

На правах рукописи

ХОМЯКОВ ОЛЕГ ВЛАДИМИРОВИЧ

**МЕХАНИЗМЫ НЕУСТОЙЧИВОСТЕЙ
В МЕТАЛЛАХ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ
КАСКАДООБРАЗУЮЩЕГО ОБЛУЧЕНИЯ**

01.04.07 – физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Автор:

Москва – 2011

Диссертация выполнена в Национальном исследовательском ядерном университете «МИФИ»

Научный руководитель: кандидат ф.-м. наук, доцент
Девятко Юрий Николаевич

Официальные оппоненты: доктор ф.-м. наук, профессор
Троян Виктор Иванович

кандидат ф.-м. наук, с.н.с.
Сивак Александр Борисович

Ведущая организация: Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов им. академика А.А. Бочвара (ОАО ВНИИНМ, г. Москва)

Защита состоится 26 октября 2011 г. в 15 ч. 00 мин.
на заседании диссертационного совета Д 212.130.06 НИЯУ МИФИ по
адресу: 115409, Москва, Каширское шоссе, 31, тел. (495)323-95-26

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке НИЯУ МИФИ
(г. Москва, Каширское шоссе, 31)

Автореферат разослан « » сентября 2011 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета

В. П. Яковлев

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

Основным требованием при проектировании новых типов атомных реакторов является требование повышения безопасности их эксплуатации. Под воздействием реакторного облучения происходит деградация свойств конструкционных материалов. Поэтому возможность количественного и качественного предсказания последствий воздействия реакторного облучения на конструкционные материалы ядерных энергетических установок (ЯЭУ) является важнейшей задачей физики радиационных повреждений материалов. Предметная область физики радиационных повреждений затрагивает вопросы первичной повреждаемости материалов, которые связывают с возникновением каскадов атомных соударений, вопросы накопления повреждений под воздействием облучения и изменение свойств облучаемых материалов.

Первичную повреждаемость материала, как правило, соотносят с величиной каскадной функции, определяемой в рамках NRT – стандарта. Однако характеристики повреждающего воздействия облучения, такие как величина распухания, распределение вакансионных пор по размеру и т.д., не подтверждаются экспериментально в моделях, использующих величину скорости генерации дефектов, вычисленную в рамках NRT– стандарта, поскольку NRT-стандарт применим вплоть до времён $\sim 10^{-13}$ секунды. Основная доля смещений, созданных ПВА, в форме точечных дефектов отжигается внутри каскадной области на временах $\sim 10^{-13} \div 10^{-6}$ сек. Современные методы расчёта каскадной функции (метод молекулярной динамики) некорректно описывают кинетические параметры каскада атомных соударений. Поэтому определение числа «выживших» точечных дефектов к моменту окончания каскада с учётом процессов внутрикаскадной рекомбинации дефектов и особенностей теплопереноса в каскадной области повреждений, является актуальной задачей физики радиационных повреждений.

Характерная скорость накопления повреждающей дозы для большинства ЯЭУ составляет $\sim 10^{-7} \div 10^{-6}$ сна/сек. При таком значении скорости генерации дефектов система собственных междоузельных атомов (СМА) и вакансий, рождённых облучением, достигает устойчивого квазистациона-

нарного состояния за времена $\sim 10^{-1} \div 10^3$ сек. Вероятность зарождения с последующим ростом зародыша новой фазы – вакансионной поры - в системе, находящейся в стабильном состоянии, согласно теории флуктуаций, экспоненциально мала. Для фазового перехода первого рода, происходящего без пересечения кривой фазового равновесия, необходимо, чтобы исходная система находилась в метастабильном состоянии. При этом она будет неустойчивой относительно образования зародыша новой фазы. Отметим, что система, содержащая только вакансии и СМА, устойчива относительно образования вакансионных пор. Теории зарождения вакансионных пор (квазитермодинамическая теория зарождения вакансионных пор, флуктуационная теория фазовых переходов) являются по своей сути теориями роста пор, поскольку в этих подходах условия формирования метастабильного состояния системы предполагаются выполненными, а механизмы перехода от зарождения к росту не описаны. Таким образом, исследование механизма зарождения пор остаётся актуальной задачей.

Экспериментально установлено, что под воздействием нейтронного облучения реакторного спектра энергий в конструкционных материалах образуются выделения новой фазы различной формы. В то же время, имеющиеся феноменологические подходы роста (растворения) зародышей новых фаз либо изначально работают со сферически симметричными зародышами, либо показывают, что зародыши быстро приобретают сферическую форму. Поэтому описание механизма образования несферических выделений новых фаз является актуальной задачей.

Цели настоящей работы:

- Предложить метод описания первичной радиационной повреждаемости металлов на временах, превышающих область применимости NRT – стандарта.
- Предложить механизм формирования зародыша вакансионной поры в металлах, подверженных воздействию каскадообразующего облучения.
- Построить теорию роста зародышей новой фазы в упругой среде.

Научная новизна, полученных в работе результатов.

Впервые рассчитано характерное время передачи энергии от подсистемы фононов к электронам проводимости на заключительной стадии релаксации каскада атомных соударений.

Впервые предложена модель расчёта коэффициента каскадной эффективности к моменту окончания развития каскада столкновений в металле с учётом процесса установления теплового равновесия между подсисте-

мой электронов проводимости и решёткой металла в области повреждений.

Впервые предложен механизм образования вакансионных пор в облучаемом металле как результат последовательного развития двух стадий неустойчивости в системе взаимодействующих точечных дефектов, рождённых нейтронным облучением.

Впервые в рамках флуктуационной теории фазовых переходов определён механизм формирования выделений новой фазы в облучаемом материале в поле упругих напряжений, создаваемом радиационными дефектами.

Достоверность научных положений следует из методов исследования поставленных задач, а также обсуждений результатов диссертации в ходе участия в научных конференциях и семинарах, посвящённых тематике физики радиационных повреждений.

Личный вклад автора. Автор лично участвовал в постановке и решении задач, а также написании научных статей и тезисов научных конференций.

Практическая ценность результатов

Результаты диссертации могут быть использованы при построении нового стандарта расчёта повреждающей дозы.

