

Лабораторная работа 2

СМЕЩЕНИЯ АТОМОВ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ

Цель: ознакомиться с моделями образования радиационных дефектов.

Облучение приводит к возникновению в кристаллической решетке материалов дефектов, оказывающих влияние на их свойства.

В процессе облучения быстрая налетающая частица передает атомам мишени кинетическую энергию T . В случае если эта энергия меньше некоторой пороговой величины E_d , называемой энергетическим порогом смещения (пороговой энергией смещения), произойдет лишь изменение частоты колебаний атомов. Если же переданная энергия лежит в интервале $E_d < T < 2E_d$, атом смещается из узла решетки, оставляя вместо себя вакансию, а сам переходит в междоузельное положение. Такая комбинация вакансии и междоузельного атома называется дефектом Френкеля. Если $T > E_d$, ПВА вызывает дальнейшие смещения, т. е. образуется каскад смещений. Процесс образования каскада прекратится, когда энергия смещенных атомов станет ниже пороговой энергии E_d .

Такая модель была предложена в 1955 г. Г. Н. Кинчиным и Р. С. Пизом. Вначале предполагалось, что вся переданная энергия T_d расходуется на образование дефектов. Позднее было установлено, что на их образование расходуется энергия, переданная в упругих столкновениях. М. Дж. Норджетт, М. Т. Робинсон и И. М. Торренс использовали модель бинарных столкновений при компьютерном моделировании процесса радиационных повреждений. Они обнаружили, что примерно 20 % вакансий, возникших при облучении, занимают выбитыми атомами, а это привело к появлению коэффициента 0,8 в уравнении Кинчина – Пиза:

$$v(T_d) = \begin{cases} 0, & T_d < E_d, \\ 1, & E_d < T_d < \frac{2E_d}{0,8}, \\ \frac{0,8T_d}{2E_d}, & \frac{2E_d}{0,8} < T_d < \infty. \end{cases}$$

Это выражение известно как TRN-уравнение.

Среднее число смещений одного атома мишени из своего узла кристаллической решетки за все время облучения называется «смещение

на атом» (сокр.: с. н. а. – в русскоязычной литературе, *dpa* (*displacement per atom*) – в англоязычной).

Оценить число смещений можно, воспользовавшись выражением

$$\text{с. н. а.} = \sigma_d \Phi,$$

где σ_d – сечение смещения атома из положения равновесия; Φ – доза (флюенс).

Такой подход позволяет сравнивать уровни радиационных повреждений, вызванных различными видами облучения.

Следует заметить, что в последнее время используется модифицированная модель, учитывающая атермические рекомбинационные процессы, которые протекают во время облучения (так называемая (*arc*)*dpa model*). Число смещенных атомов

$$N = \varphi t \int_{E_d}^{T_d} v(T_d) \frac{d\sigma}{dT_d} dT_d.$$

где φ – плотность потока ($\varphi t = \Phi$, где t – время облучения); $\frac{d\sigma}{dT_d}$ – дифференциальное сечение смещения.

Если расстояние между образованной вакансией и междоузельным атомом невелико (меньше нескольких постоянных решетки), возможна их спонтанная рекомбинация, приводящая к исчезновению дефекта Френкеля. Объем, образованный всевозможными положениями вакансии вокруг междоузельного атома, для которых дефект Френкеля будет неустойчивым, называется рекомбинационным объемом.

Схемы распространения каскада смещений и возможные виды радиационных повреждений приведены на рис. 1, 2.

Обычно каскад смещений (столкновений) характеризуют полным числом атомов $v(\varepsilon)$, выбитых из узлов кристаллической решетки первичным атомом с энергией ε ; величина $v(\varepsilon)$ называется каскадной функцией. Для подробного описания каскада наряду с заданием распределения частиц каскада по энергиям (или скоростям) необходимо знание пространственного распределения частиц и временного развития каскада. Пространственные распределения частиц каскада показывают, в частности, профили образовавшихся дефектов и имплантированных частиц.

