

03;06

## **Определение параметров центров накопления гелия в карбиде кремния по спектрам термодесорбции**

© В.В. Светухин, А.С. Кадочкин, В.Д. Рисованый

Ульяновский государственный университет  
Государственный научный центр — Научно-исследовательский институт  
атомных реакторов, Димитровград  
E-mail: slava@sv.uven.ru

Поступило в Редакцию 18 июля 2012 г.

Предложена модель термодесорбции гелия из облученного карбида кремния. Получена количественная оценка выхода гелия из материала в процессе отжига. Определены энергетические параметры дефектной структуры карбида кремния.

Карбид кремния используется в качестве покрытия для элементов ядерного топлива в высокотемпературных газовых реакторах и в высокотемпературных реакторах типа VHTR [1]. Данный материал обеспечивает механическую устойчивость к топливу и является основным барьером для выхода продуктов деления. Композитные материалы из карбида кремния не только обладают нейтронной и термической стойкостью, но и не производят под действием нейтронного облучения долгоживущих радиоактивных элементов. При воздействии нейтронного облучения в карбиде кремния образуется гелий, который частично растворяется в объеме вещества, а также образует объемные дефекты, являющиеся центрами накопления. Интерес к карбиду кремния связан также с поисками конструкционных материалов для перспективных термоядерных реакторов [2,3]. В ходе работы термоядерного реактора по наиболее перспективному DT-циклу кроме нейтронного излучения происходит также непосредственное облучение элементов конструкции реактора потоком альфа-частиц, что может приводить к образованию дефектов, содержащих атомы гелия.

В данной работе предлагается способ исследования параметров центров накопления гелия при линейном нагреве облученного образца. Нагрев облученного материала сопровождается разрушением гелиевых

кластеров и отрывом гелия от центров накопления, что дает возможность получения информации о дефектах из экспериментальных данных по термодесорбции гелия. В работе [4] были получены спектры термодесорбции гелия из монокристаллических образцов карбида кремния, облученного альфа-частицами с различной энергией. В работе [5] предложен метод, позволяющий оценить количество гелия, который выходит из облученного порошка карбида бора при отжиге в нестационарных условиях.

При экспериментальном исследовании методом термостимулированного разрушения комплексов облученные образцы нагреваются с постоянной скоростью, при этом контролируется скорость выделения гелия. Существует два режима термодесорбции — активационный, при котором скорость десорбции лимитируется скоростью отрыва атомов гелия от центров накопления, и диффузионный, при котором лимитирующим фактором является диффузия гелия к границе зерна. При десорбции в диффузионном режиме спектр будет состоять только из одного пика независимо от количества различных типов центров накопления гелия. Наличие нескольких пиков термодесорбции является признаком активационного режима выхода гелия. Используемая нами модель построена в предположении того, что фактором, лимитирующим выход гелия, является преодоление активационного барьера при отрыве атомов газа от центров накопления.

Пусть  $N$  — концентрация атомов гелия, находящихся на центрах накопления. Если считать, что вероятность захвата атома гелия меньше, чем вероятность его отрыва от центра накопления, то скорость отрыва атомов от комплекса можно представить в виде

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

Если температура повышается с постоянной скоростью  $\beta$ , то зависимость температуры от времени можно записать в виде

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

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

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

где  $g(T)$  — кинетический коэффициент, определяемый выражением

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

Решение уравнения (3) имеет вид

$$N(T) = N(T)_0 \exp\left(-\int_{T_0}^T \frac{g(T_1)}{\beta} dT_1\right), \quad (5)$$

где  $T_0$  — начальная температура.

Для описания экспериментальных данных необходимо определить зависимость скорости выброса атомов из центров накопления от температуры  $dN/dt = \beta dN/dT$ . Подставляя уравнение (5) в выражение (3), получаем

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

где  $E_a$  — энергия активации.

