

УДК 621.039.556+539.27:548.312.6

**ДЕЙСТВИЕ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ
НА МЕТАЛЛЫ ПРИ РАЗЛИЧНЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ
И ВОЗМОЖНОСТЬ САМООРГАНИЗАЦИИ
ПРОТЕКАЮЩИХ ПРИ ЭТОМ ПРОЦЕССОВ**

А. В. Козлов

Институт реакторных материалов, Заречный, Свердловская обл., Россия

ВВЕДЕНИЕ	1110
МЕХАНИЗМЫ ДЕЙСТВИЯ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА МЕТАЛЛЫ	1111
ДЕЙСТВИЕ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА МЕТАЛЛЫ ПРИ РАЗЛИЧНЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ	1114
САМОСОГЛАСОВАННЫЕ ПРОЦЕССЫ ИЗМЕНЕНИЯ СТРУКТУРЫ В МЕТАЛЛАХ ПРИ ДЕЙСТВИИ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ	1144
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	1147
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	1147

УДК 621.039.556+539.27:548.312.6

ДЕЙСТВИЕ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА МЕТАЛЛЫ ПРИ РАЗЛИЧНЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ И ВОЗМОЖНОСТЬ САМООРГАНИЗАЦИИ ПРОТЕКАЮЩИХ ПРИ ЭТОМ ПРОЦЕССОВ

А. В. Козлов

Институт реакторных материалов, Заречный, Свердловская обл., Россия

Рассмотрены основные черты действия нейтронного облучения на металлы в различных температурных диапазонах. Показано, к каким радиационным явлениям и структурным изменениям в металлах приводит облучение в каждом из них. С позиций описания металла под облучением как открытой системы проанализирована возможность самоорганизации процессов, протекающих в металлах при нейтронном облучении.

The main features of neutron irradiation effect on metals in different temperature ranges are examined. Radiation phenomena and structural changes are shown to occur in metals under irradiation in these ranges. The opportunity of self-organization processes in metals under neutron irradiation is analyzed from the point of view of metal description as an open system.

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в мире используется огромное количество ядерных энергетических установок (ЯЭУ), в которых металлические конструкции работают в условиях действия нейтронного облучения в широком диапазоне температур. Вызванное действием облучения изменение структуры металлов приводит к изменению их свойств (часто неблагоприятному). Наблюдается охрупчивание, происходит их формоизменение, за счет как радиационной ползучести, так и распухания, изменяются характеристики упругости, электросопротивление, теплопроводность и ряд других свойств. Это зачастую существенно снижает ресурс их эксплуатации и, как следствие, экономические показатели ЯЭУ, делая их в ряде случаев нерентабельными. Поэтому перед ядерной энергетикой встает задача разработки материалов, сохраняющих в условиях облучения свои свойства на уровне, обеспечивающем работоспособность используемых конструкций, что невозможно без ясного понимания закономерностей и количественного описания процессов, происходящих в металлах под облучением. Эта задача является достаточно сложной, так как изучаемые системы являются многокомпонентными сплавами с лишь приближенно воспроизводимыми составами и начальными состояниями, которые

подвергаются широкому спектру воздействий с недостаточно точно известными параметрами. Для нахождения наиболее общих путей решения поставленной задачи необходимо выяснить условия устойчивости процессов, протекающих в металлах под облучением.

Если сравнить процессы, протекающие в металлах при обычном термическом воздействии и при нейтронном облучении, то выявятся как общие черты, так и существенные различия. Например, в материале стальных оболочек тепловыделяющих элементов реактора на быстрых нейтронах БН-600 за два года эксплуатации каждый атом при образовании каскадов смещений покидает свой узел кристаллической решетки, не возвращаясь в него, около 100 раз. Чтобы при тех же температурах атом смог вылететь из своего узла и удалиться на расстояние, достаточное для того, чтобы не вернуться, ему надо термодиффузионным путем получить энергию ~ 30 эВ [1]. Нетрудно оценить вероятность реализации такого события за одну секунду, она составляет (при температуре 670 К) $\sim 10^{-172}$. Для того чтобы дождаться такого события, потребуется время $\sim 10^{165}$ лет, что значительно превышает возраст Вселенной! То есть таких событий в твердом теле без действия нейтронного облучения просто не происходит.

В то же время и без облучения атомы могут покидать свои места, перескакивая в свободный соседний узел (в случае, когда рядом окажется вакансия). Вероятность этого процесса значительно выше, например, для стали при той же температуре (670 К) она составляет $\sim 10^{-6} \text{ с}^{-1}$, так что без облучения за два года каждый атом меняет свое место в кристаллической решетке около 60 раз, однако в каждом элементарном акте перескока кристаллическая решетка сохраняется. При нейтронном облучении в каскадной области кристаллическая решетка на некоторое время разрушается, тем не менее металл в определенных условиях сохраняет свою кристаллическую структуру. Это свидетельствует о высокой способности металлических систем к самоорганизации, которая определяет возможность устойчивого воспроизводимого поведения металлических систем. В какой степени состояние, к которому будет стремиться система, и путь, по которому она будет двигаться к этому состоянию, будут зависеть от условий облучения и от начальных условий, в настоящее время изучено недостаточно полно.

Целью статьи является обзор специфического действия нейтронного облучения на металлы в различных температурных диапазонах и анализ возможности реализации в них процессов самоорганизации.

1. МЕХАНИЗМЫ ДЕЙСТВИЯ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА МЕТАЛЛЫ

При движении сквозь металл, представляющий собой кристаллический остов, погруженный в среду электронов проводимости, нейтрон практически

не взаимодействует с электронами, а взаимодействие с ядрами атомов, находящимися в решетке, носит локальный характер. В зависимости от энергии нейтрона могут реализоваться как упругое взаимодействие, так и реакции неупругого взаимодействия, каждая из которых характеризуется своим сечением рассеяния [2]. В настоящем обзоре мы не будем касаться вопросов неупругого рассеяния и протекающих при нем ядерных реакций, а ограничимся лишь процессами, к которым приводит упругое взаимодействие нейтронов с ядрами атомов ионного остова.

При упругом столкновении нейтрона с атомом возможны различные варианты развития дальнейших событий, в зависимости от энергии нейтрона, направления его движения, симметрии решетки, в которой находится атом. При переданной атому энергии, меньшей пороговой E_d (образования устойчивой пары Френкеля), которая принимает для разных металлических систем значения $\sim 20 \div 50$ эВ [3], происходит смещение атома с его последующим возвратом на прежнее место. Это смещение сопровождается возмущением движения соседних атомов, что приводит к возмущению электронной подсистемы и образованию фононов [4]. Длительное время при расчете радиационных повреждений этими эффектами пренебрегали. Ниже мы рассмотрим, какую роль они могут играть в различных случаях.

Большее внимание уделялось ситуации, при которой переданная нейтроном атому энергия превышает E_d . Здесь область переданных энергий разбивают на две: $E_d < E < 2,5E_d$ и $E \geq 2,5E_d$. В первой области образуется одна устойчивая пара Френкеля и вылетевший междоузельный атом по пути пролета (до остановки) возмущает кристаллическую решетку с теми же последствиями, что и в случае $E \leq E_d$. Во второй — первично выбитый атом способен сам выбить атомы, в результате чего образуется область смещенных атомов и вакансий, называемая каскадом смещений. Описанию этой стадии и компьютерному моделированию этой фазы процесса посвящено огромное количество работ, в частности, обзорного характера [5–8].

В каскадную область на *баллистической* стадии за очень короткое время ($\sim 10^{-14} - 10^{-13}$ с) поступает большое количество кинетической энергии, что у атомов в каскадной области приводит к неравновесному распределению энергии и к возбуждению электронной подсистемы. В этой области в течение $\sim 10^{-12} - 10^{-11}$ с распределение энергии атомов приближается к равновесному с высокой температурой. Этот период эволюции каскада обычно называется стадией термического пика [9, 10]. После этого температура каскадной области снижается до температуры окружающей кристаллической матрицы. Все это с момента образования первично выбитого атома происходит за время $10^{-11} - 10^{-10}$ с. Стадию всплеска энергии в каскадной области и последующего прихода к термодинамическому равновесию с окружением мы будем называть «стадия *термодинамической стабилизации*». В это время атомы в каскадной области даже при низкой температуре окружающей кристалличе-

ской матрицы обладают высокой подвижностью, что позволяет им сформировать наиболее энергетически выгодные конфигурации. Эти образующиеся в результате эволюции каскадов смещений поврежденные области представляют собой радиационные кластеры. Можно считать, что радиационными дефектами «первого поколения» являются образовавшиеся непосредственно в кристаллической матрице или вылетевшие в нее из каскадных областей точечные дефекты (вакансии и междоузлия) и радиационные кластеры. Дальнейшая эволюция структуры зависит от взаимодействия этих дефектов с атомами кристаллической матрицы, другими типами дефектов (дислокациями, границами зерен и т. п.) и между собой, что в значительной степени определяется элементарным составом металла, температурой, исходной структурой и рядом других параметров.

В качестве характеристики воздействия нейтронного облучения на металлы длительное время рассматривалась повреждающая доза (радиационная повреждаемость), которая определялась как количество генерированных по описанным механизмам пар Френкеля, отнесенное к количеству атомов (сна). Она определяется расчетным путем на основании измерения энергетического спектра нейтронов, найденных сечений взаимодействия нейтронов с атомами различных элементов, расчетных значений пороговых энергий смещений [4]. Последние годы все более остро ставится вопрос о том, что радиационная повреждаемость неадекватно характеризует действие облучения на металлические материалы, поскольку в зависимости от температуры и характеристик исходного состояния материала количество «выживших» на стадии термодинамической стабилизации пар Френкеля существенно различается. Для оценки радиационного воздействия облучения предлагаются другие характеристики, в частности, количество «свободных пар Френкеля», остающихся после рекомбинации в каскадах смещений и образующихся нейтронами и первично выбитыми атомами малой энергии. Эта характеристика также получается расчетным путем методами компьютерного моделирования в моделях парного взаимодействия. Однако и она определяется неоднозначно, поскольку крайне сложно создать адекватную модель, особенно для случая сплавов, описание которых представляет основной интерес, так как чистые материалы в радиационной технике почти не используются.

При анализе действия нейтронного облучения на металлы полезно обратить внимание на следующие обстоятельства.

— Исходные понятия — «точечные дефекты» стали привычными и понимаются слишком буквально. Авторы при их использовании порой забывают, что сами эти понятия являются модельными представлениями, лишь приближенно описывающими реальность. На самом деле, они используются для описания группы близкорасположенных атомов. Так, даже в случае простых металлов есть много конфигураций, в которых располагаются атомы при наличии «лишнего» атома в ячейке. Различают ряд дискретных положений,

соответствующих наиболее низкой энергии, и для некоторых из них рассчитывают энергии образования и миграции. Диффузию междоузлий описывают, используя какую-либо из них. Не учитывается возможность «смешанных состояний», когда различные конфигурации междоузлия могут переходить одна в другую, так что имеет смысл говорить либо о среднем времени нахождения в различных конфигурациях, либо описывать миграцию с использованием методов, учитывающих вероятности принимать междоузлию различные конфигурации. Еще более неопределенной является ситуация в сплавах (например, в сталях). То же относится и к вакансиям. Энергия образования вакансии в сплаве зависит от того, какой тип атома в решетке отсутствует, а энергия миграции — от того, какой атом «перепрыгивает» в вакантный узел. Энергетические затраты на перемещение вакансии существенно зависят от состава окружения атомов, в котором ей предстоит совершить перемещение.

— При описании диффузии, в частности, происходящей по механизмам, связанным с вакансиями, нельзя использовать один коэффициент диффузии. Например, при обмене местами вакансии и примеси замещения скорость процесса будет определяться вероятностью обмена (перескока), что приведет к определенному коэффициенту диффузии. При образовании комплекса «вакансия–вакансия», «вакансия–примесь внедрения» или «вакансия–примесь замещения» все будет определяться скоростью перемещения комплекса и средним временем жизни этого связанного состояния, каждый процесс будет характеризоваться своим коэффициентом диффузии.

— Поскольку энергетические характеристики точечных дефектов зависят как от типа атома, так и от окружения, в котором он находится, далеко не всегда характеристики подвижности точечных дефектов, полученные в экспериментах по электронному облучению, можно корректно использовать для случая нейтронного облучения. Действительно, при электронном облучении точечные дефекты распределены гомогенно, в то время как при каскадообразующем облучении — локальными группами; и двигаться точечному дефекту приходится в различных средах, что требует разных энергетических затрат.

