

МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕТОДОМ МОНТЕ КАРЛО РАДИАЦИОННЫХ ПОВРЕЖДЕНИЙ МИНЕРАЛОВ ЦИРКОНА И МОНАЦИТА

Н. С. Виноградова, Ю. В. Щапова, С. Л. Вотяков

Институт геологии и геохимии УрО РАН, г. Екатеринбург

В последние годы численное моделирование повреждений достаточно широко используется в различных разделах радиационного материаловедения, в том числе и при изучении природных материалов [Лопатин, 2010]. Оно позволяет выявлять количественные закономерности образования дефектов и изучать структуру разупорядоченного состояния минералов, возникающего в ходе внутреннего или внешнего облучения при распаде радиоактивных элементов. Процесс дефектообразования (метамиктизации) U-Th-минералов происходит за счет воздействия на атомы их кристаллической решетки как легких альфа-частиц с характерными энергиями 1.5–15 МэВ, возникающих при распаде U (Th), так и тяжелых ядер отдачи с энергиями $n \times 100$ кэВ. Одним из наиболее широко применяемых методов численного моделирования вероятностных событий рассеяния частиц при прохождении сквозь вещество является метод Монте Карло. Ранее расчеты радиационных повреждений такими методами проведены для минерала циркона, в частности, в работе [Ewing et al., 2003] выполнен расчет дефектообразования под действием альфа-частиц с энергией 4.6 МэВ и ядер отдачи Th с энергией 78 кэВ; аналогичные работы для монацита неизвестны.

Цель работы – изучение закономерностей образования радиационных дефектов структуры под действием альфа-облучения в Ce-, La-, Nd-, Sm-монаците и цирконе по данным численного моделирования методом Монте Карло.

Методика. Расчеты в рамках метода Монте Карло выполнены с использованием программы TRIM [Ziegler et al., 1985]. В основе ее алгоритма лежит модель бинарных упругих атомных столкновений, которые описываются универсальным рассеивающим потенциалом ZBL. Расчеты основываются на ряде количественных данных: на характеристиках налетающих частиц (их атомном номере, массе, кинетической энергии, направлении) и на параметрах вещества-мишени (составе соединения, плотности, пороговой энергии смещения атомов E_d). Из всех параметров наиболее сложным для прямого измерения является значение E_d , которое определяется как минимальная кинетическая энергия, необходимая для выбивания атома из положения равновесия и смещения его в кристаллической решетке на расстояние, превышающее межатомное. Оно оценивается либо прямыми квантовомеханическими расчетами, либо при помощи полуэмпирических потенциалов, молекулярно-динамических методов с использованием точных межатомных потенциалов. Для атомов Zr, Si, O в цирконе известно достаточно большое количество оценок E_d , причем весьма противоречивых (см. например, [Williford et al., 1998; Crocombette, Ghaleb, 2001]). Напротив, оценки E_d атомов Ce, P, O для монацита неизвестны. В настоящей работе выполнен анализ влияния на закономерности образования радиационных дефектов трех основных факторов – состава монацита, энергии смещения атомов в цирконе, а также энергии бомбардирующих альфа-частиц.

Влияние состава монацита. Исследована степень повреждения структуры в Ce-, La-, Nd-, Sm-монацитах; расчеты выполнены в предположении [*mincryst*], что их плотность составляет 5.26, 5.15, 5.15 и 5.51 г/см³, соответственно. Оценки пороговых энергий E_d в монацитах различного состава неизвестны, вследствие чего в первом приближении, согласно [Ziegler et al., 1985], значения E_d приняты равными 25 (атомы Ce, La, Nd, Sm), 25 (P) и 22 эВ (O). Энергия альфа-частиц положена равной 5.5 МэВ, что наиболее характерно для естественного радиоактивного распада U и Th, расчетная статистика составила 500 альфа-частиц (как установлено, ее дальнейшее увеличение не приводит к

**Зависимость количества вакансий в атомах на частицу
от значения пороговой энергии смещения E_d в Се-монаците**

E_d , эВ	25	50	75	100	125
Суммарное количество вакансий, атом/част	197	176	168	164	160
Вакансии по Се, атом/част	42	21	14	10	6
Вакансии по Р, атом/част	40	40	40	40	40
Вакансии по О, атом/част	114	114	114	114	114

изменениям топологии распределения и численных характеристик дефектов). Для Се-, La-, Nd-, Sm-монацитов получено, что глубина проникновения альфа-частиц составляет 16.5, 16.4, 17.0 и 16.5 мкм, а общее количество вакансий – 197, 171, 195 и 185 атом/част, соответственно; т.е. глубина проникновения альфа-частиц в монацитах при изменении их состава меняется незначительно (несколько возрастая для Nd-монацита), в то время как степень радиационного повреждения изменяется более значительно (наибольшая величина характерна для Се- и Nd-монацитов). Исследование зависимости степени радиационного повреждения Се-монацита от величины E_d (в интервале от 25 до 50, 75, 100 и 125 эВ) для атома Се показало, что топологические характеристики распределения дефектов не изменяются (глубина проникновения составляет 16.5 мкм, разброс пучка 0.55 мкм), в то время как суммарное количество вакансий при увеличении E_d уменьшается (табл.).

