

## Образование сверхрешеток плотности дефектов в бинарных соединениях при ядерном облучении

© В.В. Михайловский, К.С. Расселл, В.И. Сугаков

Институт ядерных исследований Академии наук Украины,  
252650 Киев, Украина

E-mail: vvmih@ukrpack.net

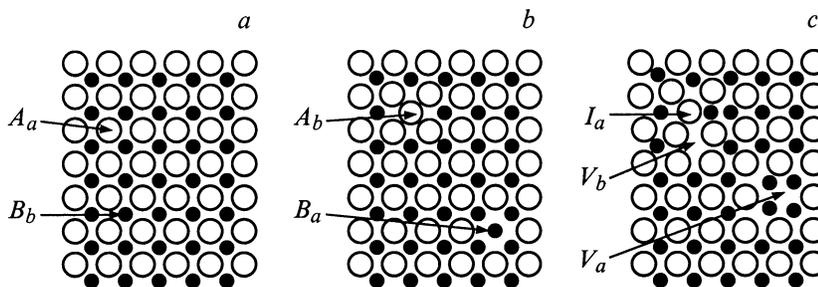
(Поступила в Редакцию 11 января 1999 г.  
В окончательной редакции 24 июня 1999 г.)

Исследуется проявление антиструктурных дефектов в кристаллах под облучением. Расчеты показывают, что концентрация таких дефектов может быть велика при типичных значениях интенсивности облучения и температуры. Показано, что накопление антиструктурных дефектов и взаимодействие между ними может привести к неустойчивости системы во время облучения по отношению к пространственно неоднородным возмущениям. Неустойчивость приведет к периодической модуляции плотности антиструктурных дефектов. Получена область неустойчивости в зависимости от параметров кристалла и облучения.

Работа выполнена при содействии Фонда фундаментальных исследований Министерства наук Украины и Фонда гражданских исследований и развития США (грант N UE2-319).

Изучение динамики фазовых диаграмм под облучением является одним из центральных вопросов радиационной физики многокомпонентных систем [1]. Теоретическому исследованию особенностей фазовых переходов в сплавах под облучением посвящены работы [2–4]. Однако наличие нескольких атомов разного сорта в элементарной ячейке может обуславливать появление новых эффектов при облучении также в области температур далеких от температуры фазового перехода. В данной работе рассматривается неустойчивость упорядоченного бинарного сплава под облучением по отношению к образованию периодического распределения плотности антиструктурных дефектов. Антиструктурные дефекты возникают при замещении атомом атома другого сорта. Так в кристалле, состоящем из атомов сорта А и В, антиструктурный дефект возникает при попадании междоузельного атома А на место вакансии атома В (рис. 1). Существует значительное число экспериментальных работ, посвященных обнаружению и изучению антиструктурных дефектов (см. [5]). В данной работе показано, что при ядерном облучении кристалла концентрация антиструктурных дефектов значительно возрастает и проявляются эффекты взаимодействия между ними. Качественно возрастание числа анти-

структурных дефектов объясняется следующим образом. При облучении создаются вакансии и междоузельные атомы. В условиях интенсивного облучения главным механизмом гибели межузлий и вакансий является их рекомбинация. При этом атом сорта А рекомбинирует как с вакансиями атома А, что приводит к уничтожению дефектов, так и с вакансиями атома В, что приводит к возникновению антиструктурного дефекта  $A_b$ . Однако положение в чужом узле менее энергетически выгодно для атома, чем в своем. Поэтому если к антиструктурному дефекту  $A_b$  подойдет вакансия  $V_a$ , то атом перейдет в нее и антиструктурный дефект исчезнет (а вакансия станет другого типа). Кроме того, антиструктурный дефект может быть вытеснен из узла междоузельным атомом другого типа. При прекращении облучения концентрация антиструктурных дефектов релаксирует к термодинамически равновесному значению. Таким образом, в условиях ядерного облучения число антиструктурных дефектов определяется не условиями термодинамического равновесия, а кинетическими процессами в кристаллах при облучении. Антиструктурные дефекты можно рассматривать как квазичастицы, которые рождаются облучением и имеют конечное время жизни.



**Рис. 1.** Схема расположения атомов в упорядоченном сплаве: *a* — полностью упорядоченный сплав, *b* — антиструктурные дефекты, *c* — междоузельный атом и вакансия перед рекомбинацией, которая приводит к образованию антиструктурного дефекта.

Вследствие различия размеров атомов разного сорта вокруг антиструктурного дефекта создаются упругие поля, которые приводят к взаимодействию между дефектами. При большой концентрации антиструктурных дефектов кристалл становится неустойчивым по отношению к пространственной перестройке и образованию сверхрешеток. Аналогичная неустойчивость рассматривалась в [6,7] при взаимодействии вакансий или междоузельных атомов, захваченных на ловушки. Фазовые превращения в системе нестабильных, взаимодействующих между собой, постоянно генерируемых частиц одного сорта с учетом флуктуаций изучались в работах [8,9]. Однако для реализации периодической плотности вакансий, требуется очень высокая интенсивность облучения, а для периодической плотности междоузельных атомов на ловушках требуется присутствие специальной примеси, создающей глубокую ловушку. Как будет показано, рассматриваемые в данной работе периодические распределения плотности антиструктурных дефектов реализуются в чистых кристаллах при типичных интенсивностях облучения.