Основные результаты, выносимые на защиту

- расчет характерного времени передачи энергии от решётки к электронам проводимости, а также коэффициента каскадной эффективности и скорости генерации дефектов к моменту окончания каскада атомных столкновений в металле с учётом особенностей теплопередачи в каскадной области повреждений;
- модель расчёта коэффициента каскадной эффективности к моменту окончания каскада атомных столкновений в металле с учётом процесса установления теплового равновесия между подсистемой электронов проводимости и решёткой металла;
- значения характерного времени передачи энергии от решётки к электронам, а также коэффициента каскадной эффективности и скорости накопления повреждающей дозы вплоть до момента времени 10^{-6} сек от начала каскада;
- механизм образования вакансионных пор;
- кинетика формирования несферических зародышей новой фазы.

Апробация работы

Результаты данной работы были представлены на следующих российских и международных конференциях и семинарах: «Научная сессия МИФИ»-2007-2010г.г.; XVIII международная конференция «Взаимодействие ионов с поверхностью» (Звенигород, 2007); 5-ая Курчатовская молодёжная научная школа; Семинар: «Теория и многоуровневое моделирование дефектов, явлений и свойств материалов ядерной техники» (ТММ-2008) ВНИИНМ; Отраслевые семинары «Физика радиационных повреждений материалов атомной техники» г. Обнинск 2008, 2009, 2011 г.г..

Публикации

Основные результаты диссертации отражены в 4-х статьях, опубликованных в журналах, рекомендованных ВАК, и в тезисах 8 Российских и Международных конференций. Список работы приведён в конце автореферата.

Структура и объём диссертации

Диссертация состоит из введения, трех глав, приложения, заключения и списка литературы из 89 наименований. В работе приведены 28 рисунков и 1 таблица. Общий объём диссертации составляет 116 страниц.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность темы диссертационной работы, сформулирована цель работы, практическая значимость, научная новизна, изложены основные положения, выносимые на защиту.

В **первой главе** диссертации рассмотрен процесс установления равновесия в каскадной области повреждения на заключительной стадии релаксации каскада атомных соударений. Отсутствие теплового равновесия между решёткой и электронной подсистемой приводит к появлению внутри каскадной области двух неравных локальных температур электронов $\theta(\vec{r}, t)$ и фононов $T(\vec{r}, t)$ и, как следствие, к отдельной кинетике установления теплового равновесия между областью повреждения и окружением для подсистем фононов и электронов металла. Между решёткой металла и электронами проводимости в процессе снижения температуры в каскадной области происходит обмен энергией.

Процесс установления теплового равновесия между областью повреждения и окружением с учётом обмена энергией между электронной и фоновой подсистемами металла описывается системой уравнений теплопроводности вида:

$$\begin{aligned} C_v \rho \frac{\partial T}{\partial t} &= -\nabla(-\lambda_{ph}(T)\nabla T) + \frac{\dot{U}}{V} \\ C_e \frac{\partial \theta}{\partial t} &= -\nabla(-\lambda_e(\theta)\nabla \theta) - \frac{\dot{U}}{V} \end{aligned} \quad (1)$$

Здесь C_e - электронная теплоёмкость единицы объёма; C_v - удельная теплоёмкость решётки при постоянном объёме; $\lambda_{ph}(T)$ - коэффициент теплопроводности металла по фоновому механизму; $\lambda_e(\theta)$ - коэффициент электронной теплопроводности металла; ρ , V - плотность и объём металла; \dot{U} - количество энергии, передаваемое от решётки в электронную подсистему в единицу времени (скорость передачи энергии между подсистемами фононов и электронов металла).

В первой главе с помощью метода функций Грина во втором порядке теории возмущений в Дебаевском приближении получено выражение для количества энергии, передаваемой от решётки в электронную подсистему в единицу времени.

$$\dot{U} = -C_v \rho V \frac{T - \theta}{\tau_{ph \rightarrow e}}, \quad \frac{1}{\tau_{ph \rightarrow e}} \equiv \left[\left(\frac{m}{M} \right)^2 \frac{(Z\alpha_c)^2}{2\pi} \left(\frac{a}{\lambda_D} \right)^2 \frac{\omega_D^2 a^2}{2C_v T_D} \right] \omega_D \quad (2)$$

Здесь $\tau_{ph \rightarrow e}$ - характерное время передачи энергии от решётки в электронную подсистему металла; m - масса электрона; Z , M - валентность и масса атома среды; a - постоянная решётки; $\alpha_c \equiv e^2 / \hbar c_{\parallel}$; e - заряд электрона; c_{\parallel} - продольная скорость звука; \hbar - постоянная Планка; $\lambda_D \equiv 2\pi c_{\parallel} / \omega_D$ - длина звуковой волны, соответствующая частоте Дебая ω_D ; $T_D \equiv \hbar \omega_D / k_B$ - температура Дебая; k_B - постоянная Больцмана.

Рассчитанное значение характерного времени передачи энергии от фоновой подсистемы в электронную для металлов *Fe*, *Cu*, *Ni*, *Mo*, приведено в таблице 1. Из таблицы 1 следует, что для рассмотренных металлов величина $\tau_{ph \rightarrow e}$ составляет $\sim 10^{-11}$ с.

Таблица 1.

Металл	<i>Fe</i>	<i>Cu</i>	<i>Ni</i>	<i>Mo</i>
$\tau_{ph \rightarrow e}, 10^{-11}$ с	1.8	3.3	0.6	4.4

В систему уравнений теплового баланса (1) помимо характерного времени релаксации энергии (2) входят коэффициенты теплопроводности фононной λ_{ph} и электронной λ_e подсистем металла, которые должны учитывать особенности теплопередачи в каскадной области повреждений. Коэффициент решёточной теплопроводности в интервале температур, соответствующих рабочим температурам ЯЭУ, близок к коэффициенту фононной теплопроводности идеального бездефектного кристалла $\lambda_D(T) \sim T_D / T$. Коэффициент теплопроводности металла с точностью $\sim c/v_F \sim 10^{-3}$ (v_F - скорость на поверхности Ферми, c - скорость звука) совпадает с табличным значением коэффициента теплопроводности металла.

В главе 1 рассмотрено поведение изолированного каскада в области, размеры которой R велики по сравнению с размерами каскада r_{cas} . Вдали от каскада подсистемы электронов и фононов металла находятся в состоянии теплового равновесия, что означает отсутствие тепловых потоков на границе рассматриваемой области $r=R$. К началу заключительной стадии релаксации каскада температура решётки металла равна температуре его плавления, а температура электронной подсистемы металла близка к температуре окружающей каскад среды.

