

[8] Ван Дузер Т., Тернер Ч.У. Физические основы сверхпроводниковых устройств и цепей. М.: Радио и связь, 1984. 344 с.

Поступило в Редакцию
4 января 1991 г.

Письма в ЖТФ, том 17, вып. 5

12 марта 1991 г.

05.1; 05.3

© 1991

РАСПАД РАСТВОРОВ ПОД ОБЛУЧЕНИЕМ И РАДИАЦИОННОЕ РАСПУХАНИЕ

Ю.В. Трушин

Облучение твердых растворов быстрыми ионами может стимулировать распад таких растворов с выпадением выделений вторичной фазы. Такой распад называют радиационно-индуцированным [1]. Как показали эксперименты по композициям разного состава [2-5], а также теоретические расчеты [6-9], радиационно-индуцированный распад может быть тем физическим процессом, который способствует снижению радиационного повреждения твердых растворов и, в частности, радиационного распухания.

Покажем это на примере двухкомпонентного твердого раствора, облучаемого жестким излучением. Формирующиеся при распаде выделения вторичной фазы проходят две основные стадии [1]: когерентных предвыделений и обособившихся выделений. Наиболее интересной с точки зрения снижения радиационного распухания является первая стадия [6].

Пусть когерентные предвыделения выпадают радиусом R_p с деформацией внутри них $\varepsilon_I > 0$, т.е. распад идет с положительным объемным эффектом. Пренебрегая упругой анизотропией (и амизотропией формы выделений), примем, что внутренние напряжения в сжатых выделениях σ_p^I и в растянутой матрице σ_p^{II} постоянны [10, 11] и $S_p \sigma_p^I > 0$, $S_p \sigma_p^{II} < 0$, причем в среднем по объему выполняется условие равновесия

$$v_p S_p \sigma_p^I + (1 - v_p) S_p \sigma_p^{II} = 0, \quad (1)$$

где v_p — объемная доля предвыделений.

Пока в ходе распада твердого раствора не произошла потеря когерентности на поверхности предвыделений, вокруг них имеются также значительные касательные напряжения. Роль внутренних напряжений характеризуется следующими особенностями: а) локальные

упругие поля b_p тем больше, чем больше разность атомных радиусов атомов матрицы r_0 и выпадающей примеси r_a (размерное несоответствие); б) напряжения, наибольшие на стадии образования предвыделений, т.е. эффект проявляется сильнее в сплавах с длинным инкубационным периодом и усиливается при увеличении числа мест зарождения преципитатов; в) влияние распада на потоки точечных дефектов к дислокациям и другим стокам тем сильнее, чем более равномерно выделения распределены в объеме матрицы, т.е. чем более однороден распад.

Генерируемые облучением разноименные точечные дефекты ведут себя по-разному в сжатых и растянутых областях материала. В условиях восходящей диффузии под облучением из предвыделений преимущественно выходят межузельные атомы, а из матрицы формирующиеся выделения - вакансии, но с меньшей скоростью, поскольку вакансии менее подвижны. В ходе облучения в матрице пересыщение по межузельным атомам оказывается выше, чем по вакансиям. При этом диффузионные потоки межузельных атомов на стоки q (дислокации, границы зерен, поверхность) снижены в результате происходящего перераспределения концентраций разноименных радиационных дефектов, что приводит к появлению дополнительных мелких неподвижных кластеров межузельного типа (Q) в объеме матрицы и последующей их рекомбинации с медленно движущимися вакансиями (аномальная рекомбинация). Изменение условий пересыщения разноименных точечных дефектов при наличии предвыделений по сравнению с их отсутствием должно сказаться на функциях распределения стоков $f_q(R_q)$ по размерам R_q .

В силу повышенной концентрации межузельных атомов (как свободных, так и в составе кластеров) в матрице (по сравнению с твердым раствором без выделений) возрастает вероятность их рекомбинации с вакансиями. Именно наличие в распадающемся твердом растворе внутренних напряжений нужного знака, создаваемых предвыделениями, приводит к аномальной рекомбинации разноименных дефектов. Непосредственным проявлением этого эффекта является подавление радиационного распухания, т.е. уменьшение выхода межузельных атомов на структурные стоки - дислокации, границы зерен, поверхность.

