

Образование зародышей пор в процессе роста дислокационных междоузельных петель в металлах при электронном облучении

Ю. М. Платов, В. М. Лазоренко, В. И. Товтин

Разработана модель образования зародышей пор-дивакансий в процессе роста дислокационных междоузельных петель в металлах при электронном облучении. В рамках предложенной модели проведен анализ экспериментальных данных по облучению алюминия электронами с энергией 1 МэВ в интервале температур 293 – 423 К. Показано, что существенную роль в образовании стабильных зародышей пор играют атомы примесных элементов. С увеличением их концентрации и энергии связи с дивакансиями, а также с уменьшением температуры облучения стабильность зародышей пор возрастает.

Ключевые слова: модель, поры, междоузельные дислокационные петли, облучение электронами, алюминий.

The model of void nuclei (divacancies) formation in the process of interstitial dislocation loops growth in irradiated with electrons metals is developed. In the frame of the model the analysis of experimental results in Al irradiated with 1 MeV electrons at 293 – 423 K is conducted. It shown that impurity atoms play essential role in formation of stable nuclei of the voids. The stability of void nuclei to be on increase with growth of impurity concentration and binding energy between impurity atom and divacancy and also with decreasing of irradiation temperature.

Keywords: model, voids, interstitial dislocation loops, irradiated, electrons, aluminium.

Введение

Исследования механизмов зарождения и роста дислокационных петель и пор в металлических материалах актуальны для радиационной физики металлов и решения практических задач радиационного металловедения [1].

В данной статье, в отличие от наших работ [2, 3] и других известных публикаций, впервые рассматривается модель, в которой в процессе роста дислокационных междоузельных петель происходит образование дивакансий – критических зародышей пор. В рамках предложенной модели проведен анализ экспериментальных данных по росту дислокационных междоузельных петель в алюминии, облученном в интервале температур 293 – 423 К электронами с энергией 1 МэВ

Физические основы модели

1. При записи дифференциальных уравнений модели на основе результатов теоретического анализа серии экспериментальных данных с использованием решений уравнений типа Фоккера – Планка [3, 4] принято, что эффективность поглощения точечных дефектов дислокационными петлями прямо пропорциональна числу точечных дефектов в петле.

2. Принято также, что концентрация междоузельных атомов в дислокационных петлях C_i^l с точностью до концентрации свободно-мигрирующих междоузельных атомов C_i^f равна концентрации моновакансий в матрице: $C_i^l \approx C_v$, поскольку $C_i^f \ll C_i^l \approx C_v$.

С учетом этих положений система дифференциальных уравнений, описывающая скорость изменения C_i^f и C_v при облучении имеет вид:

$$\frac{dC_i^f}{dt} = G - RC_v C_i^f - K_{in} C_v C_i^f, \quad (1)$$

$$\frac{dC_v}{dt} = G - RC_v C_i^f - (K_{vn} + 2PK_v) C_v^2. \quad (2)$$

В уравнениях (1), (2) G — скорость введения свободно-мигрирующих точечных дефектов, R — константа взаимной рекомбинации точечных дефектов K_{in} и K_{vn} — константы скорости реакций поглощения междуузельных атомов и вакансий дислокационными междуузельными петлями с числом междуузельных атомов n [5].

Величина P в уравнении (2) представляет собой вероятность образования стабильных (недиссоциирующих) дивакансий. Согласно методики [6] P равна:

$$P = \frac{K_v}{K_v + K_d} = \frac{1}{1 + K_d / K_v} = \left[1 + \left(\frac{K_d^0}{K_v^0} \right) \exp\left(-\frac{E_{2v}^B}{kT}\right) \right]^{-1}. \quad (3)$$

В уравнении (2), (3) K_d — константа диссоциации дивакансий, K_v — константа скорости реакции образования суммарной концентрации стабильных и диссоциирующих дивакансий K_v и K_d соответственно равны:

$$K_d = K_d^0 \exp\left[-\frac{E_v^m + E_{2v}^B}{kT}\right], \quad (4)$$

$$K_v = K_v^0 \exp\left[-\frac{E_v^m}{kT}\right], \quad (5)$$

где E_v^m и E_{2v}^B — энергия активации миграции моновакансий и энергия их связи в дивакансии. Произведение $2PK_v$ в уравнении (2) представляет собой константу скорости реакции образования стабильных дивакансий:

$$2PK_v = \left[K_v^0 \exp\left(-\frac{E_v^m}{kT}\right) \right] \times \left[1 + \frac{K_d^0}{K_v^0} \exp\left(-\frac{E_{2v}^B}{kT}\right) \right]^{-1}, \quad (6)$$