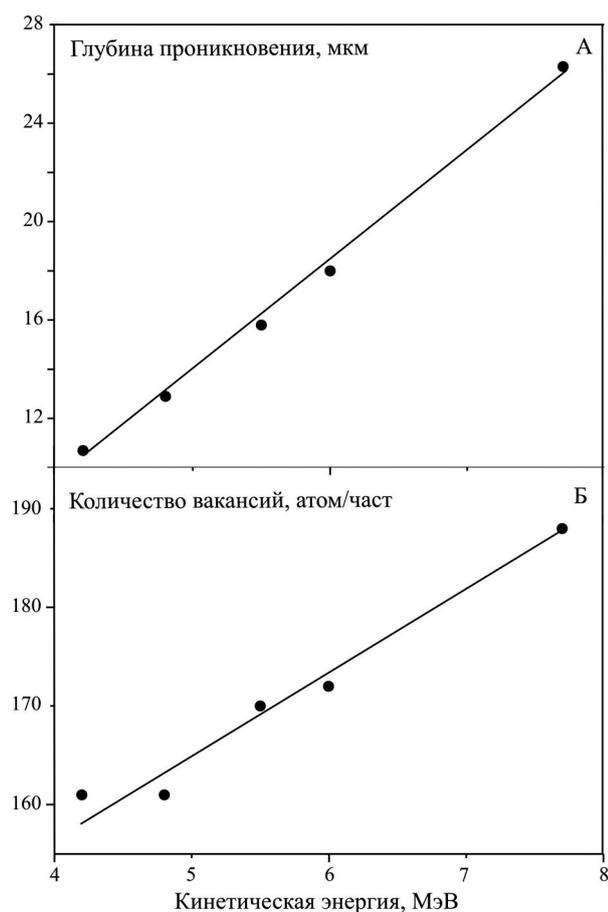


Рис. 1. Влияние кинетической энергии альфа-частиц на расчетную глубину их проникновения (а) и количество образующихся вакансионных дефектов в цирконе (б).

Влияние энергии смещения атомов в цирконе. Проведен анализ влияния величины E_d на характеристику структурных повреждений минерала; численные эксперименты выполнены с использованием шести различных наборов значений E_d для атомов Zr, Si, O: 80, 20, 45 [Williford et al., 1998]; 76, 85, 38 [Ewing et al., 2003]; 90, 98, 32 [Crocobette, Ghaleb, 2001]; 89, 48, 23 [Park et al., 2001]; 25, 15, 22 [Ziegler et al., 1985]; 85, 105, 28 эВ [Замятин и др., 2009], соответственно. Энергия альфа-частиц принята равной 5.5 МэВ, что наиболее характерно для естественного радиоактивного распада U и Th, расчетная статистика составила 500 альфа-частиц. Установлено, что величина E_d незначительно влияет на топологические характеристики повреждений: характерная глубина проникновения альфа-частиц и расхождение пучка для всех наборов составляют 15.8 и 0.42 мкм, соответственно. Напротив, степень структурного разупорядочения (количество вакансий) для приведенных выше наборов E_d существенно различаются и составляют 126, 102, 114, 170, 227 и 158 атом/част, соответственно. Во всех случаях доминирующий вклад в общее количество вакансионных дефектов вносят вакансии кислорода.

Влияние энергии альфа-частиц. Проанализировано влияние кинетической энергии альфа-частиц в диапазоне 4.2–7.7 МэВ, характерном для естественного радиоактивного распада U, на параметры радиационного повреждения циркона (рис. 1). Установлено, что глубина проникновения частиц коррелирует с их энергией, что согласуется с классическими представлениями о взаимодействии излучения с веществом, причем рост числа вакансионных дефектов происходит преимущественно за счет роста числа вакансий кислорода.

Результаты моделирования радиационного повреждения циркона и Се-монацита альфа-частицами с энергией в 5.5 МэВ представлены на рисунках 2–3, при этом значения E_d для циркона приняты равными 85 (атом Zr), 105 (Si), 28 эВ (O) [Замятин и др., 2009], а для Се-монацита – 25 (атом Се), 25 (P), 22 эВ (O) [Ziegler et al., 1985]; расчетная статистика составила 500 альфа-частиц. Установлено, что глубина проникновения альфа-частиц в циркон составляет 15.8 мкм, разброс пучка – 0.42 мкм, общее количество вакансий – 161 атом/част (в том числе 142 для атома O, 8 для Si, 11 для Zr); в то время как глубина проникновения в монацит – 16.5 мкм, разброс пучка – 0.41 мкм, общее количество вакансий – 233 атом/част (в том числе 150 для атома O, 40 для P, 43 для Се).

