



## تأثیر ساختارهای اتمی مرزدانه بر روی آسیب اولیه پرتویی در زیرکونیوم ( $\alpha$ -Zr)

حاتمی، فرانک<sup>۱</sup> - فقهی، سید امیرحسین<sup>۱</sup> - ارژنگ‌مهر، افشین<sup>۱</sup> - اسغندیارپور، امین<sup>۲</sup>

<sup>۱</sup> دانشگاه شهید بهشتی، دانشکده مهندسی هسته‌ای، گروه کاربرد پرتوها

<sup>۲</sup> دانشگاه پیام نور تهران، دانشکده فیزیک

### چکیده:

در این مقاله، مرزدانه بعنوان نقص کم عمقی بررسی شده و در تکامل آسیب تابشی فلزات بعنوان جاذبی برای نقص‌های نقطه‌ای بکار گرفته شده است. با استفاده از دینامیک مولکولی تأثیر ساختار مرزدانه‌های مختلف را در تولید و تکامل عیوب مشاهده می‌کنیم. همانطور که قبلاً برای ساختارهای مکعبی گزارش شده، مرزدانه‌ها باعث جذب اتم‌های بین نشین بیش از حفره‌ها می‌شوند، که منجر به تجمع حفره‌ها در ناحیه حجمی خواهد شد. همچنین، قدرت جذب مرزدانه‌ها به ساختار اتمی مرزدانه بستگی دارد. بطور کلی، با توجه به نتایج محاسبات انجام شده در مقیاس میکروسکوپی، نتیجه می‌گیریم که حضور مرزدانه در مقیاس زمانی چند ده پیکوثانیه، سبب بهبود مقاومت تابشی فلز زیرکونیوم می‌گردد.

کلمات کلیدی: Displacement Cascade, Grain Boundary, Molecular Dynamic

### مقدمه:

آسیب به مواد در اثر تابش نوترون یکی از ملاحظات مهم در طراحی راکتورهای شکافت و گداخت می‌باشد. آسیب جابجایی و مقدار محصولات حاصل از اندرکنش‌های هسته‌ای در این سیستم‌ها به عنوان مهم‌ترین کمیت‌هایی است که جهت مقایسه سیستم‌های در معرض تابش و آسیب ایجاد شده در پی این اندرکنش‌ها مورد بررسی قرار گرفته است.

ووینگ<sup>۱</sup> و گائو<sup>۲</sup> به ترتیب در سال‌های ۱۹۹۸ و ۲۰۰۱ نشان دادند که زیرکونیوم تحت تابش دچار آسیب شده و آبشاری از نقص‌ها در آن تولید می‌شود. نشان دادند که نقص‌های نقطه‌ای بصورت آزادانه حرکت نمی‌کنند که این سبب ایجاد خوشه‌هایی از نقص‌های نقطه‌ای در داخل ماده می‌شود. در سال ۲۰۰۰ ادسون<sup>۳</sup> نشان داد که در طول پرتودهی و در نتیجه، وقوع آسیب و تراکم حفره‌ها در زیرکونیوم تولید شده که سبب تورم و انبساط ماده می‌شود. تا به حال مطالعات آسیب در زیرکونیوم با ساختار تک کریستالی بوده است، جهت بهبود مقاومت فلز در برابر آسیب تابش بنظر می‌رسد که می‌توان از مرزخانه‌ها استفاده کرد [۱ و ۲].

در سال‌های اخیر استفاده مرزخانه‌ها<sup>۴</sup> جهت افزایش مقاومت مواد در برابر آسیب تابشی، بسیار مورد توجه محققان قرار گرفته است. سیگل<sup>۵</sup> [۳] و همکاران در سال ۱۹۸۰ مشاهده کردند در نتیجه‌ی جذب اتم‌های بین نشین در مرزخانه، تهی‌جاها به شکل خطا در تسلسل چیده شدن صفحات اتمی در مجاورت مرز متراکم شده‌اند. مشاهدات و نتیجه‌گیری مشابه نیز در کار باسو<sup>۶</sup> و الباوم در آلومینیوم گزارش شده است [۴]. در سال ۲۰۱۴ توسط ژانگ<sup>۷</sup> و همکارانش [۵]، تأثیر حضور مرزخانه در آسیب تابشی در تنگستن با انجام شبیه‌سازی آبشار جابجایی بر مبنای دینامیک شبه کلاسیک انجام شد. مشاهده کردند که مرزخانه‌ها دارای خاصیت جذبی برای اتم‌های بین نشین در مقایسه با تهی‌جاها هستند [۵].