Общий подход к каскадам смещений базируется на нахождении функции распределения движущихся атомов по скоростям. Эта функция удовлетворяет кинетическому уравнению, часто называемому уравнением Больцмана. Существует прямое кинетическое уравнение, позволяющее решать задачи о прохождении частиц в неоднородных

мишенях, изучать явления вблизи поверхности и границ раздела, и обратное (более простое по структуре) – справедливое для однородной среды. Главная трудность, возникающая при решении кинетических уравнений, связана со сложностью и громоздкостью интегралов столкновений.

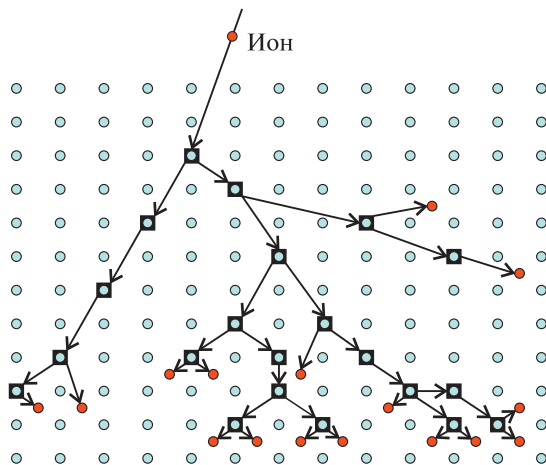


Рис. 1. Схема распространения каскада смещений

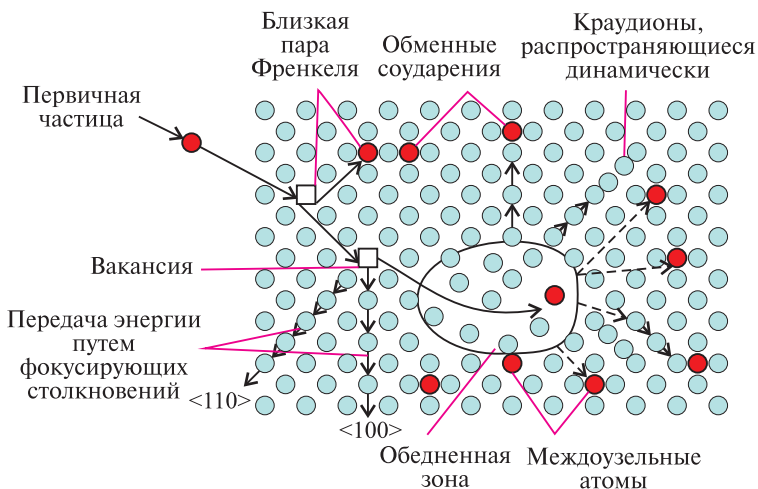


Рис. 2. Возможные виды радиационных повреждений при соударении одного нейтрона с атомами мишени

Протекание каскадов столкновений зависит от энергии ПВА. Так, например, в α -железе при низких энергиях ПВА образуются вакансии, междоузельные атомы и пара Френкеля, число которых линейно увеличивается с ростом энергии ПВА. Повышение энергии ПВА до 10 кэВ приводит к увеличению объема каскада и изменению его структуры. При энергии ПВА выше нескольких сотен кэВ центральная область каскада обогащается вакансиями (обедненная зона), а его периферия заполняется междоузельными атомами, и каскад может распадаться на субкаскады. Кроме величины энергии ПВА, на эволюцию каскадов оказывает влияние и температура облучения.

Важная характеристика каскада — это упомянутая выше пороговая энергия смещения E_d , под которой следует понимать минимальную энергию, необходимую для необратимого смещения атомов из узлов решетки, т. е. образования стабильной пары дефектов.