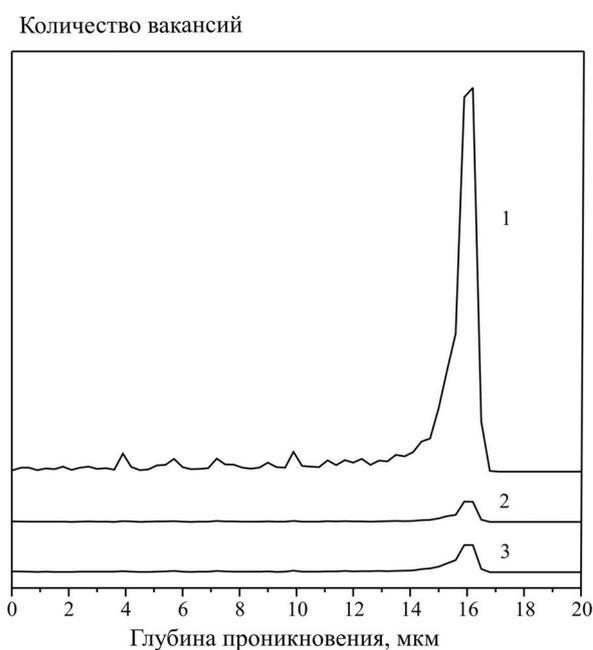


Рис. 2. Профили распределения вакансий атомов O (1), Si (2), Zr (3) в цирконе вдоль пути проникновения альфа-частиц.

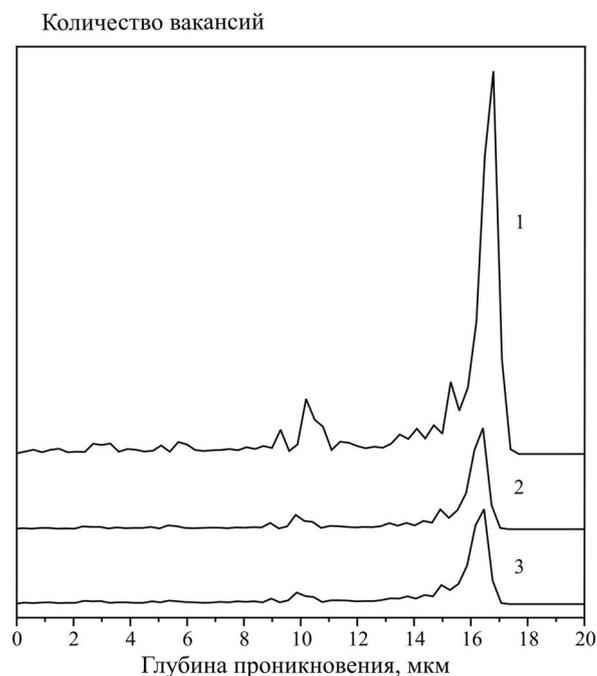


Рис. 3. Профили распределения вакансий атомов O (1), P (2), Се (3) в монаците вдоль пути проникновения альфа-частиц.

Установлено, что основная доля вакансий в обоих минералах приходится на кислород, что объясняется, во-первых, большей подвижностью кислородной решетки в сравнении с катионной, и, во-вторых, тем, что кислорода в веществе больше, чем остальных атомов.

Работа выполнена в рамках федеральной программы «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» (госконтракт № 02.740.11.0727), программ Президиума РАН № 20, 23, а также интеграционного проекта УрО РАН «Состав, структура и физика радиационно-термических эффектов в ряде оксидных, силикатных и фосфатных минералов» и гранта РФФИ № 09-05-00513.

Литература

Замятин Д. А., Щапова Ю. В., Вотяков С. Л., Еремин Н. Н., Урусов В. С. Структура и термодинамические свойства твердых растворов циркон – коффинит по данным полуэмпирического атомистического моделирования // Ежегодник-2008. Труды ИГГ УрО РАН. 2009. Вып. 156. С. 303–311.

Лопатин О. Н. Ионная имплантация минералов и их синтетических аналогов // Автор. ... докт. геол.-мин. наук. Казань, 2010. 41 с.

Урусов В. С. Теоретическая кристаллохимия. М.: МГУ, 1987. 275 с.

Crocobette J. P., Ghaleb D. Molecular dynamics modeling of irradiation damage in pure and uranium-doped zircon // Journal of Nuclear Materials. 2001. V. 295. P. 167–178.

Ewing R. C., Meldrum A., Wang L., Weber W. J., Corrales L. R. Radiation effects in zircon // Zircon. Reviews in Mineralogy and Geochemistry, eds. J. M. Hanchar, P. W. O. Hoskin. 2003. V. 53. P. 387–425.

Park B., Weber W. J., Corrales L. R. Molecular dynamics simulation study of threshold displacements and defect formation in zircon // Physical Review B. 2001. V. 64. P. 174108–174108.

Williford R. E., Devanathan R., Weber W. J. Computer simulation of displacement threshold energies for several ceramic materials // Nucl. Instrum. and Methods. 1998. V. 141. P. 98–103.

Ziegler J. F., Biersack J. P., Littmark U. The Stopping and Range of Ions in Solids. New York: Pergamon press, 1985. V. 1. 321 p.

URL: <http://database.iem.ac.ru/mincryst/>