## روش کار:

جعبه شبیه‌سازی به سه ناحیه تقسیم می‌شود، یکی ناحیه اتم‌های آزاد که بین دو ناحیه مقطع قرار داده شده، این ناحیه مقطع، ثابت و ضخامت ۷ آنگستروم در هر طرف جعبه موازی با صفحه مرزخانه دارد. یک ساختار پایه از جعبه شبیه‌سازی در شکل شماره (۱) نشان داده شده است:

<sup>1</sup> Wooding

<sup>2</sup> Gao

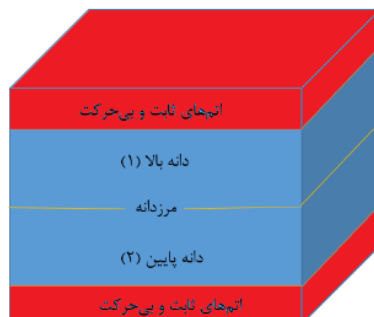
<sup>3</sup> Adamson

<sup>4</sup> Grain boundaries

<sup>5</sup> Seigel

<sup>6</sup> Basu

<sup>7</sup> C.G. Zhang

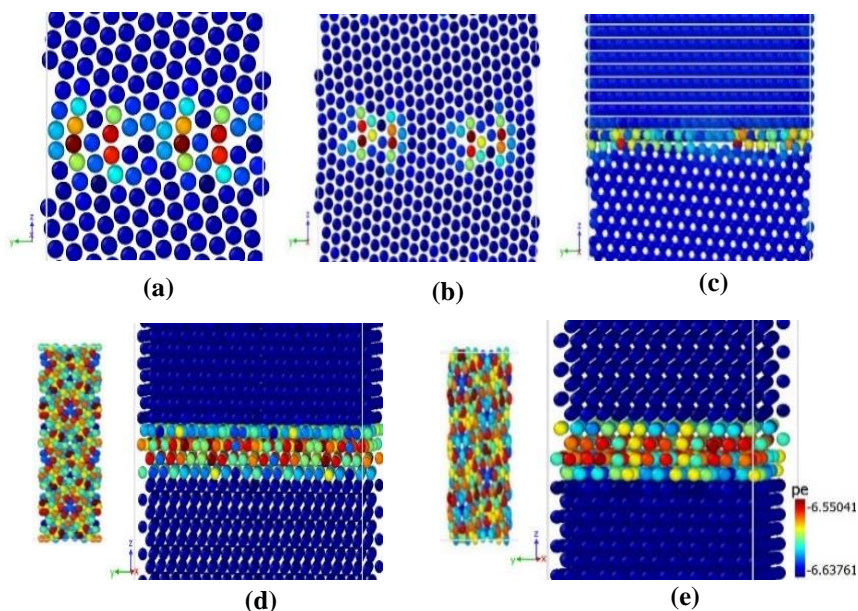


شکل شماره (۱) ساختار پایه از جعبه شبیه سازی

جهت شبیه سازی از دو ساختار شیب‌دار متقارن، یک ساختار شیب‌دار نامتقارن و دو ساختار پیچشی بصورت hcp\_ortho استفاده می‌شود. اگر شاخص‌های میلر در هر دو دانه یکسان باشد، ساختار متقارن و اگر شاخص‌های میلر متفاوت داشته باشند، ساختار نامتقارن می‌گویند. در شکل شماره (۲) و جدول شماره (۱) ویژگی ساختارهای مورد نظر در بررسی‌های دینامیک مولکولی بیان شده است.

جدول شماره (۱) ویژگی ساختارهای مورد بررسی در دینامیک مولکولی

ساختار مرزدانه	زاویه مرزدانه (نسبت به صفحه بازال)	تعداد اتم‌ها	اندازه ( $\text{\AA}^3$ )
Tilt1= symmetric tilt (10-10)[010]{30-31} $\theta=20.21^\circ$	$25.33^\circ$ (semi-parallel)	564144	$252.571 \times 222.482 \times 235.06$
Tilt2= symmetric tilt (0001)[100]{0-11i} $\theta=168.8^\circ$	$84.44^\circ$ (semi-perpendicular)	560000	$252.32 \times 230.542 \times 225.4$
asymmetric tilt (10-10)[010]{1010} $\theta=15.68^\circ$ / (0001)[100]{0-11i} $\theta=169.8^\circ$	$2^\circ / 89^\circ$ (semi-parallel) / (semi-perpendicular)	700100	$220.3684 \times 220.8700 \times 320.8245$
Twist1 (0001)[001]<5-10> $\theta=17.89^\circ$	$0^\circ$ (parallel)	619008	$250.32 \times 248.42 \times 233.06$
Twist2 (0001)[001]<1-60> $\theta=104.8^\circ$	$0^\circ$ (parallel)	635712	$250.32 \times 256.005 \times 232.264$



