

PACS numbers: 61.72.J – , 07.05.Tr

## МОДЕЛИРОВАНИЕ НА АТОМНОМ УРОВНЕ ЭВОЛЮЦИИ ВАКАНСИОННЫХ ПОР В ОБЛУЧАЕМЫХ МАТЕРИАЛАХ

**А.И. Кульментьев**

Институт прикладной физики НАН Украины,  
ул. Петропавловская, 58, Сумы, Украина  
E-mail: kulmentev@mail.ru

*Предложен метод, позволяющий при последовательном многоуровневом моделировании реакторных материалов выделять на атомном уровне подмножество атомов, образующих границу вакансионной поры. Выполнен компьютерный эксперимент, в котором имитируется процесс схлопывания изначально сферической поры. Получены зависимости параметров формы поры от коэффициента сжатия и проведено их сравнение с вычисленными аналитическими выражениями. Показано, что метод позволяет определять фазу схлопывания поры и направление ее наиболее вероятной дальнейшей эволюции.*

**Ключевые слова:** КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ, РЕАКТОРНОЕ МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ, ПРОСТРАНСТВЕННО-ВРЕМЕННЫЕ УРОВНИ, ВАКАНСИОННЫЕ ПОРЫ, АНАЛИЗ ОБЩИХ БЛИЖАЙШИХ СОСЕДЕЙ, НАНОФИЗИКА.

(Получено 15.12.2010, в отредактированной форме – 13.01.2011)

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Одной из наиболее характерных современных тенденций является постоянное усиление внимания к вопросам, связанным с производством и потреблением энергии. В частности, в последнее время во всем мире возрождается интерес к развитию ядерной энергетики, что связано помимо прочего с поисками источников энергии, свободных от производства парниковых газов, таких как CO<sub>2</sub>. Задача развития ядерной энергетики является актуальной и для Украины, поскольку сейчас более 50% электроэнергии в ней генерируется на атомных электростанциях [1].

В качестве ближайшей задачи обсуждается возможность создания замкнутого ядерного топливного цикла. Для реализации такого цикла необходимо проведение интенсивных фундаментальных и прикладных исследований, среди которых особое место занимают те, которые связаны с созданием и модернизацией конструкционных материалов для активной зоны ядерных реакторов.

В качестве более отдаленной можно выделить задачу создания реакторов деления следующего (четвертого) поколения и реакторов синтеза. Основная цель при проектировании реакторов четвертого поколения состоит в улучшении их экономических показателей. В частности, для достижения более высокого к.п.д. во все предлагаемые варианты закладываются более высокие рабочие температуры, чем те, которые характерны для современных легководяных реакторов. При таких повышенных температурах (вплоть до 1000 °С) использование в активной зоне реактора многих существующих конструкционных сплавов становится невозможным [2].

Еще более высокие требования предъявляются к материалам для реакторов синтеза. Для них рабочие температуры, уровень облучения нейтронами и термомеханические напряжения сопоставимы с теми, которые предполагаются в реакторах деления четвертого поколения. Однако дополнительную проблему представляют искусственные изотопы, которые образуются в конструкционных материалах при облучении их высокоэнергетическими нейтронами, генерируемыми в дейтериево-тритиевой плазме. Эти изотопы могут существенно влиять на эволюцию микроstructures и механические характеристики разрабатываемых материалов.

Процесс разработки нового материала основан на выборе соответствующей матрицы, поиске оптимальных комбинаций основных компонентов и концентраций различных добавок, используемых для комплексного легирования, а также на определении режимов термомеханической обработки, позволяющих материалу сохранять в определенных пределах свои физические и механические свойства в течение всего времени эксплуатации. Успешность решения этой задачи связана с пониманием и адекватным описанием тех процессов, которые приводят к деградации рассматриваемых свойств.

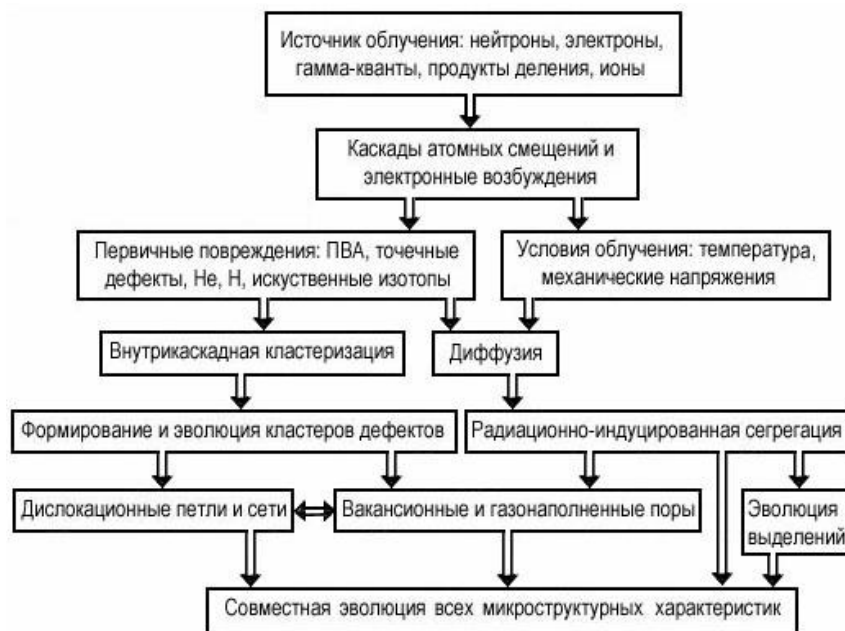


Рис. 1 – Схема эволюции радиационных дефектов в облучаемом материале

Фундаментальные исследования проблемы радиационных повреждений твердых тел в течение последних двадцати пяти лет позволили сформулировать единое теоретическое описание происходящих при этом процессов. В сжатом виде картина таких процессов показана на рис. 1. Высокоэнергетические налетающие частицы сталкиваются с атомами решетки и генерируют каскады атомных столкновений. В результате образуются неравновесные точечные дефекты и кластеры таких дефектов с высокой пространственной корреляцией. При повышенных температурах,

характерных для активной зоны реактора, эти дефекты диффундируют, растворяются и перегруппировываются в другие формы по всему объему облучаемого материала.