Модуляция плотности композиционного состава сплава и возникновение периодических структур при облучении наблюдались в ряде экспериментальных работ [10–13]. Так в работах [10,11] обнаружены микроосцилляции состава Fe–Ni и Fe–Ni–Cr сплавов при облучении 5 MeV ионами Ni<sup>+</sup>.

## 1. Кинетические уравнения для однородной системы

В этой части работы определяются концентрации дефектов, возникающих при облучении, в предположении, что они однородно распределены по кристаллу. Затем будет исследована устойчивость однородного распределения.

Рассмотрим процессы, проходящие в бинарном сплаве под облучением. Под действием потока высокоэнергетических частиц атомы кристалла обоих сортов выбиваются из узлов решетки. При этом образуются междоузельные атомы и вакансии, которые мигрируют по кристаллу, рекомбинируют или захватываются стоками (дислокациями и поверхностью кристалла). Введем обозначения:  $I_A(I_B)$  — концентрация междоузельных атомов типа  $A(B)$ ;  $V_a(V_b)$  — концентрация вакансий, локализованных на узлах  $a(b)$ ;  $A_a(B_b)$  — концентрация атомов типа  $A(B)$ , расположенных на своих узлах;  $A_b(B_a)$  — концентрация атомов типа  $A(B)$ , расположенных на узлах  $b(a)$ , т.е. антиструктурных дефектов,  $T$  — температура образца. Используются безразмерные единицы длины, в которых объем одной кристаллической ячейки равен единице, при этом концентрация дефектов равна среднему числу дефектов в одной ячейке. Предполагается, что в кристаллической ячейке находится по одному узлу каждого типа. Для определения временных зависимостей концентраций дефектов используется квазихимическое

описание реакций между дефектами (см. [14]). Изменения концентраций дефектов описываются следующими уравнениями:

$$\begin{aligned} \frac{dI_A}{dt} = & K_{ai}^A A_a - K_{ia}^A I_A V_a - K_{ib}^A I_A V_b + K_{bi}^A A_b - K_{ib}^{AB} I_A B_b \\ & + K_{ib}^{BA} I_B A_b + K_{ia}^{BA} I_B A_a - K_{ia}^{AB} I_A B_a - \alpha_{I_A} (I_A - nI_A) \\ & + K_0 [A_a + A_b - z(V_a + V_b)/2], \end{aligned} \quad (1)$$

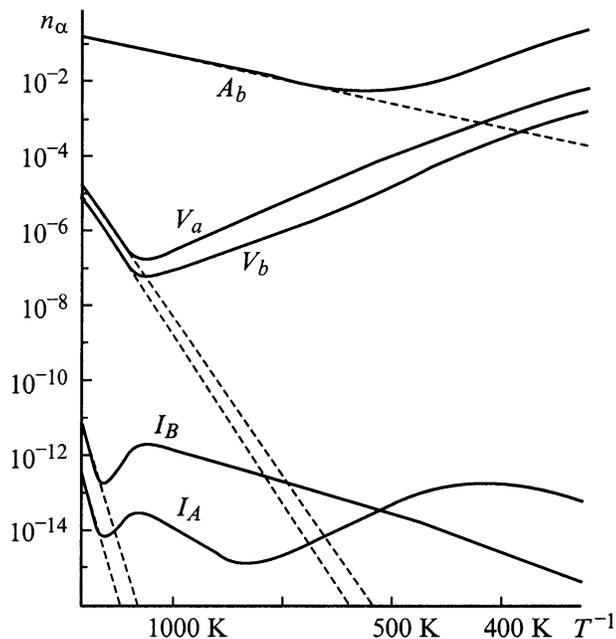
$$\begin{aligned} \frac{dV_A}{dt} = & K_{ai}^A A_a - K_{ia}^A I_A V_a - K_{ia}^B I_B V_a + K_{ai}^B B_a - K_{ba}^B V_a B_b \\ & + K_{ab}^B V_b B_a + K_{ab}^A V_b A_a - K_{ba}^A V_a A_b \\ & - \alpha_{V_A} (V_a - nV_a) + K_0 (1 - zV_a) (A_a + B_a), \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \frac{dA_b}{dt} = & K_{ib}^A I_A V_b - K_{bi}^A A_b + K_{ib}^{AB} I_A B_b - K_{ib}^{BA} A_b I_B \\ & + K_{ab}^A V_b A_a - K_{ba}^A V_a A_b - \alpha_{I_A} (I_A - nI_A) A_b / 2 \\ & + \alpha_{I_B} (I_B - nI_B) B_b / 2 + \alpha_{V_A} (V_a - nV_a) / 2 \\ & - K_0 (A_b - zV_b) + K_1 (1 - 2A_b). \end{aligned} \quad (3)$$

Уравнения для изменения концентраций  $I_B$ ,  $V_b$  и  $B_a$  записываются аналогично после замены  $A \leftrightarrow B$  и  $a \leftrightarrow b$ . Уравнения изменения концентраций  $A_a$  и  $B_b$  записываются так, что выполняются законы сохранения числа узлов обоих типов:  $A_a + B_a + V_a = 1$  и  $B_b + A_b + V_b = 1$ . Как будет видно, концентрации вакансий на несколько порядков меньше концентраций атомов на узлах. Поэтому при определении однородного распределения дефектов для упрощения полагается  $A_a = 1 - B_a$  и  $B_b = 1 - A_b$ .

