

СООБЩЕНИЯ  
ОБЪЕДИНЕННОГО  
ИНСТИТУТА  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

95-249

P14-95-249

А.Ю.Дидык, В.А.Кузьмин

АНАЛИТИЧЕСКОЕ СРАВНЕНИЕ ЭФФЕКТОВ  
НЕПРЕРЫВНОГО И ИМПУЛЬСНОГО  
ВОЗДЕЙСТВИЯ ИОННОГО ПУЧКА  
ПРИ ОБЛУЧЕНИИ МЕТАЛЛОВ

1995

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В радиационной физике твердого тела и радиационном материаловедении широко используются пучки как заряженных частиц, так и нейтронов. При таких облучениях в материалах образуются первичные радиационные дефекты (френкелевские пары), эволюция которых как в процессе облучения, так и после (например, при послерадиационном отжиге) описывается феноменологической теорией [1-5]. Как правило, в таких расчетах предполагается, что скорость накопления дефектов однородна по толщине образца. Отметим, что неоднородность дефектообразования по пробегу ионов учитывалась, но лишь для ионов малых энергий, когда их пролетившие пробеги не превышали 1 мкм. Также не всегда учитывалась импульсность ионных пучков, которая может изменить характер эволюции точечных дефектов и их стационарные распределения. В ряде работ [2] было рассмотрено влияние импульсности протонных пучков высоких энергий (с энергией  $E > 600$  МэВ) на развитие процессов набухания и рост междоузельных и дислокационных петель в молибдене и алюминии и показало, что изменение длительности импульсов протонных пучков при неизменном периоде их следования существенно образом изменяет такие процессы.

Цель данной работы - изучение влияния импульсности ионных пучков и неоднородности распределения точечных дефектов по пробегу на характер их накопления в зависимости от температуры облучения и исходного состояния металлов для энергий ионов  $E/A \geq 1$  МэВ/а.е.м.

## 2. ФЕНОМЕНОЛОГИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Уравнения, описывающие образование и эволюцию первичных точечных дефектов, в одномерном случае могут быть записаны в следующей форме [2-5]:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = G_i(x, t) + D_i \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - \mu_r D_i C_i C_v - K_i^S C_i, \quad (1)$$

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = G_v(x, t) + D_v \frac{\partial^2 C_v}{\partial x^2} - \mu_r D_i C_i C_v - K_v^S (C_v - C_v^{eq}). \quad (2)$$

Индексы  $i, v$  обозначают междоузлия и вакансии соответственно,  $C_{i,v}$  - относительные концентрации точечных дефектов,  $D_{i,v}$  - коэффициенты диффузии,  $K_{i,v}^S$  - коэффициенты, характеризующие скорость поглощения точечных дефектов стоками (дислокациями вакансионного типа и междоузельными петлями),  $\mu_r = 4\pi r_0/V$  - коэффициент рекомбинации точечных дефектов, где  $V$  - атомный объем и  $r_0$  - радиус зоны спонтанной рекомбинации, примерно равный удвоенной постоянной решетки  $r_0 = 2a$ .  $C_v^{eq}$  - равновесная концентрация вакансий - может быть записана как

$$C_v^{eq} = \exp(S/k) \exp(-E_v^f/kT), \quad (3)$$

где  $S$  - энтропия, а  $E_v^f$  - энергия образования вакансии.

Скорость генерации точечных дефектов  $G_{i,v}$  имеет вид

$$G_i = G_0(x, t), \quad (4)$$

$$G_v = (1 - \epsilon)G_0(x, t), \quad (5)$$

где  $\epsilon$  - доли вакансий, образовавшихся комплексы непосредственно в каскадах смещений. Обычно величина  $\epsilon$  не превышает 0.01. При импульсном облучении выражение для  $G_0(x, t)$  можно представить в виде

$$G_0(x, t) = \begin{cases} 0, & \text{при } mT_n + \tau_0 \leq t \leq (m+1)T_n \\ G(x)Q, & \text{при } mT_n < t < mT_n + \tau_0 \end{cases} \quad m = 0, 1, 2, \dots \quad (6)$$

где  $T_n$  - период следования импульсов пучка частиц с длительностью  $\tau_0$ ,  $Q = T_n/\tau_0$ , а  $G_0(x)$  имеет вид

$$G_0(x) = \sigma_d(x)F'. \quad (7)$$

Величина  $F'$  описывает плотность потока ионов, а  $\sigma_d(x)$  - сечение дефектообразования для ионов в материале мишени[1].

