

05

Определение энергетических параметров центров накопления гелия в облученном карбиде бора по спектрам термодесорбции

© В.В. Светухин

Ульяновский государственный университет
E-mail: slava@sv.uven.ru

Поступило в Редакцию 6 августа 2002 г.

Предлагается модель для описания спектров термодесорбции. Найдены энергетические характеристики центров, связанных с накоплением гелия в облученном карбиде бора. Показано, что центр накопления гелия, разрушающийся при 100–150°C, характеризуется энергией активации разрушения 0.23 eV (предполагаемая природа центра — кластер или комплекс из междоузельных атомов гелия). Центры накопления гелия, разрушающиеся при 800–1000°C, характеризуются энергией активации 0.65–0.75 eV (предполагаемая природа центра — гелий-вакансионные поры).

Несмотря на большое внимание к исследованию процессов радиационного дефектообразования в карбиде бора, природа дефектов в этом материале изучена еще недостаточно [1]. Можно сказать, что однозначно идентифицированы только гелий-вакансионные поры [1]. Радиационное дефектообразование в карбиде бора связано, прежде всего, с образованием и накоплением гелия. Информация о дефектах, связанных с гелием, может быть получена из экспериментальных данных по термодесорбции гелия. Эксперимент по термодесорбции проводится следующим образом: облученные образцы нагреваются с постоянной скоростью, при этом контролируется скорость выделения гелия. Спектры термодесорбции представляют собой зависимость скорости выделения газа от температуры. В работе [2] было проведено исследование спектров термодесорбции облученного порошка В₄С и показано наличие трех центров накопления гелия. На основе методики, предложенной в работе [3], по температуре максимума спектра термодесорбции были определены энергии активации данных

центров (0.3, 1.2, 2.3 eV). Однако данная методика может дать точные результаты только при наличии большого числа экспериментальных данных, отличающихся различными скоростями нагрева. В работе [2] погрешность определения энергий активации составляла $\sim 20\%$.

В данной работе предлагается методика определения энергетических параметров, основанная на описании спектров термодесорбции при одной скорости нагрева.

Пусть N — концентрация атомов гелия, находящихся на некотором центре накопления гелия (это может быть кластер, комплекс или дефект, связанный с поверхностью). При температурах проведения эксперимента по термодесорбции можно считать, что вероятность захвата гелия на дефект много меньше, чем вероятность отрыва гелия от дефекта. Кинетику отрыва гелия от центров захвата представим в следующем виде:

$$\frac{dN(t)}{dt} = -g(T)N(t). \quad (1)$$

В случае, если происходит повышение температуры с постоянной скоростью β , можно записать зависимость температуры от времени:

$$T = T_0 + \beta t. \quad (2)$$

Уравнение (2) позволяет заменить в уравнении (1) время на температуру:

$$\frac{dN(T)}{dT} = -\frac{g(T)}{\beta} N(T). \quad (3)$$

Зависимость кинетического коэффициента $g(T)$ от температуры представим в следующем виде:

$$g(T) = g_0 \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right), \quad (4)$$

где E_a — энергия активации отрыва гелия от дефекта, коэффициент g_0 пропорционален концентрации дефектных центров N_C , а также связан с геометрией центра.

Решение уравнений (3) может быть представлено в следующем виде:

$$N(T) = N(T_0) \exp\left(-\int_{T_0}^T \frac{g(T_1)}{\beta} dT_1\right), \quad (5)$$

где T_0 — температура, при которой начинается нагрев; $N(T_0)$ — концентрация атомов гелия на дефекте при $T = T_0$.

Для описания спектров десорбции нам необходимо найти зависимость скорости выделения гелия от температуры $\frac{dN}{dt} = \beta \frac{dN}{dT}$. Подставляя (5) и (4) в (3), получим интересующую нас зависимость

$$\frac{dN(T)}{dT} = \frac{N(T_0)g_0}{\beta} \exp\left(-\frac{E_a}{kT} - \int_{T_0}^T \frac{g(T_1)}{\beta} dT_1\right). \quad (6)$$

Если пренебречь скоростью выделения гелия при температурах более низких, чем T_0 , то выражение (6) может быть представлено в следующей форме:

$$\frac{dN(T)}{dT} = \frac{N(T_0)g_0}{\beta} \exp\left\{-\frac{E_a}{kT} - \frac{E_a g_0}{k\beta} \left(\frac{kT}{E_a} \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) - Ei(1, E_a/kT)\right)\right\}, \quad (7)$$

где $Ei(1, x)$ — функция Эйри.

Зависимость (7) имеет максимум при температуре

$$T_{\max} = \frac{E_a}{2k \text{Lambert}\left(\frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_a g_0}{k\beta}}\right)}, \quad (8)$$

где $\text{Lambert}(x)$ — функция Ламберта.