Вторичные дефекты формируют новые комплексные микроструктуры, изменяя микроскопические и макроскопические свойства материала. В свою очередь это может приводить к размерным нестабильностям, таким как радиационное набухание или радиационная ползучесть, что очень негативно влияет на надежность и эксплуатационные характеристики изделия, изготовленного из соответствующего материала.

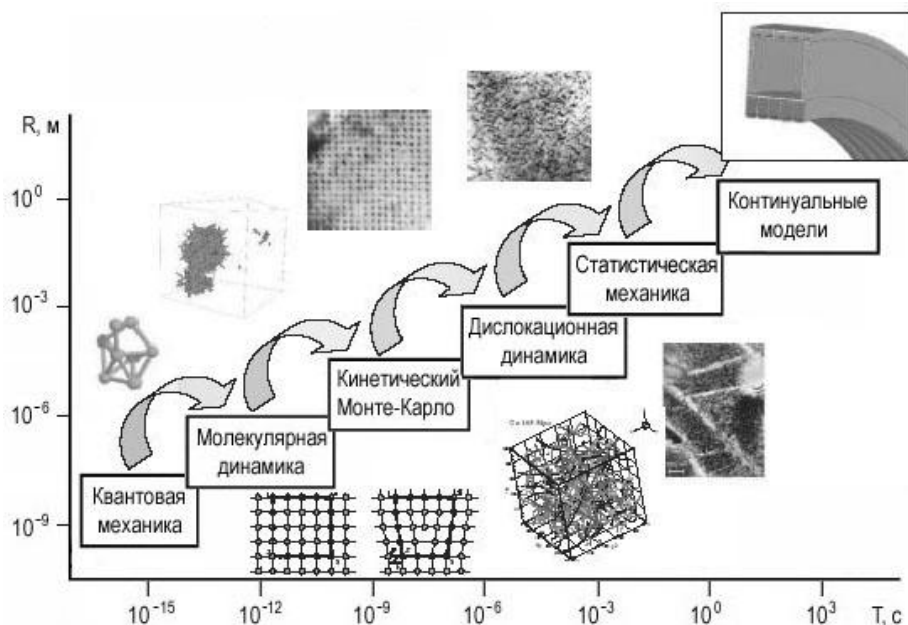
Таким образом, эволюция материала под облучением представляет собой многоуровневое явление, охватывающее широкий интервал пространственно-временных масштабов. Изучение его чисто экспериментальными методами представляет собой трудную задачу, требующую длительных испытаний и значительных инвестиций. Кроме того, если для реакторов деления четвертого поколения предполагаемые условия облучения можно реализовать с помощью существующего оборудования, то для реакторов синтеза в настоящее время не существует источников нейтронов с узким энергетическим распределением вблизи 14.1 МэВ, которые могли бы смоделировать необходимую дозу облучения (~ 200 сна) в достаточно большом объеме материала.

## 2. МНОГОУРОВНЕВОЕ КОМПЬЮТЕРНОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

В такой ситуации большие надежды связывают с развитием сравнительно нового направления в компьютерном материаловедении – многоуровневого моделирования [3]. Его цель состоит в том, чтобы выполнить связанное описание свойств и процессов в материале в целом: от микро- до макроуровня. В основе многоуровневого моделирования лежит использование не одной, а нескольких моделей, которые в зависимости от их пространственных и временных масштабов могут быть упорядочены в виде уровней в соответствующей иерархии (рис. 2).

К настоящему времени в многоуровневом моделировании оформились два направления – последовательные и гибридные схемы [4]. В последовательных схемах структурный элемент модели данного уровня рассматривается в виде системы, составленной из элементов модели более низкого уровня. Поэтому переход к следующему уровню приводит к уменьшению числа степеней свободы и, как следствие, описание поведения системы фиксированного размера в течение заданного промежутка времени требует меньших вычислительных затрат. Это обстоятельство позволяет при переходе на более высокие уровни рассматривать системы большего размера в течение большего времени.

Формальное обоснование многоуровневого подхода состоит в рассмотрении единого гамильтониана и усреднении его по выбранной совокупности степеней свободы. В результате эти степени свободы исключаются, т.е. происходит "масштабное огрубление" системы. Например, модель самого нижнего уровня может описываться гамильтонианом, включающим все электронные степени свободы в соответствующем уравнении Шредингера. В результате усреднения по всем мгновенным положениям электронов происходит переход к модели следующего уровня, в которой корреляции в электронной подсистеме описываются в рамках формализма электронной плотности. Еще один шаг может состоять в усреднении по всем основным электронам и представлении их эффективным потенциалом – так называемом псевдопотенциалом. Аналогичная процедура применительно



**Рис. 2** – Иерархическое упорядочение в плоскости "время – пространство" моделей, используемых при разработке радиационно-стойких материалов для изготовления структур (фрагмент в верхнем правом углу), окружающих ядро плазмы в реакторе синтеза [3]

к валентным электронам приводит к атомистической модели, в которой электронные степени свободы описываются с помощью межатомного потенциала.

Следующий шаг состоит в выделении компактных атомных образований и описании их как единых дефектов кристаллической структуры. Этот шаг особенно важен для компьютерного реакторного материаловедения, поскольку, как видно из рис. 1, первичные радиационные дефекты могут формировать разнообразные вакансионные и межузельные комплексы, такие как вакансионные или газонаполненные поры и дислокационные петли. Кроме того, облучение может приводить к существенному ускорению диффузии, что, в свою очередь, вызывает пространственное разделение компонентов в сплавах (сегрегацию) и формирование атомных кластеров.

Таким образом, в последовательных многоуровневых схемах актуальной является задача разработки методов и алгоритмов, позволяющих выделять подмножество структурных элементов данного уровня, которые образуют единый элемент следующего уровня, а также описание его характеристик в рамках принятой для него модели. Целью настоящей работы является разработка метода, позволяющего решать эту задачу на атомном уровне – выделять совокупность атомов, образующих вакансионную пору, измерять ее характеристики и предсказывать направление наиболее вероятной дальнейшей эволюции.

