

Д.О. ХАРЧЕНКО, В.О. ХАРЧЕНКО, А.І. БАШТОВА

Інститут прикладної фізики НАН України  
(Вул. Петропавлівська, 58, Суми 40000; e-mail: dikh@ipfcentr.sumy.ua)

## МОДЕЛЮВАННЯ ПРОСТОРОВОЇ ОРГАНІЗАЦІЇ ТОЧКОВИХ ДЕФЕКТІВ В ОПРОМІНЮВАНИХ СИСТЕМАХ

УДК 539.75

*Запропоновано узагальнений статистичний підхід до опису процесів організації точкових дефектів вакансійного типу у кластери та пори на прикладі нікелю в рамках швидкісної теорії, що враховує генерацію дефектів пружними полями та взаємодію дефектів. Проведено дослідження умов виникнення структур дефектів у робочих режимах опромінення в реакторах. Встановлено характер зміни мікроструктури при різних температурах та швидкостях набору дози в рамках використання аналітичних підходів та методів числового моделювання. Досліджено зміну періоду структур та їх характерних розмірів за допомогою статистичного аналізу даних моделювання. Отримані результати узгоджуються з експериментальними спостереженнями за процесами дефектоутворення при опроміненні в реакторних умовах.*

*Ключові слова:* швидкісна теорія, просторова організація точкових дефектів вакансійного типу, кластери, пори, опромінені системи, процес дефектоутворення, опромінення в реакторах, числове моделювання.

### 1. Вступ

Добре відомо, що вплив високоенергетичних частинок та, загалом, опромінення на тверді тіла приводить до зміни їх структурно-фазового стану. Причиною зміни фізико-механічних властивостей таких систем є процес формування дефектів кристалічної будови та їх просторова організація, що приводить до певних мікроструктурних перетворень. Серед них можна виділити формування скупчень вакансій (ді-, три- та тетравакансій) [1], окремих пор та їх ґраток [2, 3], утворення преципітатів, стінок дефектів [4], упорядкування вакансійних петель [5, 6]. Більшість дефектів, що утворюються завдяки зовнішньому впливові, є термодинамічно нестійкими і тому їх однорідний розподіл стає також нестійким, що приводить до їх просторової організації – ефективного зменшення ентропії системи внаслідок самоорганізації, викликаній зовнішніми чинниками. Такі процеси у конденсованих системах, загалом, є актуальними та цікавими не лише з теоретичної точки зору. Для систем дефектів у твердих тілах ці задачі набирають підвищеної уваги, оскільки знання про поведінку такого статистичного ансамблю дозволя-

ють дослідити та виявити механізми мікроструктурних перетворень в опромінюваних матеріалах. Вони є корисними задля прогнозування поведінки чистих матеріалів та стопів. Тому у даній роботі за мету ставиться дослідження процесів формування мікроструктури в конструкційних матеріалах на прикладі нікелю при організації точкових дефектів внаслідок сталої дії опромінення в реакторних умовах.

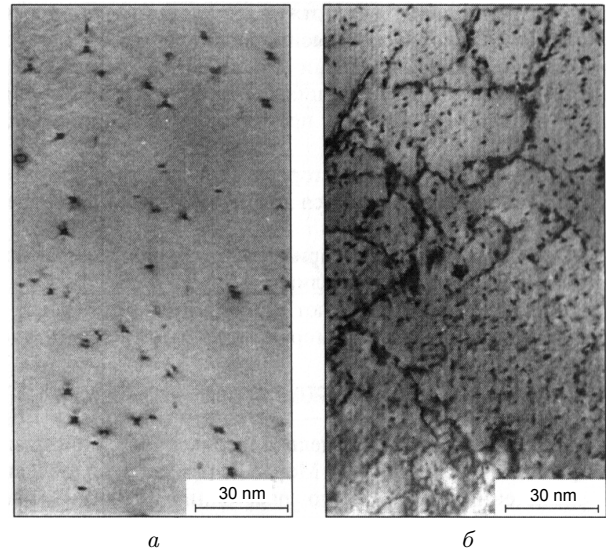
Із літературних даних (див., наприклад, [7]) відомо, що у випадку малих енергій налітаючих частинок (не набагато перевищуючих енергію первинно-вибитого атома, наприклад, для нікелю  $E_d \sim 30$  еВ) утворюються ізольовані пари Френкеля. За великих значень енергій падаючих частинок (наприклад,  $\gtrsim 2E_d$ ) формуються каскади зміщень. Мінімальна енергія іонів нікелю для ініціювання процесу дефектоутворення у тому ж нікелі не перевищує 60 еВ, для  $\alpha$ -частинок вона становить 250 еВ, для нейтронів – 860 еВ, тоді як для електронів – 800 КеВ. З експериментальних спостережень встановлено, що формування організованої структури дефектів потребує їх утворення у каскадах. Здебільшого такі процеси спостерігаються при іонному та нейтронному опроміненні [8]. Просторові структури дефектів спостерігалися також при лазерному опроміненні з імпульсами ін-

© Д.О. ХАРЧЕНКО, В.О. ХАРЧЕНКО,  
А.І. БАШТОВА, 2013

тенсивностей  $I \sim 10^7\text{--}10^8$  Вт/см<sup>2</sup>, коли за рахунок ударної хвилі дефекти утворюються в об'ємі твердого тіла, по якому пройшов фронт [9, 10]. Необхідно зазначити, що при помірних інтенсивностях ( $I \sim 10^4\text{--}10^7$  Вт/см<sup>2</sup>) за відсутності ударної хвилі основну роль відіграє тепловий механізм формування дефектів, при цьому густина нерівноважних точкових дефектів може перевищувати рівноважну на декілька порядків [9].

Швидкість дефектоутворення, що характеризує умови опромінювання (в реакторах чи на прискорювачах) визначається числом зміщених атомів, спектральною густиною потоку частинок та перетином дефектоутворення. Як відомо, для опромінення в реакторах порядок цієї величини  $10^{-6}$  з.н.а/с (зміщень на атом за секунду), для прискорювачів маємо оцінку  $10^{-3}$  з.н.а/с. Очевидно, що при опроміненні лазерними імпульсами вона буде істотно менше за реакторну. Слід зазначити, що часова шкала проходження відповідних процесів у кристалічних системах є такою: процес утворення первинно-вибитого атома  $\sim 10^{-16}$  с, проходження каскаду  $\sim 10^{-13}$  с, стадія релаксації (відпаду) проходить в інтервалі  $10^{-8}\text{--}10^{-7}$  с. Просторові масштаби, на яких відбувається організація дефектів також суттєво різняться. Тут окрім дифузійної довжини слід враховувати нанометрові діпазони взаємодії дефектів, та особливості формування нанокластерів вакансій. Наприклад, кластери дефектів з середнім розміром 5,5 нм спостерігалися при опроміненні протонами з енергіями 3 МеВ мішеней Ni та Cu з дозами до 2 з.н.а [1]. При низьких дозах (0,01 з.н.а) розподіл дефектів був однорідним, в той час як при зростанні набору дози від 0,1 з.н.а флуктуації кластерів дефектів змінювалися вираженими періодично розташованими кластерами з періодом 20–30 нм. Типова картина формування малих кластерів дефектів ("black dots") у нержавіючій сталі 0X16H15M3B та чистому нікелі подано на рис. 1. Встановлено, що кількість кластерів "black dots" у нержавіючих сталях становить величину 1% від усіх дефектів, тоді як для Ni та Cu концентрація вакансійних тетраедрів від 25% до 50% [11]. Аналогічні ефекти спостерігалися для Mo, Al, Nb, Ta, W та сплавів Ti–Zr–Mo з періодичним розташуванням 200–800 Å пор розміром 20–100 Å.

Оскільки поведінка таких систем задається широким просторово-часовим інтервалом, то для те-



**Рис. 1.** Мікроструктура хромо-нікелевої сталі 0X16H15M3B (а) та чистого нікелю (б), опромінені іонами Ni при кімнатних температурах та дозах: а – 40 з.н.а, б – 20 з.н.а. Рисунок взято з роботи [11]

оретичного дослідження формування мікроструктури використовуються підходи, що включають дослідження на різних ієрархічних рівнях опису, починаючи із використання квантово-механічних підходів і закінчуючи методами кінцевих елементів дослідження конструкційного елемента із даного матеріалу. Вивчення процесів дефектоутворення на мікроскопічному рівні досягається використанням методів молекулярної динаміки, тоді як на дифузійних часових інтервалах добре спрацюють підходи Монте-Карло [12–14] та фазового поля [15].

Окреме застосування методу моделювання на кожному конкретному рівні не дає змоги врахувати вплив нижніх та верхніх ієрархічних рівнів, тому одним із виходів є застосування гібридних методів, або розвинення існуючих підходів для врахування такого впливу. До гібридних можна віднести метод фазового поля кристала, який адекватно подає поведінку атомної системи в термінах атомних густин [16, 17]. Він успішно застосовується для вивчення дифузії дефектів [18], динаміки дислокацій [19] та структурних перетворень [20–23]. Такі підходи ефективно використовуються під час опису та моделювання утворення поверхневих структур в процесах іонного розпорощення (див., наприклад, [24, 25]). Узагальнення теорії

Кана–Хіллєрда за умови припущення існування двох часових масштабів (дифузійного і часу проходження каскаду) дозволяє подати процеси виникнення преципітатів та розшарування бінарної системи при опроміненні (див., наприклад, [26–28]). На мезоскопічному рівні динаміка дефектів може бути подана в рамках використання швидкісної теорії за рахунок розгляду поведінки точкових дефектів та їх дифузії і взаємодії [29, 30]. Це дозволяє описати не лише кількісні характеристики дефектів та ефект розпухання, а й пояснити просторову організацію дефектів при формуванні їх скупчень, пор, та протяжних дефектів (стінок пор), формування границь зерен та вихід дефектів на границі зерен [31].

У даній роботі на основі розвинутої швидкісної теорії, яка враховує процеси взаємодії точкових дефектів, проводиться дослідження процесів формування скупчень дефектів вакансійного типу у припущенні про швидкоплинність руху міжвузлів та вихід їх на стоки. У ролі досліджуваної системи вибирається нікель, як найбільш поширений конструкційний матеріал, що використовується в атомній енергетиці. Нами буде показано, що за умови врахування процесів генерації дефектів пружним полем самих дефектів у такій системі можливими стають бістабільні стаціонарні стани. Нами буде проаналізовано типи структур дефектів та знайдено умови їх реалізації при зміні швидкості дефектоутворення та температури опромінення. Розвинута у роботі детерміністична мезоскопічна модель буде узагальнена врахуванням флуктуаційного внеску, що моделює вплив мікроскопічного рівня відповідно до флуктуаційно-дисипаційної теорії. Буде проаналізовано флуктуаційний ефект при формуванні стаціонарних структур дефектів. Для узагальнення отриманих результатів швидкість дефектоутворення вибирається в інтервалі від значень, що відповідають лазерному опроміненню до значень, характерних для прискорювачів.

