«АТОМНАЯ ЭНЕРГИЯ», Т. 37, ВЫП. 2, АВГУСТ 1974

Диффузионно-дислокационный механизм радиационного роста анизотропных кристаллов

САРАЛИДЗЕ З. К.

УДК 621.039.554:539.2

В последнее время радиационному росту делящихся анизотропных материалов, особенно α-урана, уделяется большое внимание. Согласно теории Бакли [1], радиационный рост α-урана вызван гетерогенным зарождением ориентированных вакансионных дислокационных петель в пиках смещений, образуемых осколками деления ядер урана, и гомогенным зарождением междоузельных дислокационных петель путем собирания в соответствующим образом ориентированных плоскостях.

При повышении температуры облучения кристалла подвижность точечных дефектов экспоненциально увеличивается, что приводит к резкому уменьшению среднего стационарного пересыщения решетки точечными дефектами. Поэтому при высокотемпературном облучении кристаллов, особенно неделящихся, вероятность зарождения (как гетерогенного, так и гомогенного) новых дислокационных петель должна быть крайне мала. Однако вследствие анизотропности облучаемого кристалла возможен ориентированный рост, связанный с анизотропией диффузионных потоков точечных дефектов, причем скорость этого роста при достаточно высокой плотности нейтронных потоков может оказаться значительной.

Диффузионный механизм радиационного роста, заключающийся в надстраивании новых атомных плоскостей на границах кристалла или поликристаллических зерен вследствие анизотропного выноса материала из объема, впервые был предложен Зейглом и Опинским [2]. Однако при таком механизме из-за больших диффузионных длин (порядка размеров кристалла или зерна в поликристалле) степени пересыщения, необходимые для обеспечения стационарного роста, могут оказаться достаточно большими и вероятность зарождения дислокационных петель может стать существенной. Естественно, в таких условиях предпочтительнее механизм Бакли.

Ниже рассматривается предлагаемый диффузионно-дислокационный механизм радиационного роста анизотропных кристаллов, аналогичный механизму пластического течения под нагрузкой [3, 4]. Анализируется стационарный радиационный рост анизотропных кристаллов в условиях, когда зарождение новых дислокационных петель не происходит, поэтому полученные в работе результаты справедливы для высокотемпературного облучения.

Диффузионно-дислокационный механизм радиационного роста

В процессе нейтронного облучения в кристалле образуются в большом количестве точечные дефекты-вакансии и междоузельные атомы. При этом возникает пересыщение точечными дефектами, что приводит к возникновению диффузионных потоков к краевым дислокациям, вызывая в определенных условиях их переползание. В изотропных кристаллах при заданных пересыщениях диффузионные потоки вакансий и междоузельных атомов к дислокациям не зависят от пространственной ориентировки дислокаций. Поэтому по истечении некоторого времени после начала облучения (это время определяется плотностью стоков точечных дефектов и их подвижностью) потоки вакансий и междоузельных атомов к любой дислокации выравниваются, в результате устанавливается стационарный режим, во время которого дислокации уже не переползают и служат стоками, где происходит рекомбинация точечных дефектов противоположного типа. При этом пересыщение точечными дефектами поддерживается на некотором постоянном уровне; на любом этапе облучения деформация образца не наблюдается.

Иная картина может быть в реальных анизотропных кристаллах. В работе [5] показано, что учет упругого взаимодействия точечных дефектов с дислокацией в случае изотропных кристаллов приводит к изменению диффузионных потоков, которое при достаточно сильном взаимодействии приводит к эффективному увеличению радиуса захвата точечного дефекта дислокацией. В анизотропных кристаллах энергия взаимодействия точечного дефекта с дислокацией зависит от ориентировки дислокации относительно кристаллографических осей. Вследствие этого ориентировка должна влиять на радиус захвата и тем самым на диффузионные потоки точечных дефектов к дислокации. Если рассматривать кристалл с выраженной одноосной анизотропией, то указанная зависимость приведет к тому, что дислокации с вектором Бюргерса, параллельным оси анизотропии, будут поглощать преимущественно дефекты одного типа (для определенности выберем междоузельные атомы), в то время как дислокации с векторами Бюргерса, перпендикулярными к этой оси, будут поглощать преимущественно дефекты противоположного типа (вакансии). Это разделение потоков, естественно, приведет к такому переползанию дислокаций, при котором в кристалле будут достраиваться лишние атомные плоскости, перпендикулярные к выделенному направлению, и растворяться плоскости, ориентированные вдоль оси анизотропии.