Чтобы комплексы первичных радиационных дефектов можно было рассматривать как структурные элементы следующих уровней, необхо-

димо решить две основные проблемы. Первая из них связана с тем, что методы моделирования, основанные на концепции частиц, оперируют лишь такими величинами как положения частиц и взаимодействие между ними. Поэтому необходимо из множества всех частиц выделить подмножество, которое формирует данное скопление. Вторая проблема связана с необходимостью описания выделенного подмножества как единого целого с помощью небольшого числа интегральных характеристик.

### 3. АНАЛИЗ ОБЩИХ БЛИЖАЙШИХ СОСЕДЕЙ

Традиционно анализ структуры конфигураций, формирующихся при моделировании динамической эволюции атомных систем, основывался на исследовании радиальной парной корреляционной функции  $g(r)$ . По определению, она описывает вероятность обнаружить произвольный атом на расстоянии  $r$  от выбранного атома. Для твердотельных структур функция  $g(r)$  обладает ярко выраженными максимумами и минимумами. При этом первый пик парной корреляционной функции соответствует первой координационной сфере, а первый минимум разделяет первую и вторую сферы.

В расчетах функция  $g(r)$  получается в результате усреднения по всем атомам системы, и поэтому рассматриваемый метод наиболее подходит для анализа пространственно однородных систем. Так, путем сравнения измеренной в компьютерном эксперименте функции  $g(r)$  с парными корреляционными функциями идеальных кристаллов в некоторых случаях удается идентифицировать тип кристаллической решетки рассматриваемой системы. Трудности возникают когда в системе есть неоднородности, например, она состоит из нескольких твердых фаз, или в ней имеются те или иные дефекты. В этом случае функция  $g(r)$  представляет собой суперпозицию парциальных вкладов, соответствующих различным пространственным областям. Существующие в неоднородных системах внутренние упругие напряжения, а также тепловые колебания атомов приводят к размытию пиков в парциальных вкладах в функцию  $g(r)$ . Как следствие, задача декомпозиции  $g(r)$  на парциальные составляющие становится плохо определенной.

В такой ситуации для выделения комплекса первичных радиационных дефектов более перспективным представляется подход, основанный на исследовании локальной кристалличности отдельного атома и выделении связанных подмножеств атомов, обладающих одинаковым типом кристалличности. Для решения этой задачи вводится представление о связанных парах атомов. По определению, произвольная пара атомов  $a - b$  считается связанной, если атомы достаточно близки друг к другу, т.е. если расстояние  $r$  между их центрами меньше некоторого физически обоснованного значения  $r_{cut}$ . В качестве  $r_{cut}$  чаще всего выбирают радиус первого минимума функции  $g(r)$ . Заметим, что при этом речь идет не о химической, а о чисто геометрической связи.

Для данного атома  $a$  совокупность всех связанных с ним атомов определяет множество  $N_a$  его ближайших соседей. Анализ показывает, что даже в совершенном кристалле не все связи  $a - b$  атома  $a$  с его ближайшими соседями геометрически эквивалентны. Поэтому множество  $N_a$  можно разделить на совокупность непересекающихся подмножеств:

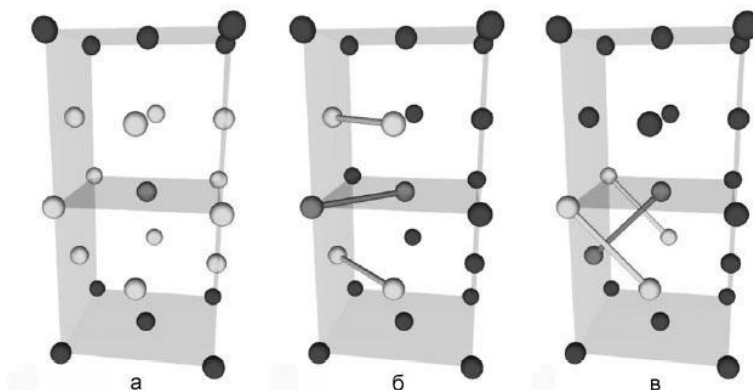
$$N_a = \bigcup_{\alpha} N_a^{\alpha}, \quad (1)$$

таких, что связи  $a - b$  ( $b \in N_a$ ) в пределах отдельного подмножества  $a$  под действием операций точечной группы симметрии переходят друг в друга. Характеристика локальной кристалличности рассматриваемого атома может состоять в указании мощности множества  $N_a$  (числа всех ближайших соседей), а также типов связей в каждом из подмножеств  $N_a^{\alpha}$  и мощности этих подмножеств в разложении (1).

Ясно, что для заданной пары атомов  $a$  и  $b$  тип связи  $a - b$  определяется структурой ее окружения. В [5, 6] было показано, что вполне работоспособную схему характеристики связи  $a - b$  можно развить на основе анализа не всей структуры окружения пары, а лишь используя множество

$$N_{ab} = N_a \cap N_b \quad (2)$$

общих ближайших соседей атомов  $a$  и  $b$ . Соответственно разработанный метод получил название метода анализа общих ближайших соседей (CNA – Common Neighbor Analysis).



**Рис. 3** – Анализ общих ближайших соседей в ГЦК-решетке: а – две элементарные ячейки. Серым цветом выделен атом, для которого определяется тип его локальной кристалличности. 12 светлых атомов формируют множество его ближайших соседей; остальные (темные) атомы расположены на расстоянии  $r > r_{\text{cut}}$ ; б – серым цветом выделена связь рассматриваемого атома с одним из его ближайших соседей; светлыми показаны четыре атома, формирующие множество общих ближайших соседей этой связи, и две связи между этими четырьмя атомами; в – аналогично б, но для другой связи

В этом методе заданная связь характеризуется тройкой целочисленных параметров  $ijk$ :  $i$  – мощность множества  $N_{ab}$  (число общих ближайших соседей);  $j$  – число связей между атомами множества  $N_{ab}$  и  $k$  – длина наибольшей непрерывной цепочки, которую можно составить из этих  $j$  связей. При этом третий параметр вводится для дифференцирования связей, которые геометрически различны, но характеризуются одинаковыми значениями параметров  $i$  и  $j$ . (Примером может служить пара ГЦК и ГПУ решеток). Существует обобщение CNA-метода, в котором с этой же целью вводится четвертый параметр  $h$ , который принимает

значение 1, если рассматривается связанная пара атомов  $a$  и  $b$ , и значение 2, если пара атомов не связана, но имеет общих ближайших соседей. При этом пара атомов  $a$  и  $b$  характеризуется уже четырьмя параметрами  $hijk$ . Ниже будет использоваться стандартный вариант СНА-метода.