Для решения системы (1) – (2) используем квазистационарное приближение [7], которое в рассматриваемом случае имеет вид:

$$\frac{dC_i^f}{dt} = 0, C_i^f = \frac{G}{R + K_{in}}. \quad (7)$$

Подстановка C_i^f в уравнение (2), его интегрирование и преобразования дают:

$$C_v = C_i^f = C_{il}^0 + ath[b(t - \tau_n)]. \quad (8)$$

В формуле (5) C_{il}^0 суммарная концентрация междуузельных атомов в дислокационных петлях за время их зарождения τ_n . Формулы для C_{il}^0 и τ_n и численные величины этих параметров для облученного алюминия приведены в работе [8].

Параметры a и b равны:

$$a = \left[\frac{GK_{in}}{(R + K_{in})(K_{vn} + 2PK_v)} \right]^{1/2}, \quad (9)$$

$$b = \left[\frac{G(R + K_{in})(K_{vn} + 2PK_v)}{K_{in}} \right]^{1/2}, \quad (10)$$

поскольку $K_{in} \gg R$ получим:

$$a = \left[\frac{G}{K_{vn} + 2PK_v} \right]^{1/2}, \quad (11)$$

$$b = [G(K_{vn} + 2PK_v)]^{1/2}. \quad (12)$$

Произведение ab дает скорость введения свободно-мигрирующих точечных дефектов G , которая в работе [9] определена как:

$$G = ab = \sigma_d v I \exp\left(-\frac{\bar{E}_B}{kT}\right), \quad (13)$$

где σ_d — сечение атомных смещений образования пар Френкеля, которые спонтанно не аннигилируют, v — число пар Френкеля при вторичных атомных смещениях, I — интенсивность облучения, \bar{E}_B — средняя энергия связи вакансии – междуузельный атом в коррелированных парах Френкеля.

Рассмотрим сравнительный вклад процессов поглощения моновакансий дислокационными междуузельными петлями и образования дивакансий в изменение концентрации моновакансий в матрице в процессе роста дислокационных междуузельных петель. Энергии активации каналов реакций $K_{vn} C_v^2$ и $2PK_v C_v^2$ соответственно равны:

$$E_{vn} = E_v^m \quad (14)$$

и

$$E_{PK_v} = E_v^m - E_{2v}^B. \quad (15)$$

Поскольку $E_{PK_v} < E_{vn}$ температурная зависимость изменения концентрации моновакансий в матрице должна контролироваться процессом образования дивакансий. Отсюда $b/a \approx 2PK_v$. Дополнительно отметим, что в зависимости от того, какой из

сомножителей в формуле (6) доминирует, параметр $b/a \approx 2PK_v$ с ростом температуры облучения должен либо увеличиваться (если доминирует первый сомножитель), либо, в противном случае, уменьшаться (если доминирует второй сомножитель). Численные оценки температурной зависимости параметра: $b/a \approx 2PK_v$ и энергии активации $E_{PK_v} = E_v^m - E_{2v}^B$ в соответствии с анализом зависимости $\ln(b/a) - 1/T$, приведены далее.

Численные оценки параметров модели и обсуждение полученных результатов

В таблице приведены результаты численных оценок параметров модели в формулах (9) – (15), полученные при обработке экспериментальных данных из работы [10] по кинетике роста дислокационных междоузельных петель в алюминии, облученном в интервале температур 293 – 423 К электронами с энергией 1 МэВ. На рис. 1 приведена зависимость $\ln(b/a) - 1/T$ с использованием которой определена энергия активации константы скорости реакции образования стабильных дивакансий $E_{PK_v} = E_v^m - E_{2v}^B$.

