آسیب میکروساختاری نیوبیوم در اثر تابش و بررسی پدیده بهمن برخوردی با استفاده از شبیه سازی اتمی

محمدرضا باسعادت*، محمود پیامی

۱. پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، صندوق پستی ۸۳۶-۱۴۳۹۵، سازمان انرژی اتمی تهران-ایران

چکیده :

نیوبیوم از جمله عناصری است که کاربردها و توجهات وسیعی در صنعت هسته‌ای دارد. به ویژه آلیاژ آن با زیرکونیوم، به دلیل ویژگیهای منحصر به فردی که دارد در راکتورهای هسته‌ای مورد استفاده قرار می گیرد. اثر تابش بر روی ساختار نیوبیوم و نحوه تغییر میکروساختاری و آسیب ساختاری آن منجر به تولید نقیصه‌ها مانند زوج فرنکل شده و از این رو می‌تواند نقش موثری در تغییر ویژگیهایی ساختاری و مکانیکی شود. در این پژوهش با استفاده از دینامیک مولکولی به بررسی نحوه تشکیل زوج فرنکل در اثر تابش در ساختار نیوبیوم خالص پرداخته و با توجه به اینکه راکتورها در دماهای بالا کار می‌کنند، به بررسی اثر دما بر تعداد و نحوه تشکیل آنها خواهیم پرداخت. همچنین پدیده بهمن برخوردی که در اثر تابش در ساختار تولید می‌شود، برای انرژی‌های مختلف تابش و نحوه تغییر میکروساختاری در اثر این پدیده مورد بررسی قرار گرفته است که نتایج به دست آمده در محاسبه ثابت‌های شبکه و تعداد زوج فرنکل تولید شده در تطابق خوبی با نتایج تجربی و محاسبات دیگران قرار دارد.

کلیدواژه‌ها: آسیب تابشی، نیوبیوم، دینامیک مولکولی، خودبین نشین، تهی جای

Niobium microstructure damage due to irradiation and the study of Collision-Cascade phenomenon using atomistic simulations

M. R. Basaadat*, M. Payami

1. School of Physics & Accelerators, Nuclear Science & Technology Research Institute, P. O. BOX: 14395-836, Atomic Energy Organization Tehran-Iran.

Abstract: Niobium has a considerable interest and applications in nuclear industry. Because of unique properties, niobium and its alloys with zirconium is specially using in nuclear reactors. The irradiation effect on Niobium (Nb) structure and the microstructure evolution as well as structural damage causes to create defects such as Frenkel pair (FP) and therefore, it is very important in structural and mechanical properties of that. In this study, we have considered the details of irradiation-induced FPs as well as the collision-cascade phenomenon in pure Nb structure. Because the reactors always work on high temperatures, we have also taken a look at temperature effects on creation of FPs. Also, irradiation-induced collision-cascade phenomenon has been considered in this study. Results have shown a good agreement in lattice parameter and the number of FPs in comparison with experimental and other theoretical results.

Keywords: Irradiation damage, Niobium, Molecular Dynamics, Frenkel Pair, Collision-Cascade.

Email: mohamadreza.phy1986@gmail.com

۱. مقدمه

بیشتر قطعاتی که در راکتورها حضور دارند تحت تاثیر تابش ذرات پر انرژی حاصل از پدیده شکافت و همچنین دمای بالایی هستند که راکتور در آن کار می کند. به همین دلیل درک اثر تابش برای تولید نقیصه‌ها و نحوه تغییر میکروساختاری این مولفه‌ها اهمیت بسیار بالایی دارد که اطلاعات درباره آنها بینش بسیار خوبی را درباره نوع تغییر خواص مکانیکی و ساختاری آنها در اختیار ما قرار می دهد. همچنین تغییرات دمایی نیز مولفه مهم دیگری است که بر کیفیت کار مواد درون راکتور اثرگذار است. یکی از این مواد مورد استفاده در راکتورها که اکثرا به صورت آلیاژ با زیرکونیوم مورد استفاده است نیوبیوم است. بر اساس نمودار فازی، نیوبیوم در دماهای کار راکتور و پایین تر دارای ساختاری با فاز بتا (ساختار BCC[1]) می‌باشد [۱]. درباره نحوه تاثیر تابش بر عنصر نیوبیوم و تغییر میکروساختاری آن کارهای زیادی انجام نشده است اما کارهای مرتبطی انجام شده است که برخی از آنها توصیفات بسیار خوبی را از اثرات تابش بر روی ساختار در دسترس قرار می‌دهد [۲-۳]. اکثر آلیاژهای مورد استفاده در راکتورها که دارای نیوبیوم هستند از آن به عنوان عنصر اصلی آلیاژ استفاده نمی‌کنند اما باید در نظر داشت که در قسمتهایی از آلیاژ اتمهای نیوبیوم به صورت خوشه‌ای تجمع کرده و تشکیل ساختار BCC می دهند و به صورت جایگزیده می توان این بخش‌ها را به صورت نیوبیوم خالص مورد بررسی قرار داد.

