

Радиационные дефекты в твердом теле под действием потоков ускоренных заряженных частиц (часть 1)

1. Дефекты кристаллической структуры
2. Схема радиационной повреждаемости
3. Стадии образования радиационных дефектов
 - 3.1) динамическая;
 - 3.2) диффузионная;
 - 3.3) эволюция стоков.

1. Дефекты кристаллической структуры

- **Искажения кристаллической структуры начинаются с изменения положения отдельных атомов, занимающих нерегулярные позиции, следовательно, параметр решетки (кратчайшее межатомное расстояние) может являться единицей измерения дефектов (размерности дефектов).**
- **Классификация дефектов по геометрическому принципу – по числу измерений, в которых дефект имеет макроскопические размеры, т.е. превышающие параметр решётки.**
- **Если в каком-то направлении дефект имеет размер, существенно превышающий параметр решетки a , то он имеет размерность в этом направлении, равную единице.**

1. Дефекты кристаллической структуры

Классификация дефектов по геометрическому принципу:

- нуль-мерные, или точечные, дефекты – дефекты, размеры которых во всех трех направлениях сравнимы с межатомным параметром a ;
- одномерные, или линейные, дефекты – дефекты, у которых один из размеров существенно больше a , т.е. является макроскопическим, а два других сравнимы с параметром решетки;
- двумерные, или плоскостные, дефекты, т.е. несовершенства кристаллического строения, у которых два размера существенно превышают параметр решетки;
- трехмерные, или объемные, дефекты, т.е. несовершенства, у которых три размера существенно превышают межатомный параметр a .

1. Дефекты кристаллической структуры

- **К точечным, или к нульмерным**, относят вакансии, т.е. пустые узлы кристаллической решетки, и междоузельные атомы.

При радиационном воздействии эти дефекты рождаются одновременно в одном акте. Их называют парами Френкеля (вакансия – атом в междоузлии).

К точечным дефектам следует отнести и внедренные атомы примеси, а также комплексы. Они представляют собой объединение нескольких простейших. Это – бивакансии, тетравакансии и т.п.

- **К одномерным, или линейным, дефектам** относят дислокации. Они связаны с нарушением правильности чередования плоскостей в кристалле.

1. Дефекты кристаллической структуры

Двумерные дефекты – это следующие искажения правильной кристаллической структуры:

- а) внешняя поверхность – отсутствие соседних атомов в двух направлениях;**
- б) внутренние границы в кристалле – либо границы между отдельными монокристаллами, составляющими поликристалл (границы зерен), либо границы между разными фазами (межфазные границы);**
- в) дефекты упаковки – дефекты, возникающие при росте кристалла, когда нарушается правильность упаковки атомов по слоям, соответствующим определенной кристаллографической структуре;**
- г) плоские трещины – нарушения сплошности материала, у которых раскрытие трещины еще сравнимо с параметром a .**

1. Дефекты кристаллической структуры

- **Трехмерные области с нарушенной кристаллической структурой** — разупорядоченные области (или кластеры дефектов), аморфные области (т.е. области, в которых утрачена упорядоченная структура, свойственная кристаллическому состоянию); поры или пустоты внутри кристалла, трещины, раскрытие которых больше параметра a .

2. Схема радиационной повреждаемости

I. Этап генерации дефектов

Динамическая стадия:

- первично выбитые атомы;
- каскады атом-атомных столкновений.

II. Вторичные процессы при образовании дефектов

2. Диффузионная стадия (кинетика дефектов).
3. Стадия эволюции стоков (формирование дефектной структуры).

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

1). Первично выбитые атомы

- Чтобы образовать дефект, частица должна передать атому решетки достаточно большую энергию E , которая больше пороговой энергии смещения E_d .

Возникает первично выбитый атом вещества (ПВА), на месте которого образуется вакансия.

Сам же атом, растратив свою энергию в столкновениях, застрянет в решетке в виде междоузельного атома.

Когда энергия ПВА достаточно велика, возникает каскад смещений, так как ПВА выбивают другие покоящиеся атомы и т.д.

Если атом в соударении с покоящимся атомом передает ему энергию, меньшую E_d , то последний будет участвовать лишь в тепловых колебаниях с большой амплитудой.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

1). Первично выбитые атомы (продолжение)

Пороговая энергия смещения E_d : минимальная энергия, которую необходимо сообщить атому при лобовом столкновении, чтобы образовалась **устойчивая пара Френкеля**, т.е. чтобы атом образовал цепочку замещений, большую по длине, чем зона рекомбинации пары Френкеля.