2. ДЕЙСТВИЕ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА МЕТАЛЛЫ ПРИ РАЗЛИЧНЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ

Для более детального рассмотрения действия нейтронного облучения на металлические материалы удобно всю область температур облучения условно разбить на четыре диапазона, в каждом из которых проявляются специфические особенности образования радиационных дефектов и эволюции структуры. В дальнейшем при анализе мы будем придерживаться следующей терминологии:

— *криогенное облучение* — облучение, при котором междоузлия и вакансии практически не обладают подвижностью;

— *низкотемпературное облучение* — случай, когда междоузлия подвижны, а вакансии не обладают диффузионной подвижностью;

— *среднетемпературное облучение* — облучение, при котором оба вида точечных дефектов обладают подвижностью, однако подвижность вакансий не настолько высока, чтобы их концентрация не превышала термически равновесную;

— *высокотемпературное облучение* — область температур облучения, в которой подвижность точечных дефектов настолько высока, что их концентрация практически принимает термически равновесные значения.

Для материалов с различными энергиями миграции междоузлий и вакансий границы этих интервалов различны. Условно их можно привязать к гомологическим температурам и считать облучение криогенным при температурах $0 \div 0,06 T_m$, низкотемпературным при $0,06 \div 0,3 T_m$, среднетемпературным при $0,3 \div 0,6 T_m$ и высокотемпературным при $T_{irr} > 0,6 T_m$.

На самом деле в металлических сплавах, представляющих собой многокомпонентные системы, границы диапазонов размыты, и внутри температурных диапазонов можно выделить области, в которых активируются процессы диффузии отдельных компонент и взаимодействия точечных дефектов с ними. Но, опираясь на доминирующие процессы, определяющие структуру поврежденных областей, в рамках предложенного разбиения можно проследить основные черты формирования радиационных дефектов.

Рассмотрим образование и эволюцию радиационных дефектов и вызванные ими изменения микроструктуры в каждом из перечисленных диапазонов температур нейтронного облучения.

2.1. Криогенное нейтронное облучение. В научной литературе приводятся соображения о том, что при криогенном облучении, наряду с образованием пар Френкеля — вакансий и междоузлий, даже при температурах, недостаточных для диффузии точечных дефектов, возможен радиационный отжиг [11]. Это может реализоваться двумя способами: за счет подпороговых соударений, когда нейтрон (или другая частица) передает существующему междоузлию энергию меньше E_d , и за счет спонтанной рекомбинации. В работах [11, 12] приводится уравнение для увеличения концентрации точечных дефектов (пар Френкеля) с ростом повреждающей дозы:

$$\frac{dc_F}{dD} = \sigma_d(1 - 2V_0c_F) - \sigma_r c_F, \quad (1)$$

где c_F — концентрация пар Френкеля (в относительных единицах); D — повреждающая доза; σ_d — сечение взаимодействия нейтрона с атомом с передачей ему энергии больше E_d ; σ_r — сечение взаимодействия нейтрона с атомом с передачей ему энергии меньшей E_d , но достаточной для того,

чтобы вызвать рекомбинацию существующей пары Френкеля; V_0 — объем спонтанной рекомбинации.

Решение этого уравнения приводит к тому, что концентрация пар Френкеля достигает насыщения:

$$c_F = \frac{\sigma_d}{2\sigma_d V_0 + \sigma_r}. \quad (2)$$

Считая, что в соответствии с теоретическими и экспериментальными оценками, полученными в [11, 13], объем спонтанной рекомбинации составляет 50–600 атомных объемов, и пренебрегая σ_r , для концентрации насыщения получаем оценку $c_F \sim 10^{-3} - 10^{-2}$. Отметим, что полученный результат говорит о том, что структура становится дефектной, но остается достаточно однородной и каких-либо качественных ее изменений ожидать нет оснований.

Как будет показано ниже, полученный вывод противоречит экспериментальным данным и является следствием неправомерности обобщения результатов, полученных в произвольно сделанных приближениях, на реальный объект. К сожалению, такого рода «вольности» достаточно часто встречаются в работах (особенно обзорных) по физике радиационных повреждений, что способствует возникновению у людей, не занимающихся непосредственно работами в этой области, ошибочного мнения о том, что принципиальные вопросы в ней решены. На самом деле предпосылки уравнения (1) следующие:

- облучение образует пространственно однородно распределенные точечные дефекты;
- материал, на который действует облучение, однороден.

Экспериментально это соответствует электронному облучению чистого однофазного металла и не может быть перенесено на случай каскадообразующего, в частности нейтронного, облучения. Для описания поведения многокомпонентных сплавов уравнение (1) неприменимо даже в случае электронного облучения, поскольку при дефектообразовании происходит перемешивание компонент, что, в частности, влияет на величину объема спонтанной рекомбинации.

При нейтронном облучении следует учитывать, что доминирующую роль в изменении структуры при криогенном облучении играет образование каскадов смещений. Поскольку диффузионной подвижностью точечные дефекты в этом температурном диапазоне обладают только на стадии термодинамической стабилизации, эволюция каскадной области происходит в основном на этой стадии (за время $\sim 10^{-11}$ с). Из того, что энергия миграции междоузлий в металлах обычно в 4–6 раз меньше, чем энергия миграции вакансий [14], следует, что за время остывания рожденный в каскаде междоузельный атом может удалиться от места своего образования дальше, чем вакансия. Оценим расстояния, на которые точечные дефекты за время термодинамической стабилизации в среднем удаляются от места образования. При остывании ло-

кальной области зависимость температуры от времени имеет типичный вид, приведенный на рис. 1, где по оси абсцисс отложен десятичный логарифм времени остывания в секундах, а по оси ординат — температура локальной области. В качестве начальной температуры выбрано значение 1000 К, а температура окружающей кристаллической матрицы составляет 80 К. Параметр, являющийся множителем времени в показателе экспоненты, характеризующий скорость релаксации, подобран таким, чтобы температура ~ 80 К достигалась за время $\sim 10^{-11}$ с. Температура, при которой междоузлия в аустенитной стали обретают подвижность, составляет ~ 90 К [15] и достигается за время $\sim 8 \cdot 10^{-12}$ с. При этом температура ~ 500 К, при которой обретают подвижность вакансии в кластере [16], достигается за время $\sim 10^{-12}$ с. За время $8 \cdot 10^{-12}$ с междоузлие успеет совершить ~ 80 перескоков (частота Дебая $\nu_D \approx 10^{13}$ с). Так что среднее удаление междоузлия от места образования составит $\sqrt{80} \approx 9$ элементарных перескоков, что для аустенитных сталей равно ~ 3 нм. Вакансия за время остывания до 500 К сможет преодолеть расстояние, равное $\sim \sqrt{10} \approx 3$ перескокам, т. е. ~ 1 нм.

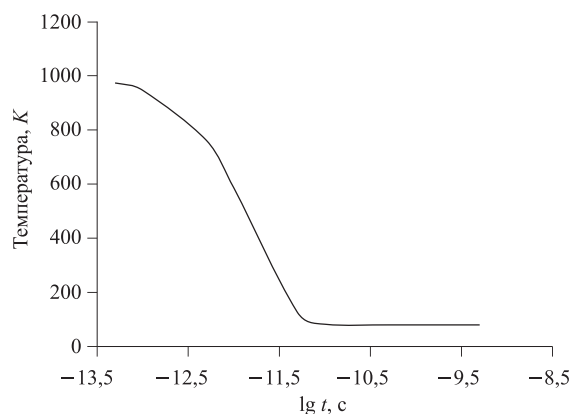


Рис. 1. Зависимость температуры каскадной области от времени на стадии термодинамической стабилизации

Приведенная оценка является качественной и позволяет представить криогенный радиационный кластер как локальную область, внутренняя часть которой содержит избыток вакансий (ядро), а периферийная область (атмосфера) обогащена междоузлиями [17]. Отжиг после действия криогенного облучения приводит к тому, что обретающие подвижность междоузлия сначала частично рекомбинируют с вакансиями в ядре своего кластера, а затем, диффундируя по кристаллической матрице, рекомбинируют с вакансиями других кластеров, одиночными вакансиями, а также уходят на другие стоки.

Схематически вид криогенного радиационного кластера при образовании и после отжига до комнатной температуры приведен на рис. 2. Условно та часть междоузлий, которые рекомбинируют с вакансиями в своем кластере, объединена в промежуточном слое для упрощения расчета характеристик процессов, происходящих при отжиге до комнатной температуры в образцах, облученных при температуре жидкого азота.

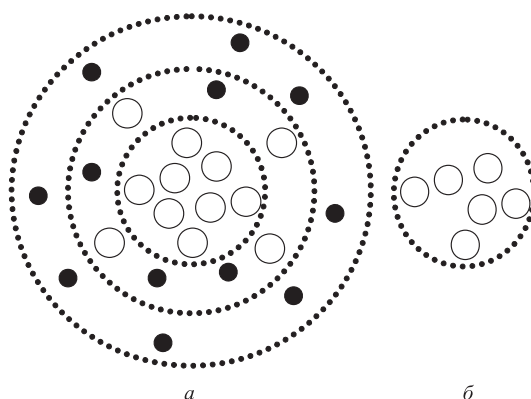


Рис. 2. Схематический вид криогенных радиационных кластеров в металлах, образованных при криогенном облучении (а) и после отжига до комнатной температуры (б): ● — междоузельный атом; ○ — вакансия

Такая модель удовлетворительно количественно описывает изменения размеров, физических и механических свойств образцов аустенитных сталей, облученных при температуре жидкого азота, которые даже при малых повреждающих дозах ($\leq 0,005$ сна, сна — смещение на атом) оказываются значительными. На рис. 3 приведена дозовая зависимость изменения условного предела текучести при 77 К стали 0Х20Н16АГ6, облученной при температуре кипения жидкого азота [15]. Экспериментальные данные представлены точками, линиями показаны результаты расчета упрочнения, полученные в модели Орована в предположении, что криогенные радиационные кластеры имеют характеристики, указанные в табл. 1 [18].

Эти значения были частично подтверждены прямыми электронно-микроскопическими исследованиями, проведенными на образцах аустенитной стали Х16Н15М3Т1, облученных при температуре 78–80 К, после их отогрева до комнатной температуры. Изображение, полученное в режиме двухлучевой дифракции («black&white»-контраст), на котором кластеры имеют вид «лунок», освещенных вдоль вектора g и имеющих светлую и темную (теневую) части, приведено на рис. 4, а [19]. Гистограмма распределения размеров кластера показана на рис. 4, б.

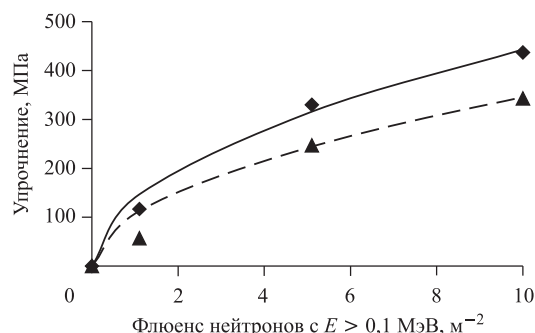


Рис. 3. Зависимость условного предела текучести при 77 К стали 0Х20Н16АГ6, облученной при температуре кипения жидкого азота, от дозы нейтронного облучения. Эксперимент: \blacklozenge — без отжига; \blacktriangle — после отжига; теоретический расчет: сплошная кривая — без отжига; штриховая — после отжига

Таблица 1. Расчетные характеристики криогенных радиационных кластеров (КРК), образующихся в аустенитной стали X16H15M3T1 при криогенном нейтронном облучении

Вид РК	Область, характеристика	Размер, нм	n_v	n_i	$c_v, \%$	$c_i, \%$
После облучения при 77 К	Ядро, диаметр	4,5	370		9,4	
	Нижняя атмосфера, высота	1,1	100	100	1,2	1,2
	Вся атмосфера, высота	2,6		470		1,4
После отогрева до 300 К	Диаметр	4,5	250		6,4	

Примечание. n_v — количество вакансий; n_i — количество междоузлий; c_v — концентрация вакансий; c_i — концентрация междоузлий в различных областях кластера.

Эти же характеристики радиационных кластеров позволяют в рамках двухкомпонентной модели удовлетворительно количественно описать изменения характеристик упругости и электросопротивления, а также изменения размеров облученных образцов при отогреве, связанное с рекомбинацией обретающих подвижность междоузлий с вакансиями. Двухкомпонентная модель рассматривает радиационные кластеры как «частицы второй компоненты», обладающие отличными от кристаллической матрицы характеристиками упругости и электросопротивления. В качестве иллюстрации на рис. 5 приведена дозовая зависимость (расчетные и экспериментальные значения) относительного изменения модуля Юнга стали 0Х20Н16АГ6, облученной при температуре 78–80 К [15].