На рисунке 1 представлено численное решение системы уравнений теплового баланса (1) для Fe и Ni в области радиусом $R=100$ нм. Радиус каскада на этой стадии выбран равным $r_{cas}=7$ нм для Fe и $r_{cas}=7.5$ нм для Ni , что соответствует $E_{ПВА}=60$ кэВ. Температура окружающей каскад среды взята равной $T_0=450$ °С. Из рисунка 1 следует, что за время $t_1 \sim 10^{-10}$ сек температура в центре каскада спадает до температуры окружения.

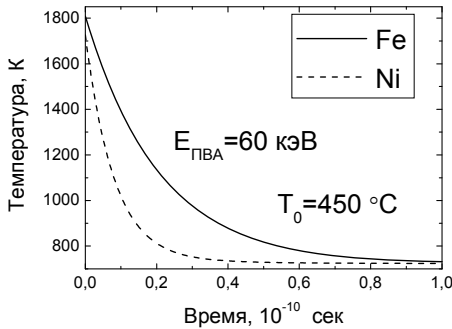


Рис. 1. Зависимость температуры решётки в центре каскада от времени

В главе 1 проведено сравнение значения времени релаксации, полученного в диссертации, с результатами других работ. В силу большой совокупности и сложности процессов, протекающих в каскадах атомных соударений, описание каскадов проводится, в основном, методами компьютерного моделирования. Самым распространённым среди них является метод молекулярной динамики (ММД). Однако этот метод не свободен от недостатков. Во-первых, пространственное распределение температуры в каскадной области в рамках ММД вычисляется через среднюю энергию атомов по объёму, содержащему макроскопическое число частиц. Такой способ определения температуры противоречит понятию среднего в статистической физике. Во-вторых, в ММД в явном виде не учитывается электронная подсистема, которая в основном и определяет процесс теплопроводности в металлах. Учёт электронной подсистемы в ММД осуществляется косвенно путём введения релаксационных слагаемых в уравнения движения атомов решётки, имитирующих влияние электронов проводимости на колебания атомов в решётке. Амплитуды подобных релаксационных слагаемых связаны с характерным временем передачи энергии между решёткой и электронами. Причём результаты моделирования показали большую чувствительность к выбору амплитуды релаксационных слагаемых. Характерное время релаксации энергии, используемое в ММД $\tau_{\text{МД}}^{-1}$ пксек, получено с использованием грубых, неприменимых для случая металла приближений. Например, электроны проводимости рассматривались в рамках такого подхода как газ невзаимодействующих частиц, но обладающий теплоёмкостью вырожденного ферми-газа. В качестве основного механизма, снижающего температуру области повреждения, рассматривалась диффузия электронов из каскадной области в решётку окружения. Такого рода приближения привели к снижению роли процессов, связанных с отсутствием равновесия между электронами проводимости и ионами решётки в каскадной области.

Повреждающий эффект, связанный с воздействием реакторного облучения на конструкционные материалы, описывается величиной повреждающей дозы. Так, ЯЭУ различаются по величине скорости накопления повреждающей дозы, измеряемой в сна/сек. Единственной расчётной величиной, входящей в выражение для скорости набора повреждающей дозы, является каскадная функция. Каскадная функция $\nu(E_{\text{ПВА}})$ равна количеству смещений, созданных ПВА, обладающим энергией $E_{\text{ПВА}}$. Для расчёта каскадной функции в настоящее время принят стандарт – NRT - стандарт, аббревиатура которого совпадает с заглавными буквами фамилий

авторов его основателей (Norgett, Robinson, Torrens). NRT – стандарт основан на модели Кинчина-Пиза, основное приближение которой – приближение парных столкновений. В отличие от каскадной функции в приближении Кинчина-Пиза $v_{\text{КП}}(E_{\text{ПВА}})$ в каскадной функции по NRT - стандарту $v_{\text{NRT}}(E_{\text{ПВА}})$ учтены энергетические потери смещённых атомов на электронное торможение. Каскадная функция, вычисленная по NRT - стандарту, позволяет определить количество смещений, созданных ПВА, только на начальной (ballistic stage) стадии развития каскада атомных соударений. Протекающие на стадии отжига (10^{-13} - 10^{-6} сек от начала каскада) процессы рекомбинации точечных дефектов в каскадной области повреждений уменьшают их общее количество. Для описания процессов накопления дефектов под облучением необходимо знать скорость генерации точечных дефектов на временах, больших 10^{-13} сек.

Для учёта эффектов, связанных с отжигом точечных дефектов, при расчёте повреждающей дозы каскадообразующего облучения обычно применяют подход, основанный на использовании коэффициента каскадной эффективности $k_{\text{eff}}(E_{\text{ПВА}})$, равного отношению каскадной функции, вычисленной с учётом процессов отжига точечных дефектов внутри каскадной области повреждений, к каскадной функции, вычисленной в рамках NRT стандарта. В результате, выражение для каскадной функции с учётом процессов рекомбинации точечных дефектов получается путём замены $v_{\text{NRT}}(E_{\text{ПВА}}) \rightarrow k_{\text{eff}}(E_{\text{ПВА}})v_{\text{NRT}}(E_{\text{ПВА}})$.

В настоящее время наиболее популярный метод расчёта каскадной эффективности - метод молекулярной динамики (ММД). МД расчёты показывают, что величина каскадной эффективности к моменту времени 10^{-10} сек от возникновения каскада лежит в полосе $0.2 \div 0.4$ и практически не зависит ни от температуры окружающей каскад среды, ни от энергии ПВА, ни от вида потенциала межатомного взаимодействия.

В главе 1 предложена модель расчёта коэффициента каскадной эффективности к моменту окончания каскада атомных столкновений в металле с учётом процесса установления теплового равновесия между подсистемой электронов проводимости и решёткой металла. Для описания процессов внутрикаскадного отжига использованы макроскопические уравнения диффузионного типа, содержащие рекомбинационные слагаемые, написанные по аналогии с теорией скоростей химических реакций.

$$\begin{aligned} \dot{n}_v &= D_v(T) \Delta n_v - \alpha(T) (n_v - n_v^{eq}) n_i \\ \dot{n}_i &= D_i(T) \Delta n_i - \alpha(T) (n_v - n_v^{eq}) n_i \end{aligned} \quad (3)$$

где $n_{v,i}$ - концентрация вакансий и СМА соответственно; $D_{v,i}(T)$ - их коэффициенты диффузии; $\alpha(T)$ - коэффициент рекомбинации вакансий и СМА; $n_v^{eq} \equiv n_v^{eq}(T)$ - концентрация вакансий в необлучаемом металле.