Коэффициенты диффузии могут быть записаны как

$$D_{i,v} = D_{i,v}^0 \exp(-E_{i,v}^m/kT), \quad (8)$$

где  $D_{i,v}^0 = a^2 \nu_{i,v}$ ,  $a$  - максимальное расстояние перескока вакансии или междоузлия (можно выбрать просто постоянную решетки), а  $\nu_{i,v}$  - частота перескоков между равновесными положениями (обычно эта величина порядка  $10^{13} \text{с}^{-1}$ ).  $E_{i,v}^m$  обозначает энергию активации миграции дефекта,  $k$  - постоянная Больцмана, а  $T$  - температура.

Коэффициенты  $K_{i,v}^S$  можно представить в виде

$$K_{i,v}^S = D_{i,v} Z_{i,v} (\rho_d^0 + 2\pi(r_i^l N_i^l + r_v^l N_v^l)), \quad (9)$$

где  $Z_{i,v}$  - фактор предпочтительности поглощения точечных дефектов,  $r_{i,v}^l$  - характерный размер дислокационных петель,  $N_{i,v}^l$  - плотность стоков данного типа

дефектов и  $\rho^0$  - плотность постоянных стоков. Введем также величины, описывающие линейную плотность стоков:

$$S_{i,v} = Z_{i,v}(\rho_d^0 + 2\pi(r_i^l N_i^l + r_v^l N_v^l)).$$

Влияние переменной плотности стоков с изменением их размеров учитывалось уравнениями [2,3], записанными для относительно низких температур, когда можно пренебречь равновесной концентрацией вакансий:

$$\frac{dr_i^l}{dt} = \frac{1}{b} [Z_i D_i C_i - Z_v D_v C_v], \quad (10)$$

$$\frac{dr_v^l}{dt} = \frac{1}{b} [Z_v D_v C_v - Z_i D_i C_i], \quad (11)$$

$$\frac{dN_v^l}{dt} = \frac{cG_0(x,t)}{\pi b(r_v^l(0))^2} + \frac{N_v^l}{br_v^l(0)} [Z_v D_v C_v - Z_i D_i C_i], \quad (12)$$

$$N_i^l = \text{const}. \quad (13)$$

Здесь  $b$  - вектор Бюргерса, а  $r_v^l(0)$  - начальный размер вакансионных комплексов.

Система уравнений (1) - (13) решалась численно с использованием компьютерной программы DAMAGE. Расчет был выполнен для случая облучения никели ионами ксенона с энергией  $E = 124$  МэВ. Параметры, входящие в феноменологическую модель, выбирались следующими [1-5]:

Величина	Обозначение	Число	Единицы
Постоянная Больцмана	$k$	$8.617 \cdot 10^{-5}$	эВ $K^{-1}$
Энергия миграции вакансий	$E_v^m$	1.38	эВ
Энергия миграции междоузлий	$E_i^m$	0.15	эВ
Энергия образования вакансии	$E_v^f$	1.39	эВ
Энтропия образования вакансии	$S$	1.5k	эВ $K^{-1}$
Предэксп. мн. к. д. вакансий	$D_v^0$	0.014	$\text{см}^2 \text{с}^{-1}$
Предэксп. мн. к. д. междоузлий	$D_i^0$	0.008	$\text{см}^2 \text{с}^{-1}$
Постоянная решетки	$a$	$3.52 \cdot 10^{-8}$	см
Радиус зоны рекомбинации	$r_0$	$2a$	см
Плотность стоков	$S_{i,v}$	$10^6 - 10^{12}$	$\text{см}^{-2}$

В модели рассматривалась постоянная плотность стоков  $\rho_d^0 = S_{i,v}$  (см. выражение (9)), и решения системы уравнений (1)-(13) были получены для относительно малых времен, тем не менее можно проследить основные тенденции развития процессов накопления дефектов и сравнить непрерывный и импульсный режимы облучения. Граничные и начальные условия имели вид  $C_{v,i}(x,t=0) = C_{i,v}(0,t) =$

$C_{i,v}(L, t) = C_{i,v}^{eq}$ . В расчетах толщина облучаемого образца была взята равной  $L = 10$  мкм. Сечение дефектообразования  $\sigma_d(x)$  было получено с использованием компьютерной программы E-DER-1 [6-7]. Пороговая энергия смещений  $E_d$  выбиралась равной  $E_d = 29$  эВ.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Расчетный профиль дефектообразования ионов  $^{129}\text{Xe}$  с энергией  $E = 124$  МэВ в никеле приведен на рис.1.

