УДК 51-72+538.91

Условия роста периодических структур под облучением в модели «Быстрая релаксация-медленная диффузия»*

Журавлев В. М., Морозов В. М.

Самарский государственный аэрокосмический университет
имени академика С. П. Королёва (национальный исследовательский университет)

Настоящая работа посвящена исследованию условий возникновения под действием внешнего излучения периодических структур в кристаллических материалах. Во множестве экспериментальных работ показано, что при облучении кристаллов частицами, либо электромагнитным излучением на их поверхности и в объеме могут образовываться упорядоченные структуры – сверхрешетки, представляющие собой скопления точечных дефектов кристаллической решетки, таких как вакансии, межузельные атомы, атомы примесей и т. д. [1]. При этом наблюдается изменение свойств материала как в лучшую (увеличение твердости, прочности, радиационной стойкости и т. д.), так и в худшую сторону (охрупчивание, распухание, рост электрического сопротивления). В связи с этим задача о выяснении условий, при которых материалы под облучением меняют свою структуру, является актуальной задачей радиационной физики и реакторной техники, а также имеет важное значение для получения материалов с заданными свойствами.

При взаимодействии частиц излучения с кристаллической решеткой, происходит генерация пар дефектов вакансия-межузлие и дальнейшая их миграция (диффузия) с возможностью взаимной рекомбинации и выхода на стоки (граница кристалла, границы зерен, дислокации и пр.). Математически, все эти процессы могут быть описаны системой кинетических уравнений для соответствующих компонент (типов дефектов). Данные уравнения представляют собой уравнения диффузии с нелинейным источником в правой части.

Новизна предлагаемой модели, в том числе, заключается в рассмотрении уравнений, содержащих коэффициент диффузии, зависящий от концентрации дефектов, что приводит к нелинейной диффузии. Ранее было показано наличие у таких уравнений решений, описывающих упорядоченные структуры [2].

Сверхрешетки обладают следующими характерными особенностями: период значительно превосходит постоянную решетки материала [1], время роста значительно превосходит характерные времена процессов релаксации (генерации и рекомбинации). Исходя из того, что в такой системе наблюдается естественное разделение масштабов, для анализа системы уравнений можно применить метод многомасштабных разложений. В работе показано, что с помощью данного метода можно получить условие роста начального периодического распределения и оценить масштаб сверхрешетки.

В основу рассматриваемой модели положено уравнение диффузии точечных дефектов в кристалле. Рассмотрим предлагаемый метод анализа на примере уравнения для одного типа дефектов:

*Работа выполнена в рамках проекта 0777-2020-0018, финансируемого из средств государственного задания победителям конкурса научных лабораторий образовательных организаций высшего образования, подведомственных Минобрнауки России и частично в рамках проекта РФФИ 20-02-00280

$$\frac{\partial n}{\partial \tau} = \sum_{\alpha=1}^{3} \frac{\partial}{\partial z^\alpha} \left(D(n) \frac{\partial n}{\partial z^\alpha} \right) - \mu n + \gamma J(n) + G. \tag{1}$$

Здесь $D(n)$ – коэффициент диффузии как функция концентрации, слагаемое $J(n)$ учитывает эффекты связанные с взаимной рекомбинацией, а величина G описывает источник дефектов.

После обезразмеривания уравнение принимает вид:

$$\xi_t = \Delta F(\xi) - \xi + \varepsilon P(\xi) + g, \tag{2}$$

где $F(\zeta) = \dfrac{D_0}{a^2|\mu|} \dfrac{1}{N_0} \displaystyle\int^{\zeta N_0} \dfrac{D(n)}{D_0} dn$, $\;P(\xi) = J(N_0 \xi)$, $\;g = \dfrac{G}{(|\mu| N_0)}$. Безразмерный коэффициент $\varepsilon = \gamma(\mu N_0)^{-1}$ в данном варианте модели считается малым параметром (слабая рекомбинация) и определяет масштаб возникающей структуры.

