

УДК 620.192.50

Влияние предварительной холодной деформации на радиационное распухание металла

ДЕМИН Н. А., КОНОБЕЕВ Ю. В.

Предварительное холодное деформирование на 15—20% в настоящее время широко используется как способ снижения радиационного распухания аустенитных нержавеющей сталей — главного конструкционного материала элементов активных зон быстрых реакторов и, вероятно, будущих термоядерных реакторов первого поколения [1, 2]. Поэтому выяснение физических механизмов влияния предварительно создаваемых дислокаций на распухание материала представляет практический и научный интерес.

Предположения [3—5] о постоянстве плотности предварительно созданных дислокаций во время облучения не подтверждаются экспериментальными данными: плотность дислокаций в холодное деформированном материале вначале уменьшается после сравнительно малого флюенса, а затем в результате зарождения и роста петель межузельных атомов приближается к характерной для материала, облученного в отожженном состоянии [6]. Имитационные эксперименты показали, что положительное влияние холодной деформации снижается с ростом флюенса ионов [7]. Согласно данным реакторных испытаний [8], предварительная холодная деформация аустенитной нержавеющей стали 304 приводит к сдвигу температурной кривой распухания в сторону повышенных температур и к увеличению максимального распухания. Таким образом, влияние холодной деформации оказывается более сложным, чем можно было бы ожидать исходя из простейших соображений.

В связи с этим был предпринят анализ кинетики распухания металла под облучением с учетом радиационно-стимулированного отжига исходных дислокаций. В основу анализа положено предположение об уменьшении плотности дислокаций, введенных при холодной деформации, в начальные моменты облучения благодаря наличию достаточно интенсивных стоков, не обладающих свойством предпочтительно захватывать тот или иной точечный дефект (так называемые «нейтральные стоки»). В качестве таких стоков рассматриваются винтовые дислокации, создаваемые при холодном деформировании примерно в равном числе с краевыми дислокациями. Результаты анализа показывают, что подобное представление позволяет лучше объяснить наблюдаемые закономерности распухания металла, облучаемого в холодное деформированном состоянии.

Теоретический анализ кинетики распухания металла проводился на основе уравнения для функции распределения $f(X, t)$ вакансионных пор по числу X содержащихся в них вакансий

в момент времени t . Это уравнение для случая, когда поры присоединяют и испаряют одиночные точечные дефекты, приобретает вид

$$\dot{f}(X, t) = J(X-1, t) - J(X, t), \quad (1)$$

где $J(X, t)$ — поток пор вдоль оси значений X .

Для решения уравнения (1) был использован подход, близкий к изложенному в работе [9] и основанный на разбиении оси диаметров пор d по группам. Число пор N_i , отвечающее i -й группе, описывается уравнением, которое легко получить из уравнения (1), проинтегрировав его по всем X данной группы.

Из групп выбиралась группа с номером $i = j$, которой принадлежит критический диаметр поры

$$d_c = 4\gamma\Omega/KT \ln \frac{D_V C_V - D_i C_i}{D_V C_{V_0}}, \quad (2)$$

где D_V и D_i — коэффициенты диффузии вакансий и межузельных атомов; C_V и C_i — их концентрации, установившиеся в металле под облучением; γ — поверхностная энергия; $C_{V_0} = \exp(-E_V^f/KT)$ — равновесная концентрация вакансий; E_V^f — энергия образования вакансий.

Для растущих пор с диаметром $d_i > d_c$ для описания перехода пор из i -й группы в $(i+1)$ -ю группу полагали, что поток $J(X, t)$ характеризуется равенством

$$J(X_i, t) = V_i(t) N_i, \quad (3)$$

в котором $V_i(t)$ определяется выражением для скорости изменения по времени диаметра пор [см. формулу (9)].