На рис.2 представлены расчетные кривые зависимости полного числа вакансий  $N_v$  от времени облучения для различных температур. Параметры модели выбраны следующими: плотность стоков  $S = 10^8 \text{ см}^{-2}$ ,  $Q = 4$ ,  $F = 10^{12}$  ион/(см<sup>2</sup>с). Как видно из рисунка, при низких ( $T = 75\text{K}$ ) и относительно высоких ( $T = 300\text{K}$ ) температурах отличие непрерывного облучения ( $Q = 1$ ) от импульсного крайне малое, в то время как в промежуточной области температур проявляются два эффекта: во-первых, реализуется режим быстрого выхода на квазистационарный уровень ( $T = 100\text{K}$ ), а во-вторых, имеются значительные отличия случаев с  $Q = 1$  и  $Q > 1$ .

На рис.3 можно видеть зависимость полного числа вакансий от времени при разных плотностях стоков при температурах  $T = 150\text{K}$  и  $T = 300\text{K}$ . Из вида зависимостей можно сделать следующие выводы: по мере увеличения плотности стоков возрастает количество выживших свободных вакансий, пульсации относительно стационарного облучения сглаживаются, а для температур  $T = 300\text{K}$  заметных отличий кривых при  $Q = 1$  и  $Q > 1$  нет. На рис.4 представлены кривые относительного числа выживших в процессе облучения вакансий. Величина  $\delta$  определяется выражением  $\delta = N_v(Q)/N_v(Q = 1)$ , где значение  $N_v(Q)$  выбирается непосредственно перед началом очередного импульса ионного пучка. Расчет показывает, что при комнатных температурах ( $T = 300\text{K}$ ), как и при очень низких температурах ( $T = 77\text{K}$ ), отличий непрерывного и импульсного облучений не наблюдается. Сглаживание пульсаций с увеличением плотности стоков особенно хорошо видно из рис.4б. На рис.5 представлена зависимость полного числа свободных вакансий от температуры облучения для импульсного ( $Q = 4$ ) и непрерывного облучения, для момента времени  $t = 0,108$  с. Суммируя результаты из рис.2 и рис.4 - 5, можно сделать заключение, что основные отличия случаев с  $Q = 1$  и  $Q > 1$  имеют место в температурном интервале от  $100\text{K}$  до  $200\text{K}$ . На рис.6 и рис.7 показано изменение относительного числа вакансий,  $\delta_1$ , выживших в процессе облучения, и относительной ширины профиля дефектов,  $\delta_2$ , в максимуме упругих потерь энергии с изменением плотности ионного потока  $F = 10^9, 10^{10}, 10^{11}$  и  $10^{12}$  ион/(см<sup>2</sup>с) для одного и того же флюенса в режиме непрерывного облучения при разных температурах. Здесь введены обозначения:  $\delta_1 = N_v(F)/N_v(F_{\text{мин}})$ , где  $F_{\text{мин}} = 10^9$  ион/(см<sup>2</sup>с), и значение относительной ширины профиля, определяемое соотношением:  $\delta_2 = X(F)/X(\sigma_d)$ , где  $X(\sigma_d)$  - ширина профиля дефектов на

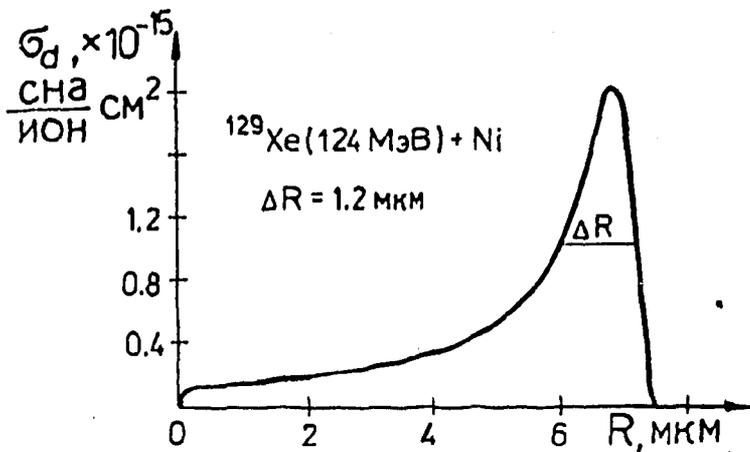


Рис. 1. Расчетное сечение дефектообразования ионов  $^{129}\text{Xe}$  с энергией  $E=124 \text{ МэВ}$  в никеле. Пороговая энергия смещений  $E_d = 29 \text{ эВ}$

