

УДК 538.971: 54-165.3: 548.4

**Влияние примесей He и H на характеристики электрон-позитронной аннигиляции
в α -Zr и Nb**Д.В. Терентьева, А.Д. Ломыгин

Научный руководитель: доцент, к.ф.-м.н. Л.А. Святкин

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, 634050

E-mail: dvt17@tpu.ru

**The affect of He and H impurities on the electron-positron annihilation characteristics
in α -Zr and Nb**D.V. Terenteva, A.D. Lomygin

Scientific Supervisor: Ass. Prof., Ph.D., L.A. Svyatkin

Tomsk Polytechnic University, Russia, Tomsk, Lenin str., 30, 634050

E-mail: dvt17@tpu.ru

Abstract. *In the work, the S-W parameters of electron-positron annihilation were obtained experimentally and theoretically, and the influence of defects on these parameters was studied. The experimental and theoretical analysis enabled the identification of irradiation-induced defect types.*

Key words: *first-principal calculations, positron annihilation spectroscopy, metal, hydrogen, helium.*

Введение

Материалы на основе циркония и ниобия являются перспективными кандидатами для применения в ядерной энергетике благодаря своим исключительным физико-механическим свойствам. Тем не менее, водородное охрупчивание и радиационное повреждение являются одними из наиболее значимых факторов, ограничивающих срок службы материалов в водородных и ядерных энергетических системах. Одним из перспективных подходов в решении этих проблем является разработка функционально-градиентных материалов (ФГМ) [1]. ФГМ с наноструктурированными металлическими слоями Zr/Nb на подложке из сплава Zr1%Nb предлагают инновационные решения для разработки передовых материалов, способных выдерживать экстремальные условия термоядерных реакторов [2].

Позитронная аннигиляционная спектроскопия (ЭПА) является перспективным методом изучения структуры дефектов в ФГМ, подвергнутых радиационному воздействию и накоплению водорода. ЭПА позволяет исследовать механизмы эволюции дефектов в широком диапазоне их размеров и концентраций. Однако для глубокого понимания экспериментально наблюдаемых закономерностей необходимо дополнить их данными теоретических расчетов, включая подходы, основанные на первых принципах. Целью данной работы является исследование характеристик аннигиляции позитронов в адгезионном слое (цирконий) и коррозионностойком слое (ниобий) при накоплении примесных, вакансионных и примесно-вакансионных дефектов с помощью позитронной спектроскопии и первопринципного моделирования.

Экспериментальная часть

В настоящей работе были рассчитаны время жизни позитронов, а также S- и W-параметры аннигиляции позитронов. Данные расчеты были выполнены в рамках теории функционала электронной плотности в пакете программ ABINIT. Электрон-ионное взаимодействие описывалось методом проекционно-присоединенных волн. Обменно-корреляционное взаимодействие учитывалось с использованием обобщенно-градиентного приближения в форме, предложенной Пердью-Бурке-Эрнцернхофом. Корреляционное

электрон-позитронное взаимодействие учитывалось с использованием приближения локальной плотности в форме, предложенной Боронски-Нейминеном.

Для исследования использовались монослойные покрытия толщиной $1,0 \pm 0,1$ мкм на основе ниобия и циркония, которые были синтезированы методом магнетронного распыления. В качестве подложек применялись монокристаллические пластины кремния с ориентацией (111), закрепленные в вакуумной камере экспериментальной установки. Облучение протонами проводилось на электростатическом ускорителе ЭСГ-2.5, расположенном в ОЭФ ТПУ (Томск, Россия) пучком протонов с диаметром 5 мм и энергией 1720 кэВ. Исходя из параметров облучения, дозы составили: $3,4 \cdot 10^{15}$, $8,6 \cdot 10^{15}$, $3,4 \cdot 10^{16}$ ион/см². Облучение монослойных покрытий Zr/Nb ионами гелия с энергией 25 кэВ было проведено с помощью плазменного источника ионов с ненакаливаемым катодом «ПИОН-1М». Плотность ионного тока при облучении составляла 0,23 мА/см². Время облучения было подобрано таким образом, чтобы обеспечить дозу 10^{16} , 10^{17} и 10^{18} ион/см².

Анализ структурных дефектов проводился с помощью метода доплеровского уширения аннигиляционной линии (ДУАЛ) с использованием пучков позитронов переменной энергии в ОИЯИ ЛЯП в г. Дубна. Использовался моноэнергетический пучок позитронов диаметром 5 мм с интенсивностью 10^6 e⁺/с. Аннигиляционное γ -излучение регистрировалось детектором на основе особо чистого германия (ОЧГ) модели GEM25P4-70 (АМЕТЕК ORTEC, США) с энергетическим разрешением 1,20 кэВ, интерполированным по линии 511 кэВ. Полученные спектры ДУАЛ анализировались путем определения S- и W-параметров с помощью программного обеспечения SP-11. Параметр характеризует аннигиляцию позитрон-электронных пар с малым импульсом, происходящую главным образом в открытых объемных дефектах в кристаллической структуре. Параметр W отвечает за химическое окружение места аннигиляции.