شکل شماره (۲). (a) ساختار شیب‌دار اول tilt1، (b) ساختار شیب‌دار دوم tilt2، (c) ساختار شیب‌دار غیر متقارن، (d) ساختار پیچشی اول twist1، (e) ساختار پیچشی دوم twist2. اتم‌ها بر اساس انرژی پتانسیل‌شان رنگ شده‌اند.

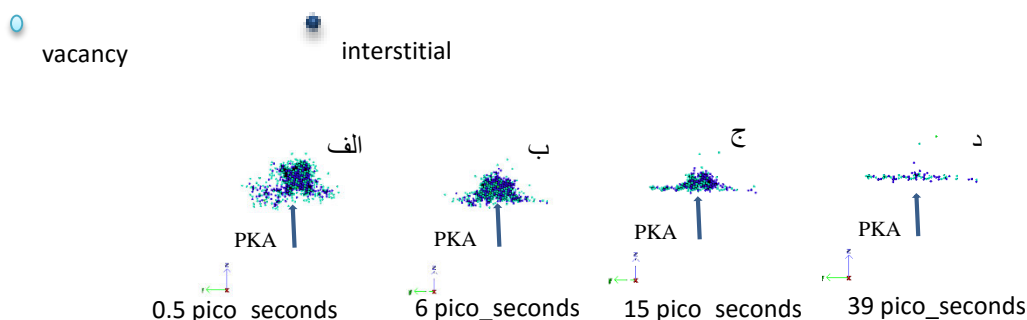
برای از بین بردن اثرات سطحی، می‌توان از شرایط مرزی متناوب و غیرمتناوب استفاده کرد. در این برنامه شرایط راستای X و Y را متناوب و برای جلوگیری از اندرکنش بین مرز ثابت و مرزدانه با نقص‌های نقطه‌ای تولید شده، در راستای Z شرایط مرزی بصورت غیرمتناوب، انتخاب شده است. سیستم در دمای صفر، کمترین انرژی را در شرایط توضیح داده شده دارد، و حجم سلول در نزدیکی ۳۰۰ کلوین گسترش می‌یابد [۶]. در ابتدا با استفاده از روش شدیدترین نزول، انرژی سیستم را مینیمم کرده سپس، با استفاده از انسامبل nvt به مدت ۲۰ پیکوثانیه با گام زمانی ۱ فمتوثانیه به تعادل گرمایی در ۳۰۰ کلوین می‌رسانیم. بعد از رساندن به تعادل گرمایی در دمای معین، یک اتم، با انرژی جنبشی ۵ و ۱۰ کیلوکترون ولت با جهت عمود نسبت به صفحه مرزدانه در نظر گرفته می‌شود.

## نتایج:

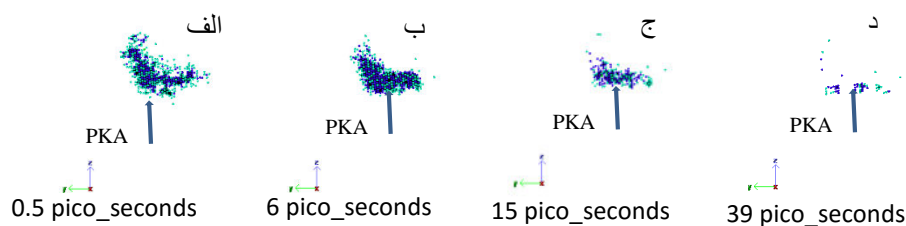
### ۱. بررسی توزیع نقص‌های نقطه‌ای تولید شده نزدیک صفحه مرزدانه

با استفاده از دینامیک مولکولی، آبشار نقص باقی مانده در ناحیه حجمی پس از شروع آبشار برخورد در مقیاس زمانی پیکوثانیه، به عنوان یک تابع از نوع مرزدانه و فاصله اولیه PKA از صفحه مرزدانه را مورد بررسی قرار می‌دهیم.