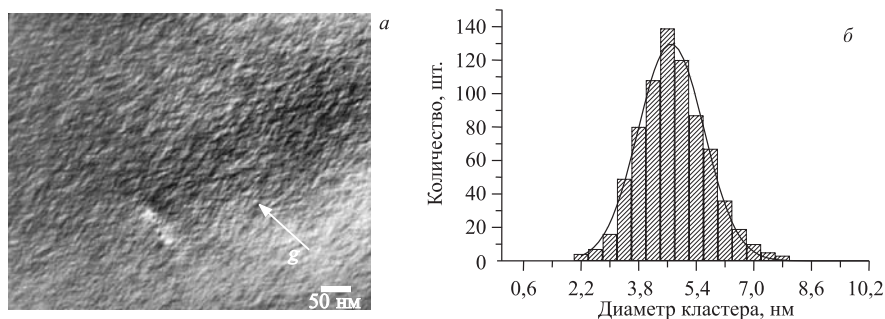


Рис. 4. Криогенные радиационные кластеры в образце стали X16H15M3T1, облученном при температуре 78–80 К до дозы 0,0016 сна, после отогрева до комнатной температуры: *а*) электронно-микроскопическое изображение кластеров; *б*) гистограмма распределения их по размерам; заштрихованная область — экспериментальные данные; сплошная кривая — гауссовское распределение

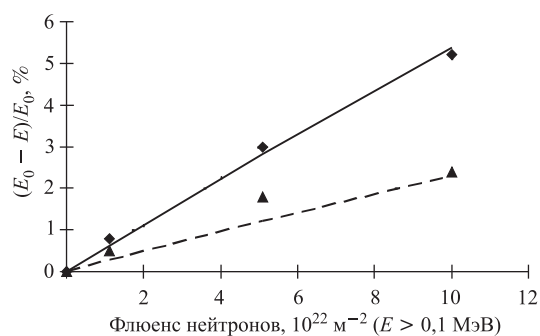


Рис. 5. Зависимость относительного изменения модуля Юнга стали 03X20H6AG6 от флюенса нейтронного облучения при 78 К. Эксперимент: \blacklozenge — без отогрева; \blacktriangle — после отжига; теоретический расчет: сплошная кривая — без отогрева; штриховая — после отжига

Удовлетворительное количественное описание изменений размеров, физических и механических свойств металлов в рамках представленной выше модели при криогенном нейтронном облучении до малых повреждающих доз дает основание считать ее адекватно описывающей процессы, реально происходящие при облучении и отжиге.

Ситуация усложняется, когда доза облучения возрастает до значений, при которых вероятность перекрытия каскадных областей становится значительной. Развитие нового каскада в области, занятой уже существующим каскадом, в значительной степени зависит от того, в какую часть и какой кон-

фигурации каскада попадет взаимодействующий с первично выбитым атомом нейтрон. Число вариантов таких взаимодействий практически неограниченно. Поэтому решить эту задачу классическим методом компьютерного моделирования вряд ли возможно. Предпринимались попытки учесть стадию, на которой первичные перекрытия начинают реализовываться, с использованием модели усредненных одиночных кластеров, без учета следующих этапов перекрытий [18]. Такой подход позволяет продвинуться в область небольших увеличений доз, но кардинальное решение проблемы описания процессов при облучении до доз ~ 1 сна не достигается.

Не решая задачи детального описания поведения системы при многократно производимых в одних и тех же областях радиационных повреждениях, можно отметить несколько аспектов происходящих при этом структурных изменений. В каждом акте вывода области из равновесного состояния система будет стремиться в состояние, близкое к исходному, в том случае, если энергии различных конфигураций, содержащих дефекты, не разделены энергетическими барьерами. В противном случае будут возникать устойчивые неупорядоченные конфигурации. Такая ситуация реализуется, в частности, в упорядоченных сплавах, представляющих собой систему разноразмерных атомов. Наличие вакансий в такой системе вызывает сдвиг множества атомов, так что энергия образования вакансии и энергия активации ее движения становятся не вполне определенными понятиями. Когда в локальной области присутствует несколько близко расположенных вакансий, может сформироваться несколько различных конфигураций сильно смещенных атомов, область становится, по существу, аморфной. Наряду с областями, сохранившими кристаллическую структуру, образуются «островки» аморфного состояния, причем объемная доля последних с ростом повреждающей дозы увеличивается. Это явление, называемое аморфизацией, наблюдалось экспериментально [20]. Наличие аморфной фазы фиксировалось методами нейтронографии, малоуглового нейтронного рассеяния и электронной микроскопии. На рис. 6 приведена нейтронограмма, полученная на необлученном образце никелида титана и после нейтронного облучения при температуре кипения жидкого азота до флюенса быстрых нейтронов (с $E > 0,1$ МэВ) $6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$, иллюстрирующая уменьшение интенсивности рефлексов, кристаллической фазы и увеличение диффузного рассеяния аморфизованными областями [21].

Таким образом, при криогенном нейтронном облучении до высоких повреждающих доз возможны два варианта развития событий:

— в областях перекрытия каскадов смещений на стадии термодинамической стабилизации в центре формируется радиационный кластер, а на периферии восстанавливается кристаллическая структура;

— при перекрытиях каскадных областей кристаллическая структура на периферии не восстанавливается, а формируется аморфное состояние

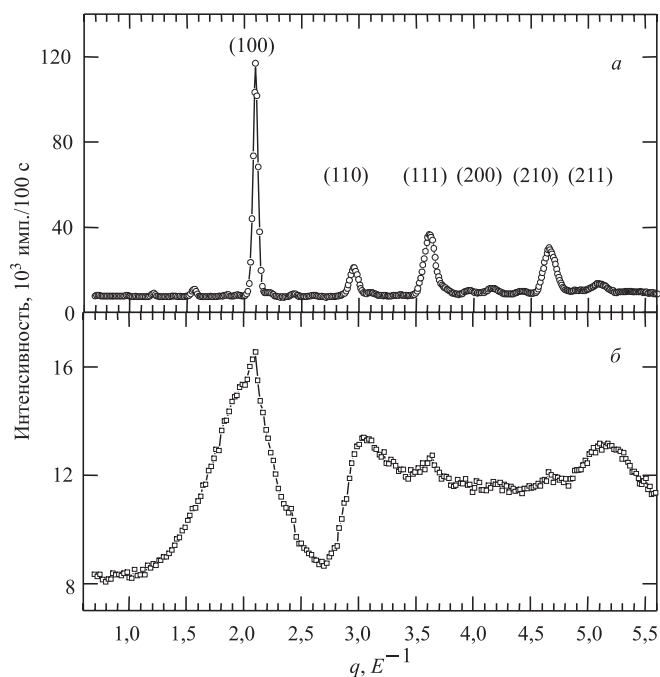


Рис. 6. Картины нейтронной дифракции поликристалла никелида титана до (а) и после (б) облучения при 340 К флюенсом $6 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$. Температура измерений равна 293 К

(«аморфный» кластер). С ростом повреждающей дозы объемная доля этих кластеров увеличивается.

В первом случае при достижении некоторой дозы должна сформироваться динамически равновесная структура, содержащая вакансионные кластеры определенной конфигурации и постоянной концентрации. Во втором случае кристалл при увеличении дозы должен асимптотически переходить в аморфное состояние.

2.2. Низкотемпературное нейтронное облучение. Когда температура обеспечивает подвижность междоузлий, но не позволяет осуществляться массовому перемещению вакансий по кристаллу, после завершения стадии термодинамической стабилизации междоузельные атомы продолжают диффундировать. При этом часть из них поглощается кластерами, где происходит их рекомбинация с вакансиями, часть рекомбинирует с одиночными вакансиями, растворенными в кристаллической матрице, часть уходит на другие стоки (дислокации, границы зерен и пр.). Согласно статистической термо-

динамике твердого тела [22] среднее «время жизни» междоузлия, за которое междоузельный атом уходит на стоки, может быть выражено следующим образом:

$$\tau = \left(\frac{s}{a}\right)^2 \frac{6}{\nu} \exp\left(\frac{E_{mi}}{kT}\right), \quad (3)$$

где τ — среднее время, за которое междоузлие достигает стоков; s — диффузионный путь, выражаемый через характеристики стоков; a — период решетки; ν — частота Дебая; E_{mi} — энергия миграции междоузлия; k — постоянная Больцмана; T — температура.

Одновременно во вновь образующихся каскадах генерируются новые междоузлия. В результате этих процессов изменение концентрации междоузлий при нейтронном облучении будет определяться уравнением вида

$$dn_i = \alpha G dt - \frac{n_i}{\tau} dt, \quad (4)$$

где G — скорость генерации точечных дефектов; n_i — концентрация междоузлий в относительных единицах; t — время; α — коэффициент, показывающий, какая доля от образованных в каскаде пар Френкеля остается после окончания стадии термодинамической стабилизации (каскадная эффективность).

Решение этого уравнения [16]:

$$n_i = \alpha G \tau (1 - \exp(-t/\tau)). \quad (5)$$

Множитель, стоящий перед скобкой, имеет смысл квазиравновесной (равновесной в условиях облучения) концентрации междоузлий. Оценки, выполненные для случая облучения аустенитных сталей в реакторе при комнатной температуре, показывают, что квазиравновесная концентрация междоузлий устанавливается за время $\sim 0,1$ с и далее во время облучения практически не меняется (если не изменяется количество стоков).

Попадающие в кластер и рекомбинирующие там с вакансиями междоузлия приводят к истощению, а затем и к полному уничтожению кластера. Интересно отметить, что этот процесс происходит практически без уменьшения диаметра кластера, а лишь за счет уменьшения концентрации вакансий в нем. Действительно, если считать, что начальная концентрация вакансий в кластере ω , то, попав в первый наружный атомный слой поверхности кластера, вероятность междоузлию иметь хотя бы одним ближайшим соседом из четырех вакансию и рекомбинировать с ней в этом слое, равная ω_1 , будет определяться соотношением

$$\omega_1 = 1 - (1 - \omega)^4, \quad (6)$$

а вероятность пройти во внутренние слои и рекомбинировать там равна соответственно

$$\omega_2 = (1 - \omega)^4. \quad (7)$$

Выражение (6) характеризует уменьшение концентрации вакансий в наружном слое кластера, а выражение (7) — во внутренних слоях. Для концентрации вакансий в кластере $\omega = 0,2$ вероятность рекомбинации междоузлия с вакансией в наружном слое будет равна 59%. При $\omega = 0,1$ в наружном слое рекомбинируют в среднем 34% попавших в кластер междоузлий, а при $\omega = 0,01$ — всего 4%. Здесь и далее оценка характеристик проведена для ГЦК-металла, то же принципиально может быть сделано и для других кристаллических структур, так что приведенные рассуждения можно считать достаточно общими. Таким образом, по мере истощения наружного слоя интенсивность рекомбинации в нем уменьшается, т. е. *кластер будет таять, не изменяя своего диаметра*, концентрация вакансий в нем будет уменьшаться до значения концентрации вакансий в матрице.

Если принять приближение, что все попадающие в кластер междоузлия рекомбинируют, то можно оценить среднее время жизни кластера. С использованием формализма статистической термодинамики твердого тела [22] выражение для потока междоузлий во все кластеры имеет вид

$$I_c = \frac{2\pi\xi_c\beta_c d_c^2 a n_i n_c}{3a^3} \nu \exp\left(-\frac{E_{mi}}{kT}\right), \quad (8)$$

где n_i — средняя по кристаллу квазиравновесная концентрация междоузлий; ξ_c — коэффициент, показывающий, во сколько раз концентрация междоузлий в прилежащем к кластеру атомном слое отличается от средней по кристаллу концентрации, поскольку вблизи каждого дефекта, способного быть источником или стоком точечных дефектов, есть свой концентрационный профиль распределения междоузлий; β_c — коэффициент упругого взаимодействия междоузлия с кластером, который может быть выражен из энергетических характеристик взаимодействия или из силовых характеристик действия на междоузлие упругих полей кластера; n_c — концентрация кластеров; d_c — средний диаметр кластера; a — постоянная решетки; ν — частота Дебая; E_{mi} — энергия миграции междоузлий; k — постоянная Больцмана; T — температура.

С использованием этого выражения можно получить оценку среднего времени жизни кластера [16]

$$t_c = \frac{m_0(\pi n_c d_c^2 + \mu S)a^3}{4\pi d_c^2 \alpha G}, \quad (9)$$

где m_0 — среднее количество вакансий, оставшихся в кластере после окончания стадии термодинамической стабилизации; S — эффективная площадь

стоков, которыми являются дислокации и границы зерен; μ — коэффициент, характеризующий соотношение характеристик взаимодействия междуузлий с кластерами и с остальными стоками.

Это позволяет получить уравнение для изменения концентрации кластеров при низкотемпературном облучении [16] (без учета перекрытия каскадных областей):

$$dn_c = g dt - \frac{n_c}{t_c} dt, \quad (10)$$

которое допускает аналитическое решение

$$n_c = \gamma \left(\sqrt{1 + \frac{2g}{\gamma} t} - 1 \right), \quad (11)$$

где $g = \frac{4\alpha G}{a^3 m_0}$; $\gamma = \frac{\mu S}{\pi d_c^2}$.