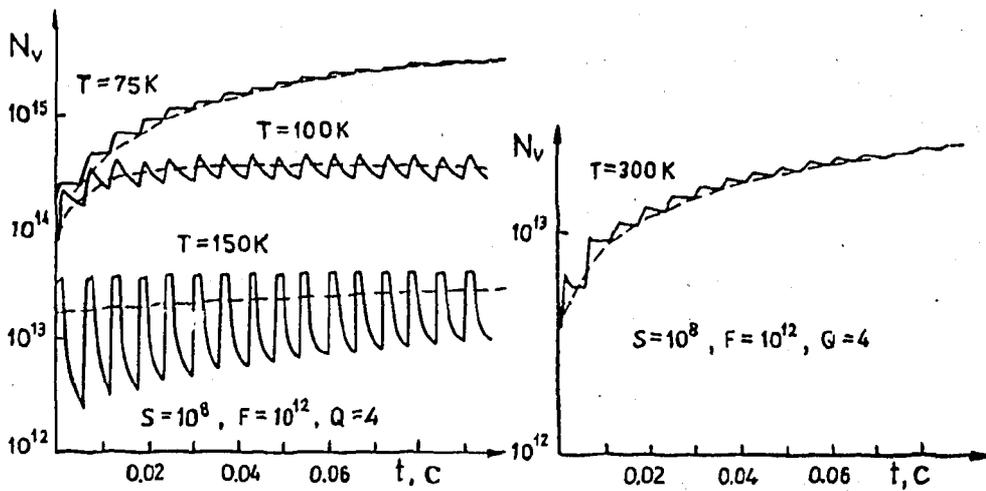


Рис. 2. Зависимость полного числа вакансий  $N_v$  в никеле от времени при различных температурах облучения ионами  $^{129}\text{Xe}$ . Штриховые линии -  $Q = 1$

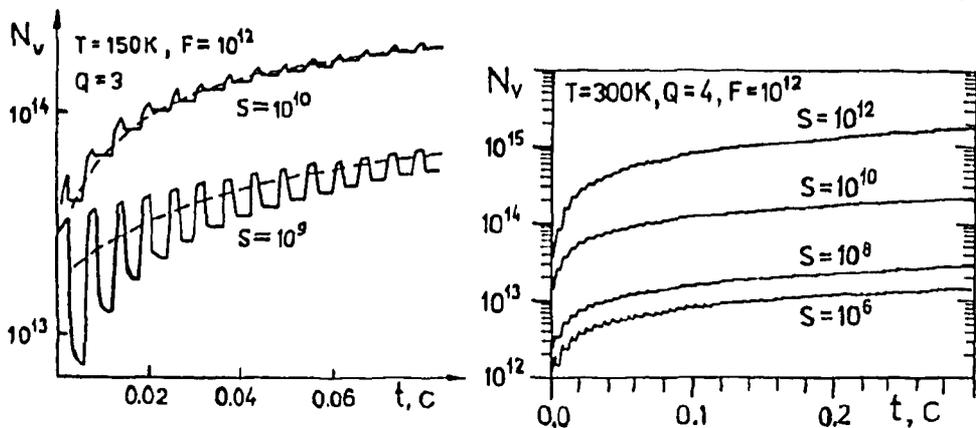


Рис. 3. Зависимость полного числа вакансий  $N_v$  в никеле от времени облучения ионами  $^{129}\text{Xe}$  при температурах  $T = 150 \text{ K}$  и  $T = 300 \text{ K}$  при разных плотностях стоков. Штриховые линии -  $Q = 1$