Континуальный подход, основанный на использовании уравнений типа (3), применим для высокоэнергетических каскадов, содержащих, как минимум, 10^2 смещённых атомов ($E_{ПВА} \sim 10^1 \div 10^2$ кэВ). Число пар Френкеля в каскадной области повреждений в начальный момент времени $t_0 = 10^{-13}$ сек равно значению каскадной функции $v_{NRT}(E_{ПВА})$ для заранее выбранной энергии ПВА. Начальное пространственное распределение концентраций вакансий и СМА в каскадной области для оценки каскадной эффективности полагалось однородным. Вдали от каскадной области концентрация дефектов равна равновесной концентрации, поэтому граничными условиями к системе уравнений (3) является условие обращения в ноль потоков дефектов на границе области поиска решения $r=R$.

Система кинетических уравнений диффузионного типа, описывающих отжиг дефектов внутри каскадной области (3), должна быть дополнена системой уравнений теплопроводности (1), описывающих установление равновесной температуры между каскадной областью и окружением.

Каскадная эффективность в момент времени t от начала каскада рассчитана по формуле:

$$k_{eff}(E_{ПВА}) = \frac{1}{v_{NRT}(E_{ПВА})} \left[\int_{V_R} d\vec{r} (n_v(\vec{r}, t) - n_v^{eq}) \right] \quad (4)$$

Для оценки влияния «неравновесности» между решёткой и электронами проводимости на процесс внутрикаскадного отжига точечных дефектов в первой главе диссертации произведено сравнение коэффициента каскадной эффективности, рассчитанного с помощью предложенной модели (1)-(4) (неравновесный случай), с коэффициентом каскадной эффективности, вычисленным в предположении теплового равновесия между решёткой и электронами в каскадной области (равновесный случай). Расчёты показали, что к моменту времени 10^{-10} сек каскадная эффективность для неравновесного случая примерно в 2 раза ниже каскадной эффективности в равновесном случае, поскольку отсутствие равновесия между подсистемой электронов и фононов металла внутри каскадной области затягивает время достижения стационарной температуры на порядок. Следовательно, неучёт эффекта, связанного с отсутствием теплового равновесия между электронами проводимости и решёткой металла в области

термопика, при описании процесса выравнивания температуры между каскадной областью повреждений и окружением приводит к 100% погрешности в определении коэффициента каскадной эффективности.

Коэффициент каскадной эффективности, рассчитанный в рамках ММД, в области энергии $1 \text{ кэВ} < E_{\text{ПВА}} < 60 \text{ кэВ}$ лежит в интервале $0.2 \div 0.4$. В первой главе показано, что модель расчёта коэффициента каскадной эффективности, предложенная в диссертации, даёт значение k_{eff} , близкое к результатам ММД только при формальном стремлении характерного времени передачи энергии к бесконечности $\tau_{ph \rightarrow e} \rightarrow \infty$. Таким образом, каскадная эффективность, определённая в главе 1 диссертации, совпадает с каскадной эффективностью, рассчитанной с использованием МД-метода, только при полном пренебрежении вкладом электронной составляющей в теплопроводность $\alpha\text{-Fe}$. Иными словами, если считать металл $\alpha\text{-Fe}$ диэлектриком.

На рисунке 2 изображена зависимость скорости накопления повреждающей дозы в Fe от времени, отсчитываемого от начала заключительной стадии релаксации каскада, для нескольких типов ЯЭУ. Скорость генерации смещений как функция времени, изображённая на рисунке 2, построена с использованием коэффициента каскадной эффективности (4), рассчитанного в диссертации. Температура окружающей каскад среды принята равной $450 \text{ }^\circ\text{C}$. Момент времени, соответствующий окончанию расчёта каскадного источника дефектов 10^{-6} сек, близок к характерному времени взаимодействия СМА со стоками в Fe при плотности дислокационной сетки 10^{11} см^{-2} (холоднодеформированное железо).

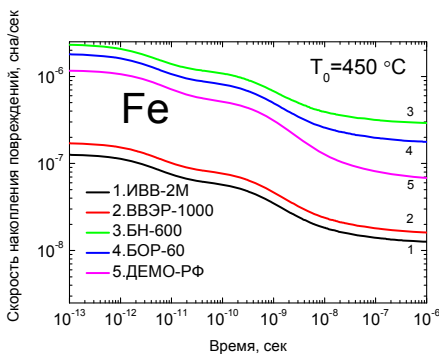


Рис. 2. Скорость генерации дефектов как функция времени

Из рисунка 2 следует, что за время $\sim 10^6$ сек от начала заключительной стадии релаксации каскада, скорость накопления повреждений спадает на порядок вследствие интенсивно протекающих процессов внутрикаскадной рекомбинации.

Во **второй главе** диссертации предложен механизм образования вакансионных пор в материале, подверженном воздействию нейтронного каскадообразующего облучения.

Накопление точечных дефектов в облучаемом металле обычно описывается системой кинетических уравнений диффузионного типа, которые с учетом тока примеси замещения против градиента концентрации вакансий имеют вид:

$$\dot{n}_v = \nabla(D_v \nabla n_v) - \nabla(d_0 n_v \nabla n_m) - \alpha(n_v - n_v^{eq})n_i - \beta n_v n_p + \gamma n_0 n_m + Q - S_v \quad (5)$$

$$\dot{n}_i = \nabla(D_i \nabla n_i) - \alpha(n_v - n_v^{eq})n_i + Q - S_i \quad (6)$$

$$\dot{n}_p = \nabla(D_p \nabla n_p) - \beta n_v n_p + \gamma n_0 n_m + Q_p \quad (7)$$

$$\dot{n}_m = \nabla(d_0 n_v \nabla n_m) - \nabla(d_1 n_m \nabla n_v) + \beta n_v n_p - \gamma n_0 n_m \quad (8)$$

Здесь n_μ - концентрация дефекта типа $\mu = i, v, p, m$; i - СМА, v - вакансии, p - примесь в междоузельном состоянии, m - примесь в состоянии замещения; $D_\mu(T)$ - их коэффициенты диффузии; n_v^{eq} - равновесная (температурная) концентрация вакансий необлучаемого металла; β - вероятность захвата вакансией примеси в междоузельном состоянии в единицу времени; γn_0 - частота распада примеси замещения, n_0 - атомная плотность твёрдого тела; $d_1 n_m$ - коэффициент диффузии примеси замещения против градиента концентрации вакансий (восходящая диффузия вакансий); $d_0 n_v$ - коэффициент диффузии вакансий против градиента концентрации примеси в состоянии замещения; $S_{v,i}$ - плотность стоков для вакансий и СМА соответственно; Q - плотность мощности источника облучения, Q_p - плотность мощности внешнего источника, вносящего примесь в металл.