Приведенные выше модельные представления позволяют описать эволюцию кластеров при низкотемпературном облучении на стадии, когда перекрытия каскадных областей пренебрежимо редки. На рис. 7, а показаны результаты расчета зависимости концентрации кластеров от времени в образцах стали X16H15M2ГТФР (ЧС-68), подвергшихся на финальной стадии термообработки 20 % холодной деформации, и стали X16H15M2 (ЭИ-844) в аустенизированном состоянии. Образцы стали ЧС-68 облучались в реакторе при скорости набора дозы $G = 2,1 \cdot 10^{-7}$ сна/с, а стали ЭИ-844 — при $G = 1,0 \cdot 10^{-6}$ сна/с при температуре ~ 310 К. На рис. 7, б показана временная зависимость средней концентрации вакансий в кластерах в этих сталях (усреднение проведено по ансамблю кластеров, присутствующих в материале в момент времени t). Эти данные позволяют рассчитать, какие изменения должны произойти при растворении кластеров во время проводимого после облучения отжига. Результаты расчета удовлетворительно совпадают с экспериментально измеренными в дилатометрическом эксперименте изменениями длины образцов [16] (табл. 2).

Таблица 2. Относительные изменения линейных размеров образцов из сталей ЧС-68 и ЭИ-844, облученных соответственно до повреждающих доз 0,0008 и 0,0022 сна при температуре ~ 310 К при отжиге кластеров

Материал	Повреждающая доза, сна	Скорость повреждений, сна/с	Относительное изменение размеров, %	
			Расчетное	Экспериментальное
ЧС-68	0,0008	$2,1 \cdot 10^{-7}$	-0,011	-0,012
ЭИ-844	0,0022	$0,7 \cdot 10^{-7}$	-0,008	-0,010

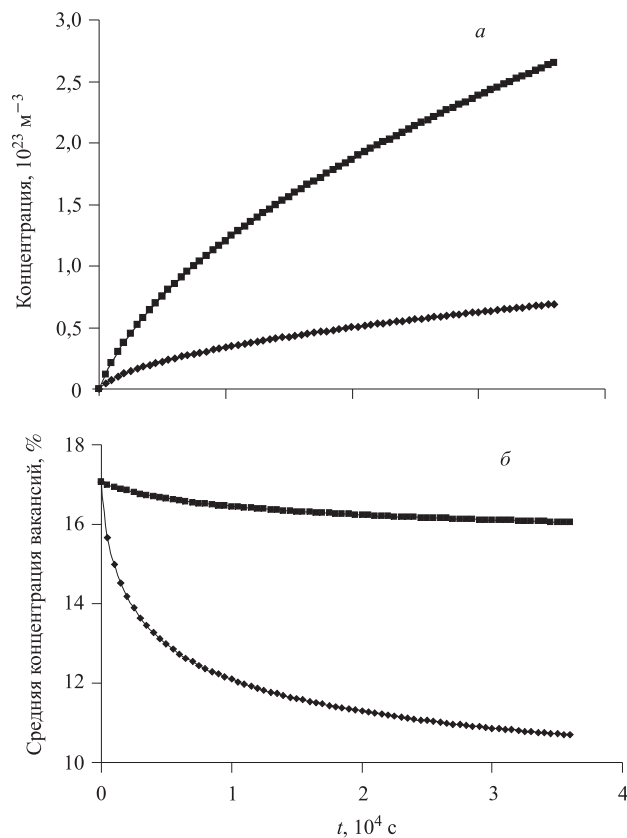


Рис. 7. Зависимость характеристик вакансионных кластеров, образующихся в образцах стали ЭИ-844 (◆) и ЧС-68 (■), от времени нейтронного облучения при температуре ~ 310 К: а) концентрация радиационных кластеров; б) средняя концентрация вакансий в кластере

Кроме вышеописанных явлений при увеличении дозы низкотемпературного нейтронного облучения происходит образование междоузельных дислокационных петель. В качестве характеристики их накопления можно взять произведение их концентрации на протяженность границ петель:

$$I_l = 2\pi \int f(r_l) r_l c_l dr_l, \quad (12)$$

где $f(r_l)$ — функция распределения размеров петель; r_l — радиус петли; c_l — интегральная концентрация петель. Этот параметр характеризует петли как сток для междоузлий, а также описывает влияние петель на эксперимен-

тально измеряемые характеристики рентгенограмм. Такое описание требует нахождения распределения размеров петель, однако экспериментальных работ по определению таких характеристик методами электронной микроскопии практически не встречается в связи с технической сложностью и большой трудоемкостью таких исследований. Обычно пользуются усредненным описанием, полагая

$$I_l = 2\pi r_l c_l. \quad (13)$$

Учитывая вышеприведенные соображения о том, что квазиравновесная концентрация междоузлий достигается за достаточно короткое время, можно использовать понятие средней скорости миграции междоузлий и получить, что радиус образовавшейся дислокационной петли растет линейно со временем:

$$r_l = \frac{4\pi s \alpha G}{3} t, \quad (14)$$

где s — диффузионный путь междоузлий; α — каскадная эффективность; G — радиационная повреждаемость, и в качестве радиуса ядра дислокации принят двойной период решетки.

На самом деле, если обратиться к более точному уравнению (12), видно, что I_l должно расти быстрее, так как из-за образования новых петель растет их концентрация, и максимум функции распределения петель по размерам сдвигается в сторону больших радиусов.

Увеличение повреждающей дозы будет приводить к перекрытию каскадных областей, как и в случае криогенного нейтронного облучения. Также возможны варианты формирования либо динамически равновесной структуры, либо аморфизации, в зависимости от состава и исходной структуры сплава. В связи с тем, что образующийся при низкотемпературном облучении кластер имеет меньший размер, чем при криогенном, такие состояния должны достигаться при более высоких дозах. Так, экспериментально было подтверждено, что аморфизация в упорядочивающемся сплаве никелида титана начинается при нейтронном облучении при комнатной температуре при дозе на порядок большей, чем при облучении при температуре кипения жидкого азота [20]. Кроме того, когда концентрации петель и кластеров увеличиваются настолько, что их взаимодействия друг с другом становятся ощутимыми, можно ожидать более сложных процессов. В настоящее время этот дозотемпературный диапазон изучен недостаточно.

2.3. Среднетемпературное нейтронное облучение. В этом диапазоне температур облучения происходят процессы более многообразные и сложные для количественного описания. Если двигаться по температурной шкале в сторону повышения температуры, то сначала подвижность обретают одиночные вакансии, вылетевшие из каскадных областей на стадии термодинамической стабилизации. Они диффундируют по кристаллу, частично рекомбинируют с

междоузлиями, частично выходят на стоки (к которым относятся и кластеры) или объединяются в комплексы. Испарением вакансий из кластеров можно пренебречь до тех пор, пока температура не обеспечит достаточно большой вероятности иметь энергию ($E_{mv} + E_{fv}$), где E_{fv} — энергия связи вакансии в кластере.

Из-за того, что концентрация вакансий при нейтронном облучении значительно превышает термически равновесную, в сплавах активизируются процессы миграции примесей замещения. Это не только ускоряет диффузионные процессы, но и меняет соотношение между диффузионными потоками различных элементов, что приводит к реализации широкого круга сегрегационных явлений, таких как расслоение твердого раствора, образование сегрегационных профилей, ускоренное выделение вторых фаз, в частности, может происходить формирование термодинамически неравновесных (радиационно-индуцированных) фаз, которые без облучения не образуются. В рамках данной работы мы не будем подробно рассматривать этот обширный круг явлений, за исключением тех случаев, когда примеси оказывают существенное влияние на образование и эволюцию собственных радиационных дефектов, которым и будет уделено основное внимание.

Рассмотрим два температурных интервала среднетемпературного диапазона нейтронного облучения: температуры, при которых испарение вакансий из кластеров пренебрежимо мало ($T \leq T_c$), и температуры, при которых испускание вакансий кластерами достаточно интенсивно, так что не учитывать его нельзя ($T > T_c$).

В первом случае ($T \leq T_c$) отличие от низкотемпературного облучения может быть описано следующим образом. При образовании кластера часть вакансий уходит в твердый раствор, так что коэффициент каскадной эффективности α может быть представлен в виде суммы двух частей: α_1 — описывает долю вакансий, остающихся в каскаде, и α_2 — показывает долю вакансий, вылетевших в матрицу. Оба коэффициента зависят от температуры, первый — уменьшается с ростом температуры облучения, второй — увеличивается. Средние времена жизни вакансии τ_i и междоузлия τ_v будут определяться выражениями, аналогичными (3):

$$\tau_i = \left(\frac{s_i}{a}\right)^2 \frac{6}{\nu} \exp\left(\frac{E_{mi}}{kT}\right), \quad (15)$$

$$\tau_v = \left(\frac{s_v}{a}\right)^2 \frac{6}{\nu} \exp\left(\frac{E_{mv}}{kT}\right), \quad (16)$$

где E_{mv} , E_{mi} — энергии миграции вакансий и междоузлий соответственно; s_i , s_v — диффузионные пути для междоузлий и вакансий соответственно, а остальные обозначения те же, что и в формуле (3). Оценки показывают, что

через некоторое время основным стоком для точечных дефектов будет рекомбинация в матрице. При этом простого количественного описания накопления точечных дефектов получить не удастся. Качественно понятно, что увеличение концентрации вакансий в матрице приводит к уменьшению квазиравновесной концентрации междоузлий. Это увеличивает время жизни кластеров, а также создает условия для формирования петель обоих типов и образования дефектов упаковки. При накоплении кластеров становятся вероятными их перекрытия. Причем в каждом акте наложения каскада смещений на кластер достаточно подвижные вакансии перестраиваются в выгодные энергетические конфигурации, образуя либо плоские дефекты — дислокационные петли вакансионного типа, либо дефекты, называемые в литературе «черными точками», природа и структура которых до сих пор не установлена. В ряде случаев наблюдаются тетраэдрические дефекты упаковки [23–25], которые удавалось получить и без облучения при больших холодных пластических деформациях [26].

В температурном диапазоне $T > T_c$ эволюция радиационных дефектов проходит по-иному. Из-за испарения вакансий из кластеров происходит диссоциация последних. Их остается незначительное количество, которое уменьшается с ростом температуры облучения, и на коротком температурном отрезке их количество становится пренебрежимо малым. Практически все выжившие в каскадах точечные дефекты вылетают в матрицу, образуя пересыщенный раствор как вакансий, так и междоузлий. Концентрация вакансий растет до такой степени, что при создании определенных условий начинается образование вакансионных пор. Отметим, что распухание начинается тогда, когда перестают образовываться вакансионные кластеры и являющиеся этапом их развития «черные точки». Возможно, они являются центрами образования вакансионных пор. Отмечено, что при определенных условиях тетраэдрические дефекты упаковки могут трансформироваться в поры [27].

Радиационное распухание, обнаруженное в 1966 г. [28], практически сразу привлекло к себе внимание исследователей как яркое физическое явление, имеющее к тому же большое прикладное значение. В течение примерно 20 лет было выполнено огромное количество работ в этой области, в частности, обзорного характера, в которых анализировались основные черты и закономерности протекания радиационного распухания [29–32]. В процессе распухания были условно выделены три стадии: инкубационный период распухания, стадия неустановившегося распухания и стадия установившегося распухания (рис. 8) [29].

Инкубационный период распухания — это время, в течение которого образуются зародыши пор, но при этом само распухание остается еще пренебрежимо малым. В качестве инкубационной дозы принимают значение повреждающей дозы, при котором распухание не превышает некоторой пороговой

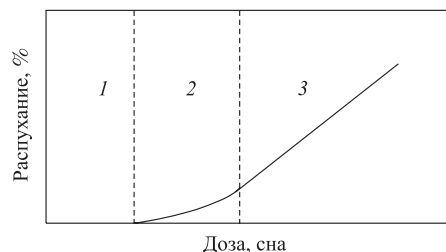


Рис. 8. Схематическое изображение дозовой зависимости распухания аустенитных сталей: 1 — инкубационный период распухания; 2 — стадия неустановившегося распухания; 3 — стадия установившегося распухания

величины (обычно это 1 или 0,1 %). Ситуация аналогична введению условного предела текучести в физике прочности и пластичности.

На стадии неустановившегося распухания происходит рост пор, образовавшихся в инкубационный период, и продолжается образование новых зародышей пор. Распухание при этом идет с возрастающей скоростью.

На стадии установившегося распухания скорость его стабилизируется и остается постоянной с увеличением дозы нейтронного облучения. По поводу величины дозовой скорости распухания на этой стадии существуют различные мнения. Одним из распространенных мнений является то, что она принимает значение 1%/сна [33]. В то же время есть экспериментальные данные, показывающие, что в разных ситуациях скорости принимают различные значения [34–36].