در این مقاله ابتدا ساختار تعادلی نیوبیوم خالص در دمای صفر کلوین را مورد مطالعه قرار داده و سپس آن را تحت تابش در زوایای مختلف با انرژی‌های متفاوت قرار داده و پس از واهلش سیستم، تعداد زوج فرنکل‌های تشکیل شده را مورد بررسی قرار می‌دهیم. سپس به بررسی نحوه تشکیل بهمن برخوردی پرداخته و نهایتا به بررسی اثر دما بر تشکیل این زوجهای فرنکل می پردازیم.

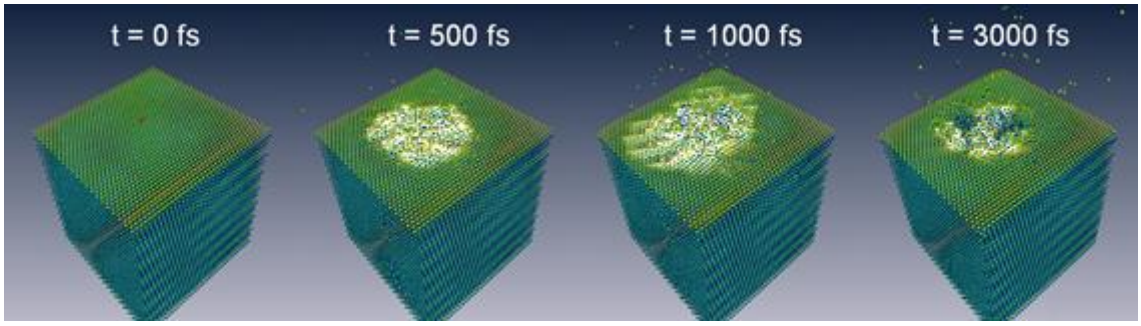
۲. روش کار

محاسبات انجام شده از طریق شبیه سازی اتمی با استفاده از بسته نرم افزاری لمپس [۴] انجام شده است. پتانسیل بین اتمی استفاده شده برای بلور نیوبیوم خالص از نوع EAM[2] است و به این علت که این نوع پتانسیل سهم جملات برهمکنش الکترونی را نیز در خود دارد، برای عناصر فلزی و آلیاژهای آن به کار می‌رود [۵].

محاسبات بر اساس دینامیک مولکولی در دماهای مختلف انجام شده است. به این ترتیب که ابتدا ساختار نیوبیوم خالص با ۱۶۰۰۰ اتم تشکیل شده و بهینه سازی آن از طریق آنسامبل NPT انجام شده است که در آن تعداد ذرات (N)، فشار سیستم (P) و دمای سیستم (T) ثابت می‌باشد. ثابت شبکه ۳/۳۰۸ آنگستروم می باشد که در توافق بسیار خوبی با مقدار تجربی (۳/۳۰۷ [۶]) می باشد. پس از بهینه سازی‌های شبکه، تابش به سیستم اعمال شده و یکی از اتم‌ها به عنوان اتم اولیه از مکان خود در ساختار حرکت می کند. این اتم که به عنوان اولین اتم جابجا شده (PKA[3]) شناخته می‌شود، در صورت داشتن انرژی کافی به اتمهای مجاورش برخورد کرده و باعث جابجایی آنها نیز می‌شود و هر کدام از آنها نیز به نوبه خود با اتمهای مجاور برخورد کرده و به این ترتیب بهمن برخوردی تولید خواهد شد. بر این اساس پس از تولید بهمن برخوردی و بهم ریختن نظم بلوری، اتمها با از دست دادن انرژی جنبشی در جاهایی از ساختار ساکن شده و می‌توانند تولید خودبین-نشینی و همچنین تهی جای (و در نتیجه زوج فرنکل) کنند. به دلیل اینکه انرژی تشکیل تهی