На рис.3. показан пример применения СНА-метода для описания локальной кристалличности атома в ГЦК-решетке. Произвольный атом в этой решетке имеет 12 ближайших соседей (рис.3 а) и с каждым из них он делит четырех общих ближайших соседей ( $i = 4$ ), из которых можно сформировать две связи ( $j = 2$ ) (рис. 3 б, в). Поскольку длина самой длинной непрерывной цепочки, которую можно составить из этих двух связей, равна единице, то  $k = 1$ , и окончательно локальная кристалличность произвольного атома в ГЦК-решетке задается в виде  $12 \times 421$ .

Схема типизации связи в СНА-методе основана лишь на анализе общих ближайших соседей пары атомов и поэтому позволяет определять эквивалентные связи в разложении (1) без применения группового симметричного анализа. Как следствие, ее можно использовать для описания локальной кристалличности в областях с нарушенной точечной симметрией, например для атомов, входящих в состав структурных дефектов или при наличии случайных смещений атомов из симметричных равновесных положений.

Подробная таблица характеристик локальной кристалличности атомов в различных решетках и для некоторых их структурных дефектов приведена в [6]. К примеру, для атома на поверхности (111) ГЦК-решетки эта характеристика имеет вид  $9 \times (421(3) + 311(6))$ .

Достоинством СНА-метода является его сравнительная простота. Использование лишь целочисленных параметров делает его устойчивым относительно небольших случайных смещений атомов, что выгодно отличает СНА-метод, например, от анализа многогранников Вороного.

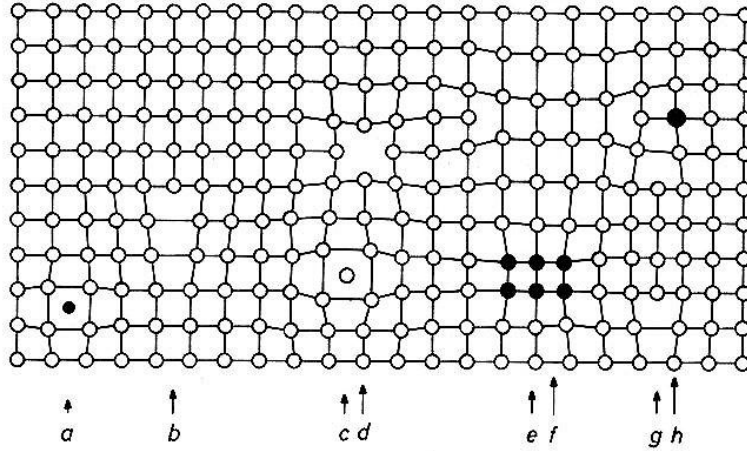
#### 4. ЭВОЛЮЦИЯ ВАКАНСИОННОЙ ПОРЫ

На рис.4 на примере простой кубической решетки изображены некоторые дефекты кристаллической структуры. При облучении конструкционных материалов в активной зоне реактора образуются первичные радиационные дефекты – вакансии (рис.4 d)), межузельные атомы (рис. 4 с), а также примеси (рис.4 а, h), которые могут объединяться в разнообразные комплексы – вакансионные поры, дислокационные петли (рис. 4 f, g)) и примесные выделения (рис.4 е).

Предельными случаями являются сферические и плоские комплексы. В первом случае вначале в ядре простого каскада столкновений образуется маленькая группа вакансий, которая затем начинает расти за счет избыточного (по сравнению с межузельными атомами) потока вакансий на пору. Энергия такого сферического комплекса связана с образованием дополнительной поверхности

$$E_v = 4\pi R^2\gamma, \quad (3)$$

где  $\gamma$  – коэффициент поверхностного натяжения, а  $R$  – эффективный радиус поры, который определяется из условия равенства объема сферы радиуса  $R$  суммарному объему  $n_v$  объединившихся вакансий, каждая из которых имеет объем  $\Omega_v$ :



**Рис. 4** – Классификация некоторых структурных дефектов в простой кубической решетке: примесь внедрения (a); краевая дислокация (b); межузельный атом (c); вакансия (d); выделение примесных атомов (e); дислокационная петля вакансионного типа (f); дислокационная петля межузельного типа (g); примесь замещения (h)

$$R = \left( \frac{3n_v \Omega_v}{4\pi} \right)^{1/3}. \quad (4)$$

В процессе эволюции сферические поры могут деформироваться и захлопываться в наиболее плотноупакованной плоскости кристалла. При этом сначала формируется диск, а затем плоские стороны этого диска соединяются, образуя дислокационную петлю вакансионного типа (рис.4 f). В результате приходим ко второму предельному случаю комплекса первичных радиационных дефектов, который представляет собой плоскую расщепленную петлю дислокаций. Ее энергия равна [7]

$$E_l = \mu b^6 R_l \left( \frac{6 - \nu}{6(1 - \nu)} \right) \ln \left( \frac{4R_l}{r_0} \right) + \pi R_l^2 \gamma_d, \quad (5)$$

где  $\mu$  – модуль сдвига,  $\nu$  – коэффициент Пуассона,  $\gamma_d$  – энергия дефекта упаковки, а  $R_l$  – радиус петли, определяемый из условия равенства площади круга радиусом  $R_l$  площади плоского скопления  $n_v$  вакансий:

$$R_l = \Omega_v^{1/3} \left( \frac{n_v}{\pi} \right)^{1/2}. \quad (6)$$

Выражения (3) и (5) по-разному зависят от числа вакансий в комплексе, и как показано в [7], можно определить некоторое критическое число вакансий  $n_{cr}$ , при котором энергии этих комплексов равны. При малом числе вакансий сферическая полость имеет меньшую энергию, чем дислокационная петля, но при  $n_v > n_{cr}$  сферическая полость становится менее энергетически выгодной и может схлопнуться с образованием дислокационной петли вакансионного типа.