Если пренебречь скоростью выброса при температуре, более низкой, чем  $T_0$ , то выражение (6) можно представить в следующей форме:

$$\frac{dN(T)}{dT} = \frac{N(T_0)g_0}{\beta} \exp\left\{-\frac{E_a}{kT} - \frac{E_a g_0}{k\beta} \left[\frac{kT}{E_a} \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) - E_1\left(\frac{E_a}{kT}\right)\right]\right\}, \quad (7)$$

где  $E_n(x)$  — экспоненциальный интеграл, определяемый выражением

$$E_n(x) = \int_1^{\infty} \frac{e^{-xt}}{t^n} dt.$$

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.

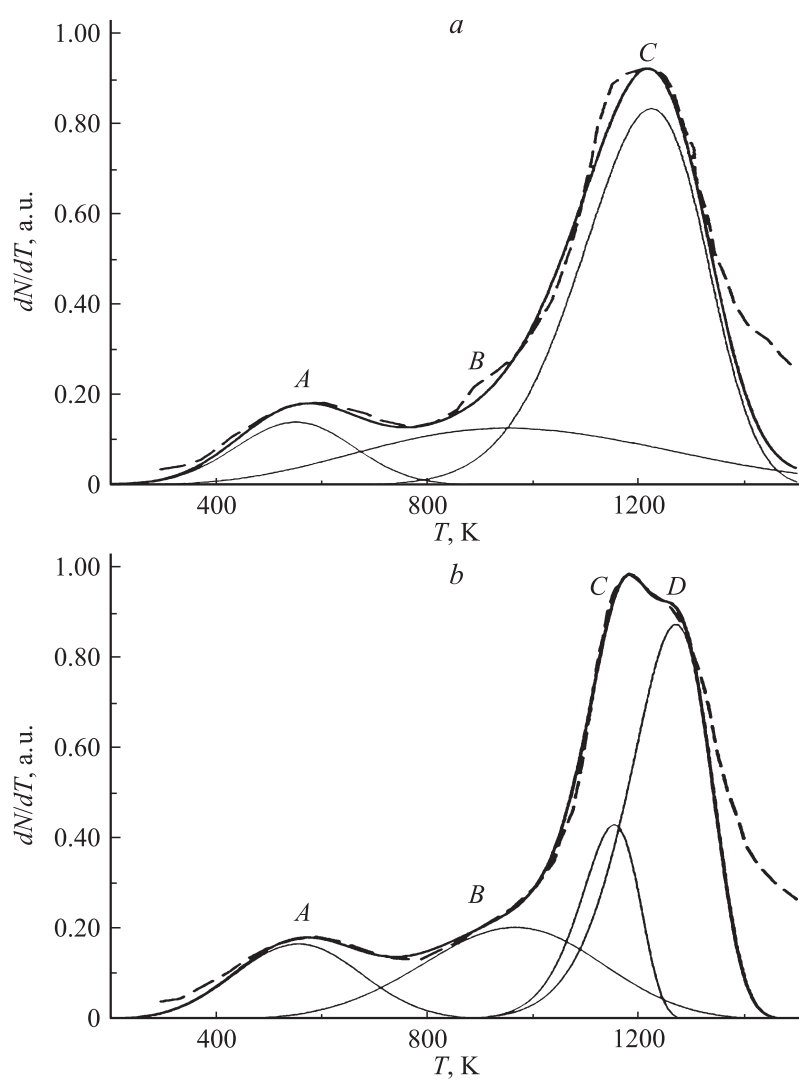
Подставляя (8) в уравнение (7), получим выражение для скорости выброса атомов гелия из центра накопления:

$$\begin{aligned} \frac{dN(T)}{dT} = & N(T_0) \frac{E_a}{kT_{\max}^2} \exp \left[ \frac{E_a}{k} \left( \frac{1}{T_{\max}} - \frac{1}{T} \right) \right] \\ & \times \exp \left\{ -\frac{E_a T}{kT_{\max}^2} \exp \left[ \frac{E_a}{k} \left( \frac{1}{T_{\max}} - \frac{1}{T} \right) \right] \right\} \\ & \times \exp \left[ \frac{E_a^2}{k^2 T_{\max}^2} E_1 \left( \frac{E_a}{kT} \right) \exp \left( \frac{E_a}{kT_{\max}} \right) \right]. \end{aligned} \quad (9)$$