Однородное распределение взаимодействующих точечных дефектов облучаемого металла (5)-(8) неустойчиво относительно флуктуаций плотности примеси в состоянии замещения вследствие наличия тока примеси замещения против градиента концентрации вакансий. В качестве такой примеси может выступать как плохо растворимая примесь, присутствующая в материале, так и подобная примесь, рождающаяся в ходе ядерных

реакций, стимулированных нейтронным облучением. Единственной неустойчивой, экспоненциально растущей компонентой для такой системы уравнений является превышение концентрации вакансий с долей примеси в состоянии замещения над своим квазистационарным и однородным значением. Амплитуда этой величины ξ представляет собой параметр порядка системы взаимодействующих точечных дефектов облучаемого материала. При образовании локальных скоплений дефектов исходная система становится неоднородной. Поэтому параметр порядка описывает поле значений $\xi(\vec{r}, t)$ в точках с координатами \vec{r} в момент времени t . Из условия устойчивости остальных 3-х компонент системы уравнений (5)-(8) следует, что кинетическое уравнение, которому удовлетворяет параметр порядка - неоднородное уравнение, содержащее 3-ю степень поля параметра порядка. Кинетическое уравнение для поля параметра порядка может быть приведено к каноническому виду уравнения релаксации для поля параметра порядка типа Гинзбурга-Ландау (УПП):

$$\dot{\xi} = -\eta \frac{\delta F[\xi]}{\delta \xi} \quad (9)$$

Здесь $\xi(\vec{r})$ - поле параметра порядка; η - кинетический коэффициент; $F[\xi]$ - свободная энергия в виде разложения Ландау по полю параметра порядка:

$$F[\xi] = \int d\vec{r} \left(\frac{\Omega}{2} (\nabla \xi)^2 - \frac{\lambda}{2} \xi^2 - \frac{B}{3} \xi^3 + \frac{\Gamma}{4} \xi^4 \right) \quad (10)$$

В выражении (10) Ω , λ , B , Γ - феноменологические коэффициенты разложения, в области малых концентраций дефектов, выражающиеся через коэффициенты диффузии и рекомбинации системы уравнений (5)-(8). Для значений параметра λ , лежащих в интервале $-B^2/4\Gamma < \lambda < 0$, свободная энергия (10) имеет минимум, отвечающий метастабильному состоянию. Свободная энергия (10) для однородного поля параметра порядка изображена на рисунке 3.

Исходной фазой в нашем случае является фаза $\langle \xi \rangle = 0$ ($\langle \dots \rangle$ - пространственное среднее), что соответствует квазистационарной и однородной концентрации вакансий облучаемого металла. При облучении металла наличие примеси в состоянии замещения приводит к формированию у свободной энергии (10) второго минимума, отвечающего новой фазе $\langle \xi \rangle = \xi_0$, где $\xi_0 = 2B/3\Gamma$ - величина размерности поля параметра порядка.

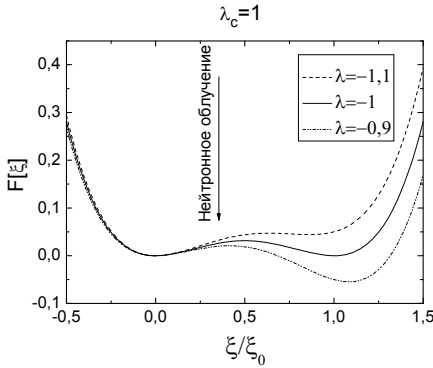


Рис. 3. Свободная энергия как функция поля параметра порядка в однородном случае

По мере накопления примеси замещения (изменение параметра λ от значения $-B^2/4\Gamma$ до $-2B^2/9\Gamma$) глубина второго минимума свободной энергии (10) увеличивается. При значении параметра $\lambda = -\lambda_c \equiv -2B^2/9\Gamma$ происходит фазовый переход, а при превышении его исходная фаза становится метастабильной. В области значения параметра $-\lambda_c < \lambda < 0$ в метастабильной исходной фазе $\langle \xi \rangle = 0$ начинает расти зародыш новой стабильной фазы $\langle \xi \rangle = \xi_0$.

Решение уравнения релаксации (9) вблизи точки фазового перехода описывает зародыш новой фазы $\langle \xi \rangle = \xi_0$ - «вакансионное облако», с резко повышенной относительно окружения концентрацией вакансий в исходной фазе $\langle \xi \rangle = 0$, и имеет форму «кинка» (см. рисунок 4):

$$\xi(\vec{r}, t) = \frac{\xi_0}{2} \left(2 - \text{th}(r/l_0 - R(t/t_0)/l_0) + \frac{\lambda}{\lambda_c} \right) \quad (11)$$

Здесь $R(t/t_0)$ - радиус зародыша новой фазы (время и длина измеряются в единицах $t_0 = 12/B\xi_0\eta$ и $l_0 = \sqrt{12\Omega/B\xi_0}$).

Из УПП (9)-(10) следует уравнение роста (растворения) «облака вакансий», которое в безразмерной форме имеет вид:

$$\dot{R} = 2 \left(\frac{1}{R_c} - \frac{1}{R} \right) \quad (12)$$

Здесь $R_c^{-1} = 3(1 + \lambda/\lambda_c)$ - критический радиус для «облака вакансий», т.е. «облака» с радиусом, большим критического, растут, меньшим - затухают.