В облучаемом материале может существовать значительный разброс в значениях  $n_{cr}$ , поскольку некоторые воздействия могут стабилизировать пору (и увеличивать значение  $n_{cr}$ ), тогда как другие приводят к противоположному результату. К примеру, сферическая пора стабилизируется локальным растягивающим напряжением или в результате заполнения ее атомами гелия, которые являются продуктом ядерных реакций типа  $(n, \alpha)$ . Напротив, сжимающее напряжение уменьшает значение  $n_{cr}$ .

Поэтому при многоуровневом моделировании материала под облучением необходимо на атомном уровне иметь метод, который позволял бы, во-первых, детектировать формирование комплекса первичных радиационных дефектов в виде вакансионной поры; во-вторых, предсказывать направление ее наиболее вероятной дальнейшей эволюции.

В статье предлагается вариант такого метода, основанный на анализе общих ближайших соседей и на двух предыдущих авторских разработках: методе детектирования поверхности компактных атомных образований [8] и методе измерения формы такого образования [9]. Для иллюстрации предлагаемого метода рассмотрим компьютерный эксперимент, в котором имитируется процесс схлопывания изначально сферической поры.

### 5. КОМПЬЮТЕРНЫЙ ЭКСПЕРИМЕНТ И ДЕТАЛИ АЛГОРИТМОВ

Пусть в начальном состоянии в ГЦК-решетке существует сферическая пора радиуса  $R$ , образовавшаяся в результате слияния  $n_v$  вакансий. Будем считать, что объем  $\Omega_v$  каждой вакансии равен объему  $\Omega_{at}$ , приходящемуся на один атом, т.е.  $\Omega_v = \Omega_{at} = a_{lat}^3/4$ , где  $a_{lat}$  – параметр решетки. Тогда радиус поры определяется выражением (4)

$$R = \left( \frac{3n_v\Omega_v}{4\pi} \right)^{1/3} = a_{lat} \left( \frac{3}{16\pi} n_v \right)^{1/3}. \quad (7)$$

Совместим центр сферы радиуса  $R$  с одним из узлов решетки и удалим из нее все атомы, центры которых попадают внутрь этой сферы. В результате получаем атомную модель сферической вакансионной поры. Определим с помощью СНА-метода локальную кристалличность всех атомов в расчетной ячейке, и разделим их на два непересекающихся подмножества – те, локальная кристалличность которых соответствует совершенной решетке, и дефектные атомы.

В рамках метода [8] определим атомы, которые образуют внешнюю границу  $\partial S$  компактного комплекса дефектов. Этот метод основан на представлении о качении по поверхности атомного образования пробной сферы, и в нем  $\partial S$  представляет собой объединение  $n$  треугольных полигонов  $\partial S = \bigcup_{i=1}^n \Delta A_i B_i C_i$ . Соответственно, образование моделируется полиэдром с внешней границей  $\partial S$ .

Перебираем все атомы системы и выделяем те, центры которых попадают внутрь этого полиэдра. Это можно сделать в результате вычисления для каждого из атомов значения индикаторной функции, определяемой следующим образом

$$D(\mathbf{r}) = \begin{cases} 1 & \text{для } \mathbf{r} \text{ внутри полиэдра,} \\ 0 & \text{для } \mathbf{r} \text{ снаружи полиэдра.} \end{cases} \quad (8)$$

Алгоритм расчета функции  $D(\mathbf{r})$  подробно изложен в [9]. С помощью этого алгоритма можно в рамках метода Монте-Карло вычислить и произвольный интеграл по полиэдру, в частности, его объем. Поскольку число атомов внутри полиэдра определено выше, то можно оценить локальную плотность атомов в пределах компактного комплекса дефектов. Сравнение ее со средней атомной плотностью в расчетной ячейке, позволяет однозначно классифицировать дефектное образование как вакансионную пору.

Для моделирования процесса схлопывания поры многократно повторим описанный выше эксперимент, но теперь в исходном состоянии будем удалять из расчетной ячейки атомы, лежащие внутри не сферы, а эквивалентного ей эллипсоида вращения (т.е. эллипсоида с двумя равными полуосями). Такой эллипсоид можно рассматривать как результат "сжатия" сферической поры.

Пусть центр эллипсоида совмещен с тем же узлом решетки, что и центр сферической поры, а главные оси совпадают с кристаллографическими осями. В этом случае каноническое уравнение эллипсоида можно записать в виде

$$\frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{a^2} + \frac{z^2}{b^2} = 1, \quad (9)$$

где  $a$  и  $b$  – полуоси эллипса, в результате вращения которого вокруг малой оси (выбранной совпадающей с осью  $z$  – осью сжатия поры) получается эллипсоид вращения. Определим коэффициент сжатия  $\xi$  следующим образом

$$\xi = 1 - \frac{b}{a}. \quad (10)$$

Очевидно, что для исходной сферической поры  $\xi = 0$ , а в пределе схлопнутой поры  $\xi \rightarrow 1$ .

Обозначим через  $V_0 = n_v \Omega_v$  объем сферической поры. Из (10) следует, что  $b = a(1 - \xi)$ . Приравнивая объем эллипсоида вращения

$$V = \frac{4}{3} \pi a^2 b = \frac{4}{3} \pi a^3 (1 - \xi) \quad (11)$$

объему  $V_0$ , получим для заданного значения коэффициента сжатия следующие выражения для полуосей  $a$  и  $b$ :

$$\begin{cases} a = \left( \frac{3}{4\pi} V_0 \right)^{1/3} \frac{1}{(1 - \xi)^{1/3}}, \\ b = \left( \frac{3}{4\pi} V_0 \right)^{1/3} (1 - \xi)^{2/3}. \end{cases} \quad (12)$$

Введем вспомогательную функцию

$$f(x, y, z) = \frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{a^2} + \frac{z^2}{b^2} - 1, \quad (13)$$

где полуоси  $a$  и  $b$  определяются системой (12). Очевидно, что для точек  $\mathbf{r}(x, y, z)$  внутри эллипсоида вращения  $f(\mathbf{r}) < 0$ , на его поверхности  $f(\mathbf{r}) = 0$  и вне  $f(\mathbf{r}) > 0$ . Перебираем все атомы в расчетной ячейке, вычисляем для каждого из них значение функции  $f(\mathbf{r})$  и удаляем те, для которых эта функция отрицательна. Так подготавливается исходная атомная конфигурация, соответствующая сжатой поре.