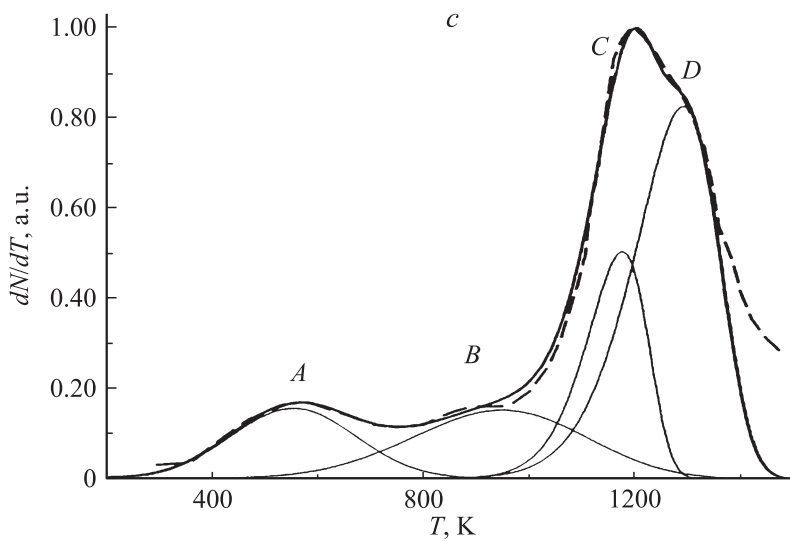
Данное выражение позволяет описать экспериментальные спектры термодесорбции, поскольку температуру максимума можно определить по экспериментальным данным. Если произвести нормировку спектра, то единственным варьируемым параметром будет энергия активации. С помощью предложенной выше формулы (9) были обработаны спектры термодесорбции гелия из облученного ионами гелия с различной энергией карбида кремния, полученные авторами работы [4].

На рисунке, *a–c* приведены экспериментальные данные и результаты расчетов с использованием формулы (9) для порошков карбида кремния (кристаллическая модификация 4H-SiC), облученных ионами гелия с энергией 1 keV до флюенсов  $3.2 \cdot 10^{14}$ ,  $5.6 \cdot 10^{14}$  и  $1.0 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ . С помощью выражения (9) нами проведена обработка экспериментальных спектров термодесорбции и получены зависимости энергий активации выхода гелия из центров накопления от дозы облучения. Результаты численных расчетов приведены в табл. 1. Четко можно выделить два пика: пик *A* с энергией активации 0.2 eV при температуре 565 K и пик *C–D* при температуре 1150–1300 K, энергия активации которого увеличивается с 1.0 eV при флюенсе  $3.2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  до 1.7–2.0 eV при флюенсе  $1.0 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ . Промежуточный пик *B* введен нами для лучшего совпадения модельной зависимости (9) с экспериментальными данными, наличие и природа данного пика требуют дополнительного исследования.

Также на основании экспериментальных спектров из работы [4] были получены зависимости характеристик центров накопления гелия в карбиде кремния типа 6H-SiC от энергии ионов гелия. Найденные параметры центров накопления гелия сведены в табл. 2. Можно видеть, что с увеличением дозы растет энергия активации выхода гелия из дефектов.



Зависимость скорости термодесорбции в относительных единицах от температуры для карбида кремния, облученного ионами гелия до флюенса  $3.2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  (a),  $5.6 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  (b),  $1.0 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  (c). Пунктир — экспериментальные спектры термодесорбции, сплошная линия — расчет по формуле (9).



Продолжение рисунка.