[1] Body Centered Cubic
[2] Embedded Atom Method
[3] Primary Knock-on Atom

جای برای اکثر فلزات بسیار پایین (حدود ۱ الکترون-ولت) است، اکثرا غلظتی از تهی جای را می‌توان در ساختارهای فلزی یافت. غلظت تعادلی آن (تعداد تهی جای ها به کل اتمهای شبکه) در دمایی نزدیک دمای ذوب در حدود 10^{-3} می‌باشد. در نقطه مقابل انرژی تشکیل خودبین-نشین بسیار بیشتر (حدود ۴ الکترون-ولت) می‌باشد و بنابراین در هر دمایی غلظت آن اساسا صفر است. بنابراین می‌توان گفت که حضور نقیصه خودبین-نشینی می‌تواند دلیلی بر تابش در ساختار باشد [۷]. در شکل ۱ فرآیند برخورد تابش به یک ساختار نوعی و تولید بهمن برخوردی بصورت شماتیک نشان داده شده است:



شکل ۱. بروز بهمن برخوردی در اثر برخورد ذرات پر انرژی با ساختار و بهم ریخته شدن نظم ساختار اولیه

محاسبات مربوط به تولید PKA و نحوه اثر آن، در آنسامبل NVE انجام می‌شود که در آن تعداد ذرات (N)، حجم سیستم (V) و انرژی سیستم (E) ثابت می‌باشد. با توجه به اینکه ابرسلول در نظر گرفته شده به اندازه کافی بزرگ می‌باشد، پس از ایجاد PKA، ۱۵ پیکوثانیه به عنوان زمان لازم برای ایجاد تعادل پایدار سیستم در نظر گرفته شده است.

PKA تولید شده می‌تواند در راستاهای مختلف حرکت کرده و با سایر اتمهای شبکه برخورد کند. بنابراین برای اینکه بررسی درستی از تعداد مختلف زوج فرنکل تولید شده داشته باشیم به بررسی جهت گیری‌های مختلف PKA می‌پردازیم. راستاهایی که در اینجا در نظر گرفته شده است شامل راستای X، قطر صفحه XY، راستای قطری XYZ و راستایی که زاویه سمتی و قطبی آن ۳۰ درجه و راستایی که زاویه سمتی ۶۰ و زاویه قطبی ۴۵ درجه است از بین ۵ راستای انتخاب شده در راستاهای X، قطر XY و قطر XYZ برخورد به صورت سر بسر بوده، زیرا مسیر حرکت PKA دقیقا در جهت حضور یکی از اتمهای سیستم در شبکه است و در دو مورد دیگر به صورت سر بسر انجام نمی‌شود و با این انتخاب انواع مختلفی از برخوردها را در نظر گرفتیم. بنابراین رفتار کلی سیستم را می‌توان به صورت میانگینی از تمام جهت‌های در نظر گرفته شده فرض کرد.

پس از برخورد تابش پر انرژی به اتمهای یک ساختار، نظم اتمی ساختار از بین می‌رود. اگر فرض کنیم که انرژی ذرات برخورد کننده را بصورت غیرنسبیتی مورد بررسی قرار می‌دهیم، در یک برخورد کشسان بین دو ذره بیشینه انرژی انتقالی از ذره ۱ به ذره ۲ بصورت زیر محاسبه خواهد شد:

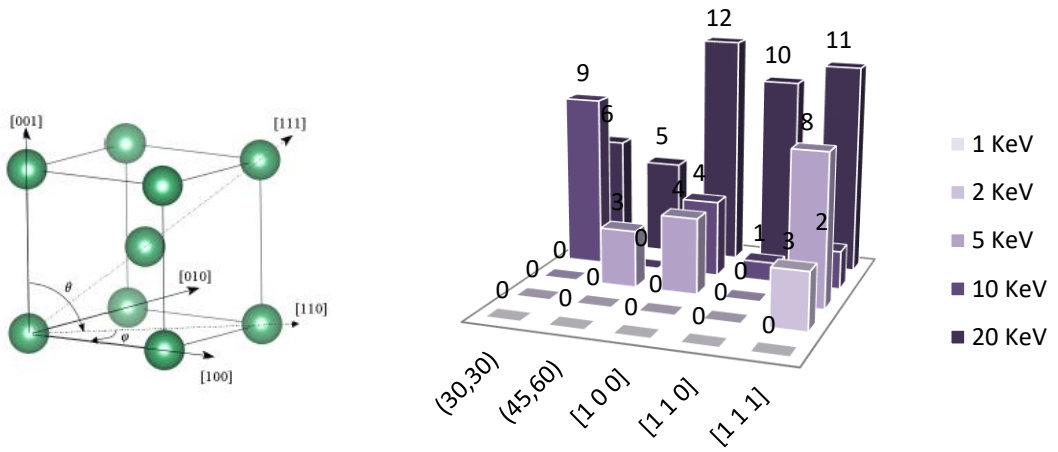
$$E_m = 4E_0 A_1 A_2 /(A_1 + A_2)^2 \qquad (۱)$$

که A_1 و A_2 جرمهای اتمی دو ذره هستند. آلیاژهایی نیوبیومی در قلب راکتور هسته‌ای در معرض تابش شار نوترونی سریع با انرژی بیش از ۱ مگاالکترون-ولت قرار دارند که مرتبه انتقال انرژی به اتمهای ساختار در اثر تابش نوترون MeV ۱، چیزی در حدود ۲۰ کیلوالکترون-ولت است [۸]. مدل کینچین-پیس [۹] بیان کرد که بین انرژی آستانه مشخصی و

یک حد بالای انرژی قطع، رابطه ای خطی بین تعداد زوج فرنکل تولید شده و انرژی PKA وجود دارد. کمتر از انرژی آستانه هیچ جابجایی برای اتمها در شبکه صورت نمی‌پذیرد و در بازه بالاتر از انرژی قطع نیز، انرژی اضافه تر صرف برانگیختگی و یونش الکترونی ساختار می‌شود [۷].

در بخش اول به بررسی بستگی تعداد زوج فرنکل به زوایای مختلف PKA در ساختار نیوبیوم خالص می‌پردازیم. با توجه به اینکه ساختار نیوبیوم مکعبی و همگن است، تابش در راستاهای X، Y و Z منجر به نتیجه یکسانی می‌شود همچنین درباره راستاهای قطری XY، YZ و XZ. بنابراین برای بررسی در این راستاها تنها یکی را در نظر گرفتیم. همچنانکه بیان شد، برای بعضی جهت‌ها مانند راستای X و XY و یا راستای قطری XYZ برخوردها تقریبا بصورت سر به سر با انتقال تقریبا تمام انرژی از ذره اول به دوم (به دلیل یکسان بود دو ذره برخوردی) انجام می‌شود و برای بقیه برخوردها چنین چیزی صدق نمی کند. شکل ۲ جهت گیری‌های مختلف را برای ساختار نشان می‌دهد. توجه کنید برخوردهای کاملا سربسر تنها در دمای صفر امکان پذیر است که ارتعاش شبکه‌ای اتمها صفر است. نمودار شکل ۲ همچنین نحوه تغییر تعداد زوج فرنکل تولید شده در راستاهای مختلف بلوری و به ازای انرژی‌های مختلف PKA را نشان می‌دهد.