Примечание. **Зона рекомбинации пары Френкеля** – это такая область в кристалле около вакансии (междоузлия), попадая в которую междоузлие (или вакансия) мгновенно аннигилирует с имеющимся там дефектом противоположного знака.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

1). Первично выбитые атомы (продолжение)

- В общем случае величину E_d нужно рассматривать с учетом направления в кристалле, так как решетка анизотропна, и температуры твердого тела. Но для упрощения расчетов часто пользуются усредненным значением E_d .
- Получены различные оценки величины E_d . Для металлов, как правило, $E_d=20...30$ эВ.
- Время отдельного соударения равно $10^{-16}...10^{-14}$ с, а весь процесс смещения происходит за $10^{-14}...10^{-13}$ с.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

После остановки частицы решетки начинают подстраиваться под новую неравновесную конфигурацию. Время такого релаксационного процесса значительно превышает время самого процесса смещения. Сначала идет релаксация около точечного дефекта.

Энергия E_d , запасенная в решетке, в основном идет на колебания решетки.

Лишь малая часть E_d (до 5 эВ) сохраняется в виде потенциальной энергии образования дефекта.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

2). Каскады движущихся атомов

- Процесс образования каскада

Первично выбитый атом или другая частица, движущаяся в направлении Ω с энергией E , взаимодействует с атомами кристаллической решетки с вероятностью, определяемой сечением передачи энергии $\sigma(E, \Omega)$.

При этом атом изменяет направление своего движения на Ω_1 , а энергию – на E_1 . Он становится рассеянным атомом и передает смещенному из узла решетки атому энергию E_2 и импульс в направлении Ω_2 .

Если $E_2 < E_d$, поступательное движение этого атома прекращается, и он останавливается, образуя с одним из атомов решетки межузельную конфигурацию. Возбуждаются лишь колебания задетого атома, т.е. энергия E_2 переходит в тепло.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

2). Каскады движущихся атомов (продолжение)

- **Процесс образования каскада (продолжение)**

Если энергия $E_2 > E_d$, то атом решетки смещается из своего узла и может в свою очередь выбивать вторичные атомы. На месте выбитых атомов остаются вакансии.

- Движущиеся атомы теряют также энергию на возбуждение электронной подсистемы кристалла. Однако при энергиях меньше 10..100 кэВ, которые представляют основной интерес для формирования каскадов, эти потери незначительны.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

2). Каскады движущихся атомов (продолжение)

- Движение атомов в кристалле может быть:
 - ориентированным (каналы, фокусоны, динамические краудионы);
 - неориентированным.

Неориентированно движущиеся атомы в основном и создают радиационные точечные дефекты.

Роль атомов, движущихся ориентированно, - отвлекать часть атомов и энергии из каскадного процесса, что приводит, одной стороны, к перераспределению вещества в каскаде, с другой – к понижению эффективности каскада, поскольку часть энергии теряется не на смещения (выбивания) атомов из узла решетки.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

2). Каскады движущихся атомов (продолжение)

- Последствием прохождения каскада является распределение точечных дефектов – вакансий и междоузельных атомов.
- Развитие каскада заканчивается, когда все смещенные атомы замедляются настолько, что их энергия становится ниже E_d .
- Время жизни каскада составляет величину $\sim 10^{-11}$ с.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

2). Линейные и нелинейные каскады

Если число смещенных атомов в каскаде невелико и столкновениями между ними можно пренебречь, то такой каскад называется линейным.

Когда число смещений в каскаде велико, и доля столкновений смещенных атомов с движущимися атомами велика, то это - нелинейный каскад.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

В целом дефектная область единичного каскада атомных столкновений представляет собой так называемую обедненную зону (область локально повышенной концентрации вакансий) с мантией по периферии, состоящей из междоузельных атомов (обогащенная зона, т.е. область с повышенным содержанием междоузельных атомов).

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

Коэффициенты миграции междоузельных атомов (D_i) и вакансий (D_v) для большинства плотных решеток соотносятся как $D_i \gg D_v$.

Поэтому в центре каскадной области образуется зона обеднения (скопление вакансий), а на периферии каскада – повышенное содержание междоузельных атомов (зона обогащения).

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

3). Каскадная функция

Каскадная функция $N_d(E_1)$ - среднее число атомов в каскаде смещения (т.е. смещенных атомов), инициированного первично выбитым атомом с энергией E_1 .