Структура роботи є такою. У другому розділі подано модель взаємодіючих точкових дефектів. Третій розділ стосується аналізу на стійкість стаціонарних станів у лінійному наближенні. У розділі 4 проводиться узагальнення детерміністичного підходу на випадок врахування дії внутрішнього стохастичного джерела. У п'ятому розділі проводиться аналіз формування стаціонарних структур

дефектів у нелінійній системі. Шостий розділ містить результати числового моделювання динаміки структуроутворення. Висновки до роботи зібрано у останньому розділі роботи.

## 2. Модель системи точкових дефектів

У рамках використання підходів швидкісної теорії динаміка радіаційно-продукованих дефектів, до яких будемо відносити лише точкові (вакансії та міжвузлові атоми), описується рівняннями вигляду

$$\begin{aligned} \partial_t c_v &= K(1 - \varepsilon_v) - D_v S_v (c_v - c_{0v}) - \alpha c_i c_v - \nabla \cdot \mathbf{J}_v^0, \\ \partial_t c_i &= K(1 - \varepsilon_i) - D_i S_i c_i - \alpha c_i c_v - \nabla \cdot \mathbf{J}_i^0. \end{aligned} \quad (1)$$

Тут  $c_v$  та  $c_i$  – концентрації вакансій та міжвузлів відповідно;  $c_{0v} = e^{-E_v^f/T}$  – рівноважна концентрація вакансій, визначена через енергію їх формування  $E_v^f$  та температуру  $T$ , виміряну в енергетичних одиницях;  $K$  – швидкість набору дози;  $\varepsilon_{v,i}$  – інтенсивності колапсу каскаду при формуванні петель міжвузлів та вакансій відповідно ( $\varepsilon_v \gg \varepsilon_i$ );  $D_{v,i} = D_{v,i}^0 e^{-E_{v,i}^m/T}$  – коефіцієнти дифузії вакансій та міжвузлів, які визначаються передекспоненційним множником  $D_{v,i}^0$ , та енергією міграції дефекту  $E_{v,i}^m$ . Інтенсивності стоків двох типів точкових дефектів  $S_{v,i}$  визначаються густиною дислокаційної сітки  $\rho_N$ , та густинами вакансійних та міжвузлових петель  $\rho_{v,i}$  з преференсом  $Z_{\{.,.\}}$ . У загальному вигляді для стоків маємо:  $S_{v,i} = Z_{\{v,i\}N} \rho_N + Z_{\{v,i\}V} \rho_v + Z_{\{v,i\}I} \rho_i$ , де  $Z_{vN} = Z_{vI} = Z_{vV} = 1$ ,  $Z_{iN} = 1 + B$ ,  $Z_{iI} \simeq Z_{iV} \simeq 1 + B'$ ,  $B' \geq B$ ,  $B \simeq 0,1$ . Рекombінація точкових дефектів задається коефіцієнтом  $\alpha = 4\pi r_0 (D_i + D_v) / \Omega$ , де  $r_0$  – радіус взаємодії дефектів,  $\Omega$  – атомний об'єм. Оскільки дефекти є рухливими частинками мікроструктури, то еволюційні рівняння концентрацій враховують внесок дифузійних потоків, позначених за допомогою  $\mathbf{J}_v^0$  та  $\mathbf{J}_i^0$  відповідно.

При переході до знерозмірених змінних можна скористатися визначеннями

$$S_{v,i} = Z_{\{v,i\}N} \rho_N (1 + \rho_v^* + \rho_i^*), \quad \rho_{v,i}^* \equiv \rho_{v,i} / \rho_N, \quad (2)$$

де для часової змінної маємо  $t' \equiv t \lambda_v$ ,  $\lambda_v \equiv D_v Z_{vN} \rho_N$ ; перемасштабована концентрація дефектів  $x_{i,v} = \gamma c_{i,v}$  задається  $\gamma \equiv \alpha / \lambda_v$ ;  $P \equiv \gamma K / \lambda_v$  – функція від швидкості набору дози та

температури, виміряна в одиницях з.н.а. Використовуючи позначення  $\mu \equiv (1 + \rho_v^* + \rho_i^*)$ ,  $Z_{iN}/Z_{vN} = 1 + B$  та приймаючи, що коефіцієнти дифузії вакансій та міжвузлів різняться на декілька порядків, можна ввести параметр малості  $D_v/D_i \equiv \epsilon \ll 1$  для опису різниці часових інтервалів еволюції двох типів дефектів. У такому разі приходимо до системи диференціальних рівнянь

$$\begin{aligned} \partial_t x_v &= P(1 - \varepsilon_v) - \mu(x_v - x_{0v}) - x_i x_v - \nabla \cdot \mathbf{J}_v; \\ \epsilon \partial_t x_i &= \epsilon P(1 - \varepsilon_i) - (1 + B)\mu x_i - \epsilon x_i x_v - \epsilon \nabla \cdot \mathbf{J}_i, \end{aligned} \quad (3)$$

де  $\mathbf{J}_{i,v} \equiv \gamma \mathbf{J}_{i,v}^0 / \lambda_v$ . Звідси випливає, що концентрація міжвузлів є швидкою змінною у порівнянні з концентрацією вакансій і в адиабатичному наближенні може бути ефективно вилучена. Дійсно, при використанні умови  $\epsilon \partial_t x_i \simeq 0$  отримуємо вираз для концентрації міжвузлів:

$$x_i = P(1 - \varepsilon_i) / [(1 + B)\mu / \epsilon + x_v].$$

Далі він підставляється у перше рівняння системи (3), внаслідок чого динаміка системи описується рівнянням еволюції повільної моди  $x \equiv x_v$ .

Необхідно зазначити, що утворення дефектів носить термофлуктуаційний характер і його ймовірність зростає з підвищенням температури (інтенсивності опромінення) або густиною дефектів [9]. Як було показано в роботі [10], останнє пов'язано зі зміною висоти активаційного бар'єра утворення дефекту за рахунок пружної деформації середовища, зумовленої самими дефектами. У такому разі для врахування такого ефекту до рівняння еволюції для  $x$  слід додати складову, що описує генерацію дефектів за цим механізмом. Вона має вигляд  $G \exp(-E/T)$ , де  $G = p\omega_D \gamma / \lambda_v$  - частотний фактор, визначений через дебаївську частоту  $\omega_D$  та ймовірність реалізації цього процесу  $p \sim 10^{-6}$ ,  $E = E_m^f + E_v^m - E^e(\bar{r})$  - енергія активації, яка зменшується за рахунок поля деформацій  $E^e(\bar{r})$ , що утворюється самими дефектами. Припускаючи зв'язок між середньою відстанню між дефектами і концентрацією у вигляді  $\bar{r} = x^{-1/3}$  та слідуючи роботі [10], цей доданок набуває вигляду  $G \exp(\varepsilon x / (1 + x^2))$ , де  $\varepsilon \equiv 2ZE_0^e / T$  задається характерною енергією поля деформацій  $E_0^e$  та координатним числом  $Z$ . Незважаючи на те, що цей внесок у динаміку дефектів суттєвий при лазерному опроміненні (при малих швидкостях набору

доз), а при опроміненні частинками він є малим внаслідок каскадного механізму формування дефектів, у подальшому розгляді, без втрати загальності, ми залишаємо його.

Розглянемо далі дифузійний потік вакансій. Загалом, він складається із фіктивської компоненти  $-L_d^2 \nabla x$  з дифузійною довжиною  $L_d^2 \equiv D_v / \lambda_v$  та компоненти, яка описує взаємодію дефектів. У випадку стаціонарного потоку маємо

$$\mathbf{J} = -L_d^2 \nabla x + \mathbf{v}x. \quad (4)$$

Тут друга складова описує рух дефектів зі швидкістю  $\mathbf{v} = (L_d^2 / T) \mathbf{F}$  під дією сили  $\mathbf{F} = -\nabla U$ , викликаної взаємодією дефектів. Потік  $\mathbf{J}$  можна переписати у канонічній формі  $\mathbf{J} = -L_d^2 M(x) \nabla \mu(x)$ , де  $M(x) = x$  - рухливість,  $\mu(x) = \delta \mathcal{F} / \delta x$  відіграє роль хімічного потенціалу. Тоді, відповідний функціонал вільної енергії набуває вигляду

$$\mathcal{F} = \int d\mathbf{r} f(x(\mathbf{r})) - \frac{1}{2T} \int d\mathbf{r} \int d\mathbf{r}' x(\mathbf{r}) \tilde{u}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') x(\mathbf{r}') \quad (5)$$

з густиною вільної енергії, що описує вільний газ частинок  $f(x) = x(\ln x - 1)$ , друга складова характеризує парні взаємодії у наближенні самоузгодженості [31-33], де  $-\tilde{u}(r)$  - притягуючий потенціал для двох частинок (дефектів), розділених відстанню  $r$ . Він вибирається у симетричній формі в околі дефекту:  $\int \tilde{u}(r) r^{2n+1} dr = 0$ . Якщо поле  $x(r)$  не змінюється суттєво на відстані взаємодії дефектів  $r_0 \simeq \Omega^{1/3}$ , то можна скористатися розвиненням у ряд до другого неznикаючого члена, тобто

$$\int d\mathbf{r}' \tilde{u}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') x(\mathbf{r}') \simeq \varepsilon (x + r_0^2 \nabla^2 x). \quad (6)$$

Перший член в (6) приводить до стандартного співвідношення між потенціалом пружного поля  $U = -\int d\mathbf{r}' \tilde{u}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') x(\mathbf{r}')$  та  $x$  в рамках стандартної теорії пружності. Дійсно, потенціал  $U$  пов'язаний з вектором зміщень  $\mathbf{u}$  у вигляді  $U = -\kappa \varpi \nabla \cdot \mathbf{u}$ , де  $\nabla \cdot \mathbf{u} \propto \varpi x$ ,  $\kappa$  - об'ємний модуль,  $\varpi$  - параметр дилатації [9]. У такому вигляді для ефективного потоку маємо  $\mathbf{J} \propto -(1 - \varpi^2 \kappa x / T) \nabla x$ . Друга складова у розвиненні (6) характеризує мікроскопічні процеси взаємодії дефектів на відстані радіуса кореляції (взаємодії)  $r_0$ . У нормальних умовах цей доданок може бути опущений за малістю внеску у порівнянні з дифузійним. Якщо підставити (6)

