



В.В. Углов

# Радиационные процессы и явления в твердых телах

В.В. Углов

# Радиационные процессы и явления в твердых телах

*Допущено  
Министерством образования  
Республики Беларусь  
в качестве учебного пособия  
для студентов учреждений  
высшего образования  
по специальностям  
«Ядерная физика и технологии»,  
«Физика (по направлениям)»*



Минск  
«Вышэйшая школа»  
2016

УДК 539.1:539.21(075.8)

ББК 22.383я73

У25

Рецензенты: кафедра микро- и наноэлектроники УО «Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники» (заведующий кафедрой доктор физико-математических наук, профессор *В.Е. Борисенко*); заместитель директора по научному развитию ГЦ «Белмикроанализ» филиала НТЦ «Белмикросистемы» ОАО «ИНТЕГРАЛ» — управляющая компания холдинга «ИНТЕГРАЛ» доктор технических наук, профессор, член-корреспондент Национальной академии наук Беларуси *В.А. Пилипенко*.

*В оформлении обложки использованы снимки, полученные автором при исследовании толерантных материалов, перспективных для реакторов IV поколения.*

*Все права на данное издание защищены. Воспроизведение всей книги или любой ее части не может быть осуществлено без разрешения издательства.*

## **Углов, В. В.**

У25 Радиационные процессы и явления в твердых телах : учеб. пособие / В. В. Углов. — Минск : Вышэйшая школа, 2016. — 188 с. : ил.

ISBN 978-985-06-2763-6.

Изложены современные представления о физике радиационно-индуцированных и радиационно-стимулированных процессов и явлений в твердых телах под воздействием высокоэнергетических частиц и излучения. Особое внимание уделено описанию физических основ первичных процессов в твердых телах и образованию в них радиационных дефектов и их скоплений. Рассмотрено практическое применение радиационных процессов и явлений при разработке материалов для реакторов.

Для студентов учреждений высшего образования по специальностям «Ядерная физика и технологии», «Физика (по направлениям)».

УДК 539.1:539.21(075.8)

ББК 22.383я73

ISBN 978-985-06-2763-6

© Углов В.В., 2016

© Оформление. УП «Издательство  
“Вышэйшая школа”», 2016

## ПРЕДИСЛОВИЕ

Воздействие высокоэнергетических частиц и излучения на твердые тела приводит к изменению их структурно-фазового состояния и физических свойств. В основе радиационных методов обработки лежат как первичные процессы взаимодействия заряженных частиц и излучения с твердым телом, так и процессы последующего образования в нем структурных дефектов. Эти два момента являются базисом радиационных процессов и явлений – основным инструментом радиационных технологий XXI в. В настоящее время исследования в этой области направлены в основном на проектирование (конструирование) материалов для ядерных и термоядерных реакторов деления и синтеза, а также на радиационно-стимулированную модификацию свойств материалов и создание новых структур.

Понимание физических изменений, происходящих в твердых телах под влиянием высокоэнергетических частиц и излучения, требует детального ознакомления с важнейшими радиационно-индуцированными (стимулированными) эффектами, вызываемыми облучением различного вида.

Цель данного учебного пособия – сформировать понимание теории и основных механизмов, лежащих в основе радиационных эффектов в твердых телах под воздействием излучения различного вида (нейтроны, ионы, электроны,  $\gamma$ -кванты).

В первой главе рассмотрены первичные процессы в твердых телах при радиационном воздействии высокоэнергетических частиц и излучений с конденсированным веществом.

Во второй главе описывается образование и эволюция дефектов и их скоплений при радиационном воздействии.

Третья глава обобщает наиболее интересные и важные радиационно-индуцированные (стимулированные) процессы и явления.

Следует отметить, что рассматриваемая область радиационной физики твердого тела довольно широка и многогранна, в связи с чем основное внимание уделено рассмотрению физической природы радиационных явлений и эффектов на атомарном уровне с учетом комплексного влияния и изменения микроструктуры, элементного и фазового состава мишеней под воздействием высокоэнергетических частиц и излучений.