В кинетических уравнениях учтены процессы рекомбинации междоузельных атомов и вакансий (слагаемые с коэффициентами  $K_{ia}^A$ ,  $K_{ib}^B$ ,  $K_{ib}^A$  и  $K_{ia}^B$ ), термического перехода атомов решетки и антиструктурных дефектов в междоузельное положение ( $K_{ai}^A$ ,  $K_{bi}^B$ ,  $K_{bi}^A$  и  $K_{ai}^B$ ), вытеснения атома из узла междоузельным атомом ( $K_{ia}^{AB}$ ,  $K_{ib}^{BA}$ ,  $K_{ib}^{AB}$  и  $K_{ia}^{BA}$ ) и переход атома из одной подрешетки в другую при движении вакансии ( $K_{ba}^A$ ,  $K_{ab}^B$ ,  $K_{ab}^A$  и  $K_{ba}^B$ ). Также включены слагаемые с коэффициентами  $\alpha_{I_A}$ ,  $\alpha_{I_B}$ ,  $\alpha_{V_A}$  и  $\alpha_{V_B}$ , описывающие поглощение дефектов насыщенными стоками (дислокациями и поверхностью кристалла), а также слагаемые, описывающие радиационное создание пар Френкеля ( $K_0$ ) и антиструктурных дефектов вследствие каскада смещений атомов вдоль ряда, в котором типы атомов чередуются ( $K_1$ ). Поглощение дефектов насыщенными стоками, радиационное создание дефектов и динамическая рекомбинация атома в каскаде вакансий (слагаемое с  $z$ ) записаны по аналогии с [2]; коэффициенты  $\alpha$  пропорциональны плотности дислокаций.

Коэффициенты  $K$  связаны известными соотношениями с коэффициентами диффузии и между собой. Например, для скорости рекомбинации междоузельных атомов и



**Рис. 2.** Зависимость концентрации дефектов разного типа от обратной температуры при облучении с интенсивностью  $10^{-5}$  dpa/s. Концентрация антиструктурных дефектов  $B_a$  совпадает с концентрацией  $A_b$ .

вакансий типа А, можно записать [14]

$$K_{ia}^A = 4\pi R_c D_{IA}^0 \exp(-E_{dIA}/kT),$$

где  $D_{IA}^0 \exp(-E_{dIA}/kT)$  — коэффициент диффузии междоузельных атомов типа А,  $R_c$  — радиус рекомбинации. Для скорости обратного процесса в соответствии с принципом детального равновесия записывается

$$K_{ai}^A = K_{ia}^A e^{-(E_{IA} + E_{Va})/kT},$$

где  $E_{IA}$  и  $E_{Va}$  — энергии образования соответствующих дефектов. Остальные коэффициенты записываются аналогично. В данной работе значения энергий образования дефектов и параметры диффузии полагаются независимыми от концентраций дефектов, что справедливо при их малой концентрации (в используемых безразмерных единицах концентрации дефектов должны быть намного меньше единицы).

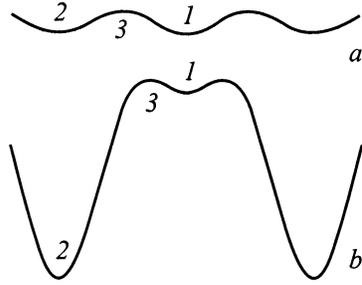
Некоторые из параметров известны, для некоторых известен только порядок величин, входящих в уравнения (1)–(3). В частности, экспериментальное определение параметров диффузии в многокомпонентных системах вызывает сложности из-за большого числа процессов, происходящих в них [15]. Расчеты проводились при следующих значениях параметров сплава (использовались значения для Fe и Ni из [16]:  $E_{IA} = 4.1$  eV,  $E_{IB} = 3.7$  eV,  $E_{Va} = 1.5$  eV,  $E_{Vb} = 1.6$  eV,  $E_{Ab} = 0.25$  eV,  $E_{Ba} = 0.25$  eV,  $E_{dIA} = 0.3$  eV,  $E_{dIB} = 0.15$  eV,  $E_{dVa} = 1.3$  eV,  $E_{dVb} = 1.25$  eV.

На рис. 2 представлены стационарные решения системы уравнений (1)–(3) при скорости радиационного создания дефектов  $K_0 = 10^{-5}$  dpa/s как функции от  $1/T$ . При отсутствии облучения концентрации дефектов определяются формулой  $n_\alpha \sim \exp(-E_\alpha/kT)$ , где  $\alpha = I_A, I_B, V_a, V_b$  или  $A_b$  — тип дефекта,  $E_\alpha$  — его энергия образования. Эти зависимости отображаются на графике прямыми линиями. Из рис. 2 видно, что при больших температурах облучение слабо влияет на концентрацию точечных дефектов, как это и должно быть вследствие их быстрого оттока на ненасыщаемые стоки [2]. При малых температурах концентрации точечных дефектов определяются в основном условиями равновесия между созданием дефектов облучением и их оттоком благодаря диффузии. Кроме того, из рис. 2 видно, что концентрации антиструктурных дефектов на несколько порядков превышают концентрации вакансий и междоузельных атомов. Проведенный анализ показал, что в данном случае основным процессом, приводящим к уменьшению числа антиструктурных дефектов, является переход атома в свою подрешетку при движении вакансии (т. е. процессы  $A_b + V_a \rightarrow A_a + V_b$  и  $B_a + V_b \rightarrow B_b + V_a$ ).