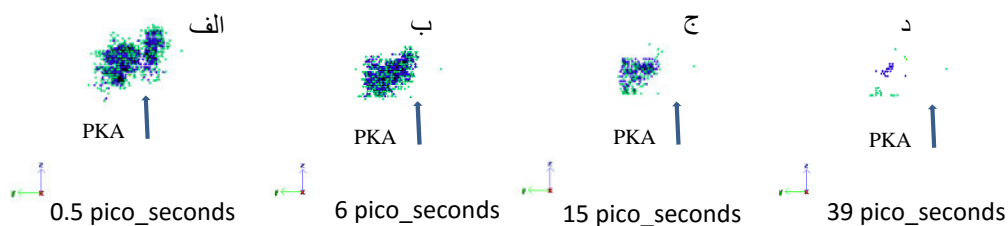
آبشار اولیه تولید شده برای ساختارهای مذکور در انرژی ۱۰ کیلو الکترون ولت و واقع در فاصله حدود ۲۰ آنگستروم از صفحه مرزدانه در شکل شماره (۳) نشان داده شده است. همانطور که در شکل می‌بینیم مرکز آبشار در صفحه مرزدانه قرار دارد و در حدود ۰/۷ پیکوثانیه اول، آبشاری از نقص‌های تولید شده به حداکثر اندازه رسیده است (thermal spike phase). نقص‌های نقطه‌ای تولید شده ناشی از پرتودهی، به سمت مرزدانه حرکت کرده، و پس از حدود ۱۷ پیکوثانیه تمام اتم‌ها جابجا شده، یا با تهی جاها بازترکیب می‌شوند و یا در مرزدانه به دام می‌افتند، به این مرحله، مرحله سرد شدن آهسته (annealing phase) می‌گویند. بعد از مرحله سرد شدن تعداد تهی جاها و اتم‌های بین نشین در ناحیه حجمی ثابت باقی می‌ماند.



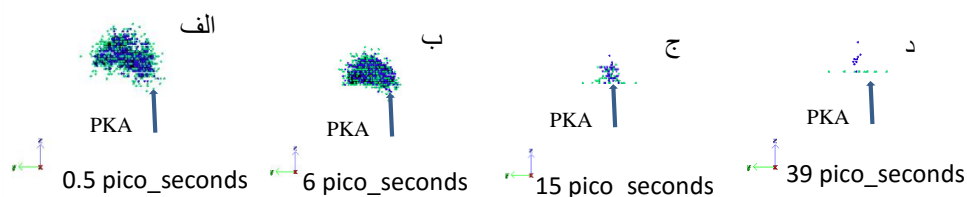
شکل شماره (۳) الف. تصویر آبشار جابجایی برای ساختار شیب‌دار متقارن اول (tilt1)



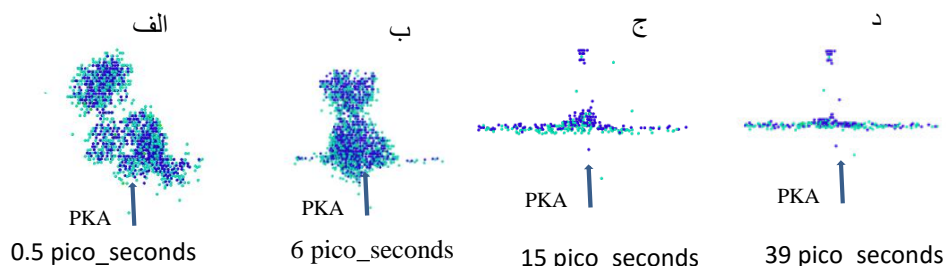
شکل شماره (۳) ب. تصویر آبشار جابجایی برای ساختار شیب‌دار متقارن دوم (tilt2)



شکل شماره (۳) ج. تصویر آبشار جابجایی برای ساختار پیچشی اول (twist1)



شکل شماره (۳) د. تصویر آبشار جابجایی برای ساختار پیچشی دوم (twist2)