Моделирование кристаллической структуры

Для исследования влияния типов дефектов на характеристики электрон-позитронной аннигиляции были рассмотрены суперячейки циркония и ниобия, в которых присутствовали примесные атомы водорода или гелия, вакансии или примесь-вакансионный комплекс. Атомы водорода и гелия независимо друг от друга располагались в тетраэдрическом (Т) и октаэдрическом (О) междоузлиях решетки циркония и ниобия (рис. 1). В цирконии отдельно было рассмотрено междоузлие в базальной плоскости (ВО) над октаэдрическим междоузлием. Установлено, что положение Н в О междоузлии Nb и положение He в О междоузлии Zr являются метастабильным и поэтому в дальнейшем не рассматриваются.

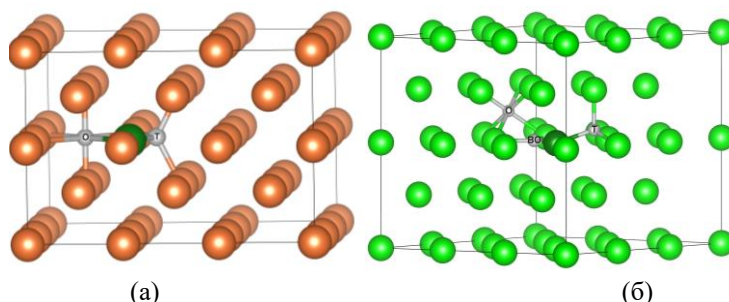


Рис. 1. Суперячейки ниобия (а) и циркония (б). Оранжевым цветом отмечены атомы ниобия, зеленым – циркония, темно-зеленым – положение вакансий, серым – положения междоузлий

Результаты

На рис. 2 представлено, как наличие дефектов в решетках металлов влияет на S- и W-параметры электрон-позитронной аннигиляции. Из рис. 2 видно, что теоретические значения S- и W-параметров чистых Zr и Nb находятся в хорошем согласии с экспериментальными данными.

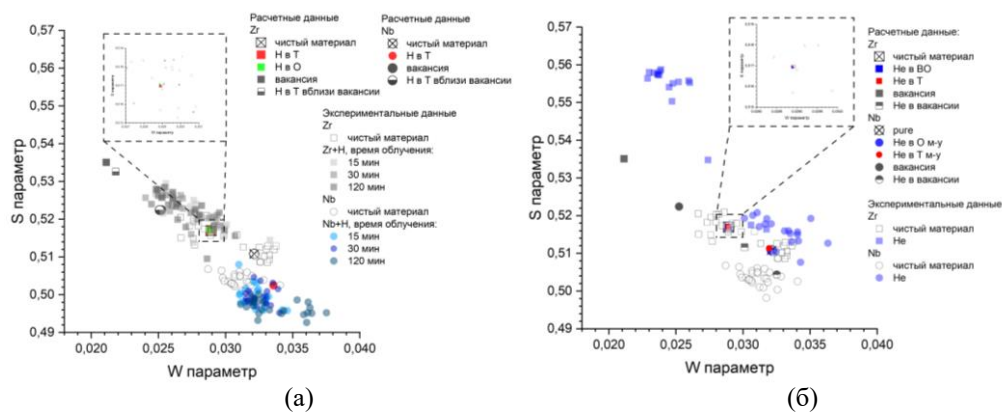


Рис. 2. Зависимость $S=f(W)$ для систем металл-водород (а) и металл-гелий (б)

Экспериментально установлено, что в результате облучения протонами монопленки Zr (рис. 2а) наблюдается увеличение S-параметра и снижение W-параметра. Исходя из результатов расчетов видно, что к такому эффекту приводит наличие в решетке Zr вакансий и водород-вакансионных комплексов. При облучении монопленок Nb протонами наблюдается уменьшение S-параметра и увеличение W-параметра. Из анализа результатов расчетов выявлено, что такое изменение S- и W-параметров обусловлено размещением водорода в междоузлиях решетки ниобия, а не формирование водород-вакансионных комплексов.

После облучения ионами He монопленки Zr (рис. 2б) в большинстве случаев наблюдается значительное увеличение S-параметра и уменьшение W-параметра. Из анализа результатов первопринципных расчетов установлено, что такое изменение может быть обусловлено наличием вакансий в решетке циркония. Облучение монопленки Nb ионами He (рис. 2б) в среднем повышает S- и W-параметры. Такое поведение S- и W-параметры после облучения Nb ионами He не согласуется с результатами проведенных первопринципных расчетов и вероятно обусловлено наличием в решетке Nb более сложных вакансионных и гелий-вакансионных комплексов (кластеров).

Заключение

В работе было исследовано влияние дефектности структуры на характеристики электрон-позитронной аннигиляции в цирконии и ниобии. Установлено, что изменение характеристик электрон-позитронной аннигиляции при облучении протонами циркония обусловлено образованием вакансий в решетке металла и формированием водород-вакансионных комплексов, а при облучении протонами ниобия – образованием твердого раствора Nb-H. Показано, что изменение характеристик электрон-позитронной аннигиляции после облучения циркония ионами гелия связано с возникновением в решетке металла большого количества вакансий, а после облучения ниобия – с формированием вакансионных и гелий-вакансионных кластеров.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 20-79-10343).

Список литературы

1. Parihar R.S., Setti S.G., Sahu R.K. Recent Advances in the Manufacturing Processes of Functionally Graded Materials: A Review. // Sci. Eng. Compos. Mater. – 2018. – Vol. 25. – P. 309–336.
2. Laptev R., Stepanova E., Lomygin A., Krotkevich D., Sidorin A., Orlov O. Hydrogen-Induced Microstructure Changes in Zr/Nb Nanoscale Multilayer Structures // Metals. – 2024. – Vol. 14. – P. 452