## 2. Кинетические уравнения для неоднородной системы

Большое количество антиструктурных дефектов в системе приводит к возникновению значительных упругих полей. Это может привести к тому, что однородное распределение дефектов может оказаться неустойчивым. Для того чтобы исследовать систему на устойчивость по отношению к пространственно неоднородным возмущениям, уравнения (1)–(3) необходимо модифицировать. В случае неоднородного распределения дефектов переходы атомов по разным направлениям уже не являются равновероятными из-за разности концентраций и энергий дефектов с разных сторон от рассматриваемой точки. Учет этого в приближении малости градиентов концентраций дефектов приводит к включению в уравнения (1)–(3) диффузионных слагаемых. Уравнения получаются очень громоздкими и не могут быть приведены здесь в полном виде. Поэтому для иллюстрации приведем обобщение уравнений (1)–(3) на случай неоднородного распределения дефектов только для некоторых процессов. Будем считать, что теплопроводность кристалла велика, а распределение температуры является однородным.

При рассмотрении неоднородного распределения дефектов по кристаллу значительно усложняются слагаемые, описывающие различные процессы в уравнениях (1)–(3). Для примера рассмотрим слагаемые, описывающие изменение концентрации междоузельных атомов  $I_A$  вследствие их рекомбинации с вакансиями  $V_a$ , а также в результате обратного процесса: термического распада атома  $A_a$  на междоузельный атом и вакансию (в однородном случае этот процесс описывается первыми двумя слагаемыми в уравнении (1)). На рис. 3 приведен качественный вид энергетического профиля для атома



**Рис. 3.** Энергия атома при его движении по междоузельным положениям (а) и при рекомбинации с вакансией (б). 1 — рассматриваемое междоузельное положение, 2 — соседнее положение равновесия; 3 — положение, в котором энергия атома максимальна.

при его движении между узлом и междоузельным положением. С учетом активационного характера движения следует записать

$$\left(\frac{\partial I_A(\mathbf{r})}{\partial t}\right)_{\text{rec}} = \sum_j \left[ -v_1 I_A(\mathbf{r}) V_a(\mathbf{r} + \mathbf{d}_j) \times \exp(-(E_3 - E_1)/kT) + v_2 A_a(\mathbf{r} + \mathbf{d}_j) \times \exp(-(E_3 - E_2)/kT) \right], \quad (4)$$

при этом  $E_3 - E_1$  и  $E_3 - E_2$  — энергии активации рассматриваемых процессов рекомбинации и распада (рис. 3), в неоднородном случае эти энергии зависят от координат:  $E_1 = E_{I_a}(\mathbf{r}) + E_{V_a}(\mathbf{r} + \mathbf{d}_j)$ ;  $E_2 = E_{A_a}(\mathbf{r} + \mathbf{d}_j)$ ;  $E_3 = E_{ia}^A(\mathbf{r} + \alpha_{ia}^A \mathbf{d}_j) + E_{V_a}(\mathbf{r} + \mathbf{d}_j)$ .  $\mathbf{r}$  — радиус-вектор междоузельного положения; суммирование происходит по всем узлам, с вакансиями на которых возможна рекомбинация;  $\mathbf{d}_j$  — векторы, приводящие из  $\mathbf{r}$  в эти новые положения;  $v_1$  и  $v_2$  — предэкспоненциальные множители;  $E_{ia}^A$  — максимальная энергия атома при движении из узла в междоузельное положение или обратно;  $\alpha_{ia}^A$  характеризует точку, в которой энергия максимальна. Для простоты считаем, что все движение происходит вдоль одной прямой. В формуле (4) опущены слагаемые, описывающие остальные процессы и явно не рассматриваемые в данном примере.

Далее предполагаем, что энергии и концентрации дефектов слабо меняются на расстояниях порядка межатомных, и мы можем разложить все функции в ряд Тейлора и ограничиться квадратичными по  $\mathbf{d}_j$  слагаемыми. Для примера рассмотрим

$$\sum_j V_a(\mathbf{r} + \mathbf{d}_j) \approx \sum_j \left[ V_a(\mathbf{r}) + (\mathbf{d}_j)_\alpha \frac{\partial}{\partial r_\alpha} V_a(\mathbf{r}) + \frac{1}{2} (\mathbf{d}_j)_\alpha (\mathbf{d}_j)_\beta \frac{\partial}{\partial r_\alpha} \frac{\partial}{\partial r_\beta} V_a(\mathbf{r}) \right].$$

Здесь  $(\mathbf{d}_j)_\alpha$  — проекция соответствующего вектора, суммирование идет по индексам  $\alpha$  и  $\beta$ . После суммирования

по  $j$  линейные по  $\mathbf{d}_j$  слагаемые исчезнут. Кроме того, для кубического кристалла можно записать

$$\sum_j (\mathbf{d}_j)_\alpha (\mathbf{d}_j)_\beta = \frac{1}{3} \sum_j (\mathbf{d}_j)^2 \delta_{\alpha\beta} = \frac{1}{3} Z \langle \mathbf{d}_{ia}^2 \rangle \delta_{\alpha\beta},$$

где  $Z$  — число положений, по которым проводится суммирование. В результате получаем

$$\sum_j V_a(\mathbf{r} + \mathbf{d}_j) \approx Z V_a(\mathbf{r}) + \frac{1}{6} Z \langle \mathbf{d}_{ia}^2 \rangle \Delta V_a(\mathbf{r}),$$

где  $\Delta$  — оператор Лапласа.