При написании учебного пособия были учтены творческие дискуссии на семинарах, конференциях, совещаниях, а также общение с известными специалистами в области радиационной физики твердого тела, такими как А.Ф. Тулинов, Г.Г. Бондаренко, Л.И. Иванов, Д.И. Тетельбаум, Г.Е. Ремнев, Ю.П. Шаркеев, А.И. Рябчиков, В.В. Козловский, М.И. Гусева, Ю.В. Мартыненко, Б.А. Калинин, В.Л. Якушин, А.Е. Лигачев, В.А. Шулов, Л.И. Пранявичюс, Б. Раушенбах, Х. Риссел, И.М. Неклюдов, В.Н. Воеводин, А.Д. Погребняк, К.К. Кадыржанов, С.Б. Кислицын, А.И. Купчишин, В.М. Анищик, Ф.Ф. Комаров, Н.Т. Квасов, П.Н. Гайдук, а также с преподавателями и сотрудниками кафедры физики твердого тела Белорусского государственного университета. Автор с благодарностью вспоминает своих учителей — прекрасных специалистов в области радиационного материаловедения, принимавших активное участие в решении проблем, затронутых в данной книге, тех, кого уже, к большому сожалению, нет рядом: Г.А. Гуманского, В.П. Гольцева, И.С. Ташлыкова, П.В. Павлова, И.А. Аброяна, В.С. Соловьева, Т.Э. Туркебаева, А.К. Жетбаева.

Данная работа выполнялась в рамках проекта № 16—19—10246 «Разработка научных основ создания радиационностойких нанокпозиционных материалов» Российского научного фонда.

За содействие улучшению содержания учебного пособия автор выражает искреннюю признательность рецензентам — коллективу кафедры микро- и нанoeлектроники Белорусского государственного университета информатики и радиоэлектроники (особенно заведующему кафедрой доктору физики-математических наук, профессору В.Е. Борисенко) и заместителю директора по научному развитию ГЦ «Белмикроанализ» филиала НТЦ «Белмикросистемы» ОАО «ИНТЕГРАЛ» — управляющая компания холдинга «ИНТЕРАЛ» доктору технических наук, профессору, члену-корреспонденту Национальной академии наук Беларуси В.А. Пилипенко.

Все отзывы, замечания и пожелания просьба направлять по адресу: издательство «Вышэйшая школа», пр. Победителей, 11, 220048, Минск.

*Автор*

# СПИСОК ОСНОВНЫХ СОКРАЩЕНИЙ И ОБОЗНАЧЕНИЙ

|                 |                                                                                |
|-----------------|--------------------------------------------------------------------------------|
| ВВЭМ            | — высоковольтный электронный микроскоп                                         |
| ВВЭР            | — водо-водяной энергетический реактор                                          |
| ВКУ             | — внутрикорпусное устройство                                                   |
| ВТРО            | — высокотемпературное радиационное охрупчивание                                |
| ГПД             | — газообразные продукты деления                                                |
| ГПУ             | — гексагональная плотноупакованная структура                                   |
| ГЦК             | — гранецентрированная кубическая решетка                                       |
| МД              | — молекулярная динамика                                                        |
| ОЦК             | — объемно-центрированная кубическая решетка                                    |
| ПВА             | — первично выбитый атом                                                        |
| ПЭМ             | — просвечивающая электронная микроскопия                                       |
| РИС             | — радиационно-индуцированная сегрегация                                        |
| РСД             | — радиационно-стимулированная диффузия                                         |
| РУД             | — радиационно-ускоренная диффузия                                              |
| СМА             | — собственный междоузельный атом                                               |
| сна             | — смещение на атом                                                             |
| СЭП             | — сильноточный электронный пучок                                               |
| ТРН             | — модель Торренса — Робинсона — Норкетта                                       |
| ТПД             | — твердые продукты деления                                                     |
| SAVN-механизм   | — стимулированное напряжением зарождение пор (stress-assisted void nucleation) |
| appm            | — атомная доля на миллион (atomic part per million)                            |
| $a$             | — радиус экранирования                                                         |
| $a_0$           | — боровский радиус                                                             |
| $C_v$           | — установившаяся в процессе облучения концентрация вакансий                    |
| $D$             | — доза облучения                                                               |
| $D$             | — коэффициент диффузии                                                         |
| $D_0$           | — порог порообразования                                                        |
| $D_p$           | — порог распухания                                                             |
| $d$             | — расстояние между двумя ближайшими атомами в кристалле                        |
| $(dE/dx)_{e,n}$ | — выделение энергии в электронную ( $e$ ), ядерную ( $n$ ) подсистемы          |
| $E_b$           | — энергия образований вакансий                                                 |
| $E_{д.в}$       | — энергия активации движения вакансий                                          |
| $E_{д.м}$       | — энергия активации движения междоузельных атомов                              |
| $E_m$           | — энергия образования междоузельных атомов                                     |
| $E_d$           | — пороговая энергия смещения                                                   |
| $E_R$           | — энергия Ридберга                                                             |
| $E_s$           | — пороговая энергия распыления                                                 |
| $e$             | — заряд электрона                                                              |
| $f$             | — параметр фокусировки                                                         |