Повторим описываемый эксперимент для ряда значений коэффициента сжатия  $\xi$ , и для каждого  $\xi$  измерим форму поры. При этом будем использовать предложенный в [9] оригинальный метод измерения формы локального атомного образования, основанный на вычислении инвариантов тензора моментов инерции полиэдра, которым моделируется это образование.

Для индикаторной функции (8) эти моменты определяются следующим образом

$$\mu_{pqr} = \iiint d\mathbf{r} x^p y^q z^r D(\mathbf{r}), \quad (14)$$

где интегрирование проводится по всему трехмерному пространству,  $(p, q, r)$  – тройка неотрицательных целых чисел, и порядок момента равен  $n = p + q + r$ . Если полиэдр перемещен так, что его центр масс совпадает с началом координат, то такие моменты называются центральными, и центральные моменты второго порядка в совокупности образуют тензор второго ранга – тензор моментов инерции  $I$ :

$$I = \begin{pmatrix} \mu_{020} + \mu_{002} & -\mu_{110} & -\mu_{101} \\ -\mu_{110} & \mu_{200} + \mu_{002} & -\mu_{011} \\ -\mu_{101} & -\mu_{011} & \mu_{200} + \mu_{020} \end{pmatrix}. \quad (15)$$

Этот тензор имеет три инварианта [10]:

$$\begin{aligned} O_1 &= \mu_{200} + \mu_{020} + \mu_{002}, \\ O_2 &= \mu_{200}\mu_{020} + \mu_{200}\mu_{002} + \mu_{020}\mu_{002} - \mu_{110}^2 - \mu_{101}^2 - \mu_{011}^2, \\ O_3 &= \mu_{200}\mu_{020}\mu_{002} + 2\mu_{110}\mu_{101}\mu_{011} - \mu_{200}\mu_{011}^2 - \mu_{020}\mu_{101}^2 - \mu_{002}\mu_{110}^2. \end{aligned} \quad (16)$$

Можно также определить три безразмерных инварианта моментов

$$\Omega_1 \equiv \frac{3V^{5/3}}{O_1}, \quad \Omega_2 \equiv \frac{3V^{10/3}}{O_2}, \quad \Omega_3 \equiv \frac{V^5}{O_3}, \quad (17)$$

а затем – нормированные величины

$$\bar{\Omega}_1 \equiv \frac{\Omega_1}{\Omega_1^S}, \quad \bar{\Omega}_2 \equiv \frac{\Omega_2}{\Omega_2^S}, \quad \bar{\Omega}_3 \equiv \frac{\Omega_3}{\Omega_3^S}, \quad (18)$$

где  $\Omega_i^S$  – соответствующие инварианты моментов для сферы.

Очевидно, что безразмерные инварианты ( $\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3$ ) не зависят от изменения масштаба пространственных переменных, т.е. они не зависят от размера атомного образования, а характеризуют лишь его форму. В [9] было показано, что трансляция в пространстве атомного образования как целого или его вращение относительно произвольной оси не меняли

значений величин  $(\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3)$ . Кроме того, поскольку три инварианта  $(\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3)$  имеют максимальное значение для сферы, то нормированные величины  $(\bar{\Omega}_1, \bar{\Omega}_2, \bar{\Omega}_3)$  изменяются в интервале от 0 до 1.

## 6. РЕЗУЛЬТАТЫ КОМПЬЮТЕРНОГО ЭКСПЕРИМЕНТА И ОБСУЖДЕНИЕ

В соответствии с описанным выше алгоритмом в эксперименте расчетная ячейка выбиралась в виде фрагмента ГЦК-решетки размером  $15 \times 15 \times 15$  (в единицах параметра решетки  $a_{lat}$ ). Для моделирования тепловых колебаний каждый атом затем случайным образом смещался из положения равновесия. При этом для каждой из прямоугольных декартовых координат  $x$ ,  $y$  и  $z$  использовалась равномерная функция распределения с амплитудой, равной  $0.05 a_{lat}$ .

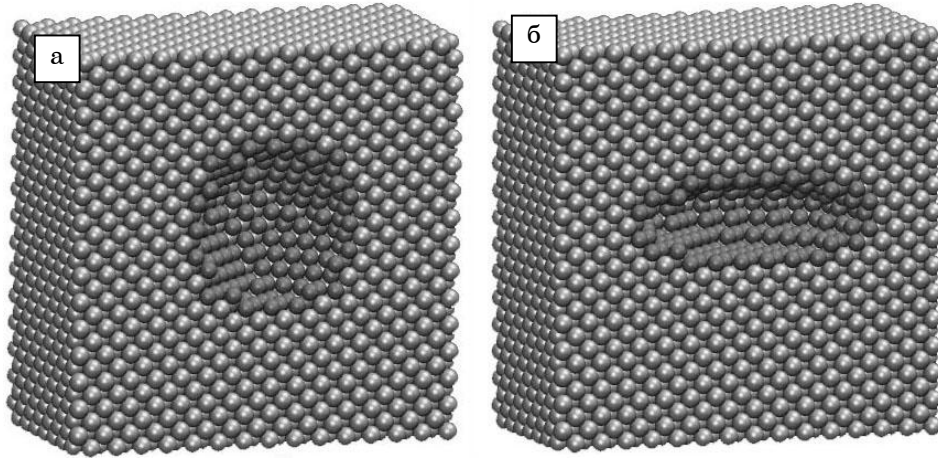
В эксперименте рассматривалась пора, образовавшаяся в результате слияния  $n_v = 400$  вакансий. Рассчитанный по формуле (7) эффективный радиус сферической поры (коэффициент сжатия  $\xi = 0$ ) был равен  $2.88 a_{lat}$ , а число атомов, для которых  $f(\mathbf{r}) < 0 - 381$ . Эти атомы удалялись из расчетной ячейки, а для всех оставшихся выполнялся анализ их локальной кристалличности.

В результате этого анализа в расчетной ячейке было выделено 306 дефектных атомов, т.е. атомов, для каждого из которых число его ближайших отличалось от 12. Конкретно, 30 атомов, с 8 ближайшими соседями; 120 с 9; 72 с 10 и 60 с 11. Эти 306 атомов формируют дефектный кластер, для которого в рамках метода [8] определялась его внешняя граница.