Проведя аналогичным образом разложение и суммирование по  $j$  всего выражения (4), с учетом того, что  $K_{ia}^A = v_1 Z \exp(-(E_{ia}^A - E_{I_a})/kT)$  и  $K_{ai}^A = v_2 Z \times \exp(-(E_{ia}^A - E_{A_a} + E_{V_a})/kT)$ , получим

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial I_A(\mathbf{r})}{\partial t}\right)_{\text{rec}} &= -K_{ia}^A I_A(\mathbf{r}) V_a(\mathbf{r}) + K_{ai}^A A_a(\mathbf{r}) \\ &+ \frac{1}{6} \langle \mathbf{d}_{ia}^2 \rangle \left[ -K_{ia}^A I_A(\mathbf{r}) \Delta V_a(\mathbf{r}) + K_{ai}^A \Delta A_a(\mathbf{r}) \right] \\ &+ \frac{1}{6} \langle \mathbf{d}_{ia}^2 \rangle \left[ K_{ai}^A A_a(\mathbf{r}) \frac{\Delta(E_{A_a} - E_{V_a})}{kT} \right. \\ &+ \left. \left( K_{ia}^A I_A(\mathbf{r}) V_a(\mathbf{r}) - K_{ai}^A A_a(\mathbf{r}) \right) (\alpha_{ia}^A)^2 \frac{\Delta E_{ia}^A}{kT} \right] \\ &+ \frac{1}{3} \langle \mathbf{d}_{ia}^2 \rangle \left[ K_{ia}^A I_A(\mathbf{r}) \nabla V(\mathbf{r}) \alpha_{ia}^A \frac{\nabla E_{ia}^A}{kT} \right. \\ &+ \left. K_{ai}^A \nabla A_a(\mathbf{r}) \frac{\nabla(E_{A_a} - E_{V_a} - \alpha_{ia}^A E_{ia}^A)}{kT} \right] \\ &+ \frac{1}{6} \langle \mathbf{d}_{ia}^2 \rangle \left[ -K_{ia}^A I_A(\mathbf{r}) V_a(\mathbf{r}) \left( \alpha_{ia}^A \frac{\nabla E_{ia}^A}{kT} \right)^2 \right. \\ &+ \left. K_{ai}^A A_a(\mathbf{r}) \left( \frac{\nabla(E_{A_a} - E_{V_a} - \alpha_{ia}^A E_{ia}^A)}{kT} \right)^2 \right]. \end{aligned}$$

Первые два слагаемых данного уравнения совпадают с соответствующими слагаемыми уравнения (1). Линейные по неоднородным величинам слагаемые необходимо учитывать при исследовании на устойчивость. Слагаемые в последних двух строчках квадратичны по неоднородным величинам и не повлияют на устойчивость однородного распределения.

Рассмотрение неоднородных систем, кроме усложнения уже существующих в (1)–(3) слагаемых, требует учета процессов диффузии дефектов без их превращений или рекомбинаций. Для примера рассмотрим детально диффузию атомов типа А по междоузельным положениям. С учетом активационного характера движения изменение концентрации междоузельных атомов вследствие

этого процесса записывается в следующем виде:

$$\left(\frac{\partial I_A(\mathbf{r})}{\partial t}\right)_{\text{diff}} = \sum_j v \left[ -I_A(\mathbf{r}) \exp(-(E_3 - E_1)/kT) + I_A(\mathbf{r} + \mathbf{d}_j) \exp(-(E_3 - E_2)/kT) \right], \quad (4a)$$

при этом  $E_3 - E_1$  и  $E_3 - E_2$  — энергии активации рассматриваемых процессов переходов атомов из и в точку  $\mathbf{r}$  (рис. 3):  $E_1 = E_{I_A}(\mathbf{r})$ ,  $E_2 = E_{I_A}(\mathbf{r} + \mathbf{d}_j)$ ,  $E_3 = E_{ii}^A(\mathbf{r} + \mathbf{d}_j/2)$ .  $\mathbf{r}$  — радиус-вектор междоузельного положения; суммирование происходит по всем междоузельным положениям, на которые возможен переход атома;  $\mathbf{d}_j$  — векторы, приводящие из  $\mathbf{r}$  в эти новые положения,  $v$  — предэкспоненциальный множитель,  $E_{ii}^A$  — максимальная энергия атома при движении между междоузельными положениями.