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

3). Каскадная функция: модель для расчета

Пусть среднее число атомов, приведенных в движение ПВА с E_1 , и движущихся с энергией от E_0 до E_0+dE_0 , равно $F(E_1, E_0)dE_0$,

где $F(E_1, E_0)$ – среднее число атомов, движущихся с энергией, находящейся в единичном интервале в окрестности E_0 .

Тогда полное число смещенных атомов первично выбитым атомом с энергией E_1 :

$$N_d(E_1) = \int_{E_d}^{E_1} F(E_1, E_0) dE_0. \quad (1)$$

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

3). Каскадная функция: модель для расчета

Для составления интегрального уравнения для нахождения $F(E_1, E_0)$ можно рассмотреть, из каких членов будет складываться $F(E_1, E_0)$ после прохождения первично смещенным атомом достаточно короткого участка траектории ΔR :

$$\begin{aligned} F(E_1, E_0) = & n_0 \Delta R d\sigma(E_1, E_0) + \\ & + n_0 \Delta R \int [F((E_1 - E_n), E_0) + F(E_n, E_0)] d\sigma(E_1, E_0) + \\ & + [1 - n_0 \Delta R] \int F((E_1 - n_0 S_e \Delta R), E_0) d\sigma(E_1, E_n) \end{aligned} \quad (2)$$

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

3). Каскадная функция: модель для расчета

В (2): $d\sigma(E_1, E_0)$, $d\sigma(E_1, E_n)$ - сечения рассеяния атома с энергией E_1 с передачей энергии в интервалах $E_0 \dots E_0 + dE_0$ и $E_n \dots E_n + dE_n$ соответственно.

- Первый член в правой части уравнения (2) определяет вклад в $F(E_1, E_0)$ от соударений первичного атома в слое ΔR , приводящих непосредственно к передаче смещенным атомам энергии в единичном интервале в окрестности E_0 .
- Второй – вклад, который должен принести первичный атом во всех последующих взаимодействиях после прохождения ΔR , если на участке ΔR он испытал упругое взаимодействие с передачей смещенному атому любой энергии E_n , а также вклад в генерацию атомов с интересующей нас энергией этого вторичного смещенного с энергией E_n атома.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

3). Каскадная функция: модель для расчета

- Третье слагаемое в правой части (2) описывает ситуацию, когда первичный атом вообще не испытал на участке ΔR упругих взаимодействий, однако в нем учитывается уменьшение энергии атома из-за наличия средних потерь в неупругих взаимодействиях, которые, очевидно, равны $n_0 S_e \Delta R$ (где S_e – неупругое (электронное) сечение торможения).

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

3). Каскадная функция

Решение кинетического уравнения (2) позволяет найти $N_d(E_1)$ – среднее число смещенных атомов в каскаде, или каскадную функцию.

Например, таким способом получена формула TRN-стандарта:

$$N_d(E_1) = \frac{0,8E_D(E_1)}{2E_d} \quad (3)$$

где E_d – порог образования смещений, E_D – энергия, пошедшая на создание повреждений.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

3). Каскадная функция

- Поскольку в металлах энергия, переданная электронной подсистеме (т.е. в неупругих взаимодействиях ионов с атомами мишени) $Q(E_1)$, не дает существенного вклада в создание повреждений, то под величиной E_D следует понимать энергию частицы пучка, переданную атомам среды в упругих соударениях: $E_D = E_1 - Q(E_1)$.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

3). Каскадная функция

- Выражение (3) справедливо, когда $E_1 \gg E_d$.

При этом в число смещенных атомов не включаются атомы, выбитые в междоузлие в результате смещающих столкновений, т.е. таких, при которых выбитый атом уходит в междоузлие, а его место в узле занимает выбивший (т.е. учитывается образование только френкелевских пар).

- Численный коэффициент в (3) зависит от конкретного потенциала взаимодействия.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

Мера радиационных повреждений: d_{pa} – число смещений на один атом, т.е. сколько раз каждый атом смещается из своего положения равновесия в кристаллической решетке в результате облучения.

Эта величина вводится с тем, чтобы оценить суммарное разупорядочение решетки в результате облучения (т.е. эффект генерации каскадов и их перекрытия).