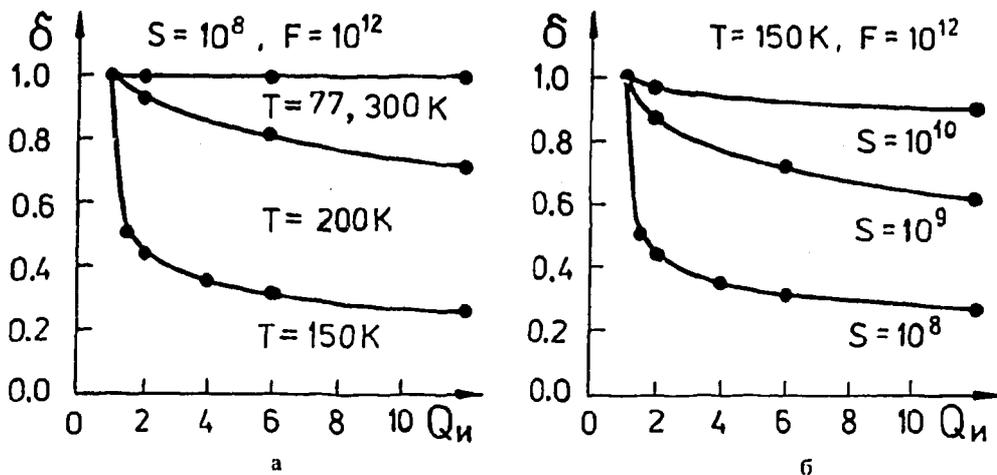


Рис. 4. Зависимость параметра  $\delta$  в никеле от скважности облучения  $Q$  для различных температур облучения при постоянной плотности стоков (а) и при температуре  $T = 150 \text{ K}$ , но с различными плотностями стоков (б)

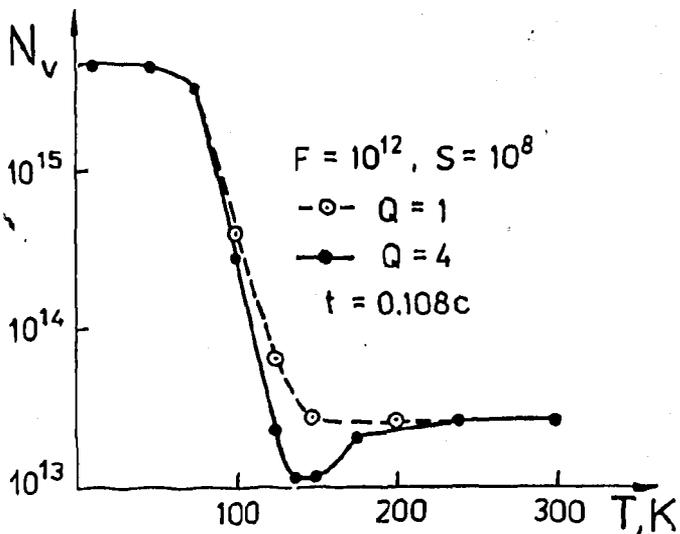


Рис. 5. Зависимость полного числа вакансий  $N_v$  в никеле от температуры облучения ионами  $^{129}\text{Xe}$  для импульсного и непрерывного режимов облучения в момент времени  $t = 0.108 \text{ с}$

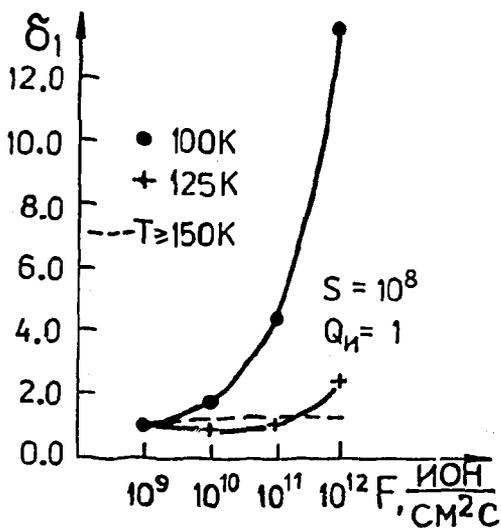


Рис. 6. Зависимость  $\delta_1$  от интенсивности ионных пучков для трех температур облучения

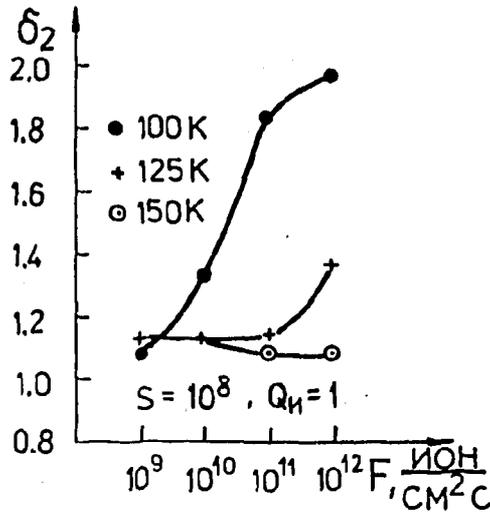


Рис. 7. Зависимость  $\delta_2$  от интенсивности ионных пучков при различных температурах облучения