Объяснение распухания как процесса, при котором достижение концентрацией вакансий определенного пересыщения приводит к образованию пор, подобно тому, как в перегретой жидкости образуются пузырьки пара, носит качественный характер. Существуют количественные модели отдельных эпизодов этого процесса, но в целом модели распухания, способной количественно описать это явление, не создано. Последнее связано со сложностью процесса и влиянием на него большого количества параметров, таких как скорость набора дозы, температура нейтронного облучения, химический состав сплава, характеристики его исходной структуры и др. Качественный уровень понимания позволяет определить направления, в которых надо проводить поиск путей подавления распухания, но дает односторонний взгляд на явление, не позволяющий оценить всех последствий предлагаемых мероприятий. Так, например, одним из общепринятых подходов к повышению сопротивления распуханию является создание большого количества стоков для точечных дефектов. Этого достигают, в частности, финальной холодной деформацией сталей, позволяющей получить высокую плотность дислокаций [31]. Однако, во-первых, при действии высокодозного облучения дислокационная структура претерпевает серьезные изменения, а во-вторых, в ряде случаев (в ГЦК-металлах) дислокации являются преференциальными стоками, поглощающими больше междоузлий, чем вакансий, что способствует повышению концентрации последних. Кроме того, существенное влияние имеет

ускоренная диффузия ряда элементов вдоль дислокационных трубок, что, как будет показано ниже, может оказать ускоряющее влияние на распухание. Отсутствие количественного описания этих процессов затрудняет нахождение оптимальных решений, в данном случае — способа и величины холодной деформации.

Для прогнозирования изменения распухания со временем (или дозой нейтронного облучения) на основании полученных при его измерении экспериментальных данных используются не модельные представления, а феноменологические уравнения. Их предсказательная сила невелика, особенно при изменении условий облучения (температуры, скорости набора дозы, типа реактора, состава материала и др.). Такое положение дел нельзя считать удовлетворительным, что обосновывает целесообразность развития работ по созданию количественных моделей распухания.

Описание процесса распухания уместно начать с формулировки условия роста поры. Пусть у нас имеется зародыш поры, представляющий собой объемную неоднородность, которую можно моделировать как маленькую пору радиуса r (вопрос о механизмах формирования таких зародышей будет рассмотрен позже). Возможны следующие варианты взаимодействия точечных дефектов с порой.

— Вакансии могут поступать в пору из кристаллической матрицы, при этом поверхность поры и поверхностная энергия увеличится, а энергия матрицы уменьшится на энергию образования вакансии.

— Вакансии могут вылетать из поры, уменьшая ее размеры, при этом изменение энергии системы будет противоположно по знаку вышеописанному процессу.

— В пору из матрицы могут поступать междоузлия, что также приведет к уменьшению ее размеров. Энергетический выигрыш при этом будет складываться из уменьшения поверхностной энергии поры и уменьшения энергии матрицы на величину, равную энергии образования междоузлия.

Процесс вылета из поры междоузлия не учитывается, поскольку вероятность его в рассматриваемом температурном диапазоне пренебрежимо мала. Учитывая энергетические характеристики каждого из вышеописанных процессов, можно рассчитать вероятности соответствующих перескоков и потоки: N_{v+} — вакансий в пору, N_{v-} — вакансий из поры, N_i — междоузлий в пору. Условие роста поры:

$$\frac{N_{v+}}{N_{v-} + N_i} > 1. \quad (17)$$

Количественные оценки, выполненные для γ -Fe, моделирующего аустенитные стали, позволили в пренебрежении членами второго порядка малости записать

условие (17) в виде [37]

$$c_v > \exp\left(\frac{U(r)}{kT}\right) + c_i \exp\left(\frac{E_{mv} - E_{mi}}{kT}\right), \quad (18)$$

где

$$U(r) = 2\Omega\tau/r - E_v, \quad (19)$$

Ω — объем, приходящийся на 1 атом; τ — коэффициент поверхностного натяжения; E_{nv}, E_{mi} — энергии миграции вакансий и междоузлий соответственно; E_v — энергия образования вакансии; r — радиус зародыша поры; c_v, c_i — концентрация вакансий и междоузлий у поверхности поры.

Если знак неравенства в (18) заменить знаком равенства, то полученное уравнение можно использовать для нахождения пороговой концентрации вакансий, при достижении которой начинается рост зародышей пор радиуса r , либо как уравнение для нахождения критического размера зародыша, который будет расти при заданной концентрации вакансий. Инкубационный период — это стадия процесса, на которой формируются условия выполнения неравенства (18). При нейтронном облучении точечные дефекты генерируются и уходят на стоки. Скорость генерации постоянна, а скорость ухода точечных дефектов пропорциональна их концентрации. Поэтому через некоторое время достигается динамическое равновесие, так что концентрация точечных дефектов перестает меняться. Как было показано выше, у междоузлий квазиравновесная концентрация достигается за короткое время, менее 1 с, и далее она медленно уменьшается из-за увеличения количества стоков, в первую очередь, концентрации вакансий, которая меняется значительно медленнее. В зависимости от температуры облучения, скорости набора дозы и характеристик материала возможны два варианта развития событий.

— Условие (18) реализуется раньше, чем достигается квазиравновесная концентрация вакансий, т. е. зародыши пор уже существуют или образуются за короткое время. Тогда длительность инкубационного периода определяется длительностью достижения концентрацией вакансий значения, определяемого (18). В этом случае эффективным методом замедления распухания является увеличение количества стоков для вакансий.

— Квазиравновесная концентрация вакансий достигнута, а условие (18) еще не выполнено. Тогда распухания не будет происходить до тех пор, пока не вырастут зародыши необходимого размера. Длительность инкубационного периода определяется процессом формирования зародышей. В этом случае эффективным методом задержки начала распухания является замедление скорости роста зародышей пор.

Поскольку в общем случае система уравнений, описывающих изменение концентрации точечных дефектов, достаточно сложная, оценим квазиравновесную концентрацию междоузлий и вакансий в приближении, когда дефекты

исчезают только при рекомбинации в матрице, а уход на все другие стоки не учитывается. Как будет показано ниже, такое приближение имеет смысл. В рамках статистической термодинамики твердого тела можно показать, что для ГЦК-металлов суммарное количество рекомбинирующих в единицу времени в единице объема пар точечных дефектов равно

$$J = \frac{4\pi\beta^2\nu c_i c_v}{3a^3} \left(\exp\left(-\frac{E_{mi}}{kT}\right) + \exp\left(-\frac{E_{mv}}{kT}\right) \right), \quad (20)$$

где βa — радиус спонтанной рекомбинации; a — период решетки; ν — частота Дебая, а остальные обозначения те же, что и в формуле (19).

Такая же интенсивность ухода вакансий получилась бы, если их поглощение осуществлялось бы на плоских стоках с эквивалентной удельной поверхностью

$$S_v = \frac{4\pi\beta^2 c_i}{a} \left(\exp\left(\frac{E_{mv} - E_{mi}}{kT}\right) + 1 \right), \quad (21)$$

а для междоузлий — с эквивалентной поверхностью

$$S_i = \frac{4\pi\beta^2 c_v}{a} \left(\exp\left(\frac{E_{mi} - E_{mv}}{kT}\right) + 1 \right). \quad (22)$$

Используя связь между диффузионным путем s и интегральной удельной площадью стоков S , $s = \frac{3}{2S}$, и уравнения (4), (15) и (16), можно получить систему дифференциальных уравнений для зависимости концентрации вакансий и междоузлий от времени:

$$dc_i = (\alpha G - f_i c_i c_v^2) dt, \quad (23)$$

$$dc_v = (\alpha G - f_v c_v c_i^2) dt, \quad (24)$$

где α — каскадная эффективность; G — скорость набора повреждающей дозы и введены обозначения

$$f_i = \frac{8\nu\pi^2\beta^4}{3} \left(\exp\left(\frac{E_{mi} - E_{mv}}{kT}\right) + 1 \right)^2 \exp\left(-\frac{E_{mi}}{kT}\right), \quad (25)$$

$$f_v = \frac{8\nu\pi^2\beta^4}{3} \left(\exp\left(\frac{E_{mv} - E_{mi}}{kT}\right) + 1 \right)^2 \exp\left(-\frac{E_{mv}}{kT}\right). \quad (26)$$

Учитывая значительно более низкую подвижность вакансий при рассмотрении подсистемы междоузлий, можно считать концентрацию вакансий постоянной.

Квазиравновесная концентрация междоузлий всегда будет успевать подстраиваться под медленно изменяющую свои характеристики подсистему вакансий. В этом приближении уравнение (23) имеет решение

$$c_i = \frac{\alpha G}{f_i c_v^2} (1 - \exp(-f_i c_v^2 t)), \quad (27)$$

а уравнение (24) примет вид

$$dc_v = \alpha G \left(1 - \frac{\alpha G f_v (1 - \exp(-f_i c_v^2 t))^2}{f_i^2 c_v^3} \right) dt. \quad (28)$$

Не решая это уравнение, можно получить квазиравновесную концентрацию вакансий из тех соображений, что производная от концентрации вакансий по времени t обращается в нуль при $t \rightarrow \infty$. Это приводит к выражению для квазиравновесной концентрации вакансий

$$c_v = \left(\frac{\alpha G f_v}{f_i^2} \right)^{1/3}. \quad (29)$$

Пренебрегая в выражении (29) членами, имеющими по сравнению с остальными более высокий порядок малости, получаем окончательно

$$c_v = \left(\frac{3\alpha G}{8\nu\pi^2\beta^4} \right)^{1/3} \exp\left(\frac{E_{mv}}{3kT}\right). \quad (30)$$

В табл. 3 приведены эффективные площади стоков для вакансий S_v и междоузлий S_i и их квазиравновесные концентрации c_v и c_i , рассчитанные для промышленной стали 06Х16Н15М2ГТФР, используемой в качестве труб — оболочек твэлов реакторов на быстрых нейтронах. Для каскадной эффективности выбрано значение 0,3 [37], радиус спонтанной рекомбинации брался равным двум периодам решетки, скорость набора дозы равнялась $1,6 \cdot 10^{-6}$ сна/с. Для сравнения приведены эффективные площади стоков, которыми являются границы зерен (вместе с двойниками), $S_b = 1,7 \cdot 10^6 \text{ м}^{-1}$ и дислокации $S_d = 9 \cdot 10^5 \text{ м}^{-1}$, что в сумме дает $S_{bd} = (S_d + S_b) = 2,6 \cdot 10^6 \text{ м}^{-1}$.

Видно, что использованное приближение пригодно для оценок до температур меньше 680 К, при более высоких температурах оно портится и приводит к завышенным значениям концентраций междоузлий и, вероятно, к несколько заниженным значениям концентраций вакансий. Выражая из (18) значение критического радиуса

$$r = \frac{2\Omega\tau}{kT \ln(c_v - c_i \exp((E_{mv} - E_{mi})/kT)) + E_v} \quad (31)$$

Таблица 3. Характеристики точечных дефектов в стали ЧС-68 при облучении в реакторе на быстрых нейтронах

Характеристика	Температура, К			
	573	673	773	873
c_v , доли единицы	$1,02 \cdot 10^{-4}$	$3,02 \cdot 10^{-5}$	$1,23 \cdot 10^{-5}$	$6,13 \cdot 10^{-6}$
c_i , доли единицы	$8,62 \cdot 10^{-13}$	$4,03 \cdot 10^{-12}$	$1,26 \cdot 10^{-11}$	$3,04 \cdot 10^{-11}$
S_v , м^{-1}	$3,04 \cdot 10^7$	$9,01 \cdot 10^6$	$3,66 \cdot 10^6$	$1,83 \cdot 10^6$
S_i , м^{-1}	$3,15 \cdot 10^7$	$9,36 \cdot 10^6$	$3,80 \cdot 10^6$	$1,90 \cdot 10^6$

и используя значения табл. 3, можно получить характер зависимости критического радиуса пор от температуры (рис. 9). Видно, что критический размер зародыша поры растет с повышением температуры. Отсюда следует, что распухание начинается раньше, при более низкой температуре облучения. С повышением температуры инкубационная доза должна сдвигаться в сторону более высоких значений. Результаты экспериментальных исследований подтверждают этот вывод [38]. При изменении скорости набора дозы также меняется размер критического зародыша. При малой скорости набора дозы $\sim 1,6 \cdot 10^{-8}$ сна/с, характерной для реакторов на тепловых нейтронах, критический радиус зародыша поры при 873 К почти вдвое больше, чем при скорости набора дозы быстрого реактора $1,6 \cdot 10^{-6}$ сна/с. Экспериментально известно, что в реакторе на быстрых нейтронах при этой температуре распухание до доз ~ 60 сна не превышает 1%. В реакторе на тепловых нейтронах

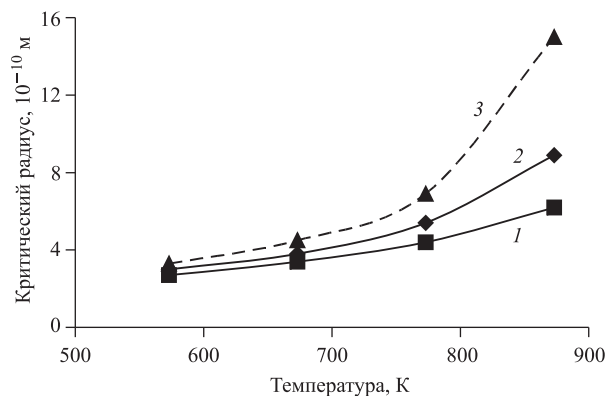


Рис. 9. Характер зависимости критического размера зародыша пор от температуры нейтронного облучения и скорости радиационных повреждений: ■, 1 — $G = 1,6 \cdot 10^{-4}$ сна/с; ◆, 2 — $G = 1,6 \cdot 10^{-6}$ сна/с; ▲, 3 — $G = 1,6 \cdot 10^{-8}$ сна/с

распухания при этой температуре и такой же дозе наблюдаться не будет. При облучении тяжелыми ионами, когда скорость радиационных повреждений на два порядка выше, чем в реакторе на быстрых нейтронах, следует ожидать распухания в более высокотемпературной области. Если зафиксировать размер зародыша, то по приведенным кривым можно оценить температурный сдвиг распухания, связанный с изменением скорости радиационных повреждений.