Проведя разложение и суммирование по  $j$  выражения (4a) и введя коэффициент диффузии

$$D_{ii}^A(\mathbf{r}) = \frac{1}{6} v Z \langle \mathbf{d}_{ii}^2 \rangle \exp\left(-\frac{(E_{ii}^A(\mathbf{r}) - E_{I_A}(\mathbf{r}))}{kT}\right),$$

получим

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial I_A(\mathbf{r})}{\partial t}\right)_{\text{diff}} &= D_{ii}^A \left[ \Delta I_A(\mathbf{r}) + I_A(\mathbf{r}) \frac{\Delta E_{I_A}}{kT} + \nabla I_A(\mathbf{r}) \frac{\nabla(2E_{I_A} - E_{ii}^A)}{kT} + I_A(\mathbf{r}) \frac{\nabla(E_{I_A} - E_{ii}^A) \nabla E_{I_A}}{kT^2} \right] \\ &= -\text{div} \left[ D_{ii}^A \left( -\nabla I_A(\mathbf{r}) - I_A(\mathbf{r}) \frac{\nabla E_{I_A}}{kT} \right) \right]. \end{aligned}$$

Таким образом, при рассмотрении переходов атомов между междоузельными положениями получается известное уравнение диффузии в поле внешней силы.

Взаимодействие между дефектами вводится в систему уравнений через энергии  $E_\alpha(\mathbf{r})$  ( $\alpha = I_A, I_B, V_a, V_b, A_b$  или  $B_a$  — тип дефекта), которые в случае неоднородного кристалла являются суммой соответствующей энергии для однородного кристалла и энергии взаимодействия  $U_\alpha(\mathbf{r})$

$$E_\alpha(\mathbf{r}) = E_\alpha + U_\alpha(\mathbf{r}). \quad (5)$$

Будем учитывать взаимодействие различного типа дефектов только с антиструктурными дефектами, так как их концентрация наиболее велика. Энергию взаимодействия дефекта  $\alpha$  запишем в виде

$$U_\alpha(\mathbf{r}) = \int d\mathbf{r}' U_\alpha^A(\mathbf{r} - \mathbf{r}') A_b(\mathbf{r}') + \int d\mathbf{r}' U_\alpha^B(\mathbf{r} - \mathbf{r}') B_a(\mathbf{r}'), \quad (6)$$

где  $U_\alpha^A$  и  $U_\alpha^B$  — энергии взаимодействия дефекта с единичным дефектом  $A_b$  и  $B_a$  соответственно. Будем учитывать только упругое взаимодействие между дефектами, возникающее из-за того, что атомы  $A$  и  $B$  имеют разные размеры.

В кристаллах с малой анизотропией энергию упругого взаимодействия между дефектами на расстояниях намного больших, чем период решетки, можно записать в известном виде [17]

$$U_\alpha^A(\mathbf{r})_{r \rightarrow \infty} = \frac{3\Delta V_\alpha \Delta V_{A_b}}{8\pi r^3} \left(\frac{K}{C_{11}}\right)^2 \times (-C_a) \left[ 3 - 5(\cos^4 \theta_x + \cos^4 \theta_y + \cos^4 \theta_z) \right], \quad (7)$$

где  $C_a$  — параметр анизотропии (отрицательный для большинства кристаллов),  $C_{11}$  и  $K$  — упругие постоянные,  $\theta_i$  — угол между радиус-вектором  $\mathbf{r}$  и  $i$ -й осью кристалла ( $i = x, y, z$ ),  $\Delta V_{(\alpha, A_b, B_a)}$  — параметр, который характеризует изменение объема, обусловленное введением дефекта.

Из формулы (7) следует, что взаимодействие дальше, убывает с расстоянием как  $1/r^3$  и имеет сложную угловую зависимость. Для некоторых направлений имеет место притяжение, для некоторых — отталкивание. Для дефектов одного типа энергия взаимодействия отрицательна, т. е. имеет место притяжение, если радиус-вектор, соединяющий дефекты, направлен вдоль направления (100), и имеет место отталкивание вдоль диагонали куба. Для вакансий  $\Delta V_{(V_a, V_b)} < 0$ , для междоузельных атомов  $\Delta V_{(I_a, I_b)} > 0$ , для антиструктурных дефектов изменение объема зависит от разницы размеров атомов  $A$  и  $B$ .

Если расстояние между дефектами сравнимо с периодом решетки, то формула (7) несправедлива. Так, для  $r \rightarrow 0$  энергия взаимодействия положительна и велика, так как два дефекта не могут располагаться в одной точке.

В дальнейшем нам потребуется Фурье-образ энергии взаимодействия [17]

$$U_\alpha^A(\mathbf{k}) = \int d\mathbf{r} U_\alpha^A(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r}) = \left(\frac{K}{C_{11}}\right)^2 \times (-C_a) \left( \Delta V_\alpha \Delta V_{A_b} \frac{k_x^4 + k_y^4 + k_z^4}{k^4} + \beta k^2 \right). \quad (8)$$