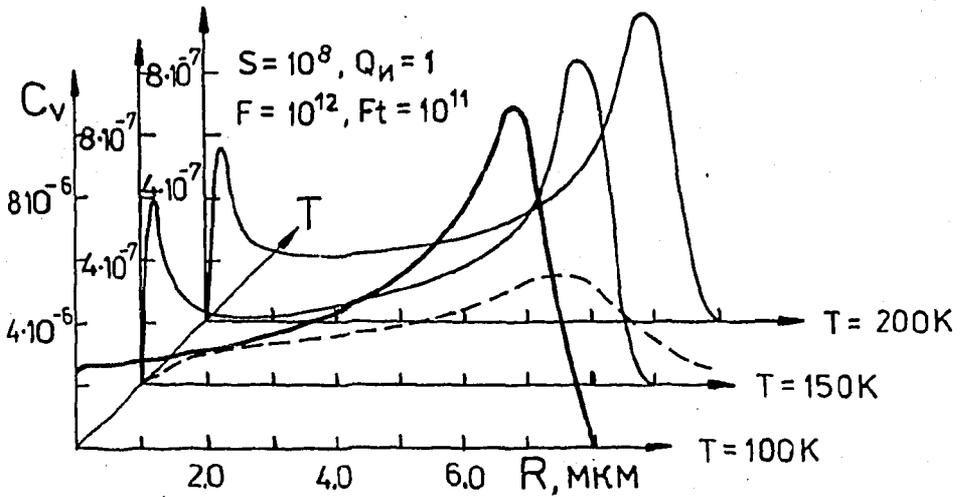


Рис. 8. Зависимость концентрации вакансий  $C_v(x)$  и междоузельных атомов  $C_i(x)$  по пробегу ионов Хе для разных температур. Случай с  $Q = 1$

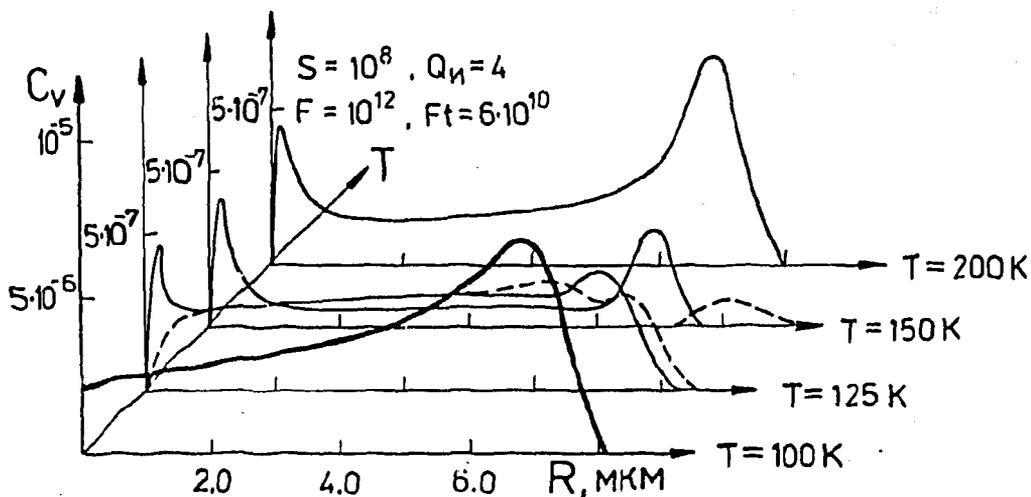


Рис. 9. Зависимость концентрации вакансий  $C_v(x)$  и междоузельных атомов  $C_i(x)$  по пробегу ионов Хе для разных температур. Случай с  $Q = 4$

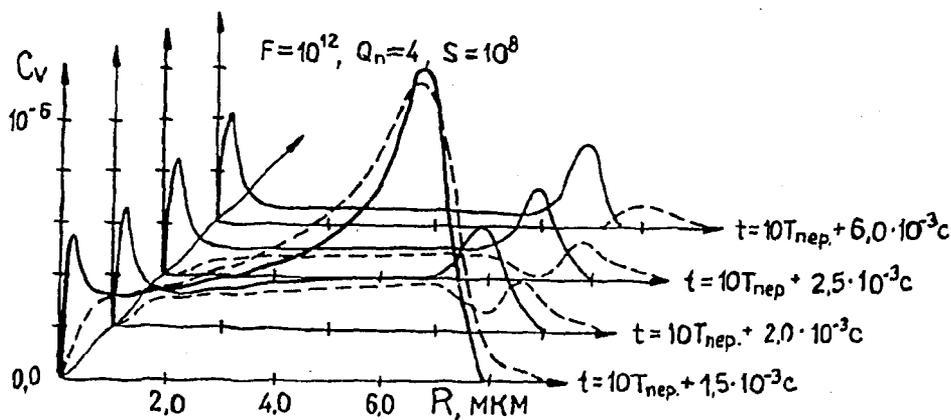


Рис. 10. Зависимость концентрации вакансий  $C_v(x)$  и междоузельных атомов  $C_i(x)$  по пробегу ионов  $^{129}\text{Xe}$  в различные моменты времени. Здесь  $T = 150 \text{ K}$