Как отмечалось выше, в данной системе наблюдается разделение пространственных и временных масштабов, поэтому наряду со стандартными «быстрыми» переменными t и $\mathbf{x}$ введем «медленные» переменные $\mathbf{X} = \sqrt{\varepsilon}\, \mathbf{x}$, $T = \varepsilon\, t$.

В этом случае зависимость функции ξ от координат и времени может быть представлена в виде ряда разложения по малому параметру ε:

$$\xi(\mathbf{x}, t, \varepsilon) = \xi_0(t, \mathbf{X}, T) + \xi_1(t, \mathbf{X}, T)\varepsilon + O(\varepsilon^2). \tag{3}$$

Подставляя разложение функции ξ в уравнение (2) и приранивая нулю коэффициенты при различных степенях ε, получаем следующие решения в первых двух порядках:

$$\xi_0 = A(\mathbf{X}, T) e^{-t} + g(\mathbf{X}, T), \tag{4}$$

$$\xi_1 = A_1(\mathbf{X}, T) e^{-t} + e^{-t} \int_0^t e^{t'} \left[-\frac{\partial \xi_0}{\partial T} + \Delta_X F(\xi_0) - \xi_0^2 \right] dt', \tag{5}$$

где $A(\mathbf{X}, T)$ – постоянная интегрирования, в данном случае, зависящая от медленных переменных. Функцию $A(\mathbf{X}, T)$ и аналогичные ей функции будем называть **амплитудными факторами релаксации (АФР)**.

Интеграл в решении для ξ_1 содержит пропорциональные t «резонансные» слагаемые, условием обращения их в ноль является уравнение для АФР $A(\mathbf{X}, T)$:

$$\frac{\partial A}{\partial T} = \Delta_s \Big(\mathcal{D}(g) A \Big) + P'(g) A. \tag{6}$$

Данное уравнение записано для функции медленных переменных и описывает рост крупномасштабной структуры. Особенностью уравнения (6) является его линейность, при том, что исходное уравнение было существенно нелинейным. При этом коэффициенты уравнения зависят от величины безразмерного источника дефектов.

В случае постоянного источника, что соответствует начальной стадии облучения в тонком слое, когда присутствие дефектов не влияет на процесс их генерации, решение уравнения (6) следует искать в виде суперпозиции решений вида:

$$A(\mathbf{X}, T) = e^{pT} e^{-QZ} \Big(A_0 \cos(\mathbf{K}, \mathbf{X}) + B_0 \sin(\mathbf{K}, \mathbf{X}) \Big), \tag{7}$$

где инкремент медленного роста p связан с волновым вектором $\mathbf{K} = (K_X, K_Y)$ по медленным координатам X, Y и декрементом затухания $Q > 0$ по координате Z соотношением:

$$p = P'(g) - \Big(\mathbf{K}^2 - Q^2\Big)\mathcal{D}(g). \tag{8}$$

Подставляя решение для $A(\mathbf{X}, T)$ в решение (4), находим:

$$\xi_0 = e^{\delta t} e^{-QZ}\Big(A_0 \cos(\mathbf{K}, \mathbf{X}) + B_0 \sin(\mathbf{K}, \mathbf{X})\Big) + g. \tag{9}$$

Здесь $\delta = p\varepsilon - 1$ – безразмерный параметр роста. Условием роста периодических составляющих является требование $\delta > 0$, которое после подстановки (8), приобретает форму неравенства:

$$k_0^2 = \frac{\gamma J'\Big(\dfrac{G}{\mu}\Big) - \mu}{D\Big(\dfrac{G}{\mu}\Big)} + q^2 \geq k^2, \tag{10}$$

которое является условием для волновых чисел начального распределения и позволяет оценить масштаб возникающей структуры.