Для растворяющихся пор ($d_i < d_c$) при описании перехода пор из группы i , расположенной левее группы j на оси диаметров, в $(i-1)$ -ю группу полагали, что

$$J(X_{i-1}, t) = W_{i-1}(t) N_i, \quad (4)$$

где

$$W_i(t) = \frac{d_i^3 - d_{i-1}^3}{d_{i+1}^3 - d_i^3} V_i(t). \quad (5)$$

Порой наименьшего размера считалась дивакансия. Поэтому левая граница оси диаметров соответствовала размеру d_0 , определявшемуся по условию $2 = \pi d_0^3 / 6\Omega$, где Ω — атомный объем.

При росте стоков в облучаемом металле критический размер поры в разные моменты времени может соответствовать разным группам. В целях более точного описания поведения пор в «критической группе» j полное число пор $N(j)$ этой группы подразделяли на две части: δ_1 , относящуюся к порам диаметром $d_{j-1} \leq d \leq d_c$, которые уменьшаются в своих размерах, и δ_2 , характе-

ризующую поры размерами $d_c < d \leq d_j$, переходящие в соседнюю группу справа ($\delta_1 + \delta_2 = 1$).

При указанных выше приближениях система уравнений для N_i , использованная в настоящей работе, имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \dot{N}_i &= W_{i-1}N_i - W_iN_{i+1} \quad \text{для } 1 \leq i \leq j-2; \\ \dot{N}_{j-1} &= W_{j-2}N_{j-1} - W_{j-1}\delta_1N_j; \\ \dot{N}_j &= W_{j-1}\delta_1N_j - V_j\delta_2N_j; \\ \dot{N}_{j+1} &= V_j\delta_2N_j - V_{j+1}N_{j+1} + J_V(t); \\ \dot{N}_i &= V_{i-1}N_{i-1} - V_iN_i, \quad i \geq j+2, \end{aligned} \quad (6)$$

где $J_V(t)$ — скорость зарождения пор.

Концентрации вакансий и межузельных атомов определялись по известной системе стационарных уравнений баланса:

$$\begin{aligned} K - \mu_R D_i C_i C_V - D_V C_V (D + D_0 + L) + \\ + D_V C_{V_0} (D_1 + D_0 + L_1) &= 0; \\ K - \mu_R D_i C_i C_V - D_i C_i (D + D_0 + \eta L) &= 0, \end{aligned} \quad (7)$$

где K — скорость объемной генерации точечных дефектов бомбардирующими частицами; μ_R — коэффициент рекомбинации вакансий с межузельными атомами. Значения D и L характеризуют интенсивности пор и дислокаций как стоков точечных дефектов, D_1 и L_1 — их интенсивности как термических источников вакансий. Параметр η отражает повышенную способность краевых дислокаций поглощать межузельные атомы, D_0 учитывает интенсивность нейтральных стоков, отличающихся от пор.

Скорость изменения диаметра поры d выбиралась в предположении, что кинетика роста является поверхностно-контролируемой, т. е.

$$\dot{d} = \frac{2}{b_0} \left[D_V C_V - D_i C_i - D_V C_{V_0} \exp\left(\frac{4\gamma\Omega}{dKT}\right) \right], \quad (8)$$

где b_0 — независимый от температуры подгоночный параметр. Некоторые расчеты были выполнены для диффузионно-контролируемого роста пор (см. обсуждение далее). В этом случае, как известно, в правой части выражения (8) вместо множителя $2/b_0$ стоит $4/d$.

Выбор выражения для \dot{d} определяет конкретные формулы для D , D_1 и V_i . В частности, при использовании выражения (8) скорость

$$V_i(t) = \frac{6d_i^2}{b_0} \frac{D_V C_V - D_i C_i - D_V C_{V_0} \exp(4\gamma\Omega/KTd_i)}{d_i^3 - d_{i-1}^3}. \quad (9)$$

Скорость зарождения пор $J_V(t)$ принималась равной

$$J_V(t) = AK/d_c^3, \quad (10)$$

где постоянная A — параметр подгонки. Выражение (10) не имеет теоретического обоснования, однако позволяет получить достаточно хорошее количественное описание концентрации пор в не-