|                  |                                                                          |
|------------------|--------------------------------------------------------------------------|
| $G_i$            | — коэффициент радиационного роста                                        |
| $i$              | — междоузельный атом                                                     |
| $J_A$            | — поток компонентов системы                                              |
| $J_v$            | — поток вакансий                                                         |
| $J_i$            | — поток междоузельных атомов                                             |
| $k$              | — эффективность смещений                                                 |
| $M_1$            | — масса налетающей частицы                                               |
| $M_2$            | — масса атома мишени                                                     |
| $P_d(T)$         | — вероятность смещения атома из узла решетки с кинетической энергией $T$ |
| $r$              | — расстояние между сталкивающимися атомами                               |
| $r_0$            | — размер атома                                                           |
| $T$              | — энергия, переданная налетающей частицей атомам мишени                  |
| $T_{\text{обл}}$ | — температура облучения                                                  |
| $T_{\text{пл}}$  | — температура плавления вещества                                         |
| $T_{\text{в}}$   | — верхний температурный предел порообразования                           |
| $T_{\text{н}}$   | — нижний температурный предел порообразования                            |
| $S$              | — коэффициент распыления                                                 |
| $V(r)$           | — потенциал взаимодействия частиц                                        |
| $v$              | — вакансия                                                               |
| $\varepsilon_v$  | — доля вакансий, входящих в вакансионную петлю при разрушении каскада    |
| $\nu(T)$         | — количество атомных смещений                                            |
| $\nu_0$          | — дебаевская частота колебаний решетки                                   |
| $\sigma$         | — эффективное сечение взаимодействия                                     |
| $d\sigma(T, E)$  | — дифференциальное сечение взаимодействия для энергии, передаваемой ПВА  |
| $\eta$           | — полные потери энергии в каскаде на электронное возбуждение             |
| $\Phi_j$         | — суммарный (интегральный) поток (флюенс) частиц типа $j$                |
| $\varphi$        | — плотность потока налетающих частиц                                     |

# ГЛАВА 1

## ПЕРВИЧНЫЕ ПРОЦЕССЫ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ ПРИ РАДИАЦИОННОМ ВОЗДЕЙСТВИИ

---

### 1.1. Физические основы процессов взаимодействия ионизирующего излучения с веществом

#### *Общие сведения*

*Первичные процессы* в твердых телах при радиационном воздействии — это процессы, в основе которых лежит возбуждение электронной и ядерной подсистем, смещение атомов кристаллической решетки из первоначальных равновесных положений и протекание ядерных реакций (рис. 1.1). Характерное время

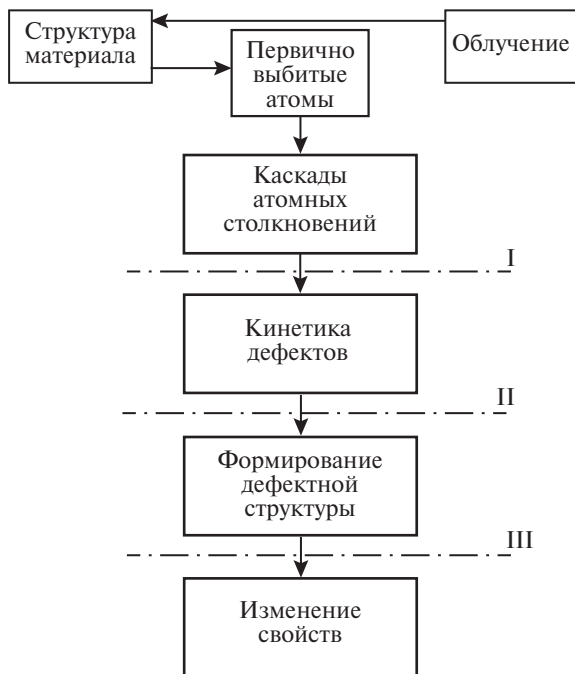


Рис. 1.1. Схема основных стадий радиационной повреждаемости материалов:  
I — динамическая стадия; II — диффузионная стадия; III — стадия эволюции стоков

протекания первичных процессов составляет порядка  $10^{-18}$  с. Конкретные закономерности при первичных процессах зависят от условий облучения и типа материала.

Под *условиями облучения* понимают:

- 1) тип, энергию и спектр бомбардирующих частиц;
- 2) плотность потока частиц;
- 3) продолжительность облучения (дозу);
- 4) температуру при облучении;
- 5) сопутствующие внешние воздействия.