Энергия смещения в общем зависит от межатомных расстояний для всех типов решеток: чем больше межатомное расстояние, тем меньше пороговая энергия смещения. Так, энергия смещения уменьшается от 40 эВ у вольфрама до 12 эВ у свинца с соответственным увеличением межатомного расстояния от 2,74 до 3,5 Å. При грубых оценках обычно полагают, что средняя величина пороговой энергии смещения равна 25 эВ и зависит от атомного номера материала мишени. На самом деле величина пороговой энергии смещения зависит не только от материала, но и от направления в кристаллической решетке, т. е. атом может легче сместиться в одном кристаллографическом направлении, чем в другом.

Кроме энергии ПВА и температуры мишени, на распространение каскада оказывают влияние и дефекты (как находившиеся в кристалле ранее, так и образовавшиеся в процессе облучения). В случае облучения сплавов свой вклад вносят и примесные атомы.

Нарушение периодичности расположения атомов, обусловленное их смещениями из узлов решетки в результате облучения, приводит к уменьшению интенсивности дифракционных линий на рентгенограммах, что позволяет определить величину таких смещений. К такому же эффекту приводит и увеличение амплитуды тепловых колебаний атомов, что следует принимать во внимание при проведении подобных исследований. В случае сплавов необходимо обязательно учитывать возможность изменения сил связи. Изучение чистых металлов, подвергнутых различным воздействиям (деформации, отжигу и т. д.), показало, что величина сил связи слабо зависит от обработки, однако в ряде случаев, когда металл содержит некоторое количество примесей (в частности, газов), он может вести себя подобно твердому раствору и внешние воздействия могут изменить характер сил связи.

Следовательно, по изменению интенсивности дифракционных линий мишени при облучении можно оценить эффективность процесса смещения в различных кристаллографических направлениях. Для кубических решеток интенсивность дифракционной линии HKL для необлученного образца в общем случае определяется выражением

$$I_{HKL}^{\text{неobl}} = I_0 S e^{-2M}.$$

Для облученного образца интенсивность линии от той же плоскости (HKL)

$$I_{HKL}^{\text{obl}} = I_0 S e^{-2M'} e^{-2K},$$

где I_0 – интенсивность первичного пучка; S – произведение всех множителей интенсивности, кроме теплового; e^{-2M} , $e^{-2M'}$ – тепловые множители интенсивности; e^{-2K} – множитель, который учитывает ослабление интенсивности, обусловленное смещениями. Для кубической решетки

$$\frac{\sin^2 \theta}{\lambda^2} = \frac{H^2 + K^2 + L^2}{4a^2},$$

$$K = \frac{8}{3} \pi^2 \bar{U}^2 \frac{\sin^2 \theta}{\lambda^2} = \frac{2\pi^2}{3a^2} \bar{U}^2 (H^2 + K^2 + L^2),$$

где θ – брэгговский угол; λ – длина волны используемого излучения; a – постоянная решетки; \bar{U}^2 – среднеквадратичные смещения атомов из узлов решетки в направлении нормали к отражающей плоскости HKL .

Логарифмируя отношение интенсивностей необлученного и облученного образцов, получаем

$$\ln \frac{I_{HKL}^{\text{неobl}}}{I_{HKL}^{\text{obl}}} = 2(M' - M + K). \quad (1)$$

Это справедливо, если геометрические условия съемки остаются неизменными, а постоянная решетки и атомный фактор рассеяния в результате облучения изменяются не слишком значительно. Полагая, что фактор Дебая – Валлера M также изменяется незначительно, выражение (1) можно переписать следующим образом:

$$\ln \frac{I_{HKL}^{\text{неobl}}}{I_{HKL}^{\text{obl}}} = 2K,$$

откуда

$$\bar{U}^2 = \frac{2K}{C(H^2 + K^2 + L^2)}, \quad (2)$$

где $C = \frac{4\pi^2}{3a^2}$.

Для уменьшения влияния экстинкции на интенсивности дифракционных линий желательнее использовать рефлексы с большой суммой квадратов индексов и применять коротковолновое излучение. Если в результате облучения обнаруживается значительное изменение параметра решетки, необходимо учитывать изменение ряда множителей интенсивности (углового, атомного и т. д.).