Таблица

Численные значения параметров модели, полученные при обработке экспериментальных данных для облученного алюминия

T, К	$\rho, 10^{14} \text{ см}^{-3}$	$G, 10^{-8} \text{ с}^{-1}$	a, 10^{-5}	b, 10^{-4} с^{-1}	b/a, с^{-1}	$E_{PK_v}, \text{ эВ}$
293	4,0	3,5	7,5	4,7	6,25	0,12
343	7,2	8,3	16,0	5,2	3,25	0,12
383	9,6	16	29,0	5,6	1,93	0,12
423	14,4	28	42,0	6,5	1,55	0,12

ρ — плотность дислокационных междоузельных петель, см^{-3}

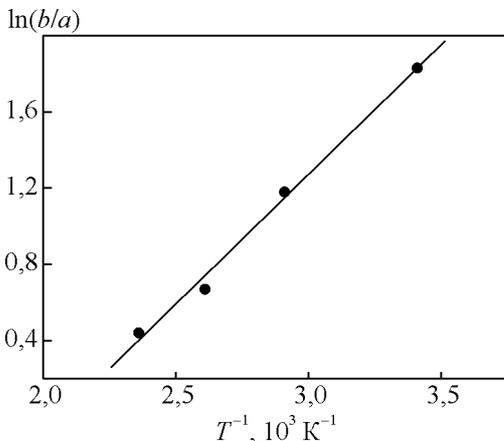


Рис. 1. Температурная зависимость параметра b/a .

Анализ представленных в таблице результатов расчетов показывает, что процесс образования стабильных дивакансий доминирует по сравнению с процессом их диссоциации во всем интервале температур облучения. Это означает, что энергия активации $E_{PK_v} = (E_v^m - E_{2v}^B) < 0$. В противном случае величина b/a с ростом температуры облучения должна была бы увеличиваться, поскольку, при этом E_{PK_v} должна быть равна $E_{PK_v} = (E_v^m - E_{2v}^B) < 0$. Полученный результат оценки величины b/a полностью согласуется с проведенным ранее анализом формулы (6), а именно: в ней доминирует второй сомножитель.

Результат оценки E_{PK_v} в таблице крайне интересен. Исходя из данных [11] примем энергию миграции моновакансий в алюминии равной 0,55 эВ, а энергию связи дивакансий E_{2v}^B в гипотетически чистых металлах $E_{2v}^B = 0,3 \text{ эВ}$ [7]. Поскольку $E_{PK_v} > 0$, то в соответствии с величиной $E_{PK_v} = 0,12 \text{ эВ}$ в таблице, реальная величина энергии связи в дивакансии должна быть равна $\sim 0,67 \text{ эВ}$.

Совершенно очевидно, что дополнительная энергия связи в дивакансии ΔE_B равная $\sim \Delta E_B = 0,67 - 0,3 = 0,37 \text{ эВ}$ — это энергия связи дивакансии с атомом примеси в алюминии. В этом случае формула (3) преобразуется в формулу:

$$P = \left[1 + \frac{K_d^0}{K_v^0} \exp\left(-\frac{E_{2v}^B + E_{2vi}^B}{kT}\right) \right]^{-1}, \quad (16)$$

где E_{2vi}^B — энергия связи дивакансия – атом примеси. Соответственно изменяется и энергия активации канала реакции $2PK_v C_v^2$ в формуле (15). Она становится равной:

$$E_{PK_v} = E_v^m - (E_{2v}^B + E_{2vi}^B). \quad (17)$$

Таким образом, даже незначительные концентрации примесей в металлах способствуют образованию стабильных зародышей пор – дивакансий, как это показано в данной работе на примере облученного алюминия чистотой 99,999%. С повышением температуры облучения стабильность комплексов дивакансия – атом примеси и скорость их образования, как следует из формулы (16) и таблицы, уменьшается в результате усиления процесса диссоциации комплексов.

Полученные результаты находятся в согласии как с результатами оценки вероятности образования пор в рамках правила фаз [12] так и с экспериментальными данными по исследованию образования

пор в Cu при ее облучении ионами меди с энергией 14 МэВ [13]. В обеих работах показано, что в чистых металлах процесс образования пор подавляется.

Вместе с тем важно отметить, что вероятность образования стабильных зародышей пор-дивакансий P даже в практически абсолютно чистых металлах близких к гипотетически чистым, в которых $E_{2v}^B = 0,3 \text{ эВ}$ [12], не может быть равна нулю.

Рассмотренный механизм справедлив и для металлических материалов, облученных ионами и нейтронами, в которых зародышами пор являются как дивакансии — результат диффузионного взаимодействия моновакансий, так и вакансионные скопления — результат образования каскадов атомных смещений.