Она зависит от типа ионов, T мишени, энергии ионов, суммарной дозы и эффекта каналирования.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

4). Распределение смещенных атомов по глубине

Рассмотрим вопрос о распределении генерации смещенных атомов по глубине, или профиль повреждений (вакансий, межузельных атомов) $D(x)$, поскольку с учетом этого распределения должна рассматриваться и последующая эволюция каскада, т.е. формирование зон обеднения и обогащения, а также дальнейшее развитие системы пор и дислокационных петель.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

4). Распределение смещенных атомов по глубине

Теоретические исследования проводились разными способами, например:

- путем решения кинетического уравнения;
- методом Монте-Карло

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

4). Распределение смещенных атомов по глубине

В первом приближении распределение $D(x)$ может быть получено из соотношения:

$$D(x) = N_c \Phi = \frac{0,8Q_d(x)\Phi}{2E_d} \quad (4)$$

где N_c - число пар Френкеля, создаваемых ионом на единице глубины x ,

Φ – доза бомбардирующих ионов,

E_d - порог смещения,

$Q_d(x)$ – усредненные удельные потери энергии, идущие на создание радиационных дефектов бомбардирующей частицей.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

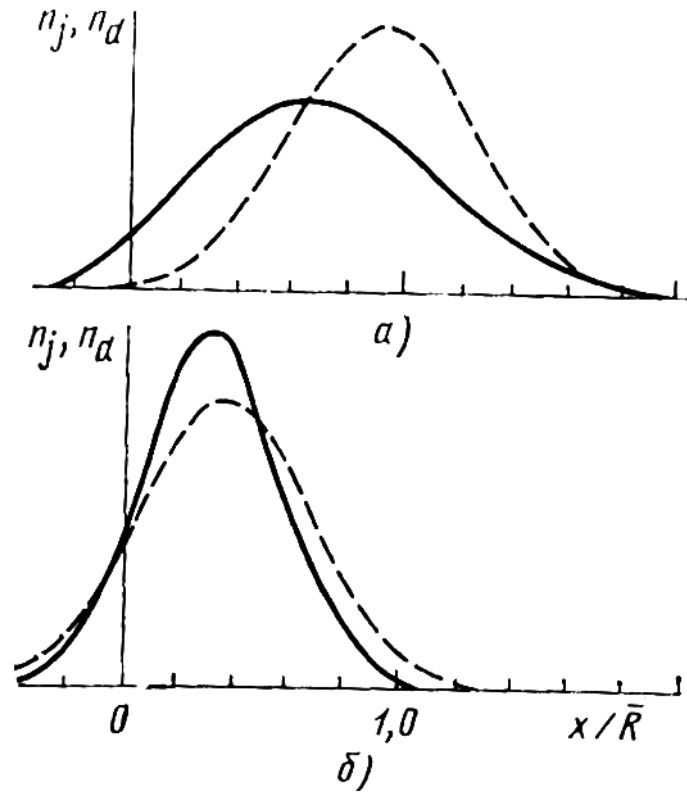
4). Распределение смещенных атомов по глубине

$Q_d(x)$ – усредненные удельные потери энергии, идущие на создание радиационных дефектов бомбардирующей частицей, вычисленные с учетом распределения частиц по энергиям на заданной глубине x :

$$Q_d(x) = \int_0^{E_1} P(E_1, E, x) \frac{S_d(E)dE}{S_n(E) + S_e(E)} \quad . \quad (5)$$

$S_d(E)$ – удельные потери энергии, идущие на создание радиационных дефектов частицей с энергией E .

3.1. Динамическая стадия образования дефектов



На рисунке 1 – теоретические профили распределения внедренных ионов n_j (пунктирные линии) и смещенных атомов n_d (сплошные линии) по глубине при отношении:

а) $M_2/M_1 = 1/4$;

б) $M_2/M_1 = 4$

(M_1 – массовое число налетающих ионов, M_2 – массовое число вещества мишени).

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

Итог: в результате генерации каскада смещений происходит эмбриональное повреждение материала, образуется область эмбрионального повреждения.

Для этой стадии характерно образование большого количества френкелевских пар, может происходить локальный нагрев.

Область эмбрионального повреждения сложна по составу. Она содержит:

- зоны обеднения (скопление вакансий);
- зоны обогащения (скопления междоузельных атомов).

Эта область очень нестабильна. Она эволюционирует.

3.1. Динамическая стадия образования дефектов

Так как смещенные атомы и вакансии могут мигрировать из области их генерации, рекомбинировать между собой и на различных стоках, вступать в реакции с примесями и другими дефектами и т.д., профиль распределения дефектов по глубине после перехода системы в некое метастабильное при данной температуре состояние будет существенно отличаться от профиля генерации.

В экспериментах можно увидеть только последствия генерации дефектной структуры.

3.2. Диффузионная стадия образования радиационных дефектов

После динамической стадии при облучении материалов осуществляются

- диффузионные перестройки дефектной структуры,
- отжиг дефектной структуры.

