менделеева,  $v_B$  – скорость электрона на первой борковской орбите.

И в этом случае коэффициент  $\xi$  равен

$$\xi = \frac{nZ}{m} \cdot 7,72 \cdot 10^{-44}. \quad (12)$$

Для металлов при этих же условиях использовалась модель движения выбитого из узла решетки атома в электронной ферми-жидкости и величина  $\alpha$  определялась из следующего выражения [4]:

$$\alpha = \frac{10\hbar n_e^{2/3}}{n}, \quad (13)$$

где  $\hbar$  – постоянная Планка,  $n_e$  – концентрация свободных электронов.

Учитывая выражение (13), коэффициент  $\xi$  внутрикристаллического трения (10) для металлов равен

$$\xi = \frac{10\hbar n_e^{2/3}}{m}. \quad (14)$$

В соответствии с предложенной в настоящей работе моделью подпорогового движения выбитого из узла решетки атома в рамках закона сохранения энергии структура пороговой энергии смещения  $E_d$  имеет следующий вид:

$$E_d = U_1 + U_2 + U_3 + U_4, \quad (15)$$

где  $U_1 = E_{\text{св}}$  – величина энергии связи,  $U_2 = |A_{\text{кул}}|$  и  $U_3 = |A_{\text{упр}}|$  – абсолютное значение работы соответственно кулоновских и упругих сил при движении выбитого из узла решетки атома до границы зоны неустойчивости, размер которой характеризуется ее радиусом  $R$ ,

$$U_4 = m\xi \int_0^{\tau} v^2(t) dt - \quad (16)$$

величина работы внутрикристаллического трения за время  $\tau$  максимального удаления междоузельного атома от своей вакансии,  $v(t) = \frac{dr(t)}{dt}$  – зависимость от времени его скорости.

Следует отметить сразу, что величина  $E_d$  по сути своей анизотропна и это может быть учтено зависимостью  $E_{\text{св}}$  и  $\xi$  от направлений в кристалле. В дальнейшем для качественных оценок авторы использовали изотропный случай.

Зависимость  $r(t)$  удаления выбитого из узла решетки атома от своей вакансии определялась численным интегрированием динамического уравнения (1) с учетом выражений (2)–(7), (12) и (14) с начальными условиями:  $r(t)|_{t=0} = 0,4a$  – смещение атома от равновесного положения, при котором величина энергии межмолекулярного взаимодействия не превышает 25 % от максимума ее абсолютного значения,  $\left. \frac{dr(t)}{dt} \right|_{t=0} = \sqrt{\frac{2(W - E_{\text{св}})}{m}}$ , где  $W$  – сообщаемая атому от налетающей частицы (или другого смещенного атома) энергия.

Полученные кривые  $r(t)$  имеют два принципиально разных характера зависимости от значения  $W$ : 1) выбитый из узла решетки атом после достижения им наибольшего удаления возвращается обратно и аннигилирует со своей вакансией; 2) атом обратно в свою вакансию не возвращается. Пороговая энергия смещения  $E_d$  определялась авторами как максимальная переданная атому энергия  $W$ , при которой выбитый из узла решетки атом еще аннигилирует с собственной вакансией, а координаты максимума соответствующей этой энергии зависимости  $r(t)$  являются значениями размера зоны неустойчивости  $R$  и времени  $\tau$  ее прохождения атомом.

В табл. 1 приведены результаты расчета пороговой энергии смещения  $E_d$  для ряда простых веществ и некоторые необходимые для этого параметры. На рисунке показана диаграмма, иллюстрирующая в соответствии с формулой (15) структуру пороговой энергии смещения  $E_d$  для некоторых простых веществ. Сравнение с экспериментом полученных авторами данных представляет определенные трудности из-за значительного разброса соответствующих экспериментально измеренных значений пороговой энергии смещения, полученных в разное время разными авторами и различными способами (табл. 2).

Таблица 1. Результаты расчета пороговой энергии смещения  $E_d$  для некоторых материалов

	$a$ , $10^{-10}$ м	$\epsilon$	$n$ , $10^{28}$ м $^{-3}$	$B$ , $10^9$ Па	$\xi$ , $10^{10}$ с $^{-1}$	$\tau$ , $10^{-12}$ с	$R$ , $10^{-9}$ м	$U_1$ , эВ	$U_2$ , эВ	$U_3$ , эВ	$U_4$ , эВ	$E_d$ , эВ
C	3,57	5,7	15,81	286,8	367,7	0,61	2,70	7,36	26,81	1,97	10,32	46,46
Al	4,05	1	6,03	78,9	75,0	0,97	1,79	3,34	8,08	2,52	1,16	15,10
Si	5,43	12	5,00	83,3	115,9	1,20	2,36	4,64	8,02	1,61	2,57	16,84
Ti	2,95	1	5,68	109,4	31,0	1,07	1,60	1,87	11,29	10,26	0,72	24,14
V	3,03	1	7,05	165,5	33,6	1,13	1,61	5,30	10,98	8,84	0,80	25,92
Cr	2,80	1	8,33	145,6	23,2	1,12	1,59	4,10	11,59	11,51	0,56	27,76
Fe	2,87	1	8,49	171,1	34,7	1,13	1,54	4,20	11,60	7,79	0,80	24,39
Co	2,50	1	9,10	167,1	34,5	1,05	1,44	4,38	13,39	10,03	0,81	28,61
Ni	3,52	1	9,15	366,7	34,7	1,34	1,76	4,43	9,40	7,79	0,92	22,54
Cu	3,61	1	8,49	180,6	19,2	1,46	1,72	3,50	9,13	4,15	0,45	17,23
Zr	3,23	1	7,05	93,3	33,6	1,61	1,72	6,30	10,30	11,85	0,46	28,91
Mo	3,15	1	6,42	253,1	10,6	1,64	1,73	6,80	10,59	15,26	0,40	33,05
Cd	2,98	1	4,64	47,3	11,5	1,69	1,56	1,20	11,15	6,45	0,36	19,16
Ta	3,31	1	5,54	211,1	8,1	2,35	1,79	8,10	10,06	14,71	0,43	33,30
W	3,16	1	6,34	333,3	8,7	2,27	1,79	8,66	10,58	20,41	0,51	40,16
Au	4,08	1	5,91	166,4	4,9	2,84	1,88	3,78	8,06	5,43	0,22	17,49
Bi	4,75	1	2,82	31,4	5,8	3,25	1,98	2,15	6,85	2,85	0,25	12,10