В работах [8, 9] получено общее выражение для скорости распухания гетерогенного материала. Применим его для случая, когда в материале формируются только когерентные предвыделения, адсорбирующие вакансии, т.е. выделения P сжаты. Тогда выражение для скорости распухания имеет вид

$$\begin{aligned} \dot{\gamma} = & (1 - \nu_p) \left\{ (\Omega - \Delta\Omega_U) (\dot{\xi}_D^i + \dot{\xi}_A^i) + (\Omega + \Delta\Omega_i^Q - \Delta\Omega_U) \dot{\xi}_Q^i + \right. \\ & + (\Omega + \Delta\Omega_i^{L_i} - \Delta\Omega_U) \dot{\xi}_{L_i}^i - (\Delta\Omega_U^V - \Delta\Omega_U) \dot{\xi}_V^U - (\Delta\Omega_U^{L_U} - \Delta\Omega_U) \dot{\xi}_{L_U}^U - \\ & \left. - (\Delta\Omega_U^P - \Delta\Omega_U) \left(\frac{\nu_p}{1 - \nu_p} g^P + \dot{\xi}_P^U \right) + \nu_p (1 - \nu_p)^{-1} g^P (\Omega + \Delta\Omega_i^P - \Delta\Omega_U) \right\}, \end{aligned} \quad (2)$$

где ξ_j^j - результирующее (с учетом рекомбинации на стоке q) число дефектов j , осевших на стоках q в единице объема в единицу времени, Ω - атомный объем, $\Delta\Omega_j^q$ - релаксация объема дефекта j на стоке q , g^p - скорость генерации дефектов в предвыделении, $q = D$ - дислокации, $q = A$ - поверхность, $q = V$ - поры, $q = L_j$ - дислокационные петли межузельного типа при $j = i$ и вакансионного типа при $j = \sigma$, $q = Q$ - мелкие межузельные кластеры. Последнее слагаемое в (2) описывает эффект выхода межузлий из сжатого предвыделения Р в матрицу. Если к тому же: 1) пренебречь релаксациями $\Delta\Omega_j^q$ по сравнению с атомным объемом Ω и 2) положить одинаковыми релаксации объемов вакансий в порах, дислокационных вакансионных петлях и в свободном состоянии $\Delta\Omega_V^V \approx \Delta\Omega_{L_j}^V \approx \Delta\Omega_{\sigma}^V$, то получим

$$\dot{y} \approx (1 - \nu_p) \Omega \left(\xi_D^i + \xi_A^i + \xi_Q^i + \xi_{L_i}^i + \frac{\nu_p}{1 - \nu_p} g^p \right) - (\Delta\Omega_V^p - \Delta\Omega_{\sigma}^p) \left[\nu_p g^p + (1 - \nu_p) \xi_p^{\sigma} \right]. \quad (3)$$

Преобразуя (3), согласно [8, 9], и вводя скорости $J_q^j(R_q)$ и эффективности $K_D^j(r_x)$ поглощения точечных дефектов j стоками, имеем

$$\dot{y} = (1 - \nu_p) \Omega \left\{ \rho_D (K_D^i - K_D^{\sigma}) + \int [J_Q^i(R_Q) - J_Q^{\sigma}(R_Q)] f_Q(R_Q) dR_Q + \int [J_{L_i}^i(R_{L_i}) - J_{L_i}^{\sigma}(R_{L_i})] f_{L_i}(R_{L_i}) dR_{L_i} + \nu_p g^p \Omega - (\Delta\Omega_V^p - \Delta\Omega_{\sigma}^p) [\nu_p g^p + (1 - \nu_p) \int J_p^{\sigma}(R_p) f_p(R_p) dR_p] \right\}. \quad (4)$$

Из формул (2-4) видно: 1) влияние на скорость распухания материала формирующихся в процессе распада выделений вторичной фазы, 2) связь процесса распухания с такими характеристиками стоков, как их плотность ρ_D , распределения по размерам $f_q(R_q)$, интенсивности $J_q^j(R_q)$ и эффективности $K_D^j(r_x)$ поглощения точечных дефектов.