На примере стали 06X16H15M2ГТФР проследим, как происходит формирование зародышей пор и их дальнейший рост. При этом используем классификацию пор по механизмам образования их зародышей [39].

Первыми образуются зародыши на дислокациях за счет диффузии гелий-вакансионных комплексов вдоль дислокационных трубок. Гелий нарабатывается в стали 06X16H15M2ГТФР в результате трансмутационных ядерных реакций с дозовой скоростью ~ 1 %/сна [40]. В присутствии вакансий связывается с ними и мигрирует в паре с энергией миграции, близкой к энергии миграции вакансии (1,23 эВ). При миграции по дислокационной трубке его энергия составляет $\sim 0,6$ эВ, что приводит к ускоренному образованию на дислокациях гелий-вакансионных комплексов критического размера, на которых в дальнейшем происходит рост вакансионных пор. Такие поры, называемые порами α -типа, образуются первыми и по мере своего роста приводят к унимодальному распределению самого большого размера. На рис. 10 показана микроструктура образца, облученного при температуре 770 К до дозы 20 сна, где в основном наблюдаются поры, образовавшиеся на дислокациях и дислокационных петлях.

Другой механизм образования зародыша пор — создание концентрационных неоднородностей атомов, образующих с вакансиями подвижные комплексы, мигрирующие и собирающиеся в локальной области. Это приводит к образованию сегрегации и вакансионного или вакансионно-примесного за-

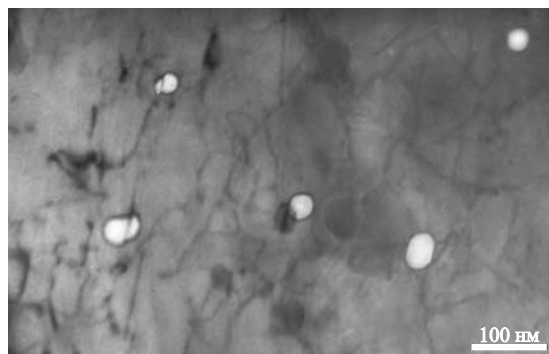


Рис. 10. Микроструктура образца стали 06X16H15M2ГТФР

родыша поры. На рис. 11, *a* приведен снимок пор, связанных с сегрегационными областями, еще не сформировавшимися в выделения. Такие области трансформируются в выделения радиационно-индуцированной *G*-фазы, с большинством из которых связаны поры (рис. 11, *б*). Поры, образованные таким образом, относятся к *b*-типу и при дальнейшей эволюции имеют меньший средний размер, чем поры *a*-типа.

Третьим механизмом является образование зародышей из газо-вакансионных комплексов, формирующихся в кристаллической матрице, не связанных с другими видимыми неоднородностями структуры. Образование такого скопления требует высокой концентрации вакансий и газовых атомов (гелия, во-

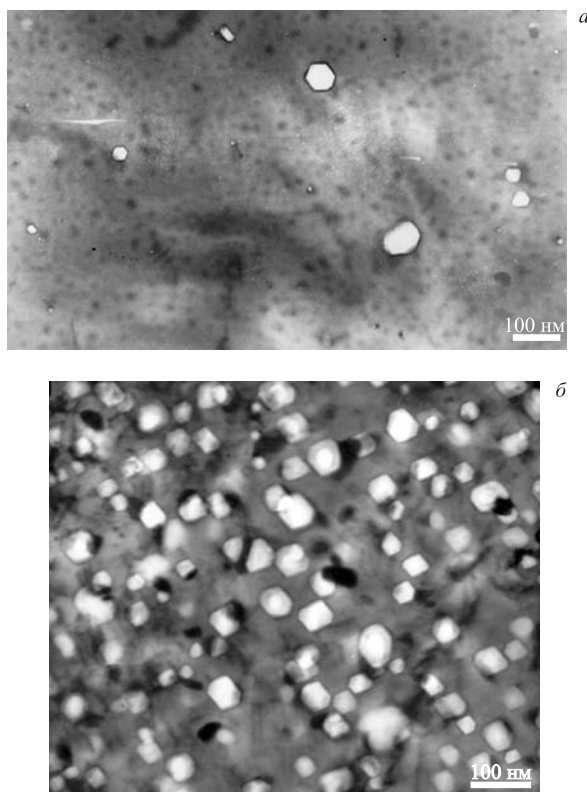


Рис. 11. *a*) Поры, связанные с сегрегационными областями, еще не сформировавшимися в выделения, в образце стали X16H36M2ГСБТЮ, облученном при температуре 720 К до повреждающей дозы 7 сна; *б*) поры, связанные с выделениями радиационно-индуцированной *G*-фазы, в образце стали 06X16H15M2ГТФР, облученном до повреждающей дозы 61 сна

дорода) в матрице. Этот механизм обычно начинает работать позже других, и поры, эволюционирующие из этих зародышей, *c*-типа, имеют наименьший средний размер. Вероятность образования такого зародыша выше в каскадной области, где в течение времени испарения кластера концентрация вакансий выше, чем в матрице.

Разделить наблюдающиеся типы пор часто удается статистически, поскольку каждый из типов пор, одинаково зародившихся, сохраняет свою статистическую индивидуальность, и распределение размеров однотипных пор описывается унимодальным логнормальным распределением. При изучении эволюции пор можно использовать следующую процедуру. Сначала построить гистограмму распределения пор по размерам, затем с помощью компьютерных программ разложить ее на сумму унимодальных распределений (провести, по существу, гармонический анализ). Следующим этапом является идентификация типов пор. Это наиболее ответственный этап, который требует, во-первых, достаточного статистического обоснования, и, во-вторых, специальных проверок — отдельного измерения пор с каким-нибудь характерным признаком (например, только связанных с выделением), получения распределения размеров этих пор по размерам и сопоставления полученных гистограмм с результатами обработки общей гистограммы [41]. На основании такой информации, полученной на образцах из одного материала, облученных до различных доз и температур, можно найти температурно-дозовые зависимости характеристик ансамбля пор, проследить за эволюцией пор каждого типа и выявить вклад пор каждого типа в набухание. В качестве иллюстрации этих возможностей на рис. 12 приведены зависимости среднего размера и концентрации пор различных типов в стали 06X16H15M2ГТФР от дозы нейтронного облучения при температуре 770–780 К.

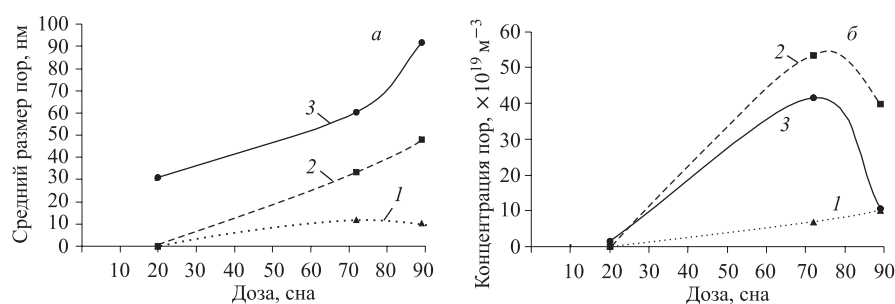


Рис. 12. Зависимости средних размеров (а) и концентраций (б) пор различных типов в стали 06X16H15M2ГТФР от повреждающей дозы при температуре облучения 770–780 К (б): \blacktriangle , 1 — поры *c*-типа; \blacksquare , 2 — поры *b*-типа; \bullet , 3 — поры *a*-типа

Размер более крупных пор a - и b -типов растет быстрее, чем мелких пор, в диапазоне доз ниже 70 сна — линейно. Концентрация пор a - и b -типов до этой дозы растет, а затем довольно резко уменьшается, в это же время скорость роста среднего размера возрастает. У пор c -типа концентрация растет практически с одинаковой скоростью. Отметим, что рост размера пор не связан с механизмом их образования. Как только размер зародыша поры превысил критический, ее рост определяется только концентрациями точечных дефектов в растворе и их подвижностью. В научной литературе встречается утверждение, что скорость роста радиуса поры должна быть обратно пропорциональна радиусу [42]: оно получено из анализа уравнений в пренебрежении рядом существенных фактов. Это мнение противоречит экспериментальным фактам, а также результатам более строгого рассмотрения, согласно которому скорость роста радиуса поры растет с ее увеличением, асимптотически приближаясь к постоянной величине [43] по формуле

$$\frac{dr}{dt} = \Omega \chi c_v \exp\left(-\frac{E_{mv}}{kT}\right), \quad (32)$$

$$\chi = c_v - 0,2 \exp\left(\frac{U(r)}{kT}\right) - c_i \exp\left(\frac{E_{mv} - E_{mi}}{kT}\right),$$

где r — радиус поры; E_{mv}, E_{mi} — энергии миграции вакансий и междоузлий соответственно; c_v, c_i — концентрации вакансий и междоузлий в матрице (в отн. ед.); $U(r)$ — определяется выражением (19), остальные обозначения те же, что и выше.

Именно такая зависимость скорости увеличения радиуса поры от ее размера позволяет различным типам пор расти, сохраняя индивидуальность своего распределения по размерам.

Уменьшение концентрации пор при больших дозах и одновременное ускорение роста радиуса связано с коалесценцией пор, вероятность которой увеличивается с ростом их размеров и концентрации. Растущая крупная пора при поглощении мелких пор достаточно быстро восстанавливает равновесную форму. Слияние же с другой крупной порой некоторое время оставляет форму поры неравновесной, и такие случаи можно наблюдать (рис. 13).

Коалесценция приводит к уменьшению площади поверхности пор при том же их объеме, а рост пор — к ее увеличению. Два этих процесса, приводящих к противоположным изменениям интегральной площади поверхности пор, должны протекать самосогласованно, обеспечивая ее сохранение и постоянство потоков точечных дефектов в поры. Это и является причиной наличия стадии установившегося распухания. Данные прямых экспериментальных наблюдений подтверждают высказанное предположение. На рис. 14 приведены зависимости интегральной поверхности пор, рассчитанной по электронно-микроскопическим снимкам в образцах из стали

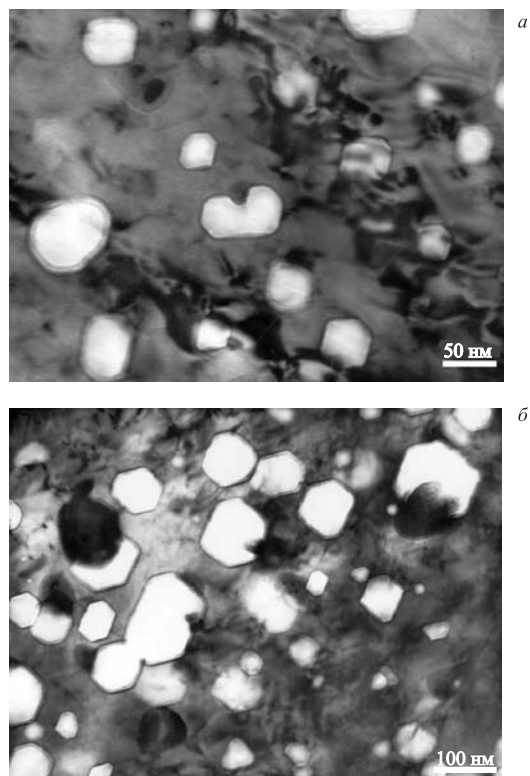


Рис. 13. Коалесценция пор в образце стали ЧС-68, облученном при температуре 770 К до повреждающей дозы 72 сна

06X16H15M2ГТФР, от величины пористости после нейтронного облучения при различных температурах. На них с точностью получения экспериментальных результатов при больших значениях пористости прослеживается характер насыщения.