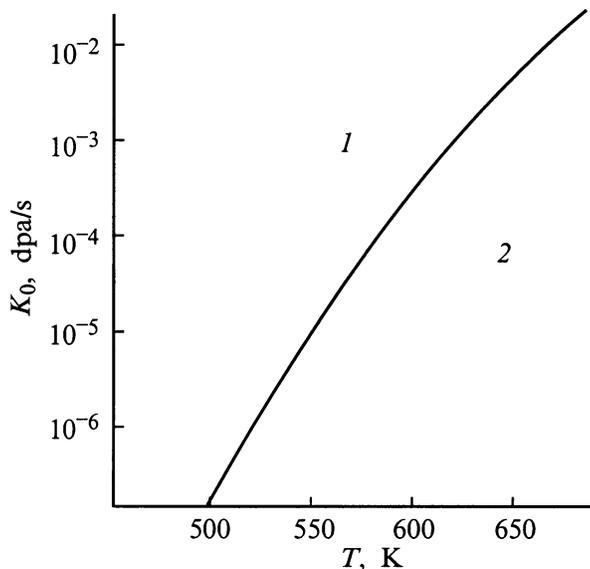
Первое слагаемое в (8) описывает дальнейшее упругое взаимодействие (7). Оно имеет сложную угловую зависимость. Второе слагаемое связано с короткодействующим отталкиванием между дефектами. Учет этого слагаемого важен для построения устойчивого неоднородного решения. Значение  $\beta$  порядка 1 в безразмерных единицах или порядка квадрата постоянной обратной решетки в размерных. В действительности (8) — это разложение потенциальной энергии по степеням  $k^2$ , в котором нулевой порядок определяется упругим взаимодействием.

### 3. Неустойчивость однородного состояния по отношению к образованию сверхрешеток плотности дефектов

При однородных распределениях дефектов новые кинетические уравнения совпадают с уравнениями (1)–(3). Поэтому новые уравнения имеют однородные стационарные решения те же, что и система (1)–(3). Для исследования устойчивости однородного решения по отношению к пространственно неоднородным флуктуациям рассмотрим малые отклонения всех концентраций дефектов от стационарных значений. Для концентраций вакансий запишем

$$V_a = V_a^0 + \delta V_a^0 \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r} + \lambda t), \quad (9)$$

где  $V_a^0$  — однородное стационарное решение. Аналогичные выражения записываются и для  $V_b, I_A, I_B, A_b$  и  $B_b$ . Затем эти значения подставляются в кинетические уравнения и линеаризуются по малым  $\delta$ . Решения представляют собой наборы собственных чисел  $\lambda = \lambda(\mathbf{k})$  и соответствующих им собственных возмущений. При определенных условиях при некотором значении  $\mathbf{k} = \mathbf{k}_c$  действительная часть одного или нескольких  $\lambda(\mathbf{k})$  становится положительной. Это означает, что система неустойчива по отношению к флуктуациям с волновым вектором  $\mathbf{k}_c$ , что приводит к возникновению сверхрешетки с таким волновым вектором. Было обнаружено, что в данном случае  $\lambda(\mathbf{k})$  — действительны, и поэтому критическое значение для возникновения неустойчивости определяется уравнением  $\lambda(\mathbf{k}) = 0$ .



**Рис. 4.** Области устойчивости по отношению к возникновению пространственно неоднородных возмущений в координатах интенсивности облучения и температуры образца. 1 — область неустойчивости, 2 — область устойчивости.

Взаимодействие учитывалось для следующих параметров кристалла (упругие константы взяты для Ni из [17]):  $C_a = -200$  МПа,  $C_{11} = 250$  МПа,  $K = 180$  МПа;  $\Delta V_{I_A} = 1.5$ ,  $\Delta V_{I_B} = 1.1$ ,  $\Delta V_{V_a} = \Delta V_{V_b} = -0.1$ ,  $\Delta V_{A_b} = 0.65$ ,  $\Delta V_{B_a} = -0.05$ ,  $\beta = 1$ .

На рис. 4 приведена область неустойчивости однородного решения на плоскости температуры и интенсивности облучения. Кривая делит плоскость на две части. В области 1 однородное решение неустойчиво, в области 2 — устойчиво. При температурах и интенсивностях облучения, которые соответствуют области 1, в системе должно образоваться периодическое распределение плотности дефектов (сверхрешетка).

### 4. Обсуждение

Явление возникновения расслоения компонентов при учете их взаимодействия наблюдается при спиновальном распаде [18,19], возникающем, например, при быстром охлаждении системы с однородным распределением дефектов. Однако при спиновальном распаде исследуются стабильные частицы, в то же время рассматриваемые в данной работе антиструктурные дефекты создаются внешним облучением и живут конечное время. Конечность времени жизни приводит к существенно отличному поведению рассматриваемой системы с дефектами с конечным временем жизни и спиновальным распадом [20].

1) При спиновальном распаде периодическая структура существует только на начальных стадиях распада. При больших временах система стремится к состоянию с большими областями различных фаз [21]. В рассматриваемом случае периодическое распределение плотности является стационарным решением и представляет собой диссипативную структуру, существующую в неравновесных условиях [22]. Линейный анализ, проведенный в данной работе, не позволяет определить амплитуду колебаний плотности. В [6] для системы взаимодействующих нестабильных частиц с временем жизни  $\tau$  одного сорта показана устойчивость периодического распределения с периодом, пропорциональным  $\tau^{1/4}$ .

2) Период сверхрешетки, которая возникает при спиновальном распаде, не зависит от кинетических коэффициентов, например, от коэффициента диффузии частиц. В системе нестабильных частиц период существенно зависит от кинетических коэффициентов. Кривая на рис. 4 определяет только порядок величин пороговых значений возникновения неустойчивости. Точное значение порога и периода структуры для конкретного кристалла определить трудно из-за отсутствия надежных данных о некоторых параметрах. В частности, имеется разброс до eV в значениях энергий междоузельных атомов [16], а для диффузии в многокомпонентных системах известны только характерные значения. В дальнейшем мы проанализируем качественное поведение процесса возникновения неустойчивости при изменении параметров кристалла.