در شکل دیده می‌شود که محور افقی راستاهای مختلف که PKA در آن جهت‌ها جابجا شده است را نشان می‌دهد. در دو راستای اول دو عدد داخل پرانتز نوشته شده است که عدد اول شامل زاویه قطبی (θ) و عدد دوم شامل زاویه سمتی (ϕ) می‌باشد. سه راستای دیگر راستاهای استاندارد بلوری هستند. محاسبات نشان داد که در حدود ۲ پیکوثانیه پس از تولید PKA اولیه، نقیصه‌های خودبین-نشینی تولید شده شروع به بازترکیب با تهی‌جای‌ها کرده و از بین می‌روند. همانطور که در شکل ۲ دیده می‌شود برای راستاهای مختلف مثلا در راستای X ([1 0 0]) هر چه میزان انرژی PKA بیشتر می‌شود، تقریبا به صورت خطی تعداد زوجهای فرنکل تولید شده افزایش می‌یابد. البته در مواردی عدم تطابق با افزایش خطی دیده می‌شود که در تمامی این موارد علت عدم تطابق دقیق نبودن پتانسیل طراحی شده برای کاربردهایی در این سطح انرژی است. در واقع این پتانسیل در جاهایی در توصیف رویه انرژی پتانسیل مشکلاتی دارد.

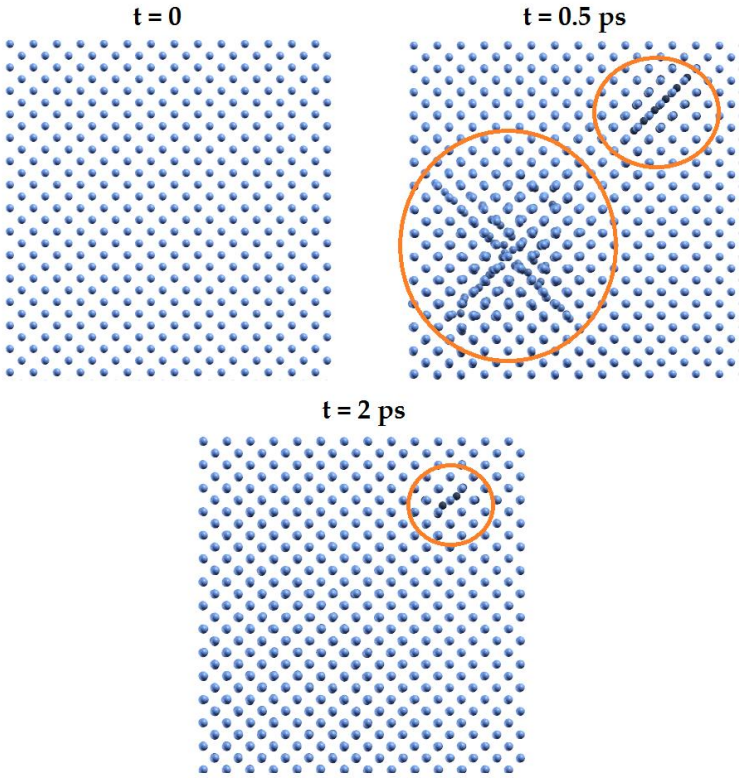


شکل۲. نحوه تغییر تعداد زوج فرنکل تولید شده در جهت گیری‌های مختلف بلوری و با انرژی‌های مختلف PKA اولیه

همانطور که مشخص است به ازای وجود PKA در جهت گیری‌های مختلف تعداد زوج فرنکل ایجاد شده متفاوت می‌باشد. به عنوان مثال به جز در راستای [1 1 1] به ازای انرژی ۲ کیلوالکترون-ولت که ۳ زوج فرنکل تولید می‌شود، در این انرژی در سایر جهت‌ها هیچ زوج فرنکلی تولید نمی‌شود. به وجود آمدن یک زوج فرنکل در این حالت می‌تواند به دلیل نقاط بین‌نشینی مانند نقاط اکتاهدرال و تتراهدرال باشد که در تقارن مربوط به ساختار وجود دارد. وقتی PKA در جهتی