Это приводит к изменению первичной дефектной структуры, сформированной в каскадных областях.

При этом устанавливаются диффузионные распределения точечных дефектов и образуются их скопления.

3.2. Диффузионная стадия образования радиационных дефектов

Отжиг дефектов.

Отжиг дефектов – процесс исчезновения дефектов из пересыщенного ими кристалла.

В результате либо происходит полное восстановление прежней структуры кристалла, либо образуется стабильная структура, содержащая скопления точечных дефектов. Без процесса гибели точечных дефектов при постоянном облучении их концентрации возрастали бы неограниченно.

3.2. Диффузионная стадия образования радиационных дефектов

Реакции точечных дефектов в процессе диффузии

Точечные дефекты участвуют в следующих процессах, определяющих диффузионную стадию формирования дефектной структуры в результате облучения:

- рекомбинация разноименных дефектов;**
- взаимодействия с внутренними стоками (дислокациями, границами зерен, частицами выделений вторичных фаз, внешней поверхностью и т.д.);**
- образование новых скоплений в виде дислокационных вакансионных или межузельных петель, или вакансионных пор;**
- диссоциации комплексов точечных дефектов.**

3.2. Диффузионная стадия образования радиационных дефектов

Рекомбинация дефектов - взаимное исчезновение дефектов противоположного знака (аннигиляция) при встрече.

Если вакансия и междоузельный атом окажутся на близком друг к другу расстоянии, то за счет возникшего поля внутренних напряжений решетки между ними может действовать притягивающая сила, которая независимо от температуры мишени приведет к их рекомбинации.

В итоге междоузельный атом встроится в вакантный узел кристалла. При этом восстанавливается правильный узел решетки, а оба дефекта (вакансия и междоузельный атом) исчезнут.

3.2. Диффузионная стадия образования радиационных дефектов

Процесс рекомбинации вакансий и междоузлий можно разделить на мгновенную и диффузионную стадии.

Мгновенная (спонтанная) рекомбинация происходит, когда дефект противоположного знака попадает в так называемую зону спонтанной рекомбинации около первого дефекта.

Диффузионная рекомбинация вакансий и междоузлий может произойти, когда при миграции дефекты окажутся на расстояниях радиуса спонтанной рекомбинации друг от друга.

3.2. Диффузионная стадия образования радиационных дефектов

Взаимодействие точечных дефектов со стоками.

Точечные дефекты при их миграции по кристаллу взаимодействуют с дефектами более высокой размерности (линейными, плоскими, объемными).

В результате первые могут осесть на вторых, что приведет к исчезновению самих точечных дефектов. При этом говорят, что произошло взаимодействие точечных дефектов со стоками.

Таким образом, под стоками для точечных дефектов подразумеваются любые неоднородности в кристалле с большей размерностью, чем нулевые.

3.2. Диффузионная стадия образования радиационных дефектов

Образование скоплений точечных дефектов.

Здесь имеются в виду образование бивакансий, бимеждоузлий и т.д..

Главная движущая сила образования скоплений точечных дефектов – стремление материала уменьшить свою свободную энергию.

3.2. Диффузионная стадия образования радиационных дефектов

Диссоциация комплексов точечных дефектов.

Комплекс точечных дефектов может развалиться (диссоциировать) на компоненты, которые сами представляют собой дефекты иного типа.

Например, диссоциация тривакансий приведет к появлению бивакансии и вакансии. Если же, например, рассматривать диссоциацию бивакансии, то при ее развале возникают две вакансии.

Для описания реакций диссоциации необходимо знать значения энергий связи E_{nj} комплексов из n дефектов типа j .

3.3. Стадия эволюции стоков

На стадии эволюции стоков происходит изменение размеров и функций распределения как имевшихся в материале стоков, так и образовавшихся на диффузионной стадии.

Облучение, генерирующее точечные дефекты (стадия I), а также диффузия последних (стадия II) способствуют перемещению точечных дефектов и приводят к формированию радиационной структуры материала, состоящей из следующих образований:

- межузельных и вакансионных дислокационных петель,**
- вакансионных пор,**
- выделений вторичных фаз.**

Они являются стоками точечных дефектов, которые претерпевают дальнейшую эволюцию.

3.3. Стадия эволюции стоков

Стоки характеризуются следующими параметрами:

- размерами R_q , функцией распределения по размерам $f_q(R_q)$, которые под действием облучения и температуры изменяют свои значения.

Эти параметры стоков определяют изменение макроскопических свойств материала под воздействием облучения.