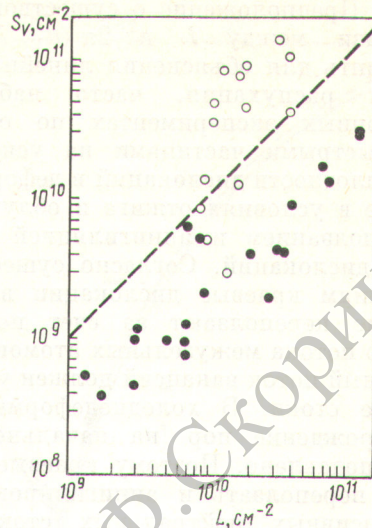


Рис. 1. $S_V = 2\pi \langle d_V \rangle N_V$ как функция L — суммарной длины петель и дислокаций в облученных быстрыми нейтронами отожженных аустенитных пержавеющих сталях 316 (●) и 304 (○); — — — $S_V = L$

ржавеющей стали 316 после облучения в быстром реакторе в интервале температуры 350—700 °С. Выражения для $J_V(t)$, использованные в работах [3, 4, 9], не обладают преимуществом перед формулой (10), так как содержат ряд параметров, значения которых трудно обосновать.

Значение L в уравнениях (7) полагалось равным суммарной длине краевых дислокаций и петель в единице объема, а $L_1 = L$. Из-за отсутствия в настоящее время количественной теории зарождения дислокаций под облучением возрастание L у облучаемого металла в результате зарождения и роста петель учитывалось эмпирически, т. е. суммарная длина L в каждый момент времени полагалась прямо пропорциональной суммарному диаметру пор:

$$L = \rho_d^k + \beta 2\pi \langle d_V \rangle N_V, \quad (11)$$

где $\langle d_V \rangle$ и N_V — средний диаметр и концентрация пор; ρ_d^k — плотность краевых дислокаций, введенных в материал при его обработке перед облучением (ρ_d^k меняется во времени в результате переползания и аннигиляции краевых дислокаций); β — постоянная для данного металла. Из рис. 1 видно, что данные реакторных испытаний отожженной нержавеющей стали 316 подтверждают наличие такой связи [10, 11]. Согласно этим данным $\beta = 5,5 \pm 2,0$ в интервале температуры 370—700 °С и дозы облучения до 20—30 смещ./атом. Приводимые ниже результаты были получены для $\beta = 5,5$. Из рис. 1 видно также, что при высоком флюенсе и низкой температуре такое соотношение справедливо и для облученной в реакторе нержавеющей стали 304 [12], если предположить, что начальная плотность дислокаций $\rho_d = 10^{10}$ см⁻²

и $\beta \approx 0,24$. Предположение о существовании линейной связи между L и $2\pi \langle d_V \rangle N_V$ необходимо вводить для объяснения линейной дозовой зависимости распухания, часто наблюдаемой в имитационных экспериментах по облучению металлов быстрыми частицами на ускорителях.

Падение плотности дислокаций в деформированном металле в условиях отжига и облучения вызвано переползанием и аннигиляцией винтовых и краевых дислокаций. Согласно существующим представлениям краевые дислокации в облучаемом металле переползают за счет поглощения избыточного потока межузельных атомов. Нескомпенсированный поток вакансий должен уходить на нейтральные стоки. В холоднотемпературном металле зарождение пор на начальной стадии облучения подавлено. Поэтому краевые дислокации будут переползать и аннигилировать, если роль интенсивных нейтральных стоков будут играть винтовые дислокации, которые согласно изотропной теории упругости не взаимодействуют на далеких расстояниях с точечными дефектами — дилатационными центрами. Известно, что прямолинейная винтовая дислокация неустойчива по отношению к переползанию при поглощении точечных дефектов и приобретает форму геликоида. Раскручивание геликоидов приводит к движению винтовых дислокаций, к их взаимному сближению и к последующей аннигиляции в том случае, когда эти дислокации имеют противоположные знаки.