**Основні матеріальні параметри для нікелю**

Параметр	Значення	Розмірність
$E_v^f$	1,8	еВ
$E_v^m$	1,04	еВ
$E_i^m$	0,3	еВ
$E_0^e$	0,01–0,2	еВ
$D_v$	$6 \cdot 10^{-5} e^{-E_v^m/T}$	м <sup>2</sup> /с
$D_i$	$10^{-7} e^{-E_i^m/T}$	м <sup>2</sup> /с
$c_{0v}$	$e^{-E_0^e/T}$	–
$\omega_D$	$1,11 \cdot 10^{13}$	с <sup>-1</sup>
$r_0$	$1,5 \cdot 10^{-9}$	м
$\varepsilon_v, \varepsilon_i$	0,1, 0,01	–
$\rho_N$	$10^{12}–10^{15}$	м <sup>-2</sup>
$\Omega$	$1,206 \cdot 10^{-29}$	м <sup>3</sup>

у визначення повного потоку (4), то можна бачити, що навіть при врахуванні першого доданка в (6) дифузійний потік буде задаватися залежним від поля концентрації коефіцієнтом  $(1 - \varepsilon x)$ , тобто  $\mathbf{J} \propto -(1 - \varepsilon x)\nabla x$ , який може змінювати знак залежно від  $x$ . Це приводить до розбіжності, яка означає, що однорідний розподіл вакансій, починаючи від критичної швидкості їх формування, пов'язаної з температурою, густиною стоків та дилатацією об'єму, стає нестійким. Поява такого направлено-го потоку приводить до пересичення вакансій та формування структур дефектів, як-то пор, тощо. З математичної точки зору така розбіжність не може бути скомпенсована нелінійностями у рівнянні еволюції [31–33]. Запобігти такій розбіжності можна лише за допомогою врахування другої (взаємодіючої) складової у розвиненні (6). Таким чином, ця складова має залишатися у розгляді. Як буде видно нижче, саме вона характеризуватиме розмір структур дефектів.

Таким чином, із врахуванням всіх зазначених вище особливостей моделі її загальний вигляд буде задаватися рівнянням реакційно-дифузійного типу:

$$\partial_t x = R(x; K, T) - \nabla \cdot \mathbf{J}, \tag{7}$$

де повні вирази для реакційної складової та потоку мають такий вигляд:

$$R(x; K, T) \equiv P(K, T)(1 - \varepsilon_v) - \mu(x - x_0) - \frac{P(K, T)(1 - \varepsilon_i)x}{\frac{\mu(1+B)}{\varepsilon} + x} + G(T)e^{\frac{\varepsilon x}{1+x^2}},$$

$$\mathbf{J}(x; T) \equiv - [\nabla x - \varepsilon(T)x\nabla(x + \ell^2\nabla^2x)]. \tag{8}$$

Тут враховано перемасштабування просторової змінної  $\mathbf{r}' = \mathbf{r}/L_d$  та введено знерозмірену характерну довжину  $\ell \equiv r_0/L_d$ .

Для подальшого дослідження скористаємося набором даних щодо чистого нікелю [8], наведених у таблиці.

Оцінка дифузійної довжини дає  $L_d \simeq 10^{-6}–10^{-7}$  м, тоді як  $\ell \ll 1$ . Швидкість набору дози для реакторів становить  $K \simeq 10^{-6}$  з.н.а/с, для прискорювачів –  $K \simeq 10^{-3}$  з.н.а/с; при лазерному опроміненні швидкість набору дози  $\epsilon$  на декілька порядків меншою за реакторну та залежить від потужності лазерних імпульсів.

**3. Аналіз стійкості лінеаризованої системи**

Розглянемо спочатку однорідну систему у стаціонарному випадку,  $t \rightarrow \infty$ . У такому разі стаціонарні стани  $x_s$  однорідної системи задаються розв'язками рівняння  $\partial_t x = 0$ . Відповідні залежності при фіксованій температурі подано на рис. 2, а при різних значеннях імовірності  $p$  генерації вакансій полем пружних напружень. Як видно з рис. 2, а, за відсутності впливу пружного поля ( $p = 0$ ) концентрація вакансій монотонно збільшується від рівноважного значення  $c_{0v}$  і зростає на декілька порядків навіть при малих дозах до 1 з.н.а. Однак, у випадку ненульового значення величини  $p$  на залежності  $c_v(K)$  спостерігається гістерезисний характер, який означає появу бімодальності стаціонарних станів. Така особливість проявляється на малих дозах або при малих швидкостях дефектоутворення, характерних для лазерного опромінення. Вона може проявлятися при додаткових механічних навантаженнях, що підвищують рівень енергії  $E_0^e$ . При малих та великих дозах маємо добре збігання стаціонарних залежностей з випадком  $p = 0$ . Очевидно, що з фізичної точки зору така поведінка пояснюється таким чином. Починаючи з рівноважної концентрації  $c_{0v} = c_v(K = 0, T)$  зростання дози опромінення приводить до утворення нерівноважних вакансій, які при досягненні певної кількості, що відповідає  $K_{b2}$ , приводять до формування пружного поля, що здатне прискорити швидкість їх утворення. Саме тут відбувається різке збільшення кількості вакансій, яке характеризується стрибком їх концентрації. З подальшим зростанням дози опромінення пружні поля не зда-

тні сильно впливати на процеси генерації дефектів у порівнянні з каскадами, які набирають більшої ефективності при зростаючій швидкості набору дози. Тому, на великих дозах відповідна залежність концентрації вакансій прямує до реперної, що задається умовою відсутності впливу пружного поля на процес генерації вакансій.

Із наведеного випливає, що в інтервалі значень  $K \in [K_{b1}, K_{b2}]$  система знаходиться у бістабільному режимі. Бінодалі, яким належать значення  $K_{b1}$  та  $K_{b2}$  утворюють фазову діаграму в площині незалежних параметрів швидкість пошкодження – температура, яка отримується за умови сумісного розв'язку двох рівнянь:

$$R(x_s; K, T) = 0, \quad \left. \frac{\partial R(x; K, T)}{\partial x} \right|_{x=x_s} = 0. \quad (9)$$

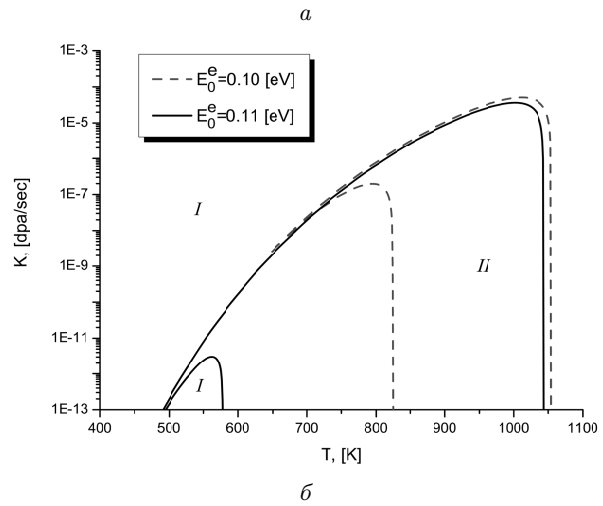
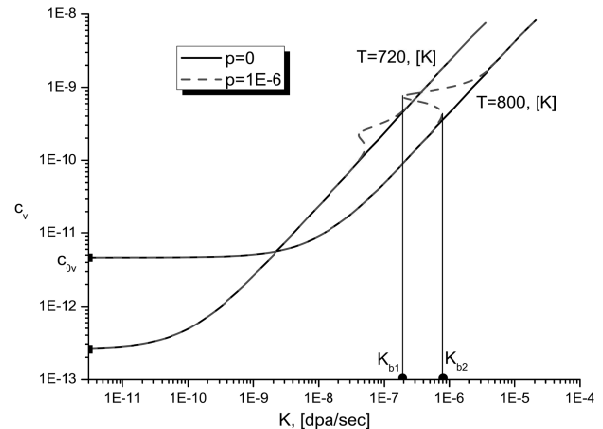
Відповідний результат подано на рис. 2, б, з якого видно, що в клові (область II), обмеженому бінодалями, реалізується бістабільний режим. Області поза відповідним кловом, позначені як I, відповідають унімодальним стаціонарним станам з низькою (при малих  $K$ ) та високою (великі  $K$ ) концентрацією дефектів. Слід зазначити, що збільшення ймовірності  $p$  навіть на один порядок суттєво розширює область бімодальності на низькі температури, понижуючи критичне значення для  $K$ . Така картина характерна для опромінення лазерними імпульсами, коли вплив пружного поля є суттєвим. Якщо порівняти діаграми при різних  $E_0^e$ , що фактично відповідає збільшенню механічного навантаження на систему, то маємо аналогічну картину розширення інтервалу температур області бістабільності та зменшення критичного значення дози, при якій такий режим стає можливим завдяки зменшенню потенціального бар'єра формування дефектів при ефективному зростанні енергії пружного поля.

Проаналізуємо стійкість стаціонарних станів до малих збурень, розглядаючи неоднорідну систему. Мале відхилення  $\delta x = x - x_s$  від однорідного стаціонарного стану  $x_s$  задовольняє рівняння

$$\partial_t \delta x = (\Lambda(x_s) + \omega(k; x_s)) \delta x, \quad (10)$$

де стійкість однорідного стану відносно однорідних збурень задається показником

$$\Lambda(x_s) = -\mu - \frac{P(1 - \varepsilon_i)\varepsilon\mu(1 + B)}{(\mu + \mu B + x_s\varepsilon)^2} +$$



**Рис. 2.** Стаціонарні залежності концентрації вакансій при різних значеннях температури та  $p$  при  $E_0^e = 0,1$  еВ (а), фазова діаграма існування бімодального режиму при  $p = 10^{-6}$  та різних значеннях енергії  $E_0^e$  (б). Решту параметрів подано у таблиці, густина дислокацій –  $\rho_N = 10^{14} \text{ м}^{-2}$

$$+ G \frac{\varepsilon(1 - x_s^2)}{(1 + x_s^2)^2} \exp\left(\frac{\varepsilon x_s}{1 + x_s^2}\right), \quad (11)$$