рис.1. Из рис.6 видно, что при температурах  $T > 150 K$   $\delta_1$  изменяется мало, а при  $T < 125 K$ , при относительно малых временах,  $\delta_1$  возрастает с увеличением плотности потока ионов. Ширины дефектных профилей  $\delta_2$  мало изменяются при температурах  $T > 150 K$  (для случая  $Q = 1$ ), в то время как для температуры  $T = 100 K$  профиль уширяется очень сильно. Это особенно заметно из рис. 8, на котором представлены характерные профили концентрации вакансий  $C_v(x)$  и междоузельных атомов  $C_i(x)$  (штриховые кривые) по пробегу ионов  $^{129}\text{Xe}$ . Повышение концентрации вакансий вблизи поверхности образца обусловлено выбором граничных условий, в соответствии с которыми поверхность - непасыщаемый сток для междоузельных атомов. На рис.9 можно видеть распределение концентраций  $C_v(x)$  и  $C_i(x)$  по пробегу иона  $^{129}\text{Xe}$  при флюенсе  $Ft = 6 \cdot 10^{10}$  ион/см<sup>2</sup> перед началом очередного импульса ионного пучка для разных температур облучения при  $Q = 4$ . В области температур от 100 K до 200 K, как и на рис.5, возникают сильные отличия формы дефектного профиля по сравнению с непрерывным облучением (рис.8). В частности, при температуре  $T = 125 K$  трудно ввести понятие ширины дефектного профиля. Кроме того, заметно, что за зоной пробега ионов образуется область колоколообразной формы, которая обусловлена подвижностью междоузельных атомов, а для непрерывного облучения имеется плавное спадание концентрации  $C_i(x)$  ( $T > 150 K$ ).

Отмеченные выше тенденции продемонстрированы на рис.10 в виде зависимостей изменений концентрации вакансий  $C_v(x)$  по пробегу ионов в различные моменты времени за один период импульсов ускорителя при набранном флюенсе  $Ft = 6 \cdot 10^{10}$  ион/см<sup>2</sup> при температуре облучения 150 K. Видно, что во время импульса ускорителя происходит увеличение концентраций дефектов, а в паузе между импульсами их поглощение стоками и взаимная аннигиляция. В зоне максимума дефектообразования за счет нелинейности уравнений (1),(2) процессы аннигиляции усилены, а за счет ухода междоузлий из этой зоны на кривой их концентрации образуется "провал", который обуславливает образование области колоколообразной формы за пробегом тяжелых ионов.

#### 4. ВЫВОДЫ

Из рис.1 - 10 можно сделать следующие выводы:

- При низких температурах облучения реализуется режим простого накопления дефектов, когда из-за малости коэффициентов диффузии  $D_{i,v}$  члены, учитывающие взаимную аннигиляцию точечных дефектов, малы. Различий между импульсным и непрерывным случаем практически не наблюдается (рис. 2,  $T = 77 K$ ).
- При комнатных температурах ( $T = 300 K$ ) влияние импульсности ионных пучков относительно небольшое, поскольку точечные дефекты успевают по-

плотности стоков, а вклад взаимной рекомбинации уменьшается. С уменьшением плотности стоков (см. рис.3), когда начинает преобладывать взаимная рекомбинация точечных дефектов, различия непрерывного и импульсного режимов облучения возрастают. При возрастании плотности стоков увеличивается концентрация выживших вакансий.

- В определенной области температур, которая, естественно, зависит от параметров модели, наблюдается режим быстрого выхода на квазистационарный уровень полного числа вакансий. При этих температурах междоузельные атомы обладают небольшой подвижностью и успевают аннигилировать с вакансиями, которые практически неподвижны, и частично поглощаются на стоках, за счет чего уменьшается полное число вакансий и происходит быстрый выход на квазистационарный режим. Из рис.4 хорошо видно, что по мере увеличения плотности стоков, когда возрастает вероятность поглощения ими междоузельных атомов, квазистационарный режим для вакансий может наступать при больших временах облучения. Заметим, что в этом температурном интервале полное число выживших вакансий для импульсного и непрерывного случаев облучения различно (см. также рис.2,  $T = 150\text{K}$ ).