Проведем оценку по (4) величины скорости распухания \dot{y} в распадающемся под облучением твердом растворе на стадии формирования когерентных предвыделений вторичной фазы в рамках сформулированной модели и сопоставим полученную величину с \dot{y}_0 в отсутствие выделений.

Если в твердом растворе без выделений ($\nu_p = 0$) имеются дислокации ($q = D$), а облучение создает поры ($q = V$) и межузельные дислокационные петли ($q = L_i$), то выражение (4) примет вид

$$\dot{y}_0 = \Omega \left\{ \rho_D (K_D^i - K_D^{\sigma}) + \int [J_{L_i}^i(R_{L_i}) - J_{L_i}^{\sigma}(R_{L_i})] f_{L_i}(R_{L_i}) dR_{L_i} \right\} = \Omega \bar{R}_V^0 C_V^0 \left[\alpha_V^{\sigma} D_{\sigma} C_{\sigma}^+ \left(1 + \frac{x_{V_0}^{\sigma}}{C_{\sigma}^+} \right) - \alpha_{V_0}^i D_i C_{i_0}^+ \left(1 + \frac{x_{V_0}^i}{C_{i_0}^+} \right) \right], \quad (5)$$

где $C_{j_0}^+$ - стационарные пересыщения по дефектам j (при $\nu_p = 0$), C_V^+ - средняя концентрация пор, D_j - коэффициент диффу-

зии дефектов j , $\alpha_{q_0}^j$, $\chi_{q_0}^j$ - коэффициенты, зависящие от материала. Следовательно, баланс частиц приведет в такой упрощенной схеме к обычной формуле для \dot{y}_0 , позволяющей оценить распухание по количеству нескомпенсированных вакансий, собранных в вакансионные поры. Именно такой баланс и послужил основой объединения понятий радиационное распухание и вакансионное порообразование в единый термин вакансионное распухание. На самом деле, как видно из (2) и (4), баланс (5) выполняется лишь в некоторых частных случаях.

Когда в твердом растворе выпадают когерентные предвыделения, то формула (4) переходит (см. [8, 9]) в

$$\dot{y} = (1 - \nu_p) \Omega \left\{ g_i - g_v - \frac{\Delta \Omega \nu - \Delta \Omega \nu}{\Omega} \frac{\nu_p}{1 - \nu_p} g^p + \alpha_p^{\nu} \bar{R}_p C_p D_{\nu} C_{\nu}^+ \left(1 + \frac{\chi_p^{\nu}}{C_{\nu}^+} \right) \times \right. \\ \left. \times \left(1 - \frac{\Delta \Omega \nu - \Delta \Omega \nu}{\Omega} \right) + \bar{R}_v C_v \left[\alpha_v^{\nu} D_{\nu} C_{\nu}^+ \left(1 + \frac{\chi_v^{\nu}}{C_{\nu}^+} \right) - \alpha_i^{\nu} D_i C_i^+ \left(1 + \frac{\chi_i^{\nu}}{C_i^+} \right) \right] \right\}, \quad (6)$$

где $g_i - g_v = \nu_p g^p (1 - \nu_p)^{-1}$.

Из сравнения \dot{y} по (6) и \dot{y}_0 по (5) видно, что снижение (или подавление) распухания может происходить в нашей модели лишь путем уменьшения количества вакансий в порах. В свою очередь, этого можно достигнуть лишь повышением рекомбинации вакансий с межузлиями как свободными, так и связанными в кластеры (например, $q = Q$).