Образование и эволюция пор имеет не только теоретическое, но и важное прикладное значение. Во-первых, сами размерные изменения конструкций, работающих в активных зонах ядерных реакторов, достигающие десяти и более процентов (по объему), создают некоторую проблему, поскольку вызывают искривление конструкций и возникновение значительных механических напряжений в конструкционных элементах. Во-вторых, набухание вызывает значительные изменения характеристик упругости, коэффициента теплопроводности, сильное охрупчивание при существенном снижении прочностных

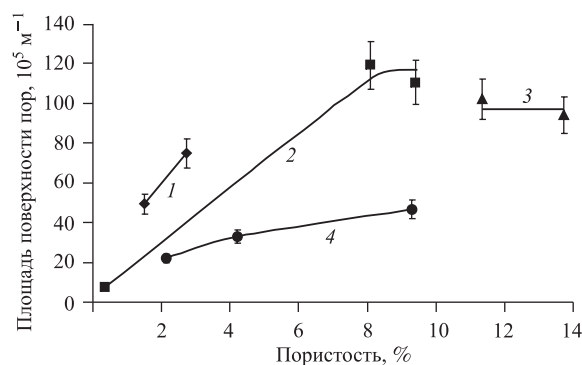


Рис. 14. Зависимости интегральной поверхности пор, рассчитанной по электронно-микроскопическим снимкам в образцах из стали 06Х16Н15М2ГТФР, от величины пористости после нейтронного облучения при различных температурах: \blacklozenge , 1 — 680–690 К; \blacksquare , 2 — 720–750 К; \blacktriangle , 3 — 770–780 К; \bullet , 4 — 820–830 К

свойств. Особую озабоченность вызывает резкое снижение предела прочности при практически нулевой пластичности. Это пороговое явление, заключающееся в том, что при определенных характеристиках пористости происходит случайное выстраивание пор вдоль поверхности, на которой реализуются условия разрушения уже при напряжениях, равных нескольким десяткам МПа [44]. Схематически такая ситуация показана на рис. 15, а, а экспериментально наблюдаемый при электронно-микроскопических исследованиях фрагмент разрушения участка фольги по выстроившимся порам приведен на рис. 15, б.

Для расчета предела прочности в этом приближении получено выражение

$$\sigma_f = (\sigma_b + \Delta\sigma_d - \sigma_v)(1 - (P/P_c)^{2/3})_{(33)}, \quad (33)$$

где σ_b — предел прочности матрицы исходного материала; $\Delta\sigma_d$ — упрочнение, обусловленное радиационными дефектами; σ_v — растягивающее напряжение, созданное в матрице порами; P — пористость; P_c — критическое значение пористости, равное 0,34, когда при случайном распухании происходит самопроизвольное разрушение.

На рис. 16 представлены результаты теоретических расчетов, выполненных в перколяционной модели, и экспериментальные данные, являющиеся более консервативными по сравнению с теоретическими предсказаниями. Это связано с тем, что существует еще ряд неблагоприятных факторов, способствующих разрушению. К их числу относятся: ослабление границ зерен, в частности, из-за образования вдоль них хрупких мартенситных слоев [32], а

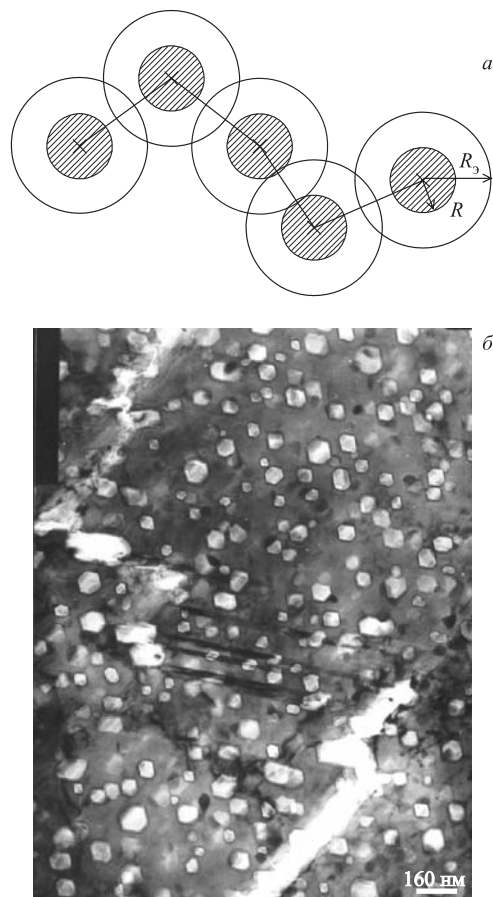


Рис. 15. Случайное выстраивание пор вдоль поверхности, на которой реализуются условия разрушения: *a*) схематическое изображение (R — радиус поры, R_0 — эффективный радиус пор); *б*) экспериментально наблюдаемый фрагмент в образце стали ЧС-68, облученном при температуре 720 К до повреждающей дозы 61 сна

также коррозионные повреждения контактирующих с топливом поверхностей стальных оболочек твэлов.

Одним из способов борьбы с радиационным распуханием является использование материалов с низкой энергией миграции вакансий. К таким материалам относятся α -Fe и ферритные сплавы на его основе. Значительного пересыщения концентрации вакансий при рабочих температурах реакторов в них не достигается из-за низкой энергии миграции вакансий [45]. Они

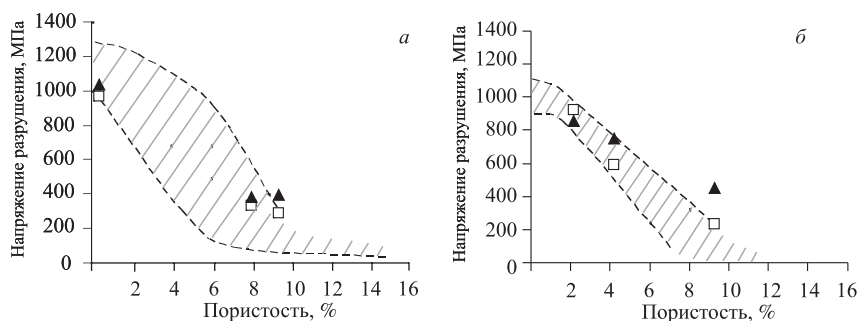


Рис. 16. Зависимость напряжения разрушения от пористости для температур облучения 720–750 К (а), 820–830 К (б): ▲ — расчет по порам; □ — экспериментальные данные по образцам-свидетелям; штриховые кривые — поле экспериментальных данных, полученных на других образцах

действительно стойки к радиационному распуханию, но обладают другим недостатком. Из-за высокой подвижности вакансий (и междоузлий) при действующих при эксплуатации механических напряжениях в них интенсивно протекают процессы ползучести, при этом уменьшается длительная прочность, которая и в исходном состоянии является неприемлемо низкой. Причем даже если с использованием механизмов дисперсионного упрочнения удастся блокировать скольжение дислокаций, механизмы диффузионной ползучести вряд ли можно будет подавить. Вероятно, на этом пути надо искать компромиссы, которые позволили бы повысить радиационную стойкость, но маловероятно, чтобы эта проблема была полностью решена за счет использования сталей ферритного класса.

2.4. Высокотемпературное нейтронное облучение. Оценка, выполненная в приближении, описываемом формулой (29), показывает, что в аустенитной стали 06X16H15M2ГТФР уже при температуре 1125 К (что слегка превышает 0,6 от T_m), концентрация вакансий при облучении в реакторе на быстрых нейтронах равна термически равновесной концентрации. Так что в высокотемпературном диапазоне вряд ли стоит ожидать серьезных отличий в поведении под облучением от обычных термических условий. Тем не менее возможна интенсификация неравновесных процессов, связанная с тем, что в обычных термических условиях вакансии поступают со стороны поверхности, в то время как при действии нейтронного облучения они гомогенно рождаются во всем объеме (то же и междоузлия). Вообще тонких исследований влияния на металлы высокотемпературного облучения проводилось очень мало.

3. САМОСОГЛАСОВАННЫЕ ПРОЦЕССЫ ИЗМЕНЕНИЯ СТРУКТУРЫ В МЕТАЛЛАХ ПРИ ДЕЙСТВИИ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ

Основной задачей радиационного материаловедения является создание материала (или подбор из уже существующих), сохраняющего на необходимом уровне эксплуатационные свойства при действии нейтронного облучения. Традиционно (в обычном материаловедении) в качестве основного принимался принцип использования материалов, не изменяющих (или минимально меняющих) структуру в условиях действия заданных механических напряжений и температур. При этом материал находился в состоянии, близком к равновесному. Исключения составляли случаи экстремальных воздействий, реализующиеся по большей части не при эксплуатации, а при обработке металла для придания ему нужной структуры и свойств.

При действии нейтронного высокодозного облучения ситуация принципиально изменяется, металл представляет собой систему, далекую от состояния термодинамического равновесия, в которой интенсивно происходят перемещения потоков энергии и вещества. Если рассматривать металл как систему дефектов в среде, представляющую собой кристаллическую решетку, то это не замкнутая, а открытая система, в которую поступают и отводятся потоки энергии и дефектов. Процессы, происходящие в ней, часто носят нелинейный характер. Накапливающиеся междоузлия и вакансии и их комплексы (дислокационные петли, развивающиеся до формирования дислокационных сеток, поры и другие комплексы) создают упругие поля и стоки, которые сами влияют на движение и исчезновение из металла точечных дефектов. В системе возникают обратные связи, которые способны регулировать ее состояние, т. е. имеются в наличии все факторы, позволяющие считать металл при действии на него нейтронного облучения открытой системой [46].

При описании таких систем важное место занимают вопросы термодинамической устойчивости их состояния. Когда система находится в состоянии, близком к равновесному, она, как правило, является устойчивой. Малые флуктуации не препятствуют движению системы к положению равновесия [47]. Однако при удалении от равновесия возможно достижение такого состояния, в котором флуктуация ведет к уходу системы еще дальше от состояния термодинамического равновесия, система уходит с термодинамической ветви. Такая точка в фазовом пространстве, в которой происходит потеря термодинамической устойчивости, называется точкой бифуркации [48]. В случае, когда в открытой системе происходят реакции между компонентами и диффузия, для описания изменений их концентраций требуется исследование решений систем дифференциальных уравнений вида

$$\frac{\partial X_i}{\partial t} = v(X_1, X_2, \dots) + D_i \frac{\partial^2 X_i}{\partial r^2}, \quad (34)$$

где X_i — концентрация i -й компоненты; v — характеризует скорость реакции компонент; D_i — коэффициент диффузии i -й компоненты; T — время; r — координата, в направлении которой происходит диффузия.

Для упрощения система (34) записана в одномерном варианте, хотя обычно диффузия происходит в трехмерном пространстве. Уравнение (34) необходимо дополнить граничными условиями (обычно на границах задаются либо концентрации, либо потоки). Реакционно-диффузионное уравнение (34) описывает множество разнообразнейших явлений. Его решения, различные в конкретных случаях, имеют общие черты. Когда начальное состояние близко к равновесному, получается решение, являющееся термодинамической ветвью. При изменении параметров в сторону удаления от термодинамического равновесия и достижения ими определенных значений появляются другие решения, при этом решение, отвечающее термодинамической ветви, становится неустойчивым. В принципе, бифуркации есть не что иное, как возникновение при некотором критическом значении параметра нового решения. Сказанное можно пояснить примером реакции, соответствующей кинетическому уравнению, рассмотренному в [49]:

$$\frac{dX}{dt} = aX(X - R). \quad (35)$$

Ясно, что при $R < 0$ существует только одно стационарное (не зависящее от времени) решение: $X = 0$. В точке $R = 0$ происходит бифуркация и появляется новое решение $X = R$ (рис. 17).

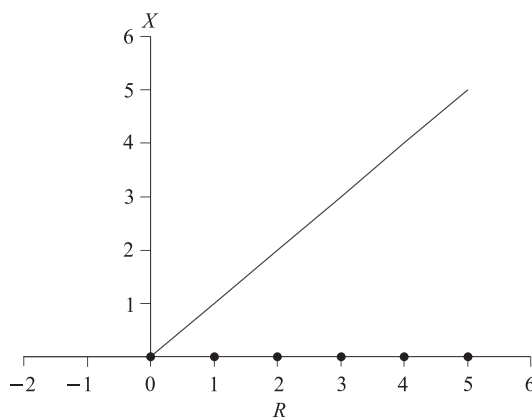


Рис. 17. Бифуркационная диаграмма для уравнения (35). Сплошная линия соответствует устойчивой ветви, точки — неустойчивой ветви

Анализ устойчивости в линейном приближении позволяет проверить, что решение $X = 0$ при переходе через точку $R = 0$ становится неустойчивым, а решение $X = R$ — устойчивым.

Приведенный выше подход к описанию происходящих в открытых системах процессов с исследованием условий их устойчивости эффективно используется в химии и биологии, где он позволяет моделировать цепочки автокаталитических реакций, организуемых в замкнутые циклы. Необходимым условием для этого является наличие обратных связей, организуемых самосогласованное протекание процессов. В физике радиационных явлений в металлах этот подход пока практически не применяется, хотя имеются все необходимые для его использования элементы.

