

К теории распухания металлов, облученных быстрыми нейтронами

Ю. В. КОНОБЕЕВ, А. В. СУББОТИН

УДК 620.192.53

Существующие представления [1, 2] о распухании металлов, облученных потоком быстрых нейтронов до высоких интегральных доз, базируются на теории образования и роста зародышей новой фазы — вакансионных пор — в стационарных условиях пересыщения металла вакансиями и атомами в междоузлиях. В таком подходе подразумевается существование некоторого механизма выноса атомов на поверхность кристаллических зерен, приводящего в конечном счете к уменьшению плотности материала. В работах [1,2] рост пор рассматривается как квазистационарный процесс, в котором благодаря действию неизвестного механизма диффузионные потоки дефектов вдали от поры различны. Если этот механизм не привлекать при рассмотрении, то рост пор в стационарном процессе должен отсутствовать. Далее будет показано, что наблюдаемые на опыте зависимости распухания металлов от дозы и температуры можно удовлетворительно описать на основе нестационарных уравнений диффузии, не рассматривая новые механизмы.

Предлагается следующая упрощенная картина распухания. При воздействии потока быстрых нейтронов в каждой точке зерна возрастают со временем концентрации вакансий и междоузленных атомов. При этом через поверхности зерна и внутренних стоков (поры, петли дислокаций) проходит суммарный диффузионный поток

$$J = \nabla (B_V - B_I),$$

где

$$B_V = D_V C_V, B_I = D_I C_I, \text{ а } C_V \text{ и } C_I$$

концентрации вакансий и атомов в междоузлиях, отсчитанные от их равновесных значений в отсутствие облучения; D_V и D_I — коэффициенты диффузии вакансий и атомов в междоузлиях. Для простоты предположим, что зародыши пор существуют в зерне до облучения и что происходит лишь линейный отжиг дефектов, т. е. концентрации C_V и C_I удовлетворяют следующим уравнениям:

$$\frac{\partial C_V}{\partial t} = D_V \Delta C_V - \alpha_V C_V + J_0; \quad (1)$$

$$\frac{\partial C_I}{\partial t} = D_I \Delta C_I - \alpha_I C_I + J_0. \quad (2)$$

Здесь α_V и α_I — скорости захвата дефектов стоками (дислокации, включения); $J_0 = \varphi \sigma \eta / \Omega$, где φ — поток нейтронов; σ — сечение столкновения нейтрона с атомом металла; η — число дефектов, создаваемых одним нейтроном; Ω — объем, приходящийся на вакансию и атом в междоузлии. Предположим далее, что линейный отжиг контролируется только диффузией дефектов, так что $\alpha_V = \beta D_V$, $\alpha_I = \beta D_I$, где β — некоторая постоянная, пропорциональная плотности стоков.

В принятой картине процесса распухание прекращается после достижения концентрациями C_V и C_I их стационарных значений. Рост же зерен происходит в результате того, что благодаря большей по сравнению с вакансиями подвижности атомов в междоузлиях на поверхность зерна поступает больше атомов, чем уходит с нее. Происходящее при этом одновременное обогащение внутренних областей зерна вакансиями может приводить к их коагуляции с образованием новых пор, вакансионных петель и т. д.

В принятых предположениях функции B_V и B_I , удовлетворяющие одинаковым начальным $B_{V,I}(r, 0) = 0$ и граничным условиям $B_{V,I}(r, t)|_S = 0$ (на поверхности стоков), отличаются лишь зависимостью от времени, т. е. их можно представить в виде $B_V = f(r, D_V t)$ и $B_I = f(r, D_I t)$, где f — функция, удовлетворяющая (1) и (2). Отсюда следует, что скорость роста объема зерна, равная $\frac{dV}{dt} = \Omega \int J dS$ (здесь интегрирование производится по поверхности зерна), может быть записана в виде

$$\frac{dV}{dt} = S \Omega [g(D_V t) - g(D_I t)], \quad (3)$$

где $g(t) = \int \nabla f(r, t) dS / S$; S — поверхность зерна. Пренебрегая в правой части (3) движением границы зерна и интегрируя уравнение, найдем относительное изменение объема зерна к моменту времени t :

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{3\Omega}{\bar{R}} \left[\frac{1}{D_V} \int_0^{D_V t} g(\tau) d\tau - \frac{1}{D_I} \int_0^{D_I t} g(\tau) d\tau \right], \quad (4)$$

где $\bar{R} = 3V/S$ — средний размер зерна. Из выражения (4) ясно виден эффект насыщения распухания при $D_V, I t \rightarrow \infty$. Возможно, что

наблюдаемое на опыте явление насыщения распухания [3] соответствует именно такой ситуации.