При переползании дислокационного сегмента, концы которого вследствие некоторых причин закреплены, появляется сила линейного натяжения, возрастающая по мере увеличения кривизны дислокации. Максимальная кривизна переползающего дислокационного сегмента зависит от его первоначальной длины. Она тем больше, чем меньше длина сегмента. Поэтому некоторые сегменты с малыми начальными длинами могут быть задержаны силой линейного натяжения. Сегменты же, длины которых окажутся больше некоторого критического значения, определяемого пересыщением точечных дефектов, будут продолжать переползать и при длительном облучении могут стать источниками новых призматических петель больших размеров.

Описанное переползание в конечном счете приведет к деформации кристалла, заключающейся в удлинении вдоль оси анизотропии и сужении в поперечном направлении без существенного изменения объема. Следует отметить, что в многоосных кристаллах к наблюдаемой деформации описанный выше процесс не приводит, хотя он и может изменить первоначальную дислокационную структуру.

Скорость переползания дислокаций и стационарное пересыщение

Для облегчения качественного анализа примем, что в кристалле имеется только два семейства (распределенных однородно и изотропно) краевых дислокаций с векторами Бюргерса вдоль и перпендикулярно к оси анизотропии, ориентировки которых обозначим значками $\|$ и $\perp$. В этом случае $\rho_{\|}=\frac{1}{3}\rho$, $\rho_{\perp}=\frac{2}{3}\rho$, где ρ — плотность дислокаций. Величины, относящиеся к междоузельным атомам и вакансиям, отметим индексами $\pm$. Примем, что диффузия точечных дефектов в кристалле в среднем изотропна, а анизотропия приводит только к ориентационной зависимости диффузионных потоков. Это позволит для потоков точечных дефектов к единице длины дислокации использовать полученные ранее [3, 5] выражения:

$$I_{\|}^{\pm}=\frac{A_{\|}^{\pm}c_0^{\pm}D^{\pm}}{\omega}\left(\Delta^{\pm}\mp\frac{B}{R}\right),\qquad I_{\perp}^{\pm}=\frac{A_{\perp}^{\pm}c_0^{\pm}D^{\pm}}{\omega}\left(\Delta^{\pm}\pm\frac{B}{R}\right). \tag{1}$$

Здесь c_0 — равновесная концентрация; D — коэффициент диффузии; $\Delta=\frac{c-c_0}{c_0}$ — относительное пересыщение; c — истинная концентрация; R — радиус кривизны дислокации; ω — атомный объем;

$$B\approx a^3Gb/kT,$$

где a — период решетки; G — модуль сдвига; b — величина вектора Бюргерса; k — постоянная Больцмана; T — абсолютная температура. Второй член в скобках формул (1) является силой линейного натяжения, умноженной на a^2/kT.

Множители A в формулах (1) учитывают ориентационную зависимость и имеют вид [5]

$$A_{\|}^{\pm}=\frac{2\pi}{\ln(L/r_{\|}^{\pm})},\quad A_{\perp}^{\pm}=\frac{2\pi}{\ln(L/r_{\perp}^{\pm})}, \tag{2}$$

где $L\approx 1/\sqrt{\rho}$ — среднее расстояние между дислокациями; $r_{\|}^{\pm}$, $r_{\perp}^{\pm}$ — радиусы захвата точечных дефектов дислокациями. Они могут быть представлены в виде

$$r_{\|}^{\pm}=\Omega^{\pm}f_{\|},\quad r_{\perp}^{\pm}=f_{\perp}\Omega^{\pm}, \tag{3}$$

где $\Omega^{\pm}$ — локальное изменение объема, вызванное дефектом, $\Omega^{+}>\Omega^{-}$; $f_{\|}$ и $f_{\perp}$ — характеристика ее дилатационного поля дислокации, зависящая от ее ориентировки. Примем, что величины $f_{\|}$ и $f_{\perp}$ по порядку такие же, как аналогичная характеристика для изотропного кристалла:

$$f_0\approx\frac{G^2b}{\pi(\lambda+2G)\,kT}, \tag{4}$$

а анизотропия настолько велика, что разность между $f_{\|}$ и $f_{\perp}$ имеет тот же порядок. Сделанному ранее предположению о преимущественном поглощении дефектов дислокациями определенной ориентировки соответствует случай $f_{\|}>f_{\perp}$.