Например, как было показано в предыдущем разделе, накапливающиеся при облучении точечные дефекты приводят к увеличению интенсивности их рекомбинации. Это происходит до тех пор, пока интенсивность рекомбинации вакансий и междоузлий не сравняется с интенсивностью их генерации. Рекомбинация является обратной связью в системе взаимодействующих дефектов и приводит к поддержанию их концентрации на постоянном уровне. Однако параметры системы медленно изменяются. Образующиеся при высокой концентрации подвижных междоузлий дислокационные петли уменьшают концентрацию междоузлий, из-за чего уменьшается интенсивность рекомбинации вакансий, что является еще одной обратной связью, влияющей на состояние системы точечных дефектов. Дальнейшее изменение параметров системы может проявиться в образовании новых стоков точечных дефектов — зародышей пор, при этом система теряет устойчивость и начинается процесс распухания. С ростом количества и размеров пор увеличивается интегральная площадь их поверхности и возрастают потоки вакансий в пору, что направлено на уменьшение их концентрации в матрице, порождая новую обратную связь в процессе изменения концентрации точечных дефектов.

Перечисление таких цепочек процессов структурных изменений можно продолжать и дальше. Строгая запись уравнений эволюции дефектов должна включать большое количество процессов, что приводит к большому количеству членов системы нелинейных уравнений и не оставляет шансов на ее точное решение. Однако можно исследовать области значений параметров, при которых появляются новые решения. При этом точки, в которых происходят эти изменения, являются бифуркациями и отвечают пороговым явлениям, а замкнутые обратными связями цепочки реакций приводят к поддержанию определенных характеристик процесса на постоянном уровне. Так, описанный выше процесс распухания на установившейся стадии, когда площадь поверхности пор и концентрация точечных дефектов не меняются, что обеспечивает постоянную скорость распухания, имеет черты типичного автопозного процесса [48]. Достижение же состояния, при котором происходит случайное выстраивание и слияние пор в поверхность, что приводит к са-

мопроизвольному разрушению, соответствует точке бифуркации, в которой резко меняется состояние системы.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В каждом диапазоне температур облучения доминирующими являются различные реакции взаимодействия радиационных дефектов между собой и с другими элементами структуры металла. При количественном описании этих реакций в различных температурных диапазонах можно принять свои приближения и получить систему реакционно-диффузионных уравнений, моделирующих эволюцию структуры и свойств металла при облучении. При этом перспективным представляется использование методов описания металла как открытой системы, процессы в которой могут представляться цепочками взаимосвязанных реакций радиационных дефектов. Исходное структурное состояние здесь является лишь начальным условием. В общем случае при действии облучения оно не является равновесным, а в зависимости от его параметров может оказаться далеким от состояния равновесия, так что протекающие процессы поведут систему к одному из устойчивых при конкретных условиях облучения состояний. С этой точки зрения оптимизация будет поиском того исходного состояния, которое обеспечит приход системы в наиболее благоприятное равновесное в условиях облучения состояние. В идеале в конце пути можно ожидать создания материала, который бы при действии облучения представлял собой самоорганизованную систему, с замкнутой цепочкой процессов, обеспечивающих геометрическую стабильность и требуемые механические свойства материала.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кирсанов В. В., Кислицина Е. М. Влияние внешних напряжений на пороговую энергию атомных смещений в неоднородных полях напряжений // Материалы VII Всесоюз. конф. «Взаимодействие атомных частиц с твердым телом», Минск, 1984. Т. 2. С. 75–86.
2. Иванов Л. И., Платов Ю. М. Радиационная физика металлов и ее приложения. М.: Интерконтакт Наука, 2002. 300 с.
3. Ougouag F. M. et al. Defect production efficiency in neutron irradiation in neutron irradiation iron // Proc. of the 15th Intern. Symp. «Effects of Radiation on Materials», Gelles, Philadelphia, 1992. ASTM STP 1125. P. 420–433.
4. Кирсанов В. В. ЭВМ-эксперимент в атомном материаловедении. М.: Энергоатомиздат, 1990. 304 с.
5. Norgett M. J., Robinson M. T., Torrens I. M. // Nucl. Eng. Design. 1975. V. 33. P. 50.
6. Зеленский В. Ф., Неклюдов И. М. Радиационные повреждения металлов и сплавов при облучении нейтронами, ионами, электронами // ВАНТ. Сер. «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение». 1984. Вып. 1, № 29. С. 46–73.

7. *Ullmaier H. W., Schilling W.* Radiation damage in metallic reactor materials // IAEA. Vienna. 1980. V. 1. P. 11–37.
8. *Zinkle S. T., Singh B. N.* Analysis of displacement damage and defect production under cascade damage conditions // *J. Nucl. Mater.* 1993. V. 119. P. 173–191.
9. *Chudinov V. G. et al.* // *Phys. Stat. Solidi (a)*. 1981. V. 67. P. 61–64; V. 79. P. K57–K61.
10. *Чудинов В. Г., Протасов В. И.* Расчет характеристик теплового пика методом молекулярной динамики // *Физика металлов и металловедение*. 1978. Т. 46, вып. 6. С. 1269–1278.
11. *Nakagawa M.* // *Ann. Rep. Res. Realt. Inst. Kioto Univ.*, 1980. V. 13. P. 3.
12. *Detman K., Leibfried G., Schroeder K.* // *Phys. Stat. Solidi*. 1967. V. 22. P. 423.
13. *Wolfer W. G., Si-Ahmed A.* // *J. Nucl. Mater.* 1981. V. 99. P. 117.
14. *Трушин Ю. В.* Физическое материаловедение. СПб.: Наука, 2000. 286 с.; 140 ил.
15. *Kozlov A. V., Kirsanov V. V.* Radiation defect formation and evolution in C0.03Cr20Ni16Mn6 steel under low-temperature neutron irradiation and their effect on physical and mechanical properties of the steel // *J. Nucl. Mater.* 1996. V. 233–237. P. 1062–1066.
16. *Козлов А. В. и др.* Образование и эволюция радиационных кластеров в ГЦК-металлах при низкотемпературном нейтронном облучении до малых повреждающих доз // Тез. докл. «Радиационная физика металлов и сплавов», 20–26 фев. 2005 г. С. 33.
17. *Козлов А. В.* Основные механизмы влияния структурных изменений, происходящих в аустенитной стали при низкотемпературном нейтронном облучении // *Физика металлов и металловедение*. 1996. Т. 81, вып. 3. С. 97–106.
18. *Kozlov A. V. et al.* Dimensional characteristics of displacement cascades in austenitic steels under neutron irradiation at cryogenic temperature // *Proc. of the 20th Intern. Symp. «Effect of Radiation on Materials»*, West Conshohocken, PA, 2001. ASTM STP 1405. P. 694–703.
19. *Goshchitskii B. N. et al.* The formation of clusters in displacement cascades during a low-temperature (77 K) neutron irradiation and the effect of clusters on the properties of stainless steels // *Abstr. of the 9th Intern. Conf. on Modern Materials & Technologies, World Ceramics Congress & Forum on New Materials*, Florence, Italy, June 14–19, 1988. P. 220.
20. *Дубинин С. Ф. и др.* Аморфизация твердых тел быстрыми нейтронами // *ФТТ*. 1998. Вып. 9. С. 1584–1588.
21. *Дубинин С. Ф., Пархоменко В. Д., Теплоухов С. Г.* Влияние факторов реальной структуры твердого тела на аморфизацию никелида титана быстрыми нейтронами // *Физика металлов и металловедение*. 2002. Т. 88. С. 111–113.
22. *Жирифалько Л.* Статистическая физика твердого тела. М.: Мир, 1975. 432 с.
23. *Watanabe H., Muroga T., Yoshida N.* Fluence dependence of defect evolution in austenitic stainless steels during fission neutron irradiation // *J. Nucl. Mater.* 1999. V. 271 & 272. P. 381–384.
24. *Golubov S. I., Singh B. N., Trinkaus H.* Defect accumulation in FCC and BCC metals and alloys under cascade damage conditions towards a generalisation of the production bias model // *J. Nucl. Mater.* 2000. V. 276. P. 78.
25. *Osetsky Yu. N. et al.* Stability and mobility of clusters in Cu and Fe // *Ibid.* P. 65.
26. *Kiritani M.* Similarity and difference between FCC, BCC and HCP metals from the view point of point defect cluster formation // *Ibid.* P. 41–49.
27. *Kojima S. et al.* Conversion of stacking fault tetrahedral to voids in electron irradiated FeCrNi // *J. Nucl. Mater.* 1986. V. 141–143. P. 763–766.

28. *Bloom E. E.* Nucleation and growth of voids in stainless steels during fast-neutron irradiation // Proc. of the Intern. Conf. «Radiation-Induced Voids in Metals», Albany, New York, June 9–11, 1971. Oak Ridge, Tennessee, 1972. P. 1–30.
29. *Зеленский В. Ф., Неклюдов И. М., Черняева Т. П.* Радиационные дефекты и распухание металлов. Киев, 1988. С. 296.
30. *Коновеев Ю. В., Быков В. Н.* Радиационная пористость в конструкционных сталях // ВАНТ. Сер. «Топливные и конструкционные материалы». Вып. 1(6). М., 1977. С. 3–13.
31. *Garner F. A., Wolfer W. G.* Factor which determine the swelling behavior of austenitic stainless steels // J. Nucl. Mater. 1984. V. 122–123, No. 1/3. P. 201–206.
32. *Garner F. A.* Irradiation performance of cladding and structural steels in liquid metal reactors // Materials Science and Technology: A Comprehensive Treatment. VCH Publishers, 1994. V. 10A. P. 419–543.
33. *Toloczko M. B., Garner F. A.* Stress and temperature dependence of irradiation creep of selected FCC and BCC steels at low swelling // J. ASTM Intern. 2004. V. 1, No. 4. P. 454–465.
34. *Kozlov A. V. et al.* Dependence of maximum swelling temperature on damage dose in cold worked 16Cr-15Ni-2Mo-1Mn cladding irradiated in BN-600 // 21st Intern. Symp. «Effect of Radiation on Materials», West Conshohocken, PA, 2004. ASTM STP 1447. P. 446–453.
35. *Неустроев В. С. и др.* Изменение механических свойств стали 0X16H15M3Б в температурном интервале радиационного распухания. Препринт НИИАР-30(711). М.: ЦНИИатоминформ, 1986.
36. *Vudylkin N. I. et al.* The strong influence of displacement rate on void swelling in variants of Fe-16Cr-15Ni-3Mo austenitic stainless steel irradiated in BN-350 and BOR-60 // J. Nucl. Mater. 2004. V. 329–333. P. 621–624.
37. *Девятко Ю. Н., Чернов В. М.* Мезоскопическая модель каскадов атом-атомных соударений // ВАНТ. Сер. «Материаловедение и новые материалы». 2004. Вып. 1, № 1(62)б. С. 288.
38. *Kozlov A. V. et al.* The swelling dependence of cold worked 16Cr-15Ni-2Mo-1Mn steel on neutron irradiation temperature, fluence and damage rate during its use as a cladding material in BN-600 Reactor // 20th Intern. Symp «Effect of Radiation on Materials», West Conshohocken, PA, 2001. ASTM STP 1405. P. 457–468.
39. *Портных И. А., Козлов А. В., Скрябин Л. А.* Размерные характеристики ансамбля радиационных пор в холоднодеформированной стали X16H15M2Г, облученной высокими флюенсами нейтронов // Перспективные материалы. 2002. № 2. С. 50–55.
40. *Залужный А. Г., Сокурский Ю. Н., Тебус В. Н.* Гелий в реакторных материалах. М.: Энергоатомиздат, 1988. 224 с.
41. *Портных И. А., Козлов А. В.* Методология количественного анализа радиационной пористости в металлах // ВАНТ. Сер. «Материаловедение и новые материалы». 2002. Вып. 1(59). С. 41–54.
42. *Ахиезер И. А., Давыдов Л. Н.* Введение в теоретическую радиационную физику металлов и сплавов. Киев: Наук. думка, 1985. 144 с.
43. *Kozlov A. V. et al.* Temperature effect on characteristics of void population formed in austenitic steel under neutron irradiation up to high doze // J. Nucl. Mater. 2002. V. 307–311. P. 956–960.
44. *Козлов А. В. и др.* Влияние вакансионной пористости на прочностные характеристики аустенитной стали ЧС-68 // Физика металлов и материаловедение. 2003. Т. 95, № 4. С. 87–97.
45. *Danilov S. E. et al.* Radiation-induced processes in stainless steels doped with Ti // Abstr. of the 10th Intern. Conf. of Fusion Reactor Materials. Baden-Baden, 2001. P. 296.

46. *Жилин Д. М.* Теория систем: опыт построения курса. Изд. 2-е, испр. М.: Едиториал УРСС, 2004. 184 с.
47. *Пригожин И.* От существующего к возникающему // Время и сложность в физических науках: Пер. с англ. / Под ред., с предисл. Ю. Л. Климонтовича. Изд. 2-е, доп. М.: Едиториал УРСС, 2002. 288 с.
48. *Николис Г., Пригожин И.* Самоорганизация в неравновесных системах. М.: Мир, 1979. 292 с.
49. *McNeil K. J., Walls D. F.* // J. Stat. Phys. 1974. V. 10. P. 439.