Эффективность процесса смещения атомов из узлов кристаллической решетки по изменению интенсивности дифракционных линий можно также оценить, используя простую модель. Считаем, что облученная мишень состоит из двух фаз: кристаллической и смещенных атомов. Интенсивность рассеяния рентгеновских лучей от этих фаз будет пропорциональна числу атомов в них. Отношение интенсивности дифракционной линии HKL после облучения дозой D к интенсивности той же линии до облучения запишется следующим образом:

$$\frac{I_{HKL}^{\text{обл}}}{I_{HKL}^{\text{необл}}} = e^{-\sigma D},$$

где σ — сечение смещения атомов из узлов кристаллической решетки. Отсюда

$$\sigma = \frac{\ln\left(\frac{I_{HKL}^{\text{необл}}}{I_{HKL}^{\text{обл}}}\right)}{D}. \quad (3)$$

Следует отметить, что данный метод целесообразно применять для сравнительно тонких образцов, у которых радиационные повреждения распространяются на весь объем (например, для тонких пленок, облученных собственными ионами).

В случае исследования толстых образцов, радиационные повреждения в которых сконцентрированы в тонком приповерхностном слое, имеющем толщину меньше, чем глубина проникновения рентгеновских лучей, следует применять метод скользящего пучка (наклонной,

или ассиметричной, съемки). При такой съемке первичный пучок лучей проходит в исследуемом образце расстояние $t/\sin\varphi$, отраженный — $t/\sin(2\theta - \varphi)$. Полный путь рентгеновского луча в материале образца

$$x = \frac{t}{\sin\varphi} + \frac{t}{\sin(2\theta - \varphi)} = t \frac{\sin\varphi + \sin(2\theta - \varphi)}{\sin\varphi \sin(2\theta - \varphi)}.$$

Толщину рассеивающего слоя можно оценить по следующему выражению:

$$t = \frac{\ln\left(\frac{I_0}{I}\right)}{\mu} \frac{\sin\varphi \sin(2\theta - \varphi)}{\sin\varphi + \sin(2\theta - \varphi)},$$

где I_0 , I — интенсивность падающего и отраженного лучей соответственно; μ — линейный коэффициент ослабления; θ — угол дифракции; φ — угол скольжения падающего пучка рентгеновских лучей.

ЗАДАНИЯ

1. В зависимости от материала и толщины поврежденного слоя мишени подобрать режим работы дифрактометра. Определить интегральные интенсивности выбранных дифракционных линий для необлученного и облученного образцов. По выражению (2) рассчитать значения \bar{U}^2 для различных кристаллографических направлений.

2. Оценить анизотропию \bar{U}^2 при облучении и сравнить ее с анизотропией E_d .

3. По выражению (3) рассчитать сечение смещения атомов для тех же HKL и сравнить их с анизотропией \bar{U}^2 и E_d .

Контрольные вопросы

1. Что такое каскадная функция?
2. В чем различие между нейтронным и ионным облучением?
3. Что такие статические и динамические смещения атомов?
4. От чего зависит сечение смещения атомов?
5. Чем отличается процесс смещения атомов в сплаве от смещения атомов в чистом металле?
6. Что такое смещение на атом?

Список литературы

Беграмбеков, Л. Б. Процессы в твердом теле под действием ионного и плазменного облучения : учеб. пособие / Л. Б. Беграмбеков. М. : МИФИ, 2008. 196 с.

Вас, Г. С. Основы радиационного материаловедения. Металлы и сплавы / Г. С. Вас ; под ред. Н. М. Власова, О. И. Чепиной. М. : Техносфера, 2014. 991 с.

Иванов, Л. И. Радиационная физика металлов и ее приложения / Л. И. Иванов, Ю. М. Платов. М. : Интерконтакт Наука, 2002. 300 с.

Новиков, И. И. Кристаллография и дефекты кристаллической решетки : учеб. для вузов / И. И. Новиков, К. М. Розин. М. : Metallurgy, 1990. 336 с.