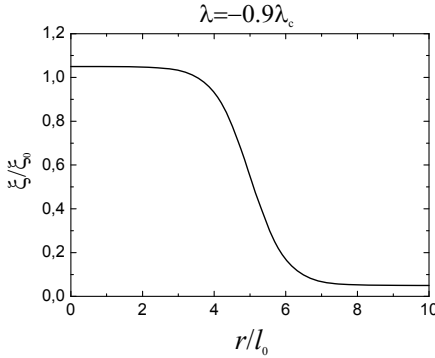


Рис. 4. Зародыш новой фазы ξ в метастабильной фазе $\langle \xi \rangle = 0$

Растущие «вакансионные облака», в свою очередь, неустойчивы, что связано с наличием дальнедействующего упругого взаимодействия вакансий, описываемым парным потенциалом $u_{vv}(\vec{r} - \vec{r}') \sim |\vec{r} - \vec{r}'|^{-3}$. В предположении, что кластер вакансий, возникающий в результате релаксации каскада атомных соударений, образовался в «вакансионном облаке», а также считая, что концентрация вакансий мала, в пренебрежении корреляционными эффектами, критерий роста кластера имеет вид:

$$U(\vec{r}_{cl}) = \int d\vec{r}' u_{vv}(\vec{r}_{cl} - \vec{r}') n(\vec{r}') = \varepsilon_v \quad (13)$$

Здесь $n(\vec{r})$ - концентрация вакансий в «облаке», содержащем кластер.

Физический смысл условия (13) вытекает из следующих соображений: как только (по мере роста «облака вакансий») энергия взаимодействия вакансий U в «облаке» на границе кластера r_{cl} достигнет значения энергии образования вакансии ε_v , то на границе кластера образуется новая вакансия, и кластер начнет расти. Рост «вакансионного облака» происходит в результате присоединения к нему вакансий из окружающей среды. Если при присоединении очередной вакансии к облаку условие (13) будет выполнено, то появление новой вакансии на границе кластера произойдет за времена, много меньше диффузионных.

На рисунке 5 изображена зависимость радиуса «вакансионного облака» от плотности вакансий в нём (фактически, от интенсивности облучения), при которой кластеру с начальным числом вакансий 5 (или 10) выгодно начать расти (a - постоянная решётки). Из рисунка 5 следует, что чем больше размер кластера, тем «легче» будет идти процесс роста. Таким образом, в главе 2 показано что, зарождение вакансионных пор представляет собой процесс, состоящий из двух стадий, наличие которых в меха-

низме фазового перехода первого рода является отличительной особенностью рассматриваемой системы. Для «обычного» фазового перехода первого рода, происходящего без пересечения кривой фазового равновесия, достаточно только одной стадии. Так, при росте капель в переохлаждённом водяном паре переход происходит в одну стадию, а зародышем новой фазы является H_2O в жидкой фазе.

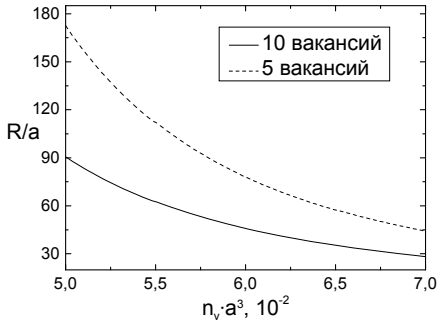


Рис. 5. Зависимость радиуса «вакансионного облака» от концентрации вакансий в нём, при которой кластеру с начальным числом вакансий 5 (10) выгодно начать расти

При воздействии нейтронного облучения с плотностью мощности повреждающей дозы $\sim 10^{16} \text{ см}^{-3} \cdot \text{сек}^{-1}$ при плотностях дислокаций $10^6 \div 10^9 \text{ см}^{-2}$ достигаемое квазистационарное значение концентрации вакансий в металле составляет $\sim (10^{-9} \div 10^{-8}) n_0$. В то же время концентрация вакансий в зародыше $\sim n_0$, поэтому образование зародыша поры путём флуктуации плотности в системе вакансий - маловероятный процесс. Этому препятствует высокая разница в концентрациях вакансий. Следовательно, необходима ещё одна стадия, в ходе которой будут образовываться скопления с повышенной концентрацией вакансий – «вакансионные облака». Поскольку в условиях облучения «вакансионное облако» растёт, то при любом размере кластера, находящегося внутри «облака», условие образования вакансии на его границе с течением времени будет выполнено. В данном подходе не возникает понятие критического размера зародыша поры, поскольку образовавшийся в растущем «вакансионном облаке» устойчивый кластер начнет расти. Наблюдаться поры будут по прошествии достаточно длительного времени – «инкубационного периода», в течение которого зарождается и растёт «облако вакансий».

В **третьей главе** диссертации рассмотрено образование зародышей новой фазы в упругой среде на примере фазового перехода первого рода в системе взаимодействующих точечных дефектов облучаемого металла.

Образование точечных дефектов сопровождается локальным искажением решётки, которое, в свою очередь, связано с упругими деформациями:

$$dV' = dV \left(1 + \frac{dV' - dV}{dV} \right) = dV (1 + u_{\alpha\alpha}(\vec{r})) \quad (14)$$

где $u_{\alpha\alpha}(\vec{r})$ - шпур тензора деформации (по повторяющимся индексам подразумевается суммирование).

Поскольку в качестве поля параметра порядка в уравнении релаксации (9) выступает концентрация дефектов, то упругие поля от точечных дефектов можно учесть формальной заменой поля параметра порядка:

$$\xi \rightarrow \xi \cdot (1 - u_{\alpha\alpha}(\vec{r})) \quad (15)$$

В главе 3, путём подстановки выражения (15) для изменённого параметра порядка в свободную энергию (10) показано, что в линейном приближении по тензору для описания вклада взаимодействия упругих полей с полем параметра порядка в выражении для свободной энергии достаточно ограничиться слагаемым вида:

$$F_{\text{int}}[\xi, u_{\alpha\alpha}] = \lambda \int d\vec{r} \xi^2(\vec{r}) u_{\alpha\alpha}(\vec{r}) \quad (16)$$

Из выражения (16) следует, что взаимодействие поля параметра порядка с упругими полями носит локальный характер (поля берутся в одной точке). Поэтому, в отличие от приближения среднего поля, взаимодействие (16) даёт ненулевой вклад в свободную энергию системы.