а стійкість відносно неоднорідних збурень характеризується дисперсійним співвідношенням

$$\omega(k; x_s) = -k^2[1 - \varepsilon x_s(1 - \ell^2 k^2)]. \quad (12)$$

Звідси випливає, що нестійкі моди з  $\omega(k) > 0$  задаються хвильовими числами  $0 < k < k_c$ , де критичне значення

$$k_c = \sqrt{\frac{\varepsilon x_s - 1}{\varepsilon x_s \ell^2}} \quad (13)$$

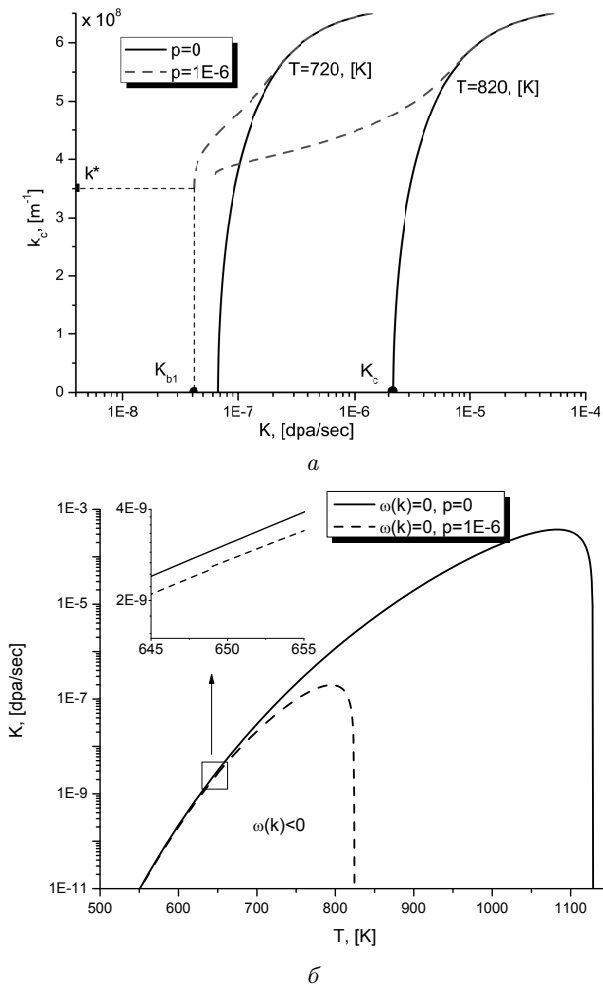


Рис. 3. Залежність критичного хвильового числа від швидкості набору дози при різних значеннях  $p$  та  $T$  (а), діаграма стійкості в лінійному наближенні (б)

визначається за умови  $\omega(k) = 0$ . У найпростішому випадку з  $\ell \rightarrow 0$  в області фазової діаграми поза ключом всі стани з  $x_s > 1/\varepsilon$  є нестійкими по відношенню до неоднорідних збурень з  $k_c \rightarrow \infty$ , тоді як стани з концентраціями  $x_s < 1/\varepsilon$  – стійкі. У шуканому випадку з  $\ell \neq 0$  стани системи з  $x_s > 1/\varepsilon$  стають нестійкими, причому відповідні значення хвильових чисел лежать в інтервалі  $0 < k < k_c$ . У області бімодальності однорідні стани системи завжди є нестійкими по відношенню до неоднорідних збурень. Хвильове число  $k_0$ , що задає найбільш нестійку моду, отримується з розв’язку рівняння  $d\omega(k)/dk = 0$  та має значення  $k_0 = k_c/\sqrt{2}$ .

Результати розрахунку залежностей критичного хвильового числа подано на рис. 3, а. З нього видно, що у стандартному випадку  $p = 0$  критичне хвильове число зростає від нульового значення ( $k^* = 0$ ) при підвищенні швидкості набору дози від певного критичного значення  $K_c$ . Це означає, що при переході через цей поріг у системі виникають просторові структури з нескінченним періодом. З подальшим набором дози виникають нові структури, відстань між якими зменшується і на великих дозах період їх розташування зводиться до  $\sim 10^{-8}$  м. У випадку  $p \neq 0$  внаслідок гістерезисної поведінки стаціонарної концентрації маємо картину, коли перша нестійка мода з’являється з ненульовим хвильовим числом  $k^* = k_c$  при  $K > K_{b1}$ . Виникнення просторових структур у бімодальній області фазової діаграми на рис. 2, б відбувається в околі стаціонарного значення  $c_v$ , що відповідає метастабільному станові з великою концентрацією; в околі станів з низькою концентрацією вакансій просторових структур дефектів не утворюється. За підвищених температур (в області бімодальності) втрата стійкості однорідного стану відбувається при підвищених значеннях хвильового числа та при більших швидкостях пошкоджень. Критичні значення температури та дози, які обмежують області існування просторових структур дефектів при  $p \neq 0$ , подано на рис. 3, б у вигляді пунктирних ліній. Критичні значення  $K_c$  та температури при  $p = 0$  показано суцільною лінією. В області вище пунктирних ліній реалізуються процеси структуроутворення. При  $p = 0$  структури реалізуються вище суцільної лінії.

#### 4. Вплив джерела внутрішніх флуктуацій

Як відомо, детерміністична модель, наведена вище, є ідеалізованою, оскільки не враховує внеску флуктуаційного джерела, що моделює вплив мікроскопічного рівня на динаміку системи. На відміну від зовнішнього шуму, який викликаний флуктуаціями параметра зовнішнього середовища, внутрішній шум індукується мікроскопікою самої системи, його джерелом слугують внутрішні процеси в системі. Тому, у подальшому, ми розглядатимемо ланжевенівську динаміку, включаючи внутрішній шум, що спричиняє дисипативну динаміку всього ансамблю. Звісно, що цей шум має суттєво пов’язуватися з виконанням флуктуаційно-

дисипаційної теореми. Отже, діючи у стандартний спосіб перепишемо детерміністичне рівняння поля концентрації у вигляді

$$\partial_t x = R(x) + \nabla \cdot M(x) \nabla \mu, \quad \mu \equiv \frac{\delta \mathcal{F}}{\delta x}, \quad (14)$$

де для функціонала вільної енергії маємо таке визначення:

$$\mathcal{F}[x] = \int d\mathbf{r} \left[ x \ln x - x - \frac{\varepsilon}{2} x^2 + \frac{\varepsilon \ell^2}{2} (\nabla x)^2 \right]. \quad (15)$$

Формально, рівняння (14) можна переписати у канонічній формі релаксаційної моделі з незбереженою динамікою:

$$\partial_t x = -\frac{1}{M(x)} \frac{\delta \mathcal{U}}{\delta x}, \quad (16)$$

де для функціонала  $U[x]$  відомою є лише перша варіаційна похідна, тобто

$$\delta \mathcal{U} = - \int d\mathbf{r} \delta x [M(x)R(x) + M(x)\nabla \cdot (M(x)\nabla \mu)]. \quad (17)$$

Слідуючи роботам [31, 33, 34] можна ввести в розгляд флуктуаційне джерело, що задовольняє флуктуаційно-дисипаційну теорему. У такому разі ланжевенівська динаміка буде задаватися рівнянням

$$\partial_t x = -\frac{1}{M(x)} \frac{\delta \mathcal{U}}{\delta x} + \sqrt{\frac{1}{M(x)}} \xi(\mathbf{r}, t), \quad (18)$$

де  $\xi$  – білий гаусівський шум зі стандартними властивостями

$$\langle \xi(\mathbf{r}, t) \rangle = 0, \quad \langle \xi(\mathbf{r}, t) \xi(\mathbf{r}', t') \rangle = 2\sigma^2 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(t - t'); \quad (19)$$

$\sigma^2$  – інтенсивність, пропорційна температурі.

Аналіз впливу такого мультиплікативного шуму на динаміку системи на початкових стадіях (у лінійному наближенні) проводиться відповідно до стійкості флуктуації концентрації  $\langle \delta x \rangle = \langle x \rangle - x_s$ , усередненої за шумом, де, як і раніше,  $x_s$  – стаціонарний однорідний стан детерміністичної системи. У рамках інтерпретації рівняння (18) за Стратоновичем еволюція середнього значення поля концентрації буде задаватися рівнянням вигляду

$$\partial_t \langle x \rangle = \langle R(x) + \nabla \cdot M(x) \nabla \mu \rangle - \sigma^2 \left\langle \frac{1}{M^2(x)} \frac{dM(x)}{dx} \right\rangle. \quad (20)$$

Лінеаризуючи отримане рівняння, маємо

$$\partial_t \langle \delta x \rangle = \left[ \tilde{\Lambda}(x_s) + \omega(k; x_s) \right] \langle \delta x \rangle, \quad (21)$$

де показник стійкості відносно однорідних збурень визначається через його детерміністичний аналог з доданком, що описує вплив шуму і має вигляд

$$\tilde{\Lambda}(x_s) = \Lambda(x_s) + \frac{2\sigma^2}{x_s^3}. \quad (22)$$

Звідси випливає, що внутрішній шум приводить до позитивного внеску у показник Ляпунова, тобто до дестабілізації однорідного стану на ранніх стадіях еволюції системи.

Для дослідження поведінки системи у стаціонарному випадку основною величиною є стаціонарний розподіл поля концентрації  $\mathcal{P} \equiv \mathcal{P}_s([x], t \rightarrow \infty)$ , що є розв'язком рівняння Фоккера–Планка [35], яке відповідно до рівняння Ланжевена (18) є таким:

$$\partial_t \mathcal{P} = \int d\mathbf{r} \frac{\delta}{\delta x} \left[ \frac{1}{M(x)} \left( \frac{\delta \mathcal{U}}{\delta x} - \sigma^2 \frac{1}{M(x)} \frac{dM(x)}{dx} \right) \mathcal{P} + \sigma^2 \frac{\delta}{\delta x} \frac{1}{M(x)} \mathcal{P} \right]. \quad (23)$$

Його точний розв'язок за відсутності потоку густини ймовірності на границях, які вважаються природними, набуває квазігібсівського вигляду

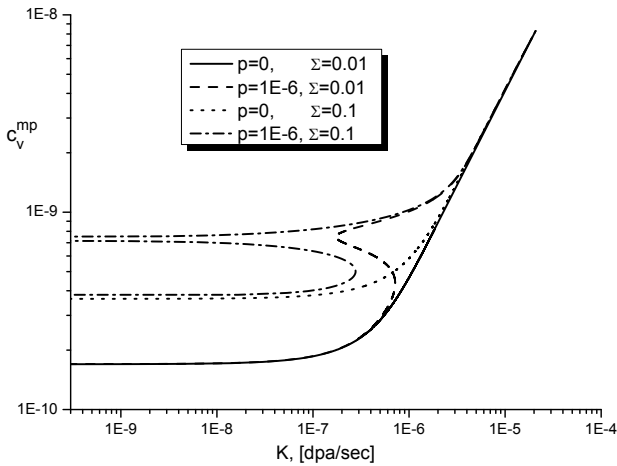
$$\mathcal{P}_s[x] \propto \exp(-\mathcal{F}_{\text{ef}}[x]/\sigma^2), \quad (24)$$

де ефективний функціонал типу вільної енергії складається з вихідного функціонала, що відіграє роль внутрішньої енергії, добутку ентропійного внеску та ефективної температури, яка зводиться до перенормованої інтенсивності шуму  $\Sigma$ :

$$\mathcal{F}_{\text{ef}}[x] = \mathcal{U}[x] - \Sigma \mathcal{S}_{\text{ef}}[x], \quad \mathcal{S}_{\text{ef}}[x] \equiv \int d\mathbf{r} \ln M(x), \quad (25)$$

де  $\mathcal{S}_{\text{ef}}[x]$  – ефективна ентропія, виражена через рухливість  $M(x)$ . Звідси випливає, що внутрішній шум за рахунок ентропійного внеску може принципово змінювати стаціонарні стани системи, впливаючи на кількість екстремумів стаціонарного розподілу поля концентрації за фіксованих основних параметрів системи. Відповідні якісні перетворення з виникненням так званих “макроскопічних фаз”,





**Рис. 4.** Залежність найбільш імовірних значень концентрації вакансій від швидкості набору дози при варіюванні інтенсивності внутрішнього шуму при  $T = 800$  К,  $E_0^e = 0,01$  еВ

що задаються максимумами густини ймовірності та переходи між ними, що ініціюються зміною ефективної ентропії відомі як ентропійно-керовані фазові переходи (див., наприклад, [33, 34, 36–40]); для систем зі збереженою динамікою такі фазові переходи приводять до процесів фазового розшарування [38, 41], а загалом до структуроутворення [33, 34, 37]. У подальшому нас цікавитиме саме останній випадок, що дає змогу описати характер утворюваних стаціонарних структур точкових дефектів при сталій дії опромінення.