Зная потоки точечных дефектов, находим

скорости диффузионного переползания дислокаций:

$$V_{\parallel}=\frac{a^2D^*_{\parallel}}{\omega}\left(\Delta^*_{\parallel}-\frac{B}{R}\right),$$

$$V_{\perp}=\frac{a^2D^*_{\perp}}{\omega}\left(\Delta^*_{\perp}-\frac{B}{R}\right), \tag{5}$$

где

$$D^*_{\parallel}=D^+c_0^+A^+_{\parallel}+D^-c_0^-A^-_{\parallel},$$

$$D^*_{\perp}=D^+c_0^+A^+_{\perp}+D^-c_0^-A^-_{\perp},$$

$$\Delta^*_{\parallel}=(D^+c_0^+A^+_{\parallel}\Delta^+-D^-c_0^-A^-_{\parallel}\Delta^-)/D^*_{\parallel}, \tag{6}$$

$$\Delta^*_{\perp}=(D^-c_0^-A^-_{\perp}\Delta^--D^+c_0^+A^+_{\perp}\Delta^+)/D^*_{\perp}.$$

Из формул (5) легко определить критические радиусы кривизны:

$$R^{\text{кр}}_{\parallel}=B/\Delta^*_{\parallel},\quad R^{\text{кр}}_{\perp}=B/\Delta^*_{\perp}. \tag{7}$$

Как будет показано ниже, стационарные значения эффективных пересыщений $\Delta^*_{\parallel}$ и $\Delta^*_{\perp}$, а следовательно, и критические радиусы кривизны сильно зависят от температуры облучения. Зародыши дислокационных петель радиационного происхождения могут развиваться только в том случае, если их радиусы больше критических значений (7). В противном случае они растворятся и не будут участвовать в процессе радиационного роста. Если предположить, что максимальный радиус радиационного зародыша дислокационной петли R_0 не зависит от температуры, то из условия $R^{\text{кр}}=R_0$ можно определить температуру T_0, выше значения которой все зародыши будут исчезать. В этом смысле область температур ($T>T_0$) следует называть высокотемпературной.

Примем для простоты, что единственными стоками точечных дефектов в кристалле являются краевые дислокации. Времена установления стационарных распределений точечных дефектов $\tau^{\pm}\approx(\rho D^{\pm})^{-1}$. При высоких температурах эти времена очень малы и можно считать, что пересыщения $\Delta^{\pm}$ мгновенно достигают стационарных значений. На самом деле, поскольку при переползании дислокаций меняется их плотность и конфигурация, процесс не будет строго стационарным. Однако при малых деформациях, когда плотность дислокаций меняется незначительно, зависимостью $\Delta^{\pm}$ от времени можно пренебречь и считать процесс квазистационарным.

Если принять естественное допущение, что к моменту начала облучения все дислокационные сегменты прямолинейны, то все они начнут переползать одновременно. Однако с течением времени дислокационные сегменты, первоначальные длины которых меньше $2R^{\text{кр}}$, изогнутся до критической кривизны и остановятся, междоузельные атомы и вакансии будут поглощаться ими в равном количестве. Сегменты же с первоначальными длинами более $2R^{\text{кр}}$ силой линейного натяжения не могут быть задержаны и будут переползать непрерывно в течение всего процесса облучения. Поскольку дислокации различной первоначальной длины приобретут критическую кривизну в разное время, процесс радиационного роста, основанный на переползании дислокаций, в общем будет иметь нестационарный характер.

Стационарные пересыщения точечными дефектами $\Delta^{\pm}$ легко определить из условия равенства между числом дефектов, порождаемых радиацией за единицу времени, и числом дефектов, уходящих в стоки и исчезающих в результате объемной рекомбинации. При достаточно высокой интенсивности образования точечных дефектов $\Delta^{\pm}\gg\frac{B}{R}$ для всех разумных длин дислокационных сегментов L и в выражениях потоков можно всегда пренебрегать членом, характеризующим линейное натяжение. (Этого нельзя делать в выражениях для скорости переползания дислокаций, поскольку предполагаемая асимметрия потоков может быть довольно малой, т. е. $(A^+-A^-)/(A^++A^-)\ll 1$, и критический радиус кривизны $R^{\text{кр}}$ может оказаться того же порядка, что и длины дислокационных сегментов, имеющихся в кристалле.) При этих предположениях уравнение баланса имеет вид

$$\omega Q^{\pm}=D^{\pm}c_0^{\pm}\,\frac{\rho}{3}\,(A^{\pm}_{\parallel}+2A^{\pm}_{\perp})\,\Delta^{\pm}+\gamma D^+c_0^+c_0^-\Delta^+\Delta^-, \tag{8}$$

где $Q^+=Q^-=Q$ — число точечных дефектов, образуемых радиацией за единицу времени в единице объема. Последний член в выражении (8) описывает объемную рекомбинацию. Он получен в предположении, что рекомбинация обеспечивается встречей более подвижного междоузельного атома с вакансией при случайном блуждании ($\gamma\approx10^{15}$ *см*^{2}) [6].