Для вычисления отношения \dot{y}/\dot{y}_0 необходимо в обоих случаях ($\nu_p = 0$ и $\nu_p \neq 0$) осуществить самосогласованную процедуру расчета с целью исключения из $C_{j_0}^+$ и C_j^+ зависимостей от сумм сил стоков $k_{j_0}^2$ и k_j^2 . Для этого необходимо найти функциональные связи $\bar{R}_q^0 C_q^0$ и $R_q C_q$ с пересыщениями $C_{j_0}^+$ и C_j^+ . Эту процедуру довольно сложно осуществить аналитическим путем. Однако для простейшей системы приближений такой расчет проведен в [9] для материала с параметрами никеля: $\nu = 1/3$, $G = 8 \cdot 10^{11}$ дн.см⁻², $\rho_D = 10^{10}$ см⁻², $b = 3 \cdot 10^{-8}$ см, $\Delta \Omega_{\nu}/\Omega = 0.23$, $\Delta \Omega_{\nu}/\Delta \Omega_{\nu}^p = 0.8$, $\nu_p = 0.1$ при температуре $T = 600$ К и $g^p \approx g_i \approx g_v \approx 10^{16}$ см⁻³ с⁻¹. Оценка отношения \dot{y} по (6) и \dot{y}_0 по (5) дает $\dot{y}/\dot{y}_0 \approx 0.18$. Таким образом, показано, что скорость распухания распадающегося твердого раствора, в котором формируются когерентные предвыделения, снижается примерно в 5 раз по сравнению с материалом, не содержащим предвыделений, что хорошо согласуется с данными экспериментов [2-5].

Пользуясь результатами [2-5] по изучению структуры дисперсионно-твердеющих сплавов с развитым однородным распадом, заметим, что в них, как правило, либо не наблюдаются поры, либо их концентрация мала. Это соответствует развитым модельным представлениям о механизме аномальной рекомбинации разноименных радиационных дефектов. Так, если на мелких межузельных кластерах Q , образующихся в матрице при развитом распаде,

присходит интенсивная рекомбинация с вакансиями, то и не должно быть свободных вакансий для формирования пор, а эти кластеры являются рекомбинаторами. Поэтому, исходя из результатов работ [2-5], предположим, что в распадающемся твердом растворе с $U_p \neq 0$; а) отсутствуют поры ($q = V$), б) образующиеся межзельные кластеры Q являются рекомбинаторами, т.е. количество разноименных точечных дефектов j , оседающих на этих стоках Q в единицу времени в единице объема одинаково, следовательно $\dot{\xi}_Q^i = 0$. Тогда, в силу предположения а), в формуле (6) нужно положить $\bar{R}_V C_V = 0$, что дает

$$\dot{j} = (1 - U_p) \Omega [g_i - g_V - (\Delta \Omega_V^p - \Delta \Omega_V) \Omega^{-1} U_p (1 - U_p)^{-1} g^p + \alpha_p^U \bar{R}_p C_p D_U C_U^+ (1 + \alpha_p^U / C_U^+) (1 - \frac{\Delta \Omega_V^p - \Delta \Omega_V}{\Omega})]. \quad (7)$$

Для количественного сравнения величин \dot{j}_0 по (5) и \dot{j} по (7) положим, что $\Delta \Omega_V^p \approx \Delta \Omega_V$, а также примем $\alpha_{g_0}^d / C_{j_0}^+ \approx \alpha_p^U / C_U^+ + 0$. Тогда с учетом вышеизложенного имеем

$$\frac{\dot{j}_0}{\dot{j}} \approx \frac{\bar{R}_V C_V^0}{\bar{R}_p C_p} \left(1 - \frac{k_{V_0}^2}{k_{i_0}^2}\right) \frac{C_{U_0}^+}{C_U^+} \left[1 + U_p \left(\frac{k_{U_0}^2}{\alpha_p \bar{R}_p C_p} - 1\right)^{-1}\right]. \quad (8)$$