В итоге, в линейном приближении по тензору деформации полная свободная энергия системы «металл с взаимодействующими точечными дефектами» содержит 4 слагаемых:

$$F = F_0 + F[u_{\alpha\beta}] + F[\xi] + F_{\text{int}}[\xi, u_{\alpha\alpha}] \quad (17)$$

Здесь $- F_0(T, V)$ - температурная часть свободной энергии необлучаемого металла;

$- F[u_{\alpha\beta}]$ - упругая часть свободной энергии в приближении закона Гука в изотропной среде (в теории упругости принято все величины относить к единице объёма):

$$F[u_{\alpha\beta}] = \int d\vec{r} \left(\frac{\nu}{2} u_{ii}^2 + \mu u_{\alpha\beta}^2 \right) \quad (18)$$

- ν, μ - коэффициенты Ламэ;
- $F[\xi]$ - функционал поля параметра порядка (10);
- $F_{\text{int}}[\xi, u_{\alpha\beta}]$ - слагаемое, описывающее взаимодействие поля параметра порядка с упругими полями (16).

Свойства системы многих тел удаётся описать, если известно выражение для статистической суммы. Статистическая сумма Z , которая в данном случае выражается через конфигурационный интеграл как по полям параметра порядка, так и по упругим полям.

$$Z = \int D(\xi) D(u_{\alpha\beta}) \exp\left\{-\frac{F}{k_B T}\right\} \equiv \int D(\xi) \exp\left\{-\frac{F_{\text{eff}}[\xi]}{k_B T}\right\} \quad (19)$$

Для дальнейшего описания целесообразно ввести эффективную свободную энергию - функционал поля параметра порядка:

$$F_{\text{eff}}[\xi] = F_0 + F[\xi] - kT \ln \left[\int D(u_{\alpha\beta}) \exp\left\{-\frac{(F[u_{\alpha\beta}] + F_{\text{int}}[\xi, u_{\alpha\beta}])}{k_B T}\right\} \right] \quad (20)$$

При вычислении интеграла, содержащегося в последнем слагаемом формулы (20), осуществлён переход от интегрирования по упругим полям к интегрированию по их Фурье компонентам. В этих новых переменных рассматриваемый интеграл представляет собой интеграл Гауссова типа. В результате, эффективная свободная энергия системы взаимодействующих точечных дефектов облучаемого металла в упругой среде имеет вид:

$$F_{\text{eff}}(\xi, T, V) = F_0 + F[\xi] - \frac{1}{2} \frac{\lambda^2}{\nu + 2\mu} \int d\vec{r} \left[\xi^2 - \langle \xi^2 \rangle \right]^2 \quad (21)$$

В третьей главе диссертации показано, что учёт влияния упругих полей на формирование зародыша новой фазы приводит к замене в уравнении релаксации (9) свободной энергии в виде (10) на эффективную свободную энергию (21). При этом уравнение релаксации принимает вид:

$$\dot{\xi} = -\eta \left(\Omega \Delta \xi + \lambda \xi + B \xi^2 - \Gamma \xi^3 + \frac{2\lambda^2}{\nu + 2\mu} \xi \left[\xi^2 - \langle \xi^2 \rangle \right] \right) \quad (22)$$

В условиях, когда отклонения от сферичности зародыша изначально малы по отношению к среднему радиусу $|R - \langle R \rangle| / \langle R \rangle \ll 1$, подстановка решения (11) в кинетическое уравнение (22) приводит к уравнению роста-затухания зародыша новой фазы в упругой среде, которое в безразмерной форме имеет вид:

$$-\frac{\partial R}{\partial \tau} = 2 \left(\frac{1}{R} - \frac{1}{R_c} \right) - \frac{\Delta_{\theta, \varphi} R}{R^2} - 3\beta_c \left(1 - \frac{4}{3} \left\langle \left(\frac{\xi}{\xi_0} \right)^2 \right\rangle \right) \frac{R - \langle R \rangle}{\langle R \rangle} \quad (23)$$

В соотношении (23) введено обозначение $\beta_c \equiv \lambda_c \xi_0^2 / (\nu + 2\mu)$. Физический смысл параметра β_c - степень «жесткости» решётки. Случай абсолютно «жесткой» решётки соответствует формальному стремлению коэффициентов Ламэ к бесконечности ($\nu, \mu \rightarrow \infty$). При этом степень «жесткости» решётки стремится к нулю $\beta_c \rightarrow 0$.

В третьей главе диссертации получены уравнения роста-затухания среднего радиуса зародыша $\langle R \rangle$ и его отклонения от среднего $|R - \langle R \rangle|$ путём разложения радиуса зародыша новой фазы в ряд по сферическим функциям $Y_{lm}(\theta, \varphi)$. Коэффициенты разложения такого ряда удовлетворяют уравнениям роста-затухания:

$$\frac{dR_0}{d\tau} = -2 \left(\frac{1}{R_0} - \frac{1}{R_c} \right); \quad \frac{dR_{lm}}{d\tau} = [l(l+1) - 2] \left(\frac{1}{R_c(\tau)} - \frac{1}{R_0(\tau)} \right) \frac{R_{lm}(\tau)}{R_0(\tau)} \quad (24)$$

Для описания кинетики роста-затухания коэффициентов разложения радиуса зародыша по сферическим функциям (24) потребовалось введение второго критического радиуса $R_c(\tau)$, имеющего следующий физический смысл: коэффициенты разложения R_{lm} с моментом $l \neq 0$, большие второго критического радиуса, растут, меньшие – затухают:

$$R_c(\tau) = (l(l+1) - 2) \left[3\beta_c \left(1 - \frac{4}{3} \left\langle \left(\frac{\xi}{\xi_0} \right)^2 \right\rangle \right) \right]^{-1} \quad (25)$$

На рисунках 6-7 представлено поведение среднего радиуса R_0 и коэффициента разложения R_{2m} для случая растущего ($\langle R \rangle > R_c$) и затухающего ($\langle R \rangle < R_c$) зародышей.

В случае затухающего зародыша (рис.6) R_{2m} нарастает даже при убывании среднего радиуса, в результате чего зародыш рассасывается, будучи несферическим. Спад со временем коэффициента разложения R_{2m} на заключительном этапе связан с изначальным рассмотрением затухающего зародыша. Кривая в этой области носит качественный характер. В случае растущего зародыша видно - рис.7, что скорость роста коэффициента R_{2m}

выше скорости роста среднего радиуса R_0 , поэтому зародыш быстро приобретает несферическую форму.