Главные результаты расчетов: 1) волновой вектор сверхрешетки направлен вдоль кристаллической оси; 2) период сверхрешетки зависит от плотности дислокаций; при изменении плотности дислокаций от  $10^6$  до  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$  период  $d$  ( $d = 2\pi/k_c$ ) меняется от  $10^5$  до  $300 \text{ nm}$ ; 3) из всех взаимодействий между разнообразными дефектами в образовании сверхрешетки главную роль играет взаимодействие междуузельных атомов с антиструктурными дефектами; 4) возникают одновременно сверхрешетки плотностей антиструктурных дефектов типа  $A_b$  и  $B_a$ , и, если  $\Delta V_{A_b}$  и  $\Delta V_{B_a}$  имеют разные знаки, фазы сверхрешеток сдвинуты на  $180^\circ$ ; 5) при рассматриваемых параметрах критическое значение плотности антиструктурных дефектов, при которых возникает неустойчивость,  $A_b \approx 0.0015$ ; 6) несмотря на то что система многопараметрическая, возникновение неустойчивости зависит только от некоторых из параметров: энергии образования антиструктурных дефектов, энергии активации диффузии вакансий и междуузельных атомов и величины упругого взаимодействия между дефектами; 7) при уменьшении энергии образования антиструктурных дефектов, область неустойчивости смещается в сторону меньших температур (при рассматриваемых параметрах на  $30 \text{ K}$  при уменьшении  $E_{A_b}$  и  $E_{B_a}$  на  $0.05 \text{ eV}$ ); 8) прямое рождение антиструктурных дефектов при каскаде смещений не существенно влияет на область неустойчивости; главный эффект вносит создание облучением френкелевских пар; 9) с увеличением энергии активации диффузии вакансий область неустойчивости сдвигается в сторону больших температур.

- [14] В.Л. Винецкий, Г.А. Холодарь. Радиационная физика полупроводников. Наук. думка, Киев (1979). 336 с.
- [15] В.Т. Бублик, М.Г. Мильвидский. Материаловедение **1**, 21 (1997).
- [16] А.Н. Орлов, Ю.В. Грушин. Энергии точечных дефектов в металлах. Энергоиздат, М. (1983). 81 с.
- [17] Г. Лейбфрид, Н. Бройер. Точечные дефекты в металлах. Введение в теорию. Мир, М. (1981). 440 с.
- [18] Ю.И. Устиновщиков. Выделение второй фазы в твердых растворах. Наука, М. (1988). 174 с.
- [19] А.Г. Хачатурян. Теория фазовых превращений и структура твердых растворов. Наука, М. (1974). 350 с.
- [20] V.I. Sugakov. Lectures in Synergetics. World Scientific, Singapore (1998). 207 p.
- [21] L.F. Mazenko. Phys. Rev. **B43**, 7, 5747 (1991).
- [22] Г. Николис, И. Пригожин. Самоорганизация в неравновесных системах. Мир, М. (1979).

## Список литературы

- [1] Progress in Material Science. **28**, 3–4, 229 (1984).
- [2] S. Banerjee, K. Urban. Phys. Stat. Sol. (a) **81**, 1, 145 (1984).
- [3] A.S. Bakai, A.A. Turkin. Radiation-modified phase diagrams of binary alloys. In: Effect of Radiation on Materials. 15th Int. Symp. / Ed. by R.E. Stoller, A.S. Kumar, D.S. Gelles. American Society for Testing and Materials, Philadelphia (1992). P. 709.
- [4] В.Г. Вакс, С.В. Бейден. ЖЭТФ **105**, 4, 1017 (1994).
- [5] А. Сакалас, З. Янушкявичюс. Точечные дефекты в полупроводниковых соединениях. Мокслас, Вильнюс (1988). 156 с.
- [6] V.I. Sugakov. A superlattice of defect density in crystal under irradiation. Preprint ITF 84–70p. ITF AN USSR. Kiev (1984); V.I. Sugakov. In: Effect of Radiation on Materials. 14th Int. Symp. / Ed. by N.H. Packan, R.E. Stoller A.S. Kumar. American Society for Testing and Materials, Philadelphia (1989). P. 510.
- [7] В.И. Сугаков, П.А. Селищев. ФТТ **28**, 10, 2921 (1986).
- [8] В.И. Сугаков. ФТТ **40**, 4, 741 (1998).
- [9] V.I. Sugakov. Solid State Commun. **106**, 11, 705 (1998).
- [10] F.A. Garner, H.R. Brager, R.A. Dodd, T. Lauritzen. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **B16**, 2–3, 244 (1986).
- [11] K.C. Russell, F.A. Garner. Met. Trans. **A23**, 7, 1963 (1992).
- [12] V.S. Khmelevskaya, V.G. Malynkin, S.P. Solovyev. J. Nucl. Mater. **199**, 3, 214 (1993).
- [13] В.С. Хмелевская, В.Г. Малынкин. Материаловедение **2**, 25 (1998).