Скорость стационарного радиационного роста

Радиусы кривизны дислокаций, захваченных в процесс «стационарного» переползания, всегда больше, чем $R^{\text{кр}}$, и поэтому для простоты в выражениях для скоростей таких дислокаций можно пренебречь членом, описывающим линейное натяжение. Эти дислокации будем называть свободными. Скорость деформации в направлении оси анизотропии можно выразить таким образом:

$$\dot{\varepsilon}_{||} \approx bV_{||}\rho_{||}^{\text{св}}, \tag{9}$$

где $\rho_{||}^{\text{св}}$ — плотность свободных дислокаций с векторами Бюргерса соответствующей ориентировки.

Введем функцию распределения дислокационных сегментов по длинам $f(L)$. Тогда скорость деформации (9) может быть переписана в виде

$$\dot{\varepsilon}_{||} \approx D_{||}^{*}\Delta_{||}^{*}\,\frac{1}{3}\int\limits_{2(B/\Delta_{||}^{*})}^{\infty} f(L)\,dL. \tag{10}$$

Входящая в это выражение величина $\Delta_{||}^{*}$ является известной комбинацией стационарных пересыщений $\Delta^{\pm}$, которые могут быть найдены из уравнений баланса точечных дефектов (8). Дислокации, не вошедшие в выражение (10), являются «паразитными». Они препятствуют эффективному разделению потоков точечных дефектов, достраивающих или растворяющих соответственно ориентированные плоскости. Эти дислокации не влияют на деформацию, но их необходимо учитывать в общем балансе вещества.

Аналогично можно написать выражение для скорости поперечного сужения кристалла, однако ограничимся только анализом скорости радиационного роста вдоль оси анизотропии.

Подставив в (10) решения системы уравнений (8) и предположив, что все $A \approx 1$, получим

$$\dot{\varepsilon}_{||} \approx \frac{\rho D^{-}\xi}{\gamma}\left\{-1+\left(1+\frac{\gamma\omega Q}{D^{-}\rho^{2}}\right)^{1/2}\right\}\int\limits_{L(T)}^{\infty} f(L)\,dL, \tag{11}$$

где

$$L(T) = \frac{6B\gamma\,(D^{+}c_0^{+}+D^{-}c_0^{-})}{\rho D^{-}\xi}\times \left\{-1+\left(1+\frac{\gamma\omega Q}{D^{-}\rho^{2}}\right)^{1/2}\right\}^{-1}. \tag{12}$$

В выражении (11) использованы обозначения:

$$A_{||}^{\pm}+2A_{\perp}^{\pm}=3A, \quad A_{\perp}^{-}A_{||}^{+}-A_{\perp}^{+}A_{||}^{-}=\xi.$$

Рассмотрим два предельных случая.

1. $\gamma\omega Q \ll \rho^{2}D^{-}$ — случай соответствует хорошо развитой дислокационной структуре, высоким температурам или малой интенсивности образования точечных дефектов. В этом предельном случае в системе (8) можно пренебречь рекомбинационным членом. Тогда скорость деформации будет иметь вид

$$\dot{\varepsilon}_{||} \approx \frac{\omega Q}{\rho}\,\xi\int\limits_{L_1(T)}^{\infty} f(L)\,dL, \tag{13}$$

где

$$L_1(T) \simeq \frac{B\rho}{\xi\omega Q}\,(D^{+}c_0^{+}+D^{-}c_0^{-}). \tag{14}$$

2. $\gamma\omega Q \gg \rho^{2}D^{-}$ — обратный предельный случай; при этом скорость деформации определяется в виде

$$\dot{\varepsilon}_{||} \approx \left(\frac{\omega Q}{\gamma}\,D^{-}\right)^{1/2}\xi\int\limits_{L_2(T)}^{\infty} f(L)\,dL, \tag{15}$$

где

$$L_2(T) \simeq \frac{B}{\xi}\left(\frac{\gamma}{\omega Q D^{-}}\right)^{1/2}(D^{+}c_0^{+}+D^{-}c_0^{-}). \tag{16}$$

Исследуем более подробно наиболее характерные зависимости скорости деформации роста вдоль оси анизотропии от температуры и интенсивности образования точечных дефектов. При повышении температуры критическая длина дислокационного сегмента (14) увеличивается и при некоторой температуре может стать больше максимальной длины существующих в кристалле дислокационных сегментов. При такой температуре интеграл в выражении (13) и тем самым скорость деформации $\dot{\varepsilon}_{||}$ обратятся в нуль. По этой же причине скорость роста может стать равной нулю при уменьшении интенсивности образования точечных дефектов. Из выражения (14) ясно, что температура, при которой $\dot{\varepsilon}_{||}$ обращается в нуль, увеличивается с ростом Q.