با اتمهای دیگر برخورد می‌کند که در راستای یکی از این نقاط بین نشینی باشد احتمال بین نشین شدن اتم در آن راستا بیشتر شده و در نتیجه زوج فرنکلی در آن راستا تولید خواهد شد. پر واضح است که هر چه انرژی PKA افزایش یابد نظم ساختار بیشتر بهم ریخته و در نتیجه تعداد زوج فرنکل تشکیل شده نیز بیشتر خواهد شد. همانطور که در شکل مشخص است، انرژی PKA نسبتا زیادی (بیش از ۲ کیلو الکترون-ولت) مورد نیاز است تا سیستم نهایی شامل زوج فرنکل باشد. به طور میانگین به ازای انرژی‌های ۱، ۲، ۵، ۱۰ و ۲۰ کیلوالکترون-ولت به ترتیب ۰، ۰/۶، ۳/۰، ۳/۲ و ۸/۸ زوج فرنکل تولید شده است. از روی مقادیر میانگین زوج فرنکل تولید شده، مشخص است که رابطه خطی بین انرژی PKA اولیه و تعداد زوج فرنکل تولید شده وجود دارد که تایید مدل کینچین-پیس نیز در نتایج دیده می‌شود.

در بخش دوم نحوه تغییر میکروساختار در اثر تابش و تولید بهمن برخوردی را بررسی می‌کنیم. ملاحظه شده است که در اثر برخورد PKA در راستاهای مختلف با انرژی‌های مختلف خودبین-نشین‌ها هم رفتار تجمعی و هم انفرادی از خود نشان می‌دهند. به عنوان نمونه نحوه تغییر میکروساختاری و تولید بهمن برخوردی و همچنین واهلش ابرسلول نیوبیوم تحت تابش در جهت (۳۰و۳۰) در زمانهای مختلف برای انرژی PKA ۲۰ کیلو الکترون-ولت، در شکل ۳ نشان داده شده است. شکل ۳ بخشی از ابرسلول نیوبیوم را نشان می‌دهد که تحت تاثیر تابش قرار می‌گیرد. از روی شکل مشخص است که پس از برخورد تابش و ایجاد بهمن برخوردی در ساختار، اتمهای زیادی در نقاط بین نشینی قرار می‌گیرند. در این مورد ملاحظه می‌شود که در زمان ۰/۵ پیکوثانیه پس از حضور PKA ساختار تا حد زیادی بهم ریخته و اتمها شروع به واهلش کرده و در نزدیکترین نقاط شبکه با تهی‌جای مربوطه بازترکیب می‌شوند و از تعداد زوج فرنکل کاسته می‌شود. در واقع تعداد زوجهای فرنکل تولید شده در زمانهای مختلف متفاوت است و ابتدا تا یک بازه زمانی این تعداد افزایشی و سپس روند کاهش خواهد داشت. در نهایت پس از گذشت زمان کافی تعداد بسیار زیادی از اتمها واهلش پیدا کرده و ساختار به حالت تعادل نهایی خود می رسد که در این حالت اتمها اکثرا به صورت خوشه‌ای و با فاصله‌هایی در حد ثابت شبکه کنار یکدیگر قرار می‌گیرند. این میزان تغییر و نحوه چینش اتمهای بین نشینی می‌تواند منجر به تغییر در پایداری مکانیکی بلور نیوبیوم شود.



شکل۳. نحوه تغییر میکروساختاری نیوبیوم خالص پس از تابش و ایجاد بهمن برخوردی در راستای (۳۰و۳۰).