Если предположить, что процесс аннигиляции переползающих краевых и винтовых дислокаций, введенных в материал при холодной деформации, происходит независимо от эволюции растущих под облучением петель дислокаций, то изменение во времени плотности краевых и винтовых дислокаций ρ_d^k и ρ_d^b можно описать следующими уравнениями:

$$\dot{\rho}_d^k = -\alpha_k (\rho_d^k)^2 (\eta D_i C_i - D_V C_V + D_V C_{V0}), \quad (12)$$

$$\dot{\rho}_d^b = -\alpha_b (\rho_d^b)^2 (D_V C_V - D_i C_i - D_V C_{V0}),$$

где α_k и α_b — постоянные, равные отношению учетверенного радиуса аннигиляции к вектору Бюргерса. Согласно грубой оценке $\alpha_k = 100$, если в нержавеющей стали максимально достижимая плотность дислокаций составляет $\sim 10^{12}$ см⁻² и соответствующее ей среднее расстояние между дислокациями ~ 160 Å совпадает с радиусом сильного притяжения, при котором дислокации противоположного знака начинают скользить одна к другой и аннигилировать.

В расчетах были использованы следующие значения параметров: $E_V^I = 1,6$ эВ; $D_V = 0,6 \exp(-1,3 \text{ эВ}/kT)$ см²/с; $\mu_R = 8 \cdot 10^{16}$ см⁻²; $\gamma = 10^3$ эрг; $\Omega = 1,17 \cdot 10^{-23}$ см³ [$K = 10^{-6}$ смещ./атом·с]. Путем совместного решения уравнений (6)–(8), (12) рассчитывались

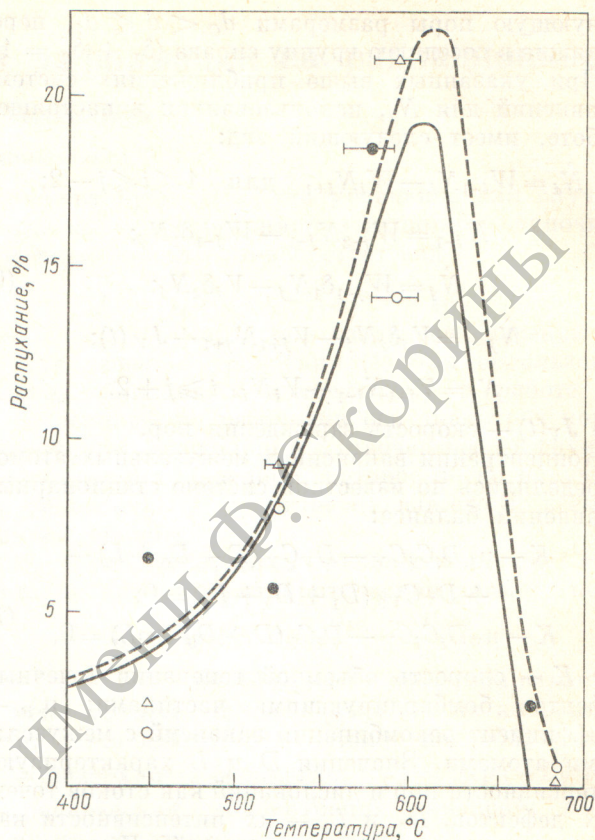


Рис. 2. Температурная зависимость распухания аустенитной нержавеющей стали, облученной в отожженном (—) и предварительно холоднотемпературном состоянии (---): ● — отожженная нержавеющая сталь, доза 72 смещ./атом; ○ — холоднотемпературная (20%) сталь, доза 81 смещ./атом; Δ — данные электронной микроскопии для холоднотемпературной стали 316, доза 81 смещ./атом

$\langle d_V \rangle$, N_V , суммарная плотность дислокаций и распухание $S = (\Delta V/V)/(1 - \Delta V/V)$, где $\Delta V/V$ — доля объема, занимаемая порами. Численные расчеты были проведены для следующих исходных состояний материала и условий облучения.