При понижении температуры критическая длина уменьшается. В режим стационарного переползания захватываются более короткие дислокационные сегменты, и скорость деформации увеличивается. Температурная зависимость скорости роста на этом этапе будет очень чувствительной к распределению дислокационных сегментов по длинам. Согласно выражению (13), скорость деформации при понижении температуры растет и при температуре, когда критическая длина становится меньше наиболее короткого дислокационного сегмента, выходит на постоянный уровень:

$$\dot{\varepsilon}_{||} \approx \omega Q\xi. \tag{17}$$

В этом случае в деформацию будут вносить вклад все дислокации нужной ориентировки.

Однако с понижением температуры существенной становится объемная рекомбинация точечных дефектов. Объемная рекомбинация препятствует разделению потоков точечных дефектов и приводит к уменьшению скорости деформации. Таким образом, в температурной зависимости $\dot{\varepsilon}_{\parallel}$ должен существовать максимум, высота и положение которого будут зависеть от всех параметров, входящих в выражение (11). Наибольшее возможное значение скорости ($\dot{\varepsilon}_{\parallel} \approx \omega Q \xi$) можно получить в том случае, когда в режим стационарного переползания вовлекаются все дислокации еще до того, как существенной станет объемная рекомбинация.

При высокой интенсивности образования точечных дефектов ($Q \approx 10^{18}$ *см*$^{-3}\cdot$*сек*$^{-1}$) и больших плотностях дислокаций ($\rho \approx 10^9$ *см*$^{-2}$); если для качественных оценок применить типичные значения энергий миграции и образования вакансий ~ 1 *эв* и предположить, что параметр $\xi \approx \ln \frac{\Omega^+}{\Omega^-} \ln \frac{f_{\parallel}}{f_{\perp}} \Big/ \left[\ln \frac{L}{r_0} \right]^2$ имеет порядок 10^{-2}, можно ожидать величину максимальной скорости радиационного роста порядка 10^{-7} *сек*$^{-1}$.

Заключение

Приведенное выше математическое описание диффузионно-дислокационного механизма радиационного роста применимо только для высокотемпературного облучения неделящихся материалов в достаточно интенсивном потоке быстрых нейтронов. К сожалению, в настоящее время такие экспериментальные данные отсутствуют и нет возможности проверить результаты теоретического рассмотрения. Однако есть основание полагать, что при высоких температурах облучения роль указанного механизма будет весьма существенной и в радиационном росте α-урана.

При высоких температурах обедненные зоны или пики смещений вследствие большой подвижности точечных дефектов отжигаются почти мгновенно и вероятность зарождения дислокационных петель исчезающе мала. В этих условиях радиационный рост должен осуществляться в соответствии с описанным механизмом. При понижении температуры, если становится возможным зарождение дислокационных петель, ориентационная зависимость критического размера будет способствовать выживанию петель нужной ориентировки и скорость радиационного роста будет увеличиваться за счет увеличения плотности «свободных» дислокаций. При низких же температурах, когда анизотропный выброс материала из обедненных зон способствует ориентированному зарождению вакансионных дислокационных петель, роль ориентационной зависимости диффузионных потоков становится пренебрежимо малой, и рост определяется принудительным увеличением общей площади этих зародй.

Поступила в Редакцию 7/II 1973 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Buckley S.** AERE-R 5262.
2. **Seigl L., Opinsky A.** Nucl. Sci. and Engng, 1957, v. 2, p. 38.
3. **Косевич А. М., Саралидзе З. К., Слезов В. В.** ЖЭТФ, 1966, т. 50, с. 958.
4. **Косевич А. М., Саралидзе З. К., Слезов В. В.** «Физика твердого тела», 1967, т. 9, с. 895.
5. **Маргвелашвили И. Г., Саралидзе З. К.** «Физика твердого тела», 1973, т. 15, с. 2665.
6. **Дамаск А., Динс Дж.** Точечные дефекты в металлах. М., «Мир», 1966, гл. 11.