در بخش انتهایی این پژوهش اثر دما را بر تولید زوج فرنکل برای انرژی‌های مختلف مورد بررسی قرار داده‌ایم. برای این ساختار تعداد زوجهای فرنکل را برای دماهای ۲۰۰ و ۶۰۰ کلوین محاسبه کرده و در جدول ۱ نتایج، خلاصه شده است. نتایج محاسبه شده با نتایج حاصل از محاسبات دیگران همخوانی نسبتا خوبی دارد [۳]. افزایش دما میزان جابجایی‌های اتمها بیشتر شده و در بسیاری از موارد پس از انجام تابش PKA و واهلش سیستم، تعداد زوجهای فرنکل بیشتری دیده می‌شود. البته در دمای ۲۰۰ کلوین و انرژی ۵ کیلو الکترون-ولت این مورد اتفاق نیفتاده است که دلیل این عدم انطباق را نیز می‌توان در نوع پتانسیل بین اتمی مورد استفاده جستجو کرد که در دماهای بالاتر، نتوانسته است که توصیف دقیق از سطح انرژی پتانسیل ساختار انجام دهد. میزان شعاع قطع برای این پتانسیل بسیار تاثیر در نتایج دارد. زیرا برای برهمکنش‌هایی که بلندبرد هستند و انرژی PKA در آنها به اندازه کافی بزرگ است، دیگر نمی‌توان از سهم برهمکنشهای اتمهای دورتر صرفنظر کرد و بنابراین با خطا در محاسبات مواجه خواهیم شد. همچنین با در نظر گرفتن این نکته که میزان متوسط جابجایی اتمها در طول این فرآیندها در دماهای صفر، ۲۰۰ و ۶۰۰ کلوین برابر با ۰/۰۴۱۷، ۰/۱۵۱۴ و ۰/۲۵۵۷ آنگستروم است، معیار حداقل جابجایی اتمها برای اینکه به عنوان خودبین-نشین شناخته شوند این است که از این مقادیر بسیار بیشتر باشند.

جدول۱. تعداد زوجهای فرنکل تولید شده بر اثر تابش در انرژی‌های مختلف. واحدهای انرژی بر حسب KeV بیان شده است.

انرژی-دما	۱	۲	۵	۱۰	۲۰
۰	۰/۰	۰/۶	۳/۰	۳/۲	۸/۸
۲۰۰	۰/۰	۰/۶	۲/۲	۵/۴	۱۱/۲
۶۰۰	۰/۰	۱/۴	۳/۸	۷/۰	۱۴/۲

۵. نتیجه‌گیری

محاسبات بر اساس دینامیک مولکولی انجام شد. در این محاسبات ثابت شبکه تطابق بسیار نزدیکی با مقدار تجربی دارد و همچنین تعداد زوجهای فرنکل نیز در توافق با سایر محاسبات می‌باشند. اثر دما بر تولید زوج فرنکل نیز بررسی شد و ملاحظه شد که با افزایش دما تعداد زوج‌های فرنکل بیشتری تشکیل می‌شود. این تغییرات میکروساختاری که در اثر تابش ذرات پر انرژی ایجاد می‌شود، باعث کاهش استحکام مکانیکی آلیاژهای مورد استفاده در راکتور می‌شود. به دلیل محدود بودن حوزه اعتبار پتانسیل استفاده شده، در بعضی موارد جوابهای کمتر دقیقی حاصل گردید و لذا نیاز به ساخت پتانسیلهای دقیقتری می‌باشد تا پیش‌بینی‌های ما را دقیقتر نماید.

۶. مراجع

1. G. Fernandez ;"*Thermodynamic analysis of the stable phases in the Zr-Nb system and calculation of the phase diagram*"; Zeitschrift für Metallkunde, **82**, No. 6 478 (1991).
2. Jr. Beeler, M. F. Beeler, and C. V. Parks. *Collision cascades in iron and niobium*. No. CONF-750989--P1. (1976).
3. Lin, De-Ye, Haifeng Song, and Xi Dong Hui. "*Molecular dynamics simulation of threshold displacement energy and primary damage state in Niobium*." *arXiv preprint arXiv:1702.03598* (2017).
4. http://lammps.sandia.gov.
5. M.R. Fellinger, H. Park, and J.W. Wilkins, "*Force-matched embedded-atom method potential for niobium*", *Physical Review B*, **81(14)**, 144119 (2010).

6. J. Trivisonno, *et. al.* , "*Temperature dependence of the elastic constants of niobium and lead in the normal and superconducting states*", Journal of Low Temperature Physics 12, 153 (1973).
7. Stoller, R. E. "1.11-primary radiation damage formation.'*Comprehensive nuclear materials*' 293 (2012).
8. F. Onimus, and J. L. Béchade. "*Comprehensive Nuclear Materials*, R. Konings ed., vol. 4." 1 (2012).
9. G. H. Kinchin and R. S. Pease. "*The displacement of atoms in solids by radiation*." Reports on progress in physics 18.1 (1955).