شکل شماره (۳) ه. تصویر آبشار جابجایی برای ساختار شیب‌دار غیرمتمارن

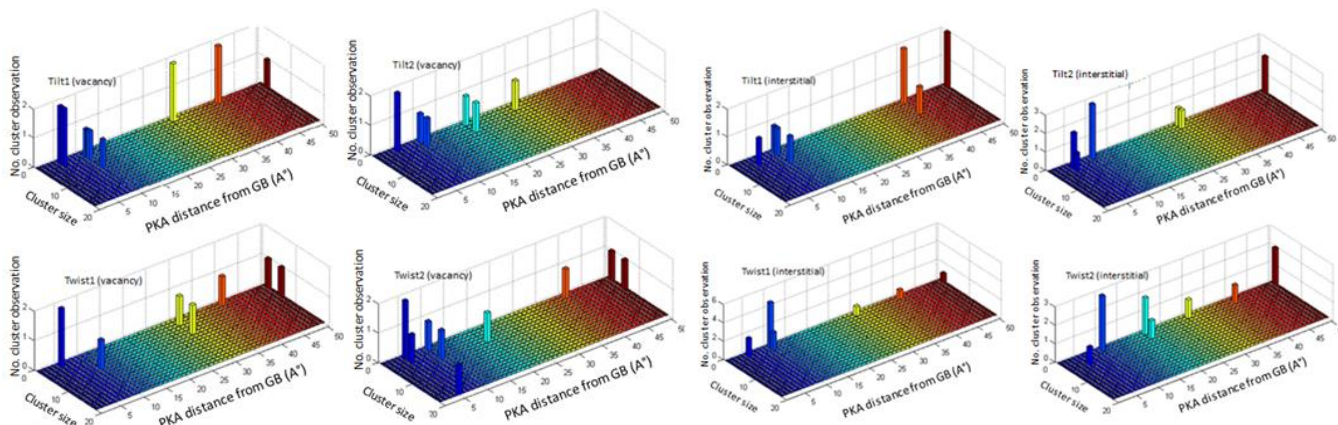
## ۲. آنالیز خوشه‌ی تهی‌جاها و اتم‌های بین‌نشین

نقص‌های نقطه‌ای (تهی‌جا یا اتم بین‌نشین) وقتی متعلق به یک خوشه هستند که فاصله آنها کمتر از یک فاصله قطع<sup>۱</sup> باشد. فاصله قطع برای تهی‌جاها به اندازه  $1nn^2$  و برای اتم‌های بین‌نشین به اندازه  $2nn$  انتخاب شده است [۵]. آنالیز تولید خوشه‌ی تهی‌جاها و اتم‌های بین‌نشین در انرژی ۱۰ کیلو الکترون ولت، از هر دو لحاظ کمیت (تعداد خوشه‌های موجود

<sup>۱</sup> Cutoff

<sup>۲</sup> Nearest neighbor

در ناحیه حجمی و اندازه (تعداد نواقص نقطه‌ای موجود در هر خوشه) در شکل شماره (۴) نشان داده شده که در آن تعداد خوشه‌های موجود در ناحیه حجمی بر حسب اندازه خوشه‌ها و فاصله PKA از مرز دانه رسم شده است. در واقع این شکل دید بهتری از بهم ریختگی ساختار دانه در حضور مرز دانه‌های مختلف را نشان می‌دهد [۷].



شکل شماره (۴) آنالیز کلاستر تهی‌جاها و اتم‌های بین‌نشین در ناحیه مرز دانه‌های مورد مطالعه

زمانی که ناحیه همپوشانی بین آبشار و مرز دانه کوچک است اندازه خوشه بزرگتر می‌شود. برای ساختار شیب‌دار کم زاویه (tilt1) برخورد آبشار باعث تولید خوشه‌ی تهی‌جاها، شامل خطا در تسلسل چیده شدن صفحات اتمی با هندسه چهار وجهی<sup>۱</sup> (SFT)، حلقه‌های جابجایی<sup>۲</sup> از نوع تهی‌جا و دمبل‌های اتم بین‌نشین در ناحیه حجمی دانه (مخصوصاً وقتی آبشار در نزدیکترین یا دورترین فاصله از صفحه مرز دانه قرار دارد) می‌شود. که در بسیاری از موارد این نقص‌ها به طور عمده استحکام، سختی و بی‌ثباتی‌های پلاستیکی در طول تغییر شکل را به عهده دارند. برای ساختار tilt2، بیشتر تمایل به جذب تهی‌جاها دارد که در بررسی خوشه‌ها نیز این موضوع مشاهده می‌شود، برای این ساختار اندازه توزیع خوشه تهی‌جاها نسبت به ساختارهای دیگر کمتر است. ادغام تهی‌جاها در نزدیکی ساختار پیچشی (twist) نشان می‌دهد که تعداد اتم‌های بین‌نشین جذب شده برای این ساختار بسیار بیشتر از مرز دانه‌های دیگر است. هرچه PKA به مرز دانه نزدیک شود تعداد نقص‌های تولید شده در ناحیه مرز دانه بیشتر می‌شود. هنگامی که PKA از مرز دانه دور شده، تعداد تهی‌جاها و اتم‌های بین‌نشین با یک خطای استاندارد مشابه با تک کریستال نشان داده می‌شود. همه نقص‌های نقطه‌ای بصورت آزاد حرکت نمی‌کنند و نواقص خوشه‌ای کوچکی در داخل آبشار تشکیل می‌دهند.