Для дослідження процесів структуроутворення на пізніх часових інтервалах, а саме у стаціонарному випадку, достатнім буде розв'язання задачі Коші при мінімізації функціонала ефективної вільної енергії, мінімуми якої відповідають максимумам густини ймовірності розподілу поля концентрації дефектів, а тому, відповідно, найбільш імовірним просторовим конфігураціям точкових дефектів. Таким чином, з математичної точки зору задача зводиться до розв'язання рівняння для найбільш імовірних структур, еволюція яких, як було показано раніше (див., наприклад, [31, 42]), задається рівнянням:

$$\partial_t x = -\frac{1}{M(x)} \frac{\delta \mathcal{F}_{\text{ef}}[x]}{\delta x} \quad (26)$$

за періодичних граничних умов. Його розв'язками будуть стаціонарні структури  $x_s(\mathbf{r}, t \rightarrow \infty)$ , мор-

фологія яких вивчатиметься за допомогою нелінійного аналізу. Підставляючи відповідні визначення, приходимо до еквівалентного рівняння

$$\begin{aligned} \partial_t x &= R_{\text{ef}}(x) + \nabla \cdot M(x) \nabla \mu, \\ R_{\text{ef}}(x) &\equiv R(x) + \frac{\Sigma}{M^2(x)} \frac{dM(x)}{dx}. \end{aligned} \quad (27)$$

Звідси видно, що дрейф Стратоновича має проти-лежну дію до його внеску на малих часових інтервалах при аналізі на стійкість у лінійному наближенні [31, 42]. З фізичної точки зору така ситуація є проявом принципу Ле-Шательє. Відповідна картина властива системам, що зазнають ентропійно-керованих фазових переходів, які суттєво різняться з нерівноважними переходами із зовнішнім шумом [36, 39, 40, 43].

Розглянемо характер зміни найбільш імовірних станів за рахунок дії шуму, нехтуючи просторовою компонентою у (27). У такому разі замість функціонала  $\mathcal{P}_s[x]$  маємо функцію розподілу  $P_s(x)$ , а розв'язки рівняння  $R_{\text{ef}}(x) = 0$  задають положення її екстремумів  $x_{mp}$ . Залежності найбільш імовірних значень концентрації  $c_v^{mp}$  при різних значеннях інтенсивності шуму  $\Sigma$  подано на рис. 4. З нього видно, що шум приводить до зростання значення стаціонарної найбільш імовірної концентрації та істотно розширює область бістабільності. Таким чином, за наявності внеску пружних полів дія шуму приводить до посилення цього внеску за рахунок стохастичної генерації дефектів.

## 5. Особливості формування стаціонарних структур у нелінійній системі

З метою проведення аналітичного дослідження процесів формування стаціонарних структур у нелінійній системі скористаємося підходом аналізу поведінки амплітуди нестійкої моди, відповідно до стандартного підходу [8]. Для цього обмежимося розглядом лише одновимірного випадку, який дасть основну інформацію про можливість утворення стаціонарних структур дефектів. Проведемо лінеаризацію правої частини рівняння (27) по відношенню до незалежного параметра, яким є температура, тобто в околі  $T = T_c$ , де  $T_c$  – критичне значення температури, вище якого відбувається формування просторових структур при фіксованій швидкості набору дози  $K$ . У такому разі

вираз для ефективної реакційної складової у динаміці найбільш імовірних значень концентрації стає таким:

$$\mathcal{R} = R_{\text{ef}}(x, T_c) + \left. \frac{dR_{\text{ef}}(x, T)}{dT} \right|_{T=T_c} (T - T_c). \quad (28)$$

Основну увагу будемо зосереджувати на нестійкостях, що виникають в околі однорідних найбільш імовірних станів  $x_{mp}$ , визначених із розв'язку рівняння  $R_{\text{ef}}(x_{mp}, \varepsilon) = 0$ . Поклавши  $\mathbf{r} \rightarrow \rho$  за рахунок введення масштабу, спочатку, для простоти, розглянемо одновимірний випадок ( $\mathbf{r} \rightarrow \rho$ ), де за рахунок введення масштабу  $\alpha^2 = T - T_c$  дослідимо випадок нестійкостей із хвильовим числом  $k$ , що має ширину  $\mathcal{O}(\alpha)$ , а порядок нестійкості –  $\mathcal{O}(\alpha^2)$ . Для подальшого скористаємося допоміжним полем  $w(\rho, t) \equiv (x(\rho, t) - x_{mp})$ , де

$$w(\rho, t) = \alpha \phi(\rho, t) \equiv \alpha A(\varrho, \tau) e^{ik\rho} + \text{c.c.}$$

подано через повільну амплітуду  $A(\varrho, \tau)$ . У одновимірному випадку можливими є лише пара критичних хвильових чисел  $(k_1, -k_1)$ ;  $\varrho = \alpha\rho$ ,  $\tau = \alpha^2 t$ ; c.c. – позначення для комплексно спряженої частини. У такому разі слід провести розвинення в ряд  $\mathcal{R}$  по відношенню до  $\alpha\phi = x - x_{mp}$ . Це означає, що  $\mathcal{R}$  набуває форму

$$\begin{aligned} \mathcal{R}(\alpha\phi) &\simeq \mathcal{A}_1 \alpha\phi + \mathcal{A}_2 (\alpha\phi)^2 + \mathcal{A}_3 (\alpha\phi)^3; \\ \mathcal{A}_n &= \frac{1}{n!} \left. \frac{d^n \mathcal{R}}{dx^n} \right|_{x=x_{mp}}. \end{aligned} \quad (29)$$

Використовуючи співвідношення  $\partial_t \rightarrow \alpha^2 \partial_\tau$  та  $\nabla \rightarrow (ik + \alpha \partial_\varrho)$ , підставляючи  $w(\rho, t)$  у рівняння (27) та порівнюючи коефіцієнти при всіх  $\alpha^n e^{in k \rho}$  для існуючих  $n$ , приходимо до рівняння для нестійких амплітуд у вигляді

$$\partial_\tau A = \mathcal{C}_1 A + \mathcal{C}_3 |A|^2 A + \partial_\varrho^2 A, \quad (30)$$

де коефіцієнти розвинення є такими:

$$\begin{aligned} \mathcal{C}_1 &\equiv \left. \frac{d^2 R_{\text{ef}}(x, T)}{dx dT} \right|_{x=x_{mp}, T=T_c} + x_{mp} k^2 (1 - \ell^2 k^2), \\ \mathcal{C}_3 &\equiv \frac{1}{3!} \left. \frac{d^3 R_{\text{ef}}(x, T_c)}{dx^3} \right|_{x=x_{mp}}. \end{aligned} \quad (31)$$

Отримане рівняння відноситься до класу рівнянь із просторовим оператором типу Свіфта–Хохенберга [8, 44]. Тут у випадку  $\mathcal{C}_1 < 0$  та  $\mathcal{C}_3 < 0$

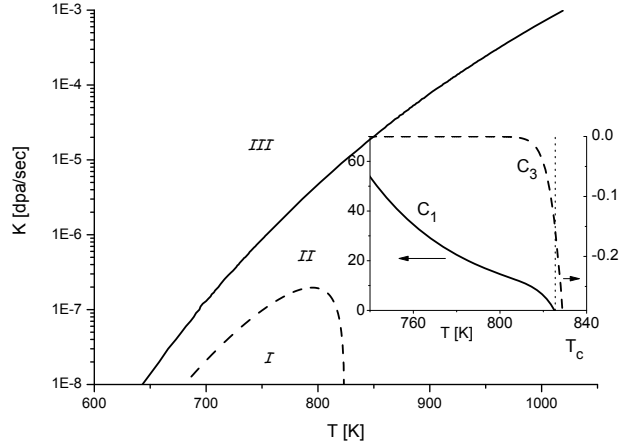


Рис. 5. Діаграма структуроутворення для одновимірного випадку при  $p = 10^{-6}$ . На вставці показано коефіцієнти розвинення  $\mathcal{C}_1$  та  $\mathcal{C}_3$  при  $K = 10^{-6}$  з.н.а./с,  $\Sigma = 0$

реалізується тривіальне значення амплітуди гідродинамічної моди  $A = 0$ , яке означає відсутність просторового упорядкування дефектів – рівномірний (хаотичний) розподіл точкових дефектів по системі. Структуроутворення стає можливим лише за умови  $\mathcal{C}_1 > 0$  та  $\mathcal{C}_3 < 0$ . Тоді сім'я стаціонарних розв'язків  $A_k = |A_k| e^{i\psi}$  задається амплітудами  $|A_k| = \sqrt{\mathcal{C}_1 / |\mathcal{C}_3|}$ , де фаза  $\psi$  є довільною. Діаграму структуроутворення для одновимірного випадку при  $p = 10^{-6}$  наведено на рис. 5. На ній можна виділити три характерні області по відношенню до значень  $\mathcal{C}_1$  та  $\mathcal{C}_3$  та з урахуванням лінійного аналізу стійкості. Область I обмежує значення температури та швидкості набору дози, коли стійким буде рівномірний розподіл дефектів. Поза цією областю однорідний розподіл дефектів стає нестійким. В області III, яка характеризується значеннями  $\mathcal{C}_1 > 0$ ,  $\mathcal{C}_3 < 0$ , відповідно до проведеного нелінійного аналізу маємо значення  $T$  та  $K$ , за яких структури є стаціонарними. Очевидно, що в області II нестійкості, що виникають, не приводять до формування стаціонарних структур дефектів, ці структури є перехідними. Тобто, за довгий час еволюції системи вони зникнуть. У двовимірному випадку область III розширюється і на діаграмі реалізуються лише області I і III, область перехідних структур вироджується. Для системи з  $p = 0$  можна виділити лише області I та III без реалізації перехідних структур. Дія шуму в обох випадках приводить до зменшення  $\mathcal{C}_3$