Для высокотемпературного пика с увеличением энергии имплантации ионов от 0.5 до 3 keV энергия активации  $E_{a2}$  увеличивается от 1.5

**Таблица 1.** Параметры центров накопления в 4H-SiC (энергия ионов — 1 keV)

Величины воздействия	Центры			
	A	B	C	D
	Флюенс $3.2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$			
$E_a$ , eV	0.2	0.2	1.0	—
$T_{\text{max}}$ , K	565	900	1200	—
	Флюенс $5.6 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$			
$E_a$ , eV	0.2	0.4	2.0	1.7
$T_{\text{max}}$ , K	565	900	1155	1270
	Флюенс $1.0 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$			
$E_a$ , eV	0.2	0.4	2.0	1.7
$T_{\text{max}}$ , K	565	900	1180	1290

**Таблица 2.** Зависимость энергии активации выхода гелия из 6H-SiC от энергии ионов  $E_i$ . Флюенс  $10^{15} \text{ cm}^{-2}$ 

$E_i$ , keV	$E_{a1}$ , eV	$T_{\max 1}$ , K	$E_{a2}$ , eV	$T_{\max 2}$ , K
0.5	0.5	630	1.5	1180
1.0	0.6	540	1.5	1180
2.0	0.4	535	1.9	1245
2.5	0.5	550	2.1	1305
3	—	—	4.0	1555

до 4 eV, при этом наблюдается заметный сдвиг температуры  $T_{\max 2}$  от 1180 до 1555 К. Для низкотемпературного пика изменения в энергии активации  $E_{a1}$  и температуры максимума  $T_{\max 1}$  с увеличением энергии имплантации выражены слабо. С ростом энергии имплантации ионов сначала наблюдается лишь некоторое уменьшение величины  $T_{\max 1}$ , а затем ее рост.

Наблюдаемые закономерности позволяют связать высокотемпературный пик термодесорбции с гелий-вакансионными порами: действительно, по данным [6,7] при увеличении дозы облучения и энергии имплантации ионов наблюдается рост размера и количества гелий-вакансионных пор, приводящий к увеличению энергии активации, что подтверждает предположение об участии вакансий в процессе формирования данных центров накопления. Десорбция гелия при низких температурах, слабо зависящая от энергии ионов, может быть связана с гелиевыми кластерами или небольшими комплексами, когерентно расположенными в объеме кристаллической решетки.

Таким образом, на основе модели активационной десорбции атомов гелия из центров накопления исследованы параметры дефектной структуры карбида кремния, образующейся при нейтронном облучении, найдены энергетические параметры центров накопления гелия. Показано, что с увеличением дозы облучения увеличивается энергия активации десорбции гелия из дефектов, что свидетельствует об участии вакансий в процессе формирования данных центров накопления.

Работа поддержана Министерством образования и науки Российской Федерации.

## Список литературы

- [1] *Abhishek K. Singh, Suraj C. Zunjarrao, Raman P. Singh*. // J. Nuclear Materials. 2008. V. 378. P. 238–243.
- [2] *Snead L.L., Nozawa T., Ferraris M., Katoh Y., Shinavski R., Sawan M.* // J. Nuclear Materials. 2011. V. 417. P. 330–339.
- [3] *Ferraris M., Salvo M., Casalegno V., Ciampichetti A., Smeacetto F., Zucchetti M.* // J. Nuclear Materials. 2008. V. 375. P. 410–415.
- [4] *Oliviero E., Van Veen A., Fedirjv A.V., Beaufort M.F., Barbot J.F.* // Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. 2000. B. V. 186. P. 223–228.
- [5] *Светухин В.В.* // Письма в ЖТФ. 2003. Т. 29. В. 4. С. 52–57.
- [6] *Jung P.* // J. Nuclear Materials. 1992. V. 377. P. 191–194.
- [7] *Huang H., Ghoniem N.M., Wong J.K., Baskes M.I.* // Mater. Sci. Eng. 1995. V. 3. P. 615.