Отношение сумм сил стоков $k_{V_0}^2 / k_{i_0}^2$ в материале без преципитатов всегда меньше 1, $C_{U_0}^+ / C_U^+ \sim 1$, и можно показать, что $(k_{U_0}^2 / \alpha_p \bar{R}_p C_p) - 1 \approx 1$, тогда получаем

$$\dot{j}_0 / \dot{j} \approx \bar{R}_V C_V^0 (1 + U_p) / \bar{R}_p C_p.$$

Пользуясь данными для материала с $U_p \neq 0$ из работы [12] ($R_p = 2-3 \cdot 10^{-7}$ см, $C_p \approx 10^{16}$ см $^{-3}$), а для $\bar{R}_V C_V^0$ выбирая, как и в [13-15], соответственно, $\bar{R}_V^0 \approx 8 \cdot 10^{-7}$ см, $C_V^0 \approx 2 \cdot 10^{16}$ см $^{-3}$, также получаем, что $\dot{j}_0 / \dot{j} \approx 5$.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Физическое материаловедение. / Ред. Р. Кан. П. Хаазен. Т. 1-3. М.: Металлургия, 1987.
- [2] Зеленский В.Ф., Неклюдов И.М., Матвиенко В.В. и др. В кн.: Реакторное материаловедение. М.: ЦНИИ Атоминформ, 1978. Т. 2. С. 21-43.
- [3] Горынин И.В., Паршин А.М. // Атомная энергия. 1981. Т. 50. С. 319-324.
- [4] Горынин И.В., Зеленский В.Ф., Паршин А.М. и др. В кн.: Радиационные дефекты в металлах. Алам-Ата: Наука, 1981. С. 265-272.
- [5] Паршин А.М. Структура и радиационное распухание сталей и сплавов. М.: Энергоатомиздат, 1983. 56 с.

- [6] Орлов А.Н., Паршин А.М., Трушин Ю.В. // ЖТФ. 1983. Т. 53. С. 2367-2372.
- [7] Orlov A.N., Pompe W., Trushin Yu.V. In: Proc. Int. Conf. "Energy Pulse Modification of Semiconductors and Related Materials", Sept. 1984. Dresden. Berlin-Verlag. P. 635-639.
- [8] Трушин Ю.В., Орлов А.Н. // ЖТФ. 1986. Т. 56. С. 1302-1310.
- [9] Трушин Ю.В. В сб.: Вопросы теории дефектов в кристаллах. Л.: Наука, 1987. С. 133-144.
- [10] Pompe W., Bahr H.-A., Gille G. In: Modern Theories and Experimental Evidence. Amsterdam, 1985. V. 12. P. 213-471.
- [11] Теодосиу К. Упругие модели дефектов в кристаллах. М.: Мир, 1985. 306 с.
- [12] Brailsford A.D. // J. Nucl. Mater. 1981. V. 102. P. 54-65.
- [13] Brailsford A.D., Bullough R. // J. Nucl. Mater. 1972. V. 44. P. 121-138.
- [14] Heald P.T. // Phil. Mag. 1975. V. 31. P. 555-558.
- [15] Bullough R., Quigley T.M. // J. Nucl. Mater. 1981. V. 104. P. 1397-1402.

Физико-технический институт
им. А.Ф. Иоффе АН СССР,
Ленинград

Поступило в Редакцию
7 декабря 1990 г.

Письма в ЖТФ, том 17, вып. 5

12 марта 1991 г.

05.1

© 1991

МЕЛКИЕ МЕЖУЗЕЛЬНЫЕ КЛАСТЕРЫ КАК РЕКОМБИНАТОРЫ В РАСПАДАЮЩИХСЯ ТВЕРДЫХ РАСТВОРАХ ПОД ОБЛУЧЕНИЕМ

Ю.В. Трушин

В экспериментальных работах [1, 2] показано, что в материалах с однородным интенсивным распадом происходит подавление радиационного распухания. В предложенной нами модели [3-7], объясняющей этот эффект, снижение распухания связывается с усилением рекомбинации разноименных дефектов в таких материалах. Для этого необходимо формирование дополнительных рекомбинаторов. Как известно, таковыми могут являться, например, дислока-