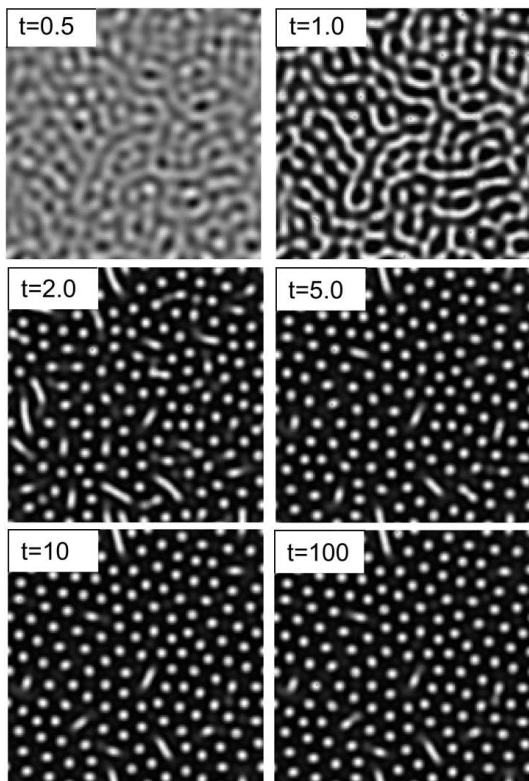


Рис. 6. Типовий хід формування структур дефектів у вигляді пор при  $T = 778 \text{ K}$ ,  $K = 10^{-6}$  з.н.а,  $E^e = 0,1 \text{ eV}$ ,  $p = 10^{-6}$ ,  $\Sigma = 0,001$

при малих  $x_{mp}$  внаслідок внеску  $-(\Sigma/4)x_{mp}^5$  до детерміністичної компоненти  $C_3$ . Таким чином, внутрішній шум здатний істотно розширити область формування стаціонарних структур навіть при малих концентраціях дефектів.

### 6. Моделювання

Для верифікації даних аналітичного розрахунку проведемо числове моделювання на ґратці з квадратною (кубичною) симетрією, що відповідає структурі нікелю із застосуванням різницевої схеми. За умови відсутності анізотропії для кроку по ґратці прийнято  $\Delta l = 0,5$ . Оскільки  $L_d = \rho_N^{-1/2}$ , то при  $\rho_N = 10^{14} \text{ м}^{-2}$  маємо  $L_d = 10^{-7} \text{ м}$ . Кількість вузлів ґратки по кожному просторовому напрямку –  $N = 128$ . У такому разі повна довжина системи в одному напрямку становить  $L = 25L_d$ . Для масштабу довжин покладемо  $\ell = 0,25$ , що автоматично означає  $r_0 = 2,5 \cdot 10^{-8} \text{ м}$ . Граничні умови вибираємо періодичними. У ролі початко-

вих умов вибираємо рівноважне значення концентрації вакансій, тобто,  $\langle x(\mathbf{r}, 0) \rangle = x_0$  з розкидом значень в околі середнього до 10%. З метою забезпечення стійкості алгоритму числового моделювання крок за часом покладемо рівним  $\Delta t = 10^{-4}$ , що відповідає фізичному часовому інтервалу релаксації каскаду.

Типову картину еволюції з формуванням пор дефектів подано на рис. 6, де темнопольні області відповідають фазі з об'єдненою густиною дефектів, а світлопольні області – фазі, збагаченій на дефекти. З рисунка видно, що, починаючи з хаотичної конфігурації дефектів за малий час у системі формуються спочатку протяжні структури дефектів, які потім розпадаються на більш стійкі при даних параметрах опромінення малі скупчення (пори). При цьому у динаміці спостерігаються ефекти приєднання вакансій до протяжних дефектів та їх розпад на окремі пори. Цей процес носить слабковиражений характер, але на статистичних характеристиках його можна помітити у вигляді осциляцій.

Для опису процесів формування структур з розподілом густини дефектів у кластерах скористаємося визначенням середньої густини  $m_1$ , дисперсією розкиду значень густини  $m_2$ , асиметрією  $m_3$  та ексцесом  $m_4$ , визначеними у стандартний спосіб:

$$\begin{aligned}
 m_1 &= \langle x \rangle; & m_2 &= \langle (x - \langle x \rangle)^2 \rangle; \\
 m_3 &= \frac{\langle (x - \langle x \rangle)^3 \rangle}{m_2^3}, & m_4 &= \frac{\langle (x - \langle x \rangle)^4 \rangle}{m_2^4},
 \end{aligned}
 \tag{32}$$

де  $m_2$  задає ширину перехідного шару між двома фазами (збідненої та збагаченої на дефекти фази). Асиметрія подає міру симетрії профілю базового рівня розподілу дефектів. Її знак характеризує положення породжуючих точок пропорційно у збагаченій ( $m_3 > 0$ ) або у збідненій ( $m_3 < 0$ ) фазі у порівнянні зі середнім рівнем розподілу дефектів. Ексцес описує хаотичність розподілу у порівнянні з досконало хаотичним (гаусовим) розподілом (для гаусівського розподілу  $m_4 = 3,0$ ). Ексцес також характеризує негладкість функції розподілу величини  $x$ . Якщо більшість особливостей (збуджень збагаченої на дефекти фази) зосереджено поблизу середнього рівня, то ексцес буде меншим, ніж для випадку подалі від середнього рівня. Середнє значення густини дефектів  $m_1$  може зростати, але не дає інформацію про характер стру-

ктуруоутворення. Основну інформацію щодо проходження структуроутворення дає дисперсія  $m_2$ : її зростання свідчатиме про виникнення нових фаз – збагаченої та збідненої на дефекти. Асиметрія та ексцес описують наскільки різняться ці фази.

Результати моделювання показали, що із повністю хаотичного розподілу дефектів у кристалі, починаючи із рівноважного значення густини дефектів, маємо таку картину динаміки структуроутворення (див. рис. 7). На малих часових інтервалах відбувається накопичення дефектів до рівня, достатнього для їх просторової організації. Тут дисперсія близька до нуля, що свідчить про відсутність границь поділу між двома фазами. Після досягання максимуму на залежності  $m_1(t)$  починає зростати дисперсія, що говорить про упорядкування в системі і дефекти починають притягуватися, скупчуючись у кластери. При цьому асиметрія починає суттєво відхилятися від нуля, а ексцес – від значення 3. Характерно, що слабкі осциляції ексцесу та асиметрії говорять про осциляційні процеси росту протяжних дефектів – приєднання дефектів до кластера та емісію дефектів з кластерів. Зменшення накопичених дефектів розподілених у кристалі говорить про їх міграцію до стоків – пор. З подальшим ростом часу опромінення реалізується стаціонарний режим, коли статистичні моменти не змінюються. Необхідно зазначити, що в інтервалі швидкості набору доз або температури, що відповідає області значень нижче кривих втрати стійкості однорідного розподілу (див. рис. 3, б), середнє поступово зростає, не проявляючи пік, а дисперсія є незмінною, рівною нулю, що свідчить про неможливість виникнення структур дефектів за таких умов (відповідні залежності внаслідок тривіальності не наведено).

Розглянемо окремо стаціонарні структури, що виникають за різних температурних режимів та швидкостей набору дози (див. рис. 8). Із наведеного випливає, що при малих температурах та швидкостях набору дози (див. рис. 8, а) в системі виникають кластери вакансій. Серед окремих кластерів реалізуються протяжні дефекти (наприклад, перетин вакансійної петлі у тривимірному просторі, перетин стінок дефектів). При збільшенні температури кількість протяжних дефектів значно зростає (див. рис. 8, б, в). При цьому концентрація дефектів зменшується і при наближенні до лінії існування стаціонарних структур дефекти розвиваються

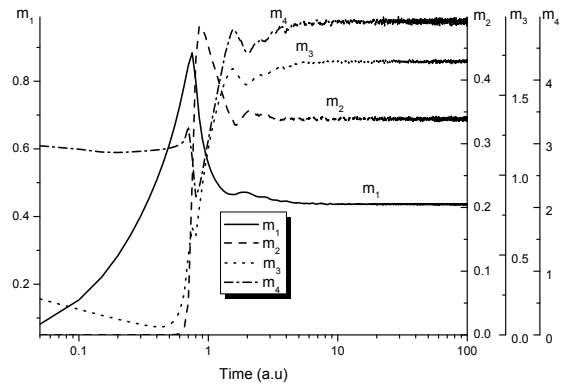


Рис. 7. Динаміка середнього, дисперсії, асиметрії та ексцесу (суцільна, штрихова, пунктирна та штрих-пунктирна лінії відповідно) при  $T = 778$  К,  $K = 10^{-6}$  з.н.а,  $E^e = 0,1$  еВ,  $p = 10^{-6}$ ,  $\Sigma = 0$

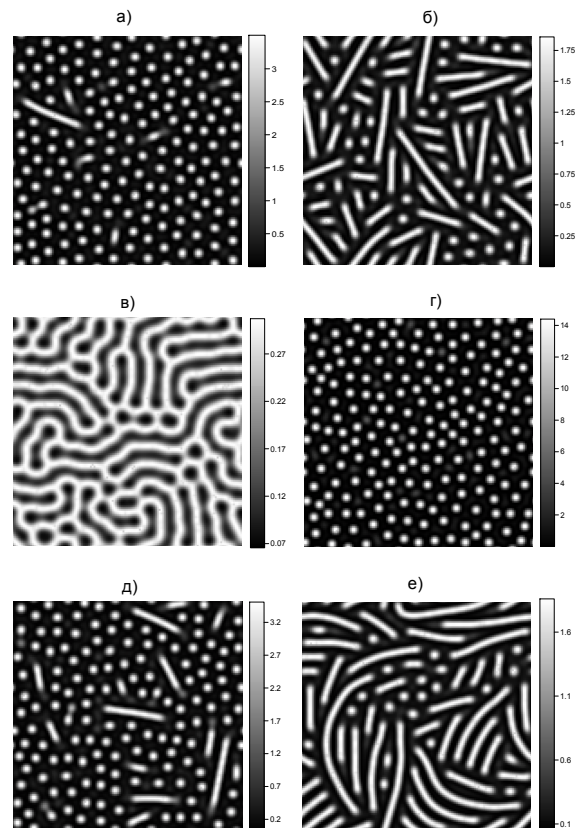


Рис. 8. Типові стаціонарні структури дефектів при швидкості набору дози  $K = 10^{-6}$  з.н.а/с і  $T = 730$  К (а),  $T = 773$  К (б),  $T = 825$  К (в) та при  $K = 10^{-5}$  з.н.а/с і  $T = 773$  К (д); наведені структури відповідають детерміністичному випадку. Структури (д) та (е) отримано при  $K = 10^{-6}$  з.н.а/с та  $\Sigma = 0,01$ : д –  $T = 730$  К, е –  $T = 773$  К