<sup>1</sup> Stacking fault tetrahedral

<sup>2</sup> Dislocations



## نتیجه گیری:

نتایج مطالعات صورت گرفته را در زمینه‌ی بررسی دینامیک نقص‌های نقطه‌ای در مقیاس میکروسکوپیکی و در زمان چند ده پیکوثانیه می‌توان به شرح زیر خلاصه نمود:

- (۱) ساختار شیب‌دار متقارن کم-زاویه ترجیحاً جاذب اتم‌های بین نشین، در حالی که در ساختار شیب‌دار متقارن زاویه-بزرگ ترجیحاً جاذب تهی جاها می‌باشند.
- (۲) در ساختار پیچشی، مرزدانه بیشتر جاذب اتم‌های بین نشین بوده، با صرف نظر از انرژی PKA و فاصله اولیه از آبشار، ویژگی‌های جذب مرزدانه به درجه‌ای از همپوشانی آبشار-مرز بستگی دارد.
- (۳) نتیجه گرفتیم که در نانو ساختار زیرکونیوم با توجه به جذب نواقص نقطه‌ای توسط مرزدانه‌ها، تعداد نقص‌ها در ناحیه حجم کاهش یافته و منجر به افزایش مقاوم سازی نانو ساختار در مقیاس طولانی تر می‌شود.
- (۴) تهی‌جاهای انباشته شده در دانه‌ها تشکیل خوشه و در شرایط خاصی، خطای انباشتگی چینش صفحات اتمی و نابجایی تشکیل می‌دهند.
- (۵) در مقیاس زمانی چند دهم نانوثانیه که در شبیه‌سازی دینامیک مولکولی قابل دسترس است، خوشه‌های تهی جا در بلور دانه‌ها تقریباً بی حرکت باقی می‌مانند.
- (۶) رفتار مشاهده شده برای نقص‌های نقطه‌ای در نانو کریستال، در مجاورت مرزدانه ناشی از "میدان‌های تنش پیچیده" (ترکیبی از تنش‌های فشاری، کششی و برشی) بعلاوه تغییر جهت رشد شبکه‌ی بلوری ماده در این ناحیه می‌باشد.

## مراجع:

- [1] Adamson, R. B. Effects of neutron irradiation on microstructure and properties of zircaloy. In Twelfth International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry; Sabol, G. P., Moan, G. D., Eds.; American Society for Testing and Materials: West Conshohocken, PA, 2000; pp 15–31, ASTM STP 1354.
- [2] Wooding, S. J.; Howe, L. M.; Gao, F.; Calder, A. F.; Bacon, D. J. J. Nucl. Mater. 1998, 254(2–3), 191–204.
- [3] Siegel, R. W., Chang, S. M., & Balluffi, R. W. (1980). Vacancy loss at grain boundaries in quenched polycrystalline gold. *Acta Metallurgica*, 28(3), 249-257.
- [4] B. K. Basu and C. Elbaum, *Acta Metall.* 13, 1117 (1965).





- [5] Zhang, C. G., Zhou, W. H., Li, Y. G., Zeng, Z., & Ju, X. (2015). Primary radiation damage near grain boundary in bcc tungsten by molecular dynamics simulations. *Journal of Nuclear Materials*, 458, 138-145.
- [6] Arjhangmehr, A., & Fegghi, S. A. H. (2016). Irradiation deformation near different atomic grain boundaries in  $\alpha$ -Zr: An investigation of thermodynamics and kinetics of point defects. *Scientific reports*, 6.
- [7] L. Ventelon, F. Willaime, C.C. Fu, et al., *J. Nucl. Mater.* 425 (2012) 16.