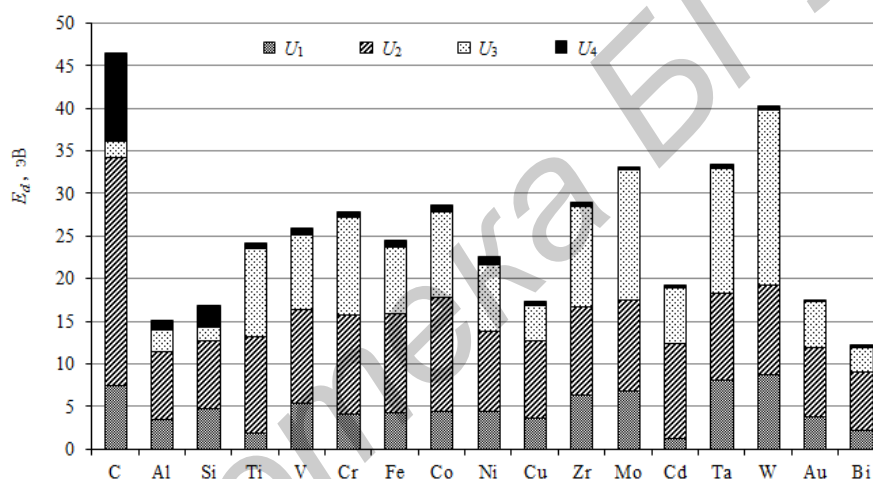


Диаграмма структуры пороговой энергии смещения  $E_d$  согласно формуле (15)

Таблица 2. Значения пороговой энергии смещения  $E_d$  для различных металлов

	Al	Ti	V	Cr	Fe	Co	Ni	Cu	Zr	Mo	Cd	Ta	W	Au	Bi
$E_d$ , эВ	15 [6];	19,2 [3];	23,6 [6];	25,3 [6];	17 [7];	23 [8];	23 [3];	18 [3];	14,5 [3];	32,4 [8];	19 [3];	26,7 [8];	40 [3];	33,5 [6];	12,3 [6];
	32 [3]	30 [7]	40 [7]	40 [7]	40 [7]	40 [7]	40 [7]	30 [7]	40 [7]	60 [7]	40 [3]	90 [7]	90 [7]	40 [3]	13 [3]

### Заключение

1. Аналитическое выражение для пороговой энергии смещения имеет сложную структуру и компоненты, его составляющие, определяются энергией связи, работой сил электростатического и упругого взаимодействий, а также диссипативными потерями энергии междоузельного атома при его движении в области зоны неустойчивости.

2. Повышение радиационной стойкости материалов лежит на пути увеличения энергии связи и упругих характеристик структуры.

# PHYSICAL PRINCIPLES OF MATERIALS RADIATION RESISTANCE

N.T. KVASOV, V.V. UGLOV, L.I. DOROSHEVICH

## Abstract

The work is devoted to clarify the physical nature of the threshold energy of shift  $E_d$ — one of the most important characteristics of the radiation resistance of materials. Physical object, on which physical and mathematical formalism  $E_d$  is constructed, is an unstable pair of «vacancy – interstitial atom», so-called dynamic defect with existence time  $10^{-12}...10^{-11}$  s. Within the law of energy conservation analytical expression for  $E_d$  is received and its structure on the basis of the analysis of the processes accompanying the subthreshold movement beaten out from atom lattice knot is established: electrostatic and elastic interaction with own vacancy of interstitial atom, and also dissipative losses of its energy at the movement in the field of an instability zone. There is a satisfactory agreement between the calculation results with the experimental data.

## Список литературы

1. Кошкин В.М. // Физика низких температур. 2002. Т. 28. № 8/9. С. 963–977.
2. Углов В.В., Квасов Н.Т., Ремнев Г.Е. и др. // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2015. № 11. С. 1–8.
3. Зеленский В.Ф., Неклюдов И.М., Черняева Т.П. Радиационные дефекты и набухание металлов. Киев, 1988.
4. Трубников Б.А., Явлинский Ю.Н. // Журнал экспериментальной и теоретической физики. 1965. Т. 48, № 1. С. 253–260.
5. Ахиезер А.И., Давыдов Л.Н. Введение в теоретическую радиационную физику металлов и сплавов. Киев, 1985.
6. Комаров Ф.Ф., Новиков А.П., Соловьев В.С. и др. Дефекты структуры в ионноимплантированном кремнии. Минск, 1990.
7. ASTM E521-96: Standard Practice for Neutron Radiation Damage Simulation by Charged-Particle Irradiation. Philadelphia, 1996.
8. Wolfer W. G. // Comprehensive nuclear materials. 2012. Vol. 1. P. 1–45.