Из выражения (8) можно найти связь энергии активации с температурой максимума спектра термодесорбции, кинетическим коэффициентом g_0 и скоростью нагрева β :

$$E_a = kT_{\max} \text{Lambert}\left(\frac{g_0 T_{\max}}{\beta}\right). \quad (9)$$

Можно также получить следующее полезное соотношение:

$$\frac{g_0}{\beta} = \frac{E_a}{kT_{\max}^2} \exp\left(\frac{E_a}{kT_{\max}}\right). \quad (10)$$

Если выражение (10) подставить в (7), то выражение для спектра термодесорбции примет вид

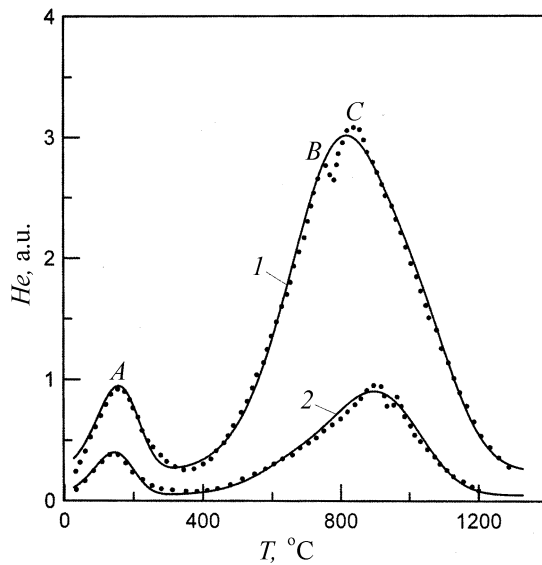
$$\begin{aligned} \frac{dN(T)}{dT} = N(T_0) \frac{E_a}{kT_{\max}^2} \exp \left\{ \frac{E_a}{k} \left(\frac{1}{T_{\max}} - \frac{1}{T} \right) \right\} \\ \times \exp \left\{ - \frac{E_a T}{kT_{\max}^2} \exp \left(\frac{E_a}{k} \left(\frac{1}{T_{\max}} - \frac{1}{T} \right) \right) \right\} \\ \times \exp \left\{ \frac{E_a^2}{k^2 T_{\max}^2} Ei \left(1, E_a/kT \right) \exp \left(\frac{E_a}{kT_{\max}} \right) \right\}. \quad (11) \end{aligned}$$

Данное выражение более удобно для описания эксперимента по термодесорбции, так как температуру максимума можно определить по экспериментальным данным. Если произвести нормировку высоты спектра термодесорбции на единицу, то единственным подгоночным параметром будет энергия активации. Данная методика обладает большей точностью по сравнению с [3], так как определение энергии активации связано не только с определением температуры максимума пика термодесорбции при нескольких скоростях нагрева, но и с описанием формы спектра кривой термодесорбции.

С помощью предложенной выше формулы (11) были обработаны спектры термодесорбции гелия в облученном карбиде бора, полученные в работе [2]. На рисунке приведены данные для порошков карбида бора, облученных при флюенсах $1.2 \cdot 10^{19}$ и $9 \cdot 10^{19}$ neutron/cm².

Пик, наблюдающийся при более низкой температуре, удовлетворительно описывается формулой (11) с $E_A = 0.23$ eV. Высокотемпературный пик имеет сложную структуру и удовлетворительно описывается в предположении, что состоит из двух пиков с энергиями активации $E_B = 0.65$ eV и $E_C = 0.75$ eV. Сплошная линия на рисунке соответствует суммарной скорости выделения гелия с центров *A*, *B* и *C* с указанными выше энергиями активаций (расчет скорости выделения для каждого из центров проводился с помощью (11)).

Ближкие значения энергий активации и близкий температурный интервал разрушения дефектов сорта *B* и *C* позволяют сделать предположение об их родственной структуре. Скорее всего, данные центры имеют одинаковый состав, но отличаются размером или пространственным расположением. В этом предположении можно не разделять



Точки — экспериментальные спектры термодесорбции гелия из облученного карбида бора при флюенсе $9 \cdot 10^{19}$ (1) и $1.2 \cdot 10^{19}$ (2) neutron/cm^2 , скорость нагрева 0.3 C/s [2]. Сплошные линии — расчет.

центры накопления гелия *B* и *C* и говорить о дефектах одного типа, характеризующихся энергией активации, лежащей в диапазоне $0.65\text{--}0.75 \text{ eV}$.

Таким образом, будем считать, что при исследовании спектров термодесорбции наблюдаются дефекты двух типов. Аналогичная ситуация наблюдается при исследовании спектров термодесорбции в карбиде кремния, имплантированного ионами гелия [4]. Авторы связывают пик, наблюдающийся при более низких температурах, с разрушением кластеров из междоузельных атомов гелия, а высокотемпературный пик, имеющий сложную структуру, с выделением гелия из гелий-вакансионных пор. Если сделать предположение об аналогичной природе дефектов в карбиде бора, то $E_A = 0.23 \text{ eV}$ соответствует энергии активации отрыва атома гелия от кластера или комплекса, образованного из междоузельных атомов гелия, а $E_B = 0.65\text{--}0.75 \text{ eV}$ соответствует энергии активации выхода гелия из гелий-вакансионных пор.

Список литературы

- [1] Щербак В.И., Тарасиков В.И., Быков В.Н., Руденко В.А. // Атомная энергия. 1986. Т. 60. № 3. С. 190–192.
- [2] Ковыришин В.Г. // Атомная энергия. 1982. Т. 53. № 2. С. 112–113.
- [3] Дамаск А., Динс Дж. Точечные дефекты в металлах. М.: Мир, 1966.
- [4] Oliviero E., van Veen A., Fedorov A.V., Beaufort M.F., Barbot J.F. // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. 2000. В 186. Р. 223–228.