На рис. 5 показано поперечные сечения расчетных ячеек, соответствующих двум значениям коэффициента сжатия, плоскостью проходящей через центр поры и совпадающей с одной из координатных плоскостей (в данном случае – с плоскостью  $xz$ ). Более темным цветом на рисунке выделены дефектные атомы. Видно, что для обоих коэффициентов сжатия пору ограничивает один слой дефектных атомов.

На первый взгляд для  $\xi = 0$  форма поры близка к сферической, однако более внимательный анализ показывает, что ее поверхность образуют шесть достаточно больших фрагментов кристаллографических плоскостей типа (100), восемь – плоскостей типа (111) и атомы, лежащие на общих границах этих восьми фрагментов. Это утверждение проиллюстрировано на рис.6 а, а на рис.6 б показан полиэдр, которым в рамках метода [8] моделируется внешняя граница кластера дефектных атомов.

Этот полиэдр в рассматриваемом случае состоит из 606 треугольных полигонов и имеет объем, равный  $519.3\Omega_{at}$ . Если в качестве первого приближения принять, что в среднем внутрь полиэдра попадает половина дефектного атома, то получим, что объем  $519.3\Omega_{at}$  содержит 153 атома. Следовательно, локальная плотность атомов в пределах рассматриваемого комплекса дефектов составляет 29.5 % от атомной плотности в исходном бездефектном кристалле, что позволяет однозначно классифицировать это дефектное образование как вакансионную пору.



**Рис. 5** – Вид в разрезе расчетной ячейки для двух значений коэффициента сжатия:  $\xi = 0$  (а) и  $\xi = 0.7$  (б). Более темным цветом выделены атомы с дефектной локальной кристалличностью

На рис. 7 показано как при сжатии поры меняются параметры, характеризующие ее форму. Для эллипсоида, главные оси которого совпадают с кристаллографическими осями, а полуоси равны  $(a, a, a(1 - \xi))$ , можно получить аналитическое выражение для моментов второго порядка:

$$\mu_{200} = a^5 \frac{4\pi}{15} (1 - \xi), \quad \mu_{020} = a^5 \frac{4\pi}{15} (1 - \xi), \quad \mu_{002} = a^5 \frac{4\pi}{15} (1 - \xi)^2, \quad (19)$$

а объем определяется формулой (11). В результате приходим к следующим выражениям для инвариантов моментов:

$$\Omega_1 = \left( \frac{2000\pi^2}{9} \right)^{1/3} \frac{3(1 - \xi)^{2/3}}{2 + (1 - \xi)^2} = \Omega_1^S \frac{3(1 - \xi)^{2/3}}{2 + (1 - \xi)^2}, \quad (20)$$

$$\Omega_2 = \left( \frac{2000\pi^2}{9} \right)^{2/3} \frac{3(1 - \xi)^{4/3}}{1 + 2(1 - \xi)^2} = \Omega_2^S \frac{3(1 - \xi)^{4/3}}{1 + 2(1 - \xi)^2}, \quad (21)$$

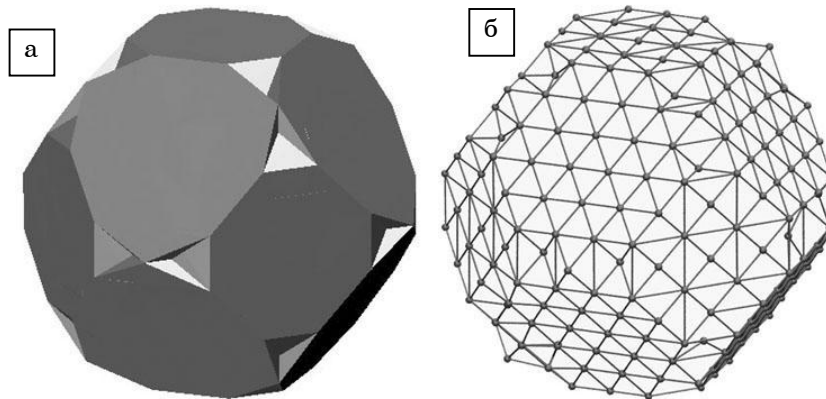
$$\Omega_3 = \frac{2000\pi^2}{9} = \Omega_3^S. \quad (22)$$

И, следовательно,

$$\bar{\Omega}_1 \equiv \frac{\Omega_1}{\Omega_1^S} = \frac{3(1 - \xi)^{2/3}}{2 + (1 - \xi)^2}, \quad (23)$$

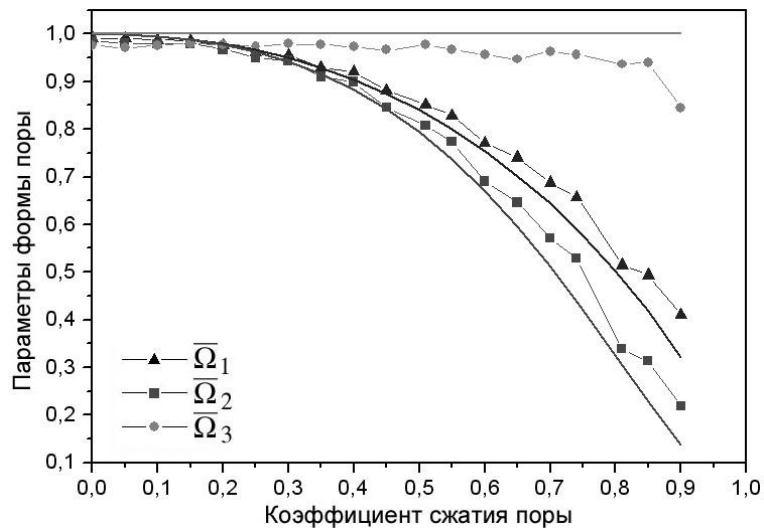
$$\bar{\Omega}_2 \equiv \frac{\Omega_2}{\Omega_2^S} = \frac{3(1 - \xi)^{4/3}}{1 + 2(1 - \xi)^2}, \quad (24)$$

$$\bar{\Omega}_3 \equiv \frac{\Omega_3}{\Omega_3^S} = 1. \quad (25)$$



**Рис. 6** – Аппроксимация границы поры фрагментами кристаллографических плоскостей типа (100) и (111) (а); полиэдр, моделирующий внешнюю границу кластера дефектных атомов в виде объединения треугольных полигонов (б)