Для модельной задачи о распухании сферического зерна без внутренних стоков в виде пор

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{6\phi\sigma\eta}{R} \times \int_0^t \left(\sum_{k=1}^{\infty} \lambda_k^{-2} [e^{-\lambda_k^2 D_V \tau} - e^{-\lambda_k^2 D_I \tau}] \right) d\tau, \quad (5)$$

где $\lambda_k^{-2} = \frac{1}{l^2} + \frac{\pi^2 k^2}{R^2}$; $\frac{1}{l^2} = \beta$. В этой задаче при $l \ll R$ фактическим параметром является отношение $D_{V,I} t / l^2$. При $D_{V,I} t \ll l^2$ вид решения легко определить на основании простых физических соображений: при $D_{V,I} t \ll l^2$ до границы зерна за время облучения t смогут прийти и «достроить» ее лишь дефекты, созданные в слое толщиной $\sim \sqrt{D_I t}$. Число созданных нейтронами дефектов в этом слое, очевидно, равно $J_0 t S \sqrt{D_I t}$. Предполагая, что атомы в междоузлиях более подвижны, чем вакансии, т. е. $D_I > D_V$, находим с точностью до несущественного численного множителя порядка единицы (равного $6/\sqrt{\pi}$ в случае сферы)

$$\frac{\Delta V}{V} \simeq \frac{J_0}{R} t^{3/2} (\sqrt{D_I} - \sqrt{D_V}) = \frac{\sigma\eta}{R\sqrt{\phi}} (\phi t)^{3/2} (\sqrt{D_I} - \sqrt{D_V}). \quad (6)$$

Можно показать, что в противоположном предельном случае $D_{V,I} t \gg l^2$ происходит насыщение распухания, причем $\frac{\Delta V}{V} \sim l^3 \left(\frac{1}{D_V} - \frac{1}{D_I} \right)$. Следовательно, с увеличением температуры распухание достаточно быстро падает до нуля, что должно обусловить относительную узость температурного интервала, в котором наблюдается распухание металлов [2]. Упомянутое выше «насыщение» распухания возникает в результате того, что при $D_{V,I} t \gg l^2$ поверхности зерна смогут достичь лишь дефекты, созданные нейтронами в слое толщиной $\sim l$, равной длине диффузии до аннигиляции дефекта на стоке. Так как число созданных вакансий и атомов в междоузлиях в этом слое одинаково, объем зерна перестает расти.

Отметим, что результат (6) находится в качественном согласии с найденной путем экстраполяции экспериментальных данных [4] зависимостью распухания нержавеющей стали 304 в области температур облучения 370–470° С: $\frac{\Delta V}{V} (\%) = 5 \cdot 10^{-36} \cdot (\phi t)^{1,66} \times [\exp(-6800/RT) - 1,87 \cdot 10^4 \exp(-27000/RT)]$, если предположить, что $D_I > D_V$ и энергия активации диффузии атомов в междоузлиях и вакансий составляет 13,6 и 54 ккал/моль соответственно.

Таким образом, в приведенном выше анализе распухание металла рассматривалось как диффузионный рост кристаллических зерен благодаря большему по сравнению с вакансиями диффузионному потоку атомов в междоузлиях на поверхность зерна. С этой точки зрения наблюдаемую на опыте обедненную петлями и порами приграничную область зерен можно рассматривать либо как слой вновь выстроившихся атомов, либо как слой, с которого происходит эффективный унос дефектов на поверхность. На основании результатов (4) и (6) можно утверждать, что структурно-чувствительной величиной, определяющей распухание, является коэффициент диффузии дефектов. Уменьшения нежелательного распухания металлов можно добиться путем снижения подвижности атомов в междоузлиях и увеличения подвижности вакансий. Этого, по-видимому, можно достичь соответствующим легированием, что не противоречит результатам изучения распухания никелевых сплавов [5].

В заключение авторы приносят благодарность А. И. Лейпунскому, В. Н. Быкову, И. М. Воронину, В. В. Орлову и Л. В. Павлинову за обсуждение работы и критические замечания.

Поступила в Редакцию 13/VIII 1970 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. T. Claudson et al. Proc. of Symposium on Radiation Damage in Reactor Materials. Vienna, 6–12 June, 1969.
2. S. Harkness, Che-Yu Li. Ibid.
3. J. Holmes. J. Nucl. Mat., 29, 241 (1969).
4. T. Claudson, R. Barker. Trans. Amer. Nucl. Soc., 2, 524 (1970).
5. J. Holmes. Ibid, 12, No. VI, 114 (1969).