А. Отожженная нержавеющая сталь с исходной плотностью дислокаций 10^9 см⁻². Интервал температуры 300–650 °C. Дозы облучения до 72 смещ./атом (считалось, что в реакторах типа БОР-60, ЕВР-II воздействие флюенса нейтронов 10^{22} нейтр./см² при $E > 0,1$ МэВ соответствует дозе 5,8 смещ./атом).

Б. Холоднотемпературный материал с начальной плотностью дислокаций $3 \cdot 10^{11}$ см⁻², облученный в тех же условиях, что и материал А.

Результаты расчетов и обсуждение. Расчеты характеристик пор для материала А были проведены для проверки разумности принятой модели и выбора параметров. Как видно из рис. 2, экспериментально найденную температурную зависимость распухания нержавеющей стали 316, облу-

ченной в отожженном состоянии в реакторе ЕВР-II до 72 смещ./атом [13, 14], удается удовлетворительно воспроизвести, если коэффициент A в формуле (10) выбрать равным $8 \cdot 10^{-8}$, а $b_0 = 2000 \text{ \AA}$ [формула (8)] и $\eta = 1,033$. Попытки описать экспериментальные данные в случае диффузионно-контролируемого роста пор оказались безуспешными. Поэтому расчеты для отожженного и холодноедеформированного материала были проведены в предположении о поверхностно-контролируемой кинетике роста пор.

Как и ожидалось, наблюдаемое падение плотности дислокаций в холодноедеформированном материале после облучения до 10 смещ./атом, а также температурную зависимость распухания не удается объяснить, предположив, как обычно, что плотность введенных дислокаций остается неизменной во время облучения ($\rho_{d0}^k = 3 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$, $\rho_{d0}^b = 0$). Расчеты показали, что этот вывод справедлив и в том случае, когда интенсивность винтовых дислокаций, как нейтральных стоков, сохраняет умеренное ($\rho_{d0}^b = 10^{10} \text{ см}^{-2}$) и постоянное значение, а плотность краевых дислокаций меняется под облучением согласно уравнению (12). Наблюдаемое поведение плотности дислокаций удается описать, если ρ_d^k и ρ_d^b в начальный момент одинаковы, а затем меняются согласно уравнениям (12). На рис. 2 пунктир иллюстрирует температурную зависимость распухания материала Б, рассчитанную для дозы 81 смещ./атом и $\alpha_k = \alpha_b = 100$. Видно, что предварительная холодная деформация приводит к сдвигу температурной кривой примерно на 15°C в сторону повышенных температур и к увеличению максимального распухания. Этот эффект становится заметнее при увеличении α_k и α_b . Предсказываемое поведение распухания качественно согласуется с данными реакторных испытаний нержавеющей стали 304 в холодноедеформированном состоянии [8], а также с данными для нержавеющей стали 316 [13]. Расчеты показали, что, изменяя соотношения между плотностью краевых и винтовых дислокаций в исходной микроструктуре металла, можно заметно изменить как температурный ход, так и максимальное значение распухания.

Вычисленная зависимость распухания отожженного и холодноедеформированного материалов для интервала дозы 0—50 смещ./атом близка к степенной, т. е. $S \sim (Kt)^n$, где $n \approx 1,4$ при 400°C , а затем растет, достигая 3,6 и ~ 5 при 650°C для отожженного и деформированного материалов соответственно. Расчеты показали, что холодная деформация приводит к возрастанию «инкубационного периода» распухания: в области распухания 0,1 % «инкубационная» доза при 600°C составляет 8 и 20 смещ./атом для материалов А и Б соответственно. Более крутой рост распухания холодноедеформированного материала