Как правило, источник дефектов G в кинетических уравнениях отождествляется с внешним источником облучения, однако это верно только при некоторых условиях. В общем случае, наличие дефектов в кристаллической решетке влияет на процесс их генерации и источник в уравнении должен это учитывать. Обобщение модели, предложенной выше, заключается в рассмотрении источника частиц в качетсве еще одной неизвестной функции, удовлетворяющей уравнению переноса излучения (частиц) в среде. Данное уравнение можно записать в таком виде:

$$g_\tau + \mathrm{div}\vec{J} = -\tilde{\lambda}_c(N_0 - n_v)g - \tilde{\lambda}_i n_i g - \tilde{\kappa} g, \tag{11}$$

где $g(\mathbf{x}, t)$ – концентрация налетающих частиц в среде. Первое слагаемое в правой части учитывает взаимодействие налетающей частицы с решеткой, где $N_0 - n_v$ – концентрация занятых узлов, а $\tilde{\lambda}_c$ – интенсивность взаимодействия. Слагаемое $-\tilde{\lambda}_i n_i g$ учитывает потерю энергии налетающей частицы (фактически ее выбывание из генерации) при столкновении с межузельным атомом, а $-\tilde{\kappa} g$ – рассеяние обусловленное прочими факторами.

В безразмерной форме система уравнений для пары дефектов и частиц излучения приобретает вид:

$$\begin{cases} h_t = -\frac{1}{\varepsilon^2}\frac{\partial h}{\partial z} - (1 - v)h - \lambda u h - \varepsilon \kappa h, \\ v_t = (1 - v)h - \gamma u v - \varepsilon \mu_v v + \nabla\left[\mathcal{D}_v(N_0 v, N_0 u)\nabla v\right], \\ u_t = (1 - v)h - \gamma u v - \varepsilon \mu_i u + \nabla\left[\tilde{\mathcal{D}}_i(N_0 v, N_0 u)\nabla u\right], \end{cases}$$

где $v = \dfrac{n_v}{N_0}$, $u = \dfrac{n_i}{N_0}$, $h = \dfrac{g}{N_0}$ – безразмерные концентрации вакансий, междоузлий и налетающих частиц.

В нулевом порядке решения можно записать в таком виде

$$\begin{aligned} V_0 &= b + \frac{a}{1 - Be^{-a\gamma t}}, \\ U_0 &= V_0 + \frac{\nu^2 - A^2}{A} - \nu^2, \end{aligned} \tag{12}$$

где $\nu = G_0\gamma$, $a = \dfrac{(\nu^2 + A^2(\mathbf{X}, T))}{A}$, $b = -\dfrac{\nu^2}{A}$.

Из (12) следует физический смысл функции $A(\mathbf{X}, T)$ – это асимптотика концентрации вакансий при $t \to \infty$. Отсюда следует два возможных механизма образования структуры. В первом случае струтура является эволюцией некоторого начального распределения и описывается АФР $B(\mathbf{X}, T)$. Для ее наблюдения необходимо ограничить время облучения характерным временем релаксации в (12). Во втором случае, при больших временах облучения, структура описывается функцией $A(\mathbf{X}, T)$.

В работе предложена модель роста периодических структур в кристаллах под облучением, основанная на уравнениях нелинейной диффузии точечных дефектов. Предложенная модель позволяет получить критерии роста периодических структур, оценить их масштаб и вычислить диффузионный профиль. Показано наличие критического значения волнового числа структуры. Также разработана модель, учитывающая насыщение источника дефектов с ростом их концентрации.

Литература

1. Ghoniem, N., Walgraef, D. Zinkle, S. Theory and experiment of nanostructure self-organization in irradiated materials. Journal of Computer-Aided Materials Design 8, 1–38 (2001).

2. Журавлев В. М. Принцип суперпозиции и точные решения уравнения нелинейной диффузии // ТМФ, 2015. Т. 183, № 1. С. 36–50.

3. Doyle Peter J., Benensky Kelsa M., Zinkle Steven J. Modeling the impact of radiation-enhanced diffusion on implanted ion profiles, Journal of Nuclear Materials, 2018. Vol. 509. pp. 168-180.

MSC2020 35G50, 35K86

Conditions for the growth of periodic structures under irradiation in the «Fast relaxation-slow diffusion» model

V. M. Zhuravlev, V. M. Morozov

S.P. Korolev Samara National Research University