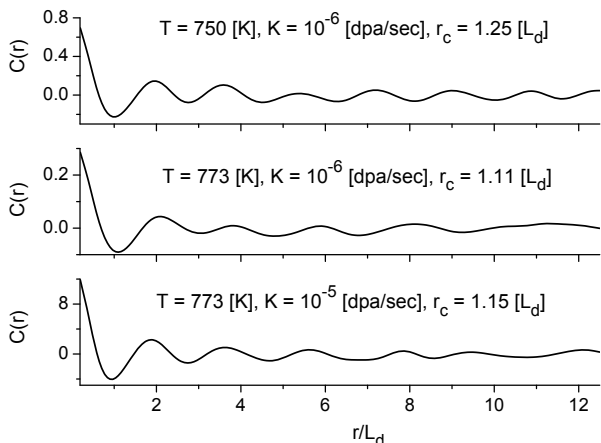


Рис. 9. Сферично-усереднена кореляційні функція при різному співвідношенні температури опромінення та швидкості набору дози

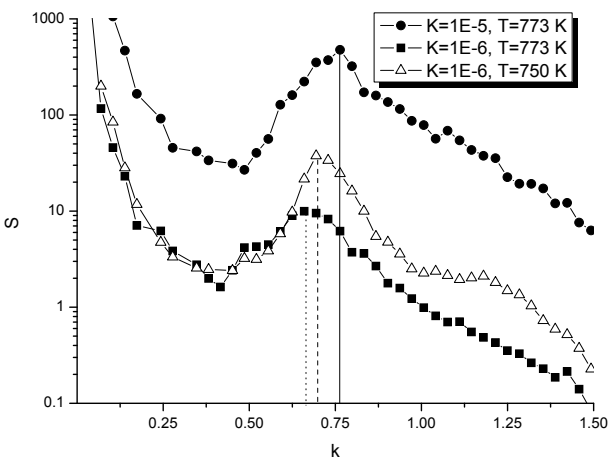


Рис. 10. Поведінка сферично-усередненого структурного фактора при варіюванні температури та швидкості набору дози для стаціонарного випадку

по всій системі. Характерно, що при підвищенні швидкості набору дози реалізуються в основному сферичні скупчення дефектів, при цьому кількість дефектів у порах істотно зростає (див. рис. 8,  $z$  та розподіл значень величини  $x$  на кожному з рисунків). Найбільш імовірні стаціонарні структури при  $\Sigma = 0,01$  наведено на рис. 8,  $d, e$ . Як видно з рисунків, у стаціонарному випадку дія внутрішнього шуму приводить до формування протяжних дефектів.

Проведемо кореляційний аналіз наведених стаціонарних структур. Для цього з'ясуємо властиво-

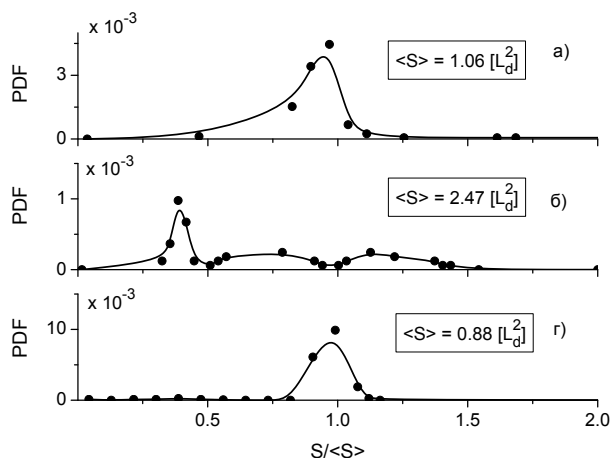


Рис. 11. Функція розподілу за розмірами пор при  $T = 750$  K,  $K = 10^{-6}$  з.н.а/с (верхня панель),  $T = 773$  K,  $K = 10^{-6}$  з.н.а/с (середня панель),  $T = 773$  K,  $K = 10^{-5}$  з.н.а/с (нижня панель)

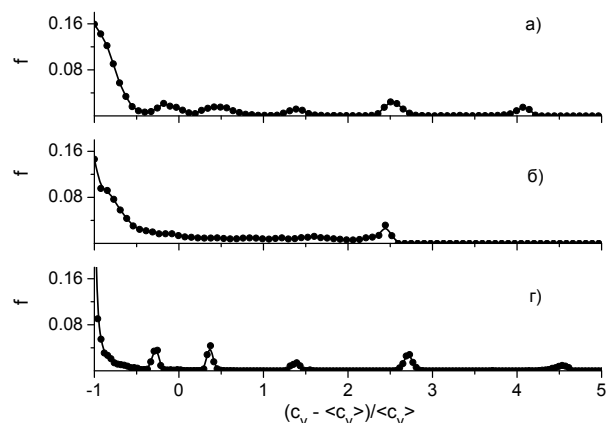


Рис. 12. Функція розподілу за концентраціями вакансій в кластерах при  $T = 750$  K,  $K = 10^{-6}$  з.н.а/с (верхня панель),  $T = 773$  K,  $K = 10^{-6}$  з.н.а/с (середня панель),  $T = 773$  K,  $K = 10^{-5}$  з.н.а/с (нижня панель)

сті двоточкової одночасової сферично-усередненої кореляційної функції  $\langle \delta x(0, t) \delta x(r, t) \rangle$ , де  $\delta x = x - \langle x \rangle$ . Її характерну залежність при різному співвідношенні температури та швидкості набору дози наведено на рис. 9. У загальному випадку кореляційну функцію можна апроксимувати залежністю  $C(r) = C(0)e^{-r/r_c} \sin(2\pi r/\langle r_0 \rangle + \phi)$ , де  $r_c$  – радіус кореляції,  $\langle r_0 \rangle$  – середній період структур,  $\phi$  – довільна фаза. При такому дослідженні нас цікавитиме залежність радіуса кореляції від основних параметрів системи, тоді як період

структур оцінимо з фур'є-аналізу. Із апроксимації кореляційних функцій випливає, що як зменшення температури, так і збільшення швидкості  $K$  приводить до пониження радіуса кореляції (утворення компактних сферичних структур дефектів), де загалом  $r_c \sim 100$  нм. Однак, за підвищених швидкостей  $K$  радіус кореляції зменшується внаслідок порушення симетрії ґратки пор за рахунок радіаційно-стимульованого процесу формування додаткових пор всередині ґратки пор. При зростанні температури за рахунок утворення протяжних дефектів радіус кореляції зростає. Оцінка величини  $\langle r_0 \rangle$  показує, що вона має значення порядку дифузійної довжини  $L_d$  так, що  $\langle r_0 \rangle / r_c \sim 10^{-1}$ . Для дослідження періоду структур важливою величиною виступає сферично усереднений структурний фактор  $S(k, t) = N^{-2} \sum_{k < |\mathbf{k}| < k + \Delta k} S(\mathbf{k}, t)$ , де  $S(\mathbf{k}, t)$  — структурний фактор, визначений за фур'є-перетворенням кореляційної функції від векторного аргументу  $C(\mathbf{r})$ ,  $\Delta k$  — ширина кільця у зворотному просторі. Відповідні залежності для  $S(k)$  наведено на рис. 10. З нього випливає, що положення основного піка, яке визначає період структур, повністю узгоджується із проведеним раніше лінійним аналізом на стійкість. Дійсно, тут пік зсувається в бік великих хвильових чисел при зростанні швидкості набору дози та при зменшенні температури, при цьому висота піка істотно зростає при великих  $K$ . Останнє свідчить про великий ступінь упорядкованості дефектних структур.

Дослідимо розподіл структур дефектів за розмірами, обчисливши відповідну функцію розподілу за розміром (PDF) за даними моделювання (див. рис. 11).

З отриманих результатів випливає, що при  $T = 750$  К,  $K = 10^{-6}$  з.н.а/с та  $T = 773$  К,  $K = 10^{-5}$  з.н.а/с, коли реалізуються в основному сферичні кластери розподіл  $PDF(S)$  центровано в околі значення середньої площини кластера  $\langle S \rangle$ . Виникнення додаткових максимумів при  $T = 773$  К,  $K = 10^{-6}$  з.н.а/с пояснюється утворенням протяжних дефектів, які дають внесок у розподіл. Слід відзначити, що у випадку великих швидкостей набору дози пік розподілу зростає на порядок. Це свідчить про те, що всі пори характеризуються малою дисперсією розміру так, що  $S \approx \langle S \rangle$ . Відповідно до обчислених значень маємо  $\langle S \rangle \sim L_d^2$  для сферичних структур та зро-

стання  $\langle S \rangle$  при виникненні протяжних структур дефектів.

Нарешті, розглянемо функцію розподілу концентрації вакансій  $f(c_v)$  у кластерах за різних умов опромінення (див. рис. 12). Необхідно зазначити, у всіх наведених випадках функція розподілу не центрована в околі середньої концентрації  $\langle c_v \rangle$ . Наявність піків функції  $f(c_v)$  означає формування кластерів вакансій із різним їх внеском. На верхній панелі на рис. 12 розмиття піків зумовлюється наявністю протяжних дефектів, кількість яких є малою при  $T = 750$  К при заданій швидкості набору дози. У випадку підвищених температур, коли кількість протяжних дефектів є суттєвою (середня панель) більшість вакансійних кластерів характеризуються розмиттям розподілу та одним піком. У випадку підвищеної швидкості набору дози (нижня панель), коли всі дефекти згруповано у сферичні пори практично однакового розміру  $\langle S \rangle$ , кількість дефектів у кластерах характеризується малою дисперсією концентрації (порівняно з випадком  $T = 750$  К,  $K = 10^{-6}$  з.н.а/с).

## 7. Висновки

Із використанням узагальненої швидкісної теорії еволюції точкових дефектів в опромінюваних матеріалах на прикладі нікелю проведено дослідження процесів формування структур дефектів вакансійного типу. У розвинутій моделі враховано процеси генерування дефектів полями деформації, індукованими самими дефектами, враховано ефект взаємодії дефектів та проведено узагальнення динамічного підходу за рахунок уведення у розгляд стохастичної складової еволюції.