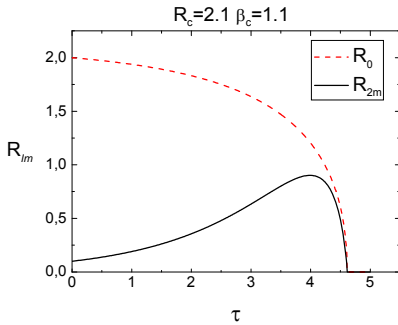


Рис. 6. Зависимость от времени коэффициентов R_0 и R_{2m} в случае затухающего зародыша новой фазы

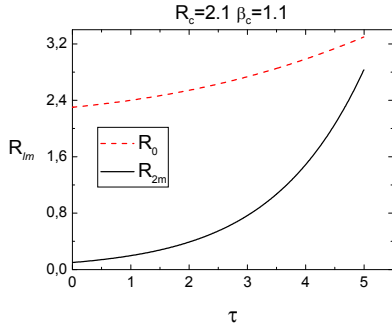


Рис. 7. Зависимость от времени коэффициентов R_0 и R_{2m} в случае растущего зародыша новой фазы

Итак, искажение решетки при рождении точечных дефектов сопровождается возникновением взаимодействия упругих полей решетки и поля параметра порядка, определяющего поведение системы в области значений параметров вблизи фазового перехода. С формальной точки зрения учёт влияния упругих полей на формирование зародыша новой фазы приводит к замене в уравнении для параметра порядка свободной энергии на эффективную свободную энергию.

Исследование кинетики релаксации зародышей новой фазы в упругих полях решетки, проведенное в гл. 3, показало, что учет взаимодействия упругих полей с полем параметра порядка автоматически приводит к появлению несферических зародышей новой фазы. Ненулевой вклад взаимодействия поля параметра порядка с упругим полем в свободную энергию связан с локальностью этого взаимодействия, в отличие от приближения среднего поля. В той же главе диссертации установлено, что данный подход применим для описания фазовых переходов в упругих средах для любых систем, свободная энергия которых имеет вид разложения Ландау (10).

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ:

1. Показано, что рассчитанное значение коэффициента каскадной интенсивности существенно меньше единицы, вследствие процессов внутрикаскадного отжига точечных дефектов, протекающих на заключительной стадии релаксации каскада атомных соударений.
2. Установлено, что отсутствие теплового равновесия между решёткой и подсистемой электронов проводимости в каскадной области повреждений приводит к снижению примерно в 2 раза коэффициента каскадной эффективности по сравнению с расчётом этой же величины в предположении теплового равновесия (в момент времени предельный с точки зрения применения ММД - $\sim 10^{-10}$ сек от начала каскада).
3. Показано, что скорость генерации дефектов к моменту окончания заключительной стадии релаксации каскада атомных столкновения снижается на порядок по сравнению со значением, рассчитанным по NRT – стандарту.
4. Установлено, что зарождение вакансионных пор представляет собой последовательный процесс развития неустойчивостей двух типов в системе взаимодействующих точечных дефектов облучаемого металла. Первый тип связан с кинетической неустойчивостью однородного распределения вакансий в присутствии примеси замещения, второй – с динамической неустойчивостью растущего «вакансионного облака» по отношению к большой флуктуации плотности вакансий в нём (каскадное зарождение кластера вакансий).
5. Показано, что воздействие упругих полей на процесс образования зародыша новой фазы приводит к возможности несферического роста-затухания зародышей новой фазы.

Основные результаты диссертации отражены в следующих работах:

Публикации в журналах, рекомендованных ВАК:

1. Девятко Ю.Н., Хомяков О.В. Механизм формирования несферических зародышей новой фазы // Физика и химия обработки материалов. – 2009. - №2. - С.41-46.
2. Девятко Ю.Н., Хомяков О.В. Релаксация энергии между решёткой и электронами. Метод функций Грина // Физика и химия обработки материалов. – 2009. - №4. - С.5-11.
3. Девятко Ю.Н., Заболотный В.Т., Хомяков О.В. Кинетические параметры каскада атомных соударений // Физика и химия обработки материалов. – 2009. - №5. - С.13-20.
4. Девятко Ю.Н., Каган М.Ю., Хомяков О.В. Новый механизм образования вакансионных пор // Физика низких температур. – 2010. - Т. 36, №4. - С. 398-402.

Публикации в сборниках трудов российских и международных конференций и семинаров:

5. Девятко Ю.Н., Хомяков О.В. Релаксация энергии между решёткой и электронами. Метод функций Грина // Научная сессия МИФИ-2007. - Т.5. - С. 184.
6. Девятко Ю.Н., Хомяков О.В. Механизм формирования несферических зародышей новой фазы в упругой среде // Труды XVIII международной конференции «Взаимодействие ионов с поверхностью ВИП-2007». Звенигород. - Т. 3. - С. 70-73.
7. Девятко Ю.Н., Хомяков О.В. Релаксация энергии между решёткой и электронами. Метод функций Грина // 5-ая Курчатовская молодёжная научная школа. М.: 2007, РНЦ ИК. - Сборник аннотаций работ. - С. 96.
8. Девятко Ю.Н., Хомяков О.В. Механизм формирования несферических зародышей новой фазы // Научная сессия МИФИ-2008. - Т.4. - С. 124.
9. Девятко Ю.Н., Хомяков О.В. Двухступенчатый механизм зарождения пор в облучаемом металле // Семинар: «Теория и многоуровневое моделирование дефектов, явлений и свойств материалов ядерной техники» (ТММ-2008) 4-6 июня 2008 г., Москва, ВНИИНМ. - С. 55.

10. Девятко Ю.Н., Хомяков О.В. Двухступенчатый механизм зарождения пор в облучаемом металле // Научная сессия МИФИ-2009. - Т.2. - С.124.
11. Девятко Ю.Н., Плясов А.А., Хомяков О.В. Механизмы теплопроводности в каскадах атомных соударений // Научная сессия МИФИ-2010. - Т.2. - С. 308.
12. Девятко Ю.Н., Хлунов А.В., Хомяков О.В. Механизмы теплопередачи в каскадах атомных соударений и их влияние на процессы внутрикаскадной рекомбинации // Труды XX международной конференции «Взаимодействие ионов с поверхностью ВИП-2011». Звенигород. – Т. 2. – С. 77-80.
13. Девятко Ю.Н., Каган М.Ю., Хомяков О.В. Новый механизм образования вакансионных пор // Труды XX международной конференции «Взаимодействие ионов с поверхностью ВИП-2011». Звенигород. – Т. 2. – С. 81-84.