Заключение

Впервые разработана модель образования зародышей пор-дивакансий в процессе роста дислокационных междуузельных петель в металлах при электронном облучении. На основе анализа экспериментальных данных для алюминия, облученного электронами с энергией 1 МэВ, в рамках предложенной модели установлены закономерности образования стабильных зародышей пор. Показано, что существенную роль в образовании таких зародышей играют атомы примесных элементов. С ростом концентрации примесей и их энергии связи с дивакансиями стабильность зародышей пор увеличивается. Рассмотренный дивакансионный механизм справедлив и для металлов, облученных ионами и нейтронами, в которых он работает наряду с механизмом образования зародышей пор (вакансионных скоплений) в каскадах атомных смещений.

Работа выполнена при поддержке проекта по программе фундаментальных исследований ОХНМ РАН в 2014 г. “Создание новых металлических, керамических стекло-, полимерных и композиционных материалов”, проект “Радиационно-стойкие малоактивируемые конструкционные металлические материалы для ядерной энергетики”.

Литература

1. Иванов Л.И., Платов Ю.М. Радиационная физика металлов и ее приложения. М.: Интерконтакт Наука, 2002, 300 с.
2. Лазоренко В.М., Платов Ю.М., Симаков С.В., Зарождение и рост дислокационных петель междуузельного типа в разбавленных сплавах на основе алюминия. Физика металлов и металловедения, 1984, т. 58, № 5, с. 943 – 949.
3. Платов Ю.М., Лазоренко В.М., Симаков С.В., Товтин В.И. Зарождение и рост дислокационных петель в металлах. В кн.: Моделирование на ЭВМ дефектов в металлах. Л.: Наука, 1990, 224 с.
4. Плетнев М.Н., Платов Ю.М. Образование и рост скоплений междуузельных атомов. Физика металлов и металловедение, 1975, т. 40, вып. 2, с. 304 – 310.
5. Лазоренко В.М., Платов Ю.М., Плетнев М.Н. Исследование распределения междуузельных петель дислокаций по размерам в металлах, облученных в высоковольтном электронном микроскопе. Физика металлов и металловедение. 1980, т. 50, вып. 1, с. 169 – 174.
6. Dienes G.J., Welch D.O., Platov Yu.M. Radiation damage production in stage II. Temperature and impurity effects. Radiation Effects, 1977, v. 33, p. 59 – 61.
7. Дамаск А., Динс Дж. Точечные дефекты в металлах. М.: Мир, 1966, 291 с.
8. Платов Ю.М. Зарождение дислокационных междуузельных петель в металлах при электронном облучении. Перспективные материалы, 2014, № 1, с. 5 – 12.
9. Платов Ю.М. Механизм, контролирующий скорость введения свободно-мигрирующих радиационных точечных дефектов в металлах, облученных электронами. Перспективные материалы, 2012, № 6, с. 27 – 31.
10. Платов Ю.М., Колотов В.П., Лазоренко В.М., Товтин В.И., Хасанов Ф.А. Зарождение и рост дислокационных междуузельных петель в облученном алюминии. Физика и химия обработки материалов, 2010, № 3, с. 15 – 18.
11. Choniem N.M., Kulcinski G.L. The use of the fully dynamic rate theory to predict void growth in metals. Radiation Effects, 1979, v. 41, p. 81 – 89.
12. Заболотный В.Т., Гуров К.П. Применение физико-химического подхода для описания состояния облучаемых металлических систем. Физика и химия обработки материалов, 1990, № 1, с. 10 – 12.
13. Zinkle S.I., Kulcinski G.L., Knoll R.W. Microstructure of copper following high 14 MeV – Cu ion irradiation. J.Nuclear Mater., 1986, v. 138, no. 1, p. 46 – 56.

Статья поступила в редакцию 4.02.2014 г.

Платов Юрий Михайлович — Институт металлургии и материаловедения им. А.А.Байкова РАН, доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник, специалист в области физики конденсированного состояния и радиационного материаловедения.

Лазоренко Валентин Михайлович — Институт металлургии и материаловедения им. А.А.Байкова РАН, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, специалист в области радиационной физики конденсированного состояния.

Товтин Василий Иванович — Институт металлургии и материаловедения им. А.А.Байкова РАН, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, специалист в области радиационной физики конденсированного состояния. E-mail: tovtinv@list.ru.