Выполненный здесь сравнительно простой анализ позволяет сделать вывод о том, что существуют такие температурные режимы облучения, при которых можно уменьшить долю выживших радиационных дефектов за счет усиления процессов их рекомбинации и, тем самым, понизить радиационное воздействие. Этот расчетный эффект может иметь и практическое применение, например при имплантации при низких температурах электрически активных примесей в полупроводники со снижением процессов аморфизации.

Таким образом, можно сделать вывод о том, что в рассмотренной модели имеются определенные следствия, которые могли бы быть проверены на практике. Это касается режима быстрого достижения квазистационарного уровня для полных концентраций дефектов, зависимости концентрации вакансий от плотности стоков и уширения дефектного профиля, а также влияния импульсности на профили дефектов. При низкотемпературном облучении, когда скорость генерации дефектов сравнима со скоростью их рекомбинации, варьируя температуру облучения и определяя концентрации точечных дефектов, например, используя метод измерения электросопротивления, измеряя изменение постоянных решетки методом рентгеновской дифракции или же методом электрон-позитронной аннигиляции по угловой корреляции аннигиляционных  $\gamma$ -квантов, можно определить характерные величины параметров, входящих в уравнения (1)-(13).

В заключение обсудим влияние импульсности ионного облучения на эволюцию междоузельных и вакансионных петель, используя уравнения (10-13). Рост или растворение петель зависит от соотношения двух членов в этих выражениях:  $Z_v D_v C_v$  и  $Z_i D_i C_i^2$ . При высоких температурах, когда  $Z_v D_v C_v \geq Z_i D_i C_i^2$ , за счет значительного превышения концентраций вакансий по сравнению с концентрациями междоузельных атомов, которые поглощаются стоками и частично аннигилируют

с вакансиями, будет происходить уменьшение размеров междоузельных петель, в то время как вакансионные комплексы будут увеличивать свои размеры с более быстрым ростом их концентрации, так как оба члена в выражении (12) будут иметь одинаковые знаки. В области относительно невысоких температур, когда реализуется режим быстрого выхода средних концентраций дефектов на насыщение (см.рис.2), когда имеет место режим значительных колебаний относительно стационарного облучения, будет происходить уменьшение размеров вакансионных комплексов со снижением скорости роста их концентраций за счет того, что знаки в двух членах правой части выражения (12) противоположны. Это эффект будет усиливаться во время импульса пучка и в зоне остановки ионов (максимуме дефектообразования). В то же время междоузельные петли будут увеличивать свои размеры. При низких температурах, когда происходит только накопление точечных дефектов, эти процессы будут происходить практически так же, как и при стационарном облучении.

При отжиге образцов металлов, облученных тяжелыми ионами при температурах ниже температуры полной рекристаллизации, концентрация свободных междоузельных атомов быстро станет пренебрежимо малой, и будет выполняться условие  $Z_v D_v C_v \gg Z_i D_i C_i$ , что, в соответствии с уравнением (10), приведет к росту вакансионных комплексов и уменьшению размеров междоузельных петель за счет поглощения свободных вакансий. Заметим, что приведенные здесь рассуждения не затрагивают процессы образования вакансионных комплексов в каскадах смещений, которые учитываются через коэффициент  $\epsilon$  в уравнении (5).

## ЛИТЕРАТУРА

1. Ахизер И.А., Давыдов Л.И. Введение в теоретическую радиационную физику металлов и сплавов. Киев: Наукова Думка, 1985.
2. Kinetyk L.N., Somner W.F., Weertman J., Green W.V. An analitic comparison of the effect of steady state and cyclic pulsed radiation on void growth and swelling. J.Nucl.Mater. 85, 1979,p.553-557.
3. Lee E.H., Mansur L.K., Yoo M.H. Spatial variation in void volume during charged particle bombardment - the effects of injected interstitials. J. Nucl. Mater. 85&86. 1979. p.577-581.
4. Печенкин В.А. Период нестационарности концентраций точечных дефектов в теории распухания металлов. Журнал Технической Физики, т.52,вып.9, 1982, с.1712-1720.
5. Ghoniem S., Kulcinski G. Fully Dynamic Rate Theory (FDRPT) of Radiation Induced Swelling of Metals, Univ.of Wisc. UWFDM-180, 1976.
6. Manning I., Mueller G.P. Depth distribution of energy deposition by ion bombardment.- Comp. Phys. Com.,N7, 1974, p.85-92.
7. Davisson C.M., Manning I. Adaptation of a program for energy deposition by ion bombardment: better stopping powers. - Comput.Phys.Com., 42, 1986, p.137-147.

Рукопись поступила в издательский отдел  
13 июня 1995 года.