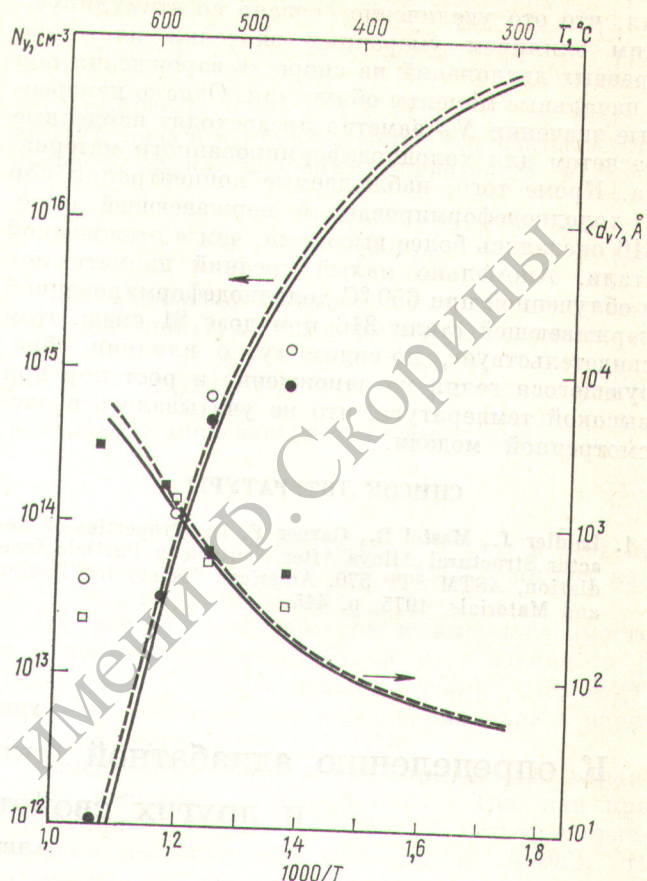


Рис. 3. Температурные зависимости концентрации пор и среднего диаметра, рассчитанные для нержавеющей стали 316: — — отожженное состояние, доза 72 смещ./атом (● — N_V ; ■ — $\langle d_V \rangle$); - - - - - холодноедеформированное состояние, доза 81 смещ./атом (○ — N_V ; □ — $\langle d_V \rangle$).

означает, что положительное влияние предварительной холодной деформации уменьшается по мере возрастания дозы облучения.

На рис. 3 приведены теоретические зависимости (для случая $\alpha_k = \alpha_b = 100$) концентраций и среднего диаметра пор от температуры облучения, а также электронно-микроскопические данные [14] для нержавеющей стали 316, облученной в отожженном и холодноедеформированном (20 %) состояниях в реакторе ЕВР-II до флюенса нейтронов $1,25 \cdot 10^{23}$ и $1,4 \cdot 10^{23}$ нейтр./см² ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) соответственно. Из рис. 3 видно, что, за исключением низких температур, согласие с экспериментом довольно удовлетворительное для отожженной нержавеющей стали. Для холодноедеформированной стали такое согласие наблюдается только в интервале температуры 500—600 °C. Примерно при 650°C и дозе 72 смещ./атом рассчитанные концентрации пор и средний диаметр оказались больше у материала Б ($N_V = 4,2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$, $\langle d_V \rangle = 5450 \text{ \AA}$), а не у материала А ($N_V = 3,4 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$, $\langle d_V \rangle = 4320 \text{ \AA}$). Анализ пока-

зал, что это увеличение связано со стимулирующим влиянием умеренных значений плотности краевых дислокаций на скорость зарождения пор в начальные моменты облучения. Однако измеренные значения N_V заметно превосходят найденные расчетом для холоднотемпературного материала. Кроме того, наблюдаемые концентрации пор в холоднотемпературной нержавеющей стали 316 оказались более высокими, чем в отожженной стали. Аномально малый средний диаметр пор в облученной при 650 °С холоднотемпературной нержавеющей стали 316 при дозе 81 смещ./атом свидетельствует, по-видимому, о влиянии образующегося гелия на зарождение и рост пор при высокой температуре, что не учитывалось в рассмотренной модели.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Laidler J., Mastel B., Garner F. In: Properties of Reactor Structural Alloys After Neutron or Particle Irradiation, ASTM STP 570. American Society for Testing and Materials, 1975, p. 415.