Встановлено, що внаслідок дії пружних полів при генеруванні дефектів у розглянутій системі можливе формування бістабільних станів за низьких швидкостей набору дози, що властиве лазерному опроміненню, та пояснює термофлуктуаційний механізм утворення дефектів. Встановлено фазову діаграму в площині швидкість набору дози – температура, що ілюструє область існування бімодальності. При дослідженні стійкості однорідного розподілу дефектів по кристалічній системі в рамках лінійного аналізу показано, що просторові збурення, які дають поштовх проходженню процесів структуроутворення, виникають в обмеженому інтервалі робочих температур та швидкостей набору дози. Виявлено, що в умовах малої швид-

кості набору дози перша нестійка мода виникає з ненульовим хвильовим числом. У рамках лінійного аналізу показано, що період утворених структур дефектів (скупчень вакансій, пор) зменшується зі зростанням швидкості набору дози та температури, що узгоджується з відомими літературними даними (див., наприклад, [11]).

При дослідженні впливу стохастичної складової, яка описує дію мікроскопічних процесів дефектоутворення та задає статистичну природу структуроутворення, виявлено, що на ранніх стадіях еволюції системи такий шум приводить до дестабілізації однорідного стану системи, на пізніх стадіях він діє протилежно. Такий ефект відповідає механізму ентропійно-керованих фазових переходів в стохастичних системах із внутрішнім мультиплікативним шумом. Останнє свідчить про необхідність врахування такого випадкового чинника, який може істотно впливати на динаміку системи на різних стадіях її еволюції. Встановлено, що завдяки такому статистичному підходу можливим є дослідження властивостей стаціонарних структур.

Під час вивчення умов формування стаціонарних структур у рамках застосування нелінійного аналізу слабкозмінюючихся амплітуд гідродинамічної моди показано, що характер структуроутворення може бути описаний простим рівнянням для цих амплітуд. За результатами дослідження побудовано фазову діаграму, з якої випливає, що утворені структури можна поділити на стаціонарні та перехідні (з кінцевим часом їх існування).

За допомогою наведених підходів проведено числове моделювання, яке дозволило дослідити зміну морфології дефектних структур при варіюванні температури та швидкості набору дози (в інтервалі, що відповідає опроміненню в реакторах). Встановлено, що при незначному відході від області утворення структур дефекти організуються у протяжні кластери з невеликою концентрацією вакансій. При зниженні температури поміж протяжних дефектів формуються окремі кластери вакансій, які можна ототожнювати з порами. За подальшого зменшення температури, або підвищенні швидкості набору дози основною структурною одиницею будуть пори. З використанням кореляційного аналізу встановлено, що пори мають характерний розмір порядку 100 нм, а радіус кореляції може незначно відрізнятись від розміру пор. Останнє говорить про періодичність розташування вакансій-

них пор у нікелі, що підтверджено дослідженням структурного фактора та функції розподілу пор за розмірами. Дані числового моделювання повністю узгоджуються із аналітичними розрахунками, якісно та кількісно відповідають відомим експериментальним даним по формуванню структур дефектів вакансійного типу [11].

Незважаючи на те, що подана в роботі модель не враховує динаміку міжвузлових атомів, які швидко переходять на стоки, та не включає емісію вакансій з пор (динаміка яких не представлена рівняннями еволюції), розроблений підхід може бути використаний для дослідження поведінки дефектів вакансійного типу в умовах опромінення не лише в реакторах та лазерними імпульсами. Вона може бути застосована під час дослідження дефектоутворення при опроміненні на лінійних прискорювачах та при зовнішньому механічному навантаженні кристалічної системи.

1. J.H. Evans, *Nature* **229**, 403 (1971).
2. S. Saass and B.L. Eyre, *Phil. Mag.* **27**, 1447 (1973).
3. P.B. Johnson, D.J. Mazey, and J.H. Evans, *Radiat. Eff.* **78**, 147 (1983).
4. J.E. Evans and D.J. Mazey, *J. Nucl. Mater.* **138**, 176 (1986).
5. A. Jostobns and K. Farrel, *Radiat. Eff.* **15**, 217 (1972).
6. J.O. Steigler and K. Farrel, *Scr. Metall.* **8**, 651 (1974).
7. В.В. Углов, *Радиационные эффекты в твердых телах* (БГУ, Минск, 2007).
8. D. Walgraef, *Spatio-Temporal Pattern Formation* (Springer, New York, 1996).
9. Ф.Х. Мирзоев, В.Я. Панченко, Л.А. Шелепин, *УФН* **166**, No. 1, 3, (1996).
10. Ф.Х. Мирзоев, Л.А. Шелепин, *Письма в ЖТФ* **22**, вып. 13, 28, (1996).
11. В.Н. Воеводин, И.М. Неклюдов, *Эволюция структурнофазового состояния радиационная стойкость конструкционных материалов* (Наукова думка, Киев, 2006).
12. R.Enrique and P.Bellon, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2885 (2000).
13. R.A. Enrique and P. Bellon, *Phys. Rev. E* **63**, 134111 (2001).
14. J. Ye and P. Bellon, *Phys. Rev.* **70**, 094104 (2004).
15. N. Ofori-Opoku, J.J. Hoyt, and N. Provatas, *Phys. Rev. E* **86**, 066706 (2012).
16. K.R. Elder and M. Grant, *Phys. Rev. E* **70**, 051605 (2004).
17. P.F. Tupper and M. Grant, *Eur. Phys. Lett.* **81**, 40007 (2008).
18. J. Berry, M. Garnt, and K.R. Elder, *Phys. Rev. E* **73**, 031609 (2006).
19. K.R. Elder, N. Provatas, J. Berry, P. Stefanovich, and M. Grant, *Phys. Rev. B* **75**, 064107 (2007).

20. A. Jaatinen, C.V. Achim, K.R. Elder, and T. Ala-Nissila, *Phys. Rev. E* **80**, 031602 (2009).
21. D. Kharchenko, I. Lysenko, and V. Kharchenko, *Physica A* **389**, 3356 (2010).
22. D.O. Kharchenko, V.O. Kharchenko, and I.O. Lysenko, *Cent. Eur. J. Phys.* **9**, 698 (2011).
23. Д.О. Харченко, В.О. Харченко, С.В. Кохан, І.О. Лисенко, *УФЖ* **57**, N.10, 1069 (2012).
24. D.O. Kharchenko, V.O. Kharchenko, I.O. Lysenko, and S.V. Kokhan, *Phys. Rev. E* **82**, 061108 (2010).
25. V.O. Kharchenko and D.O. Kharchenko, *Cond. Matter Phys.* **14**, 23602 (2011)
26. Д.О. Харченко, А.В. Дворниченко, І.О. Лисенко, *УФЖ* **53**, N.9, 917 (2008).
27. Д.О. Харченко, І.О. Лисенко, В.О. Харченко, *УФЖ* **55**, No. 11, 1226 (2010).
28. P.K. Galenko, D. Kharchenko, and I. Lysenko, *Physica A* **389**, 3443 (2010).
29. G. Martin, *Phys. Rev. B.* **30**, 1424 (1984).
30. C. Abromeit and G. Martin, *J. Nucl. Mater.* **271–272**, 251 (1999).
31. V.O. Kharchenko and D.O. Kharchenko, *Eur. Phys. J. B* **85**, 383 (2012).
32. D. Batogkh, M. Hildebrandt, F. Krischer, and A. Mikhailov, *Phys. Rep.* **288**, 435 (1997).
33. D.O. Kharchenko, S.V. Kokhan, and A.V. Dvornichenko, *Physica D* **238**, 2251 (2009).
34. S.E. Mangioni and H.S. Wio, *Phys. Rev. E* **71**, 056203 (2005).
35. H. Risken, *The Fokker-Planck Equation* (Springer, Berlin, 1984).
36. M. Ibanes, J. Garcia-Ojalvo, R. Toral, and J.M. Sancho, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 020601 (2001).
37. K. Wood, J. Buceta, and K. Lindenberg, *Phys. Rev. E.* **73**, 022101 (2006).
38. D.O. Kharchenko and A.V. Dvornichenko, *Physica A* **387**, 5342 (2008).
39. D.O. Kharchenko and A.V. Dvornichenko, *Eur. Phys. J. B* **61**, 95 (2008).
40. V.O. Kharchenko, *Physica A* **388**, 268 (2009).
41. D.O. Kharchenko, I.O. Lysenko, and S.V. Kokhan, *Eur. Phys. J. B.* **76**, 37 (2010).
42. S.E. Mangioni, *Physica A* **389**, 1799 (2010).
43. J. Buceta and K. Lindenberg, *Phys. Rev. E* **69**, 011102 (2004).
44. P.C. Hohenberg and B.I. Halperin, *Rev. Mod. Phys.* **49**, 435 (1997).

Одержано 18.02.13

Д.О. Харченко, В.О. Харченко, А.И. Баштова

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОСТРАНСТВЕННОЙ  
ОРГАНИЗАЦИИ ТОЧЕЧНЫХ ДЕФЕКТОВ  
В ОБЛУЧАЕМЫХ СИСТЕМАХ

Резюме

Предложен обобщенный статистический подход к описанию процессов организации точечных дефектов вакансионного типа в кластеры и поры на примере никеля в рамках скоростной теории, учитывающей генерацию дефектов упругими полями и взаимодействие дефектов. Проведено исследование условий возникновения структур дефектов в рабочих режимах облучения в реакторах. Установлен характер изменения микроструктуры при изменении температуры и скорости набора дозы в рамках использования аналитических подходов и методов численного моделирования. Исследовано изменение периода структур и их характерных размеров при помощи статистического анализа данных моделирования. Полученные результаты согласуются с экспериментальными наблюдениями за процессами дефектообразования при облучении в реакторных условиях.

D.O. Kharchenko, V.O. Kharchenko, A.I. Bashtova

SIMULATION OF A SPATIAL  
ORGANIZATION OF POINT DEFECTS  
IN IRRADIATED SYSTEMS

Summary

In the framework of rate theory, a generalized statistical approach has been proposed to describe the spatial organization of point defects of the vacancy type into clusters and pores in irradiated systems. The approach makes allowance for the generation of point defects by elastic fields, as well as for defect interaction. The model is applied to study the defect pattern formation in pure nickel. The conditions required for the pattern formation at actual irradiation regimes in reactors have been analyzed. The peculiarities of microstructure changes at various temperatures and dose accumulation rates have been obtained both analytically and numerically. The defect pattern period and the change of a characteristic pattern size have been studied by applying the statistical methods to analyze the obtained numerical data. The results are in good correspondence with well-known experimental observations of the defect microstructure formation in irradiated materials under reactor conditions.