Соответствующие аналитические зависимости также показаны на рис. 7. Как видно из рисунка, существует хорошее согласие между аналитическими и измеренными в компьютерном эксперименте зависимостями



**Рис. 7** – Зависимость параметров формы поры от коэффициента сжатия  $\xi$ . Сплошные толстые линии – аналитические выражения (23) – (25)

$\bar{Q}_i(\xi)$ ,  $i = 1, 2, 3$ . Наблюдаемые же расхождения, по-видимому, связаны с кристаллографической «огранкой» поверхностей вакансионных пор. Выше мы обсуждали это явление для  $\xi = 0$ . Из рис. 5 б видно, что значение подобной «огранки» будет возрастать по мере увеличения коэффициента сжатия поры. Ясно, что в пределе схлопнутой поры (при  $\xi \rightarrow 1$ ) ее поверхность будет состоять в основном из двух фрагментов кристалло-

графических плоскостей, нормальных оси сжатия поры.

Отметим, что для эллипсоида инвариант  $\Omega_3$  имеет то же значение, что и для сферы. Причиной этого является то, что, как было показано в [11],  $\Omega_1$  и  $\Omega_2$  инвариантны относительно преобразований подобия, а  $\Omega_3$  – относительно аффинных преобразований. Все эллипсоиды можно рассматривать как результат аффинных преобразований сферы (в общем случае – анизотропного растяжения относительно главных осей). Поэтому все эллипсоиды имеют одно и то же значение  $\Omega_3$ .

## 7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В статье предложен метод, позволяющий при компьютерном моделировании реакторных материалов выделять на атомном уровне подмножество атомов, образующих границу вакансионной поры, измерять ее характеристики и для схлопывающейся поры определять фазу схлопывания. Этот метод не предполагает участия человека. Он может быть встроен в последовательные многоуровневые схемы и представляет собой шаг на пути их интеграции, которая необходима для проведения реальных массовых вычислений.

### THE ATOMIC LEVEL SIMULATION OF THE VACANCY PORE EVOLUTION IN IRRADIATED MATERIALS

*A.I. Kul'ment'ev*

Institute of Applied Physics National Academy of Science of Ukraine,  
58, Petropavlovskaya Str., 40030, Sumy, Ukraine,  
E-mail: [kulmentev@mail.ru](mailto:kulmentev@mail.ru)

*The method allowing in a sequential multi-level simulation of radiation damage evolution to determine at the atomic level the subset of atoms forming the boundary of vacancy pore is proposed. Computer modelling of the collapse process of the initially spherical pore is performed. Dependences of the shape parameters of the pore on the compression coefficient are obtained and compared with those derived analytically. It is shown that this method may be used for determination of the pore collapse phase and for prediction of the direction of the pore most probable evolution.*

**Keywords:** COMPUTER SIMULATION, REACTOR MATERIAL SCIENCE, SPACE-TIME LEVELS, VACANCY PORES, COMMON NEIGHBOR ANALYSIS, NANOPHYSICS.

### МОДЕЛЮВАННЯ НА АТОМАРНОМУ РІВНІ ЕВОЛЮЦІЇ ВАКАНСІЙНИХ ПОР В ОПРОМІНЕНИХ МАТЕРІАЛАХ

*О.І. Кульментєв*

Інститут прикладної фізики НАН України,  
вул. Петропавлівська, 58, Суми, Україна, 40030  
E-mail: [kulmentev@mail.ru](mailto:kulmentev@mail.ru)

*Запропоновано метод, який дозволяє в багаторівневому моделюванні реакторних матеріалів виділяти на атомарному рівні підмножину атомів, що утворюють границю вакансійної пори. Здійснено комп'ютерний експеримент, за допомогою якого імітується процес стиснення початково сферичної пори. Отримані*

залежності параметрів форми пори від коефіцієнта стиснення і здійснено їх порівняння з аналітичними виразами. Показано, що метод дозволяє визначити фазу стиснення пори і найімовірніший напрям еволюції.

**Ключові слова:** КОМП'ЮТЕРНЕ МОДЕЛЮВАННЯ, РЕАКТОРНЕ МАТЕРІАЛОЗНАВСТВО, ПРОСТОРОВО-ЧАСОВІ РІВНІ, ВАКАНСІЙНІ ПОРИ, АНАЛІЗ СПІЛЬНИХ НАЙБЛИЖЧИХ СУСІДІВ, НАНОФІЗИКА.

#### СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. В.Н. Воеводин, И.М. Неклюдов, Эволюция структурного состояния и радиационная стойкость конструкционных материалов. (К.: Наук. думка, 2006).
2. *Workshop on Advanced Computational Materials Science: Application to Fusion and Generation IV Fission Reactors.* (Washington, D.C.: 2004).
3. N.M. Ghoniem, E.P. Busso, N. Kioussis, H. Huang, *Philos. Mag.* **83**, 3475 (2003).
4. G. Makov, C. Gattinoni, A.De Vita, *Model. Simul. Mater. Sc.* **17**, 084008 (2009).
5. J.D. Honeycutt, H.C. Andersen, *J. Phys. Chem.* **91**, 4950 (1987).
6. C.L. Cleveland, W.D. Luedtke, Uzi. Landman, *Phys. Rev. B* **60**, 5065 (1999).
7. С.Н. Коршунов, Ю.В. Мартыненко, И.Д. Скорлупкин, В.Г. Столярова, *ЖТФ* **79** №4, 82 (2009). (S.N. Korshunov, Y.V. Martynenko, I.D. Skorlupkin, V.G. Stolyarova, *Tech. Phys.* **54**, 527 (2009)).
8. А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева, *Вісник СумДУ. Серія: Фізика, математика, механіка* №2, 107 (2008).
9. А.И. Кульментьев, О.П. Кульментьева, *Ж. нано-электрон. физ.* **1** № 3, 60 (2009).
10. Г.В. Коренев, *Тензорное исчисление* (М.: МФТИ: 2000).
11. A.G. Mamistvalov, *IEEE T. Pattern Anal.* **20**, 819 (1998).