2. Kulcinski G. In: Proc. of IAEA Workshop on Fusion Reactor Design Problems. Vienna, IAEA, 1974, p. 479.
 3. Harkness S., Grappel J., McDonald S. «Nucl. Technol.», 1972, v. 16, p. 25.
 4. Harkness S., Tesk J., Che-Yu-Li. «Nucl. Appl. Technol.», 1970, v. 9, p. 24.
 5. Bullough R., Perrin R. In: Proc. Reading Conf. on Voids Formed by Irradiation of Reactor Materials. Harwell, BNES, 1971, p. 79.
 6. Brager H., Straalsund J. «J. Nucl. Mater.», 1973, v. 47, p. 105.
 7. Johnston W. e.a. Ibid., v. 48, p. 330.
 8. Kenfield T., Appleby W., Busboom H. «Amer. Nucl. Soc. Trans.», 1977, v. 24, p. 146.
 9. Harkness S., Che-Yu-Li. «Met. Trans.», 1971, v. 2, p. 1457.
 10. Brager H., Straalsund J. [6], v. 46, p. 134.
 11. Barton P., Eyre B., Stow D. In: Proc. European Conf. on Irradiation Behavior of Fuel Cladding and Core Component Materials. Karlsruhe, 3—5 Dec. 1974, p. 65.
 12. Michel D., Smith H. [1], p. 156.
 13. Kenfield T., Appleby W., Busboom H. [8], v. 26, p. 210.
 14. Kenfield T. e.a. [6], 1978, v. 75, p. 85.

Поступила в Редакцию 24.07.78
 В окончательной редакции 23.04.79

УДК 621.1.013

К определению адиабатной сжимаемости, показателя изоэнтропы и других свойств двухфазных сред

АЛЕШИН В. С.

Исследование свойств двухфазных сред, и в частности пароводяных смесей, представляет определенные трудности, обусловленные сложностью получения этих смесей с достаточно однородной мелкодисперсной структурой в широком диапазоне изменения в них относительного массового содержания пара. Кроме того, обычно реальные процессы с двухфазными средами в большей или меньшей степени являются неравновесными. Существенно также отличается структура потока при различных режимах течения двухфазных сред. Поэтому при их изучении в целях получения тех или иных зависимостей целесообразно сначала остановиться на рассмотрении некоторой идеализированной двухфазной среды, а затем оценить степень приближения различных реальных процессов к этим условиям.

Предположим, что двухфазная среда имеет достаточно мелкодисперсную структуру, является однородной и находится в равновесном состоянии (давление, температура и химические потенциалы фаз равны между собой). Состояние этой среды однозначно определяется двумя независимыми параметрами — давлением (или температурой насыщения при данном давлении) и массовым содержанием пара в смеси. Рассмотрим возможности определения некоторых свойств для двухфазной среды при изменении x от нуля до единицы.

Скорость звука a_{CM} согласно уравнению Лапласа равна

$$a_{CM} = \sqrt{-v_{CM}^2 (\partial p / \partial v)_s^{CM}}, \quad (1)$$

где $(\partial p / \partial v)_s^{CM}$ — величина, обратная адиабатной сжимаемости; v_{CM} — удельный объем смеси, определяемый выражением

$$v_{CM} = v''x + v'(1-x). \quad (2)$$

Для адиабатной сжимаемости двухфазной среды с учетом уравнения (2) можно записать

$$(\partial v / \partial p)_s^{CM} = (\partial v'' / \partial p)_s x + (\partial v' / \partial p)_s (1-x) + (\partial x / \partial p)_s (v'' - v'). \quad (3)$$

В ряде работ [1, 2 и др.] показано, что распространение малых возмущений (звуковых колебаний) в двухфазных средах не сопровождается сколько-нибудь заметным теплообменом между жидкой и паровой фазами в зоне разрежения и сжатия звуковой волны. Таким образом, принимая $x = \text{const}$, будем иметь

$$(\partial v / \partial p)_s^{CM} = (\partial v'' / \partial p)_s x + (\partial v' / \partial p)_s (1-x). \quad (4)$$

Из выражения (4) следует, что адиабатная сжимаемость двухфазной среды в рассматриваемом

* Зависимость скорости звука от частоты не учитывается.