Для первичных процессов в твердых телах при радиационном воздействии наиболее значимыми факторами являются тип, масса, заряд, энергия (скорость) частиц, составляющих излучение, и пространственная плотность излучения.

### **Флюенс**

Рассмотрим моноэнергетический пучок однотипных, однородно распределенных в пространстве частиц.

*Плотностью потока частиц* называется число частиц, проходящих через единицу перпендикулярной к пучку площади в единицу времени ( $\text{м}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  или  $\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ ).

Пусть пространственная плотность частиц  $n$ , а скорость частиц  $v$ . Тогда плотность потока частиц

$$\varphi = nv.$$

*Интегральным потоком  $\Phi$  частиц (флюенсом)* называется число частиц, прошедших через единицу перпендикулярной к пучку площади за время  $t$  ( $\text{м}^{-2}$  или  $\text{см}^{-2}$ ):

$$\Phi = \varphi t.$$

В активной зоне тепловых, быстрых и термоядерных реакторов материалы подвержены облучению частицами, различающимися как по природе, так и по спектрам своего распределения, скоростям или энергиям. В этом случае в дополнение к характеристикам излучений, перечисленным выше, следует ввести распределение частиц по скоростям или энергиями:

$$n_j(E) = \frac{dn_j}{dE}, \quad \varphi_j(E) = \frac{d\varphi_j}{dE}.$$

Тогда интегральный поток частиц будет вычисляться по формуле

$$\Phi_j = \int_0^t dt \int_{E_j}^{\infty} \Phi_j(E) dE,$$

где  $E_j$  — минимальная энергия налетающих частиц типа  $j$ .

### Физические основы первичных процессов

Попадая в твердое тело, быстрая частица вовлекается в сложный процесс взаимодействия с электронами и ядрами атомов кристаллической решетки. По мере проникновения в глубь материала мишени частицы теряют свою энергию и, передав ее электронной и ядерной подсистемам, останавливаются.

Скорость потери энергии бомбардирующих частиц характеризуется *тормозной способностью вещества*  $dE/dx$ . Расстояние, на которое частица проникает в материал, называется *глубиной (длиной) пробега частиц* и обозначается  $R(E)$ .

Передача энергии бомбардирующих частиц ядрам мишени и электронам происходит в упругих и неупругих процессах их взаимодействия. Процесс *упругого взаимодействия* бомбардирующих частиц с атомами мишени аналогичен классическому упругому соударению твердых шаров. При *неупругом взаимодействии* часть энергии бомбардирующих частиц расходуется на возбуждение, ионизацию атомов мишени, орбитальный переход электронов, ядерные реакции.

При рассмотрении процессов, происходящих в облучаемом материале, требуется статистический подход, так как излучение представляет собой пучок падающих частиц, а вещество состоит из большого числа связанных определенным образом атомов. В основе такого подхода лежит вероятность протекания того или иного процесса взаимодействия. За меру плотности вероятности события при взаимодействии пучка частиц с твердым телом принято *сечение (дифференциальное, парциальное, полное) реакции*.

*Эффективным сечением взаимодействия*  $\sigma$  называется отношение числа взаимодействий в единицу времени ( $m$ ) к плотности потока частиц  $\phi$ :

$$\sigma = m/\phi.$$

Эффективное поперечное сечение имеет размерность площади и обычно выражается в барнах,  $1 \text{ б} = 10^{-28} \text{ м}^2$  ( $10^{-24} \text{ см}^2$ ).

Процессы, происходящие при столкновении налетающих частиц с атомами мишени, а следовательно, и вероятность того

или иного процесса взаимодействия частиц, определяется прежде всего потенциалом взаимодействия  $V(r)$ .

### ***Атомные потенциалы взаимодействия***

Взаимодействие атомов вещества характеризуется соотношением двух характерных расстояний — боровского радиуса атома водорода  $a_0 = 0,053$  нм и расстояния  $d$  между двумя ближайшими атомами в кристалле. Обозначим через  $r$  расстояния между сталкивающимися атомами. При  $r \gg d$  электроны занимают энергетические уровни отдельных атомов, а между этими атомами нет силы притяжения. Силы притяжения возникают тогда, когда пара атомов сближается настолько, что перекрываются оболочки валентных электронов. Силы взаимодействия при этом не превышают нескольких электронвольт и их можно не учитывать при рассмотрении столкновений.

При  $a_0 < r \ll d$  перекрываются внутренние оболочки атомов, а некоторые электроны оказываются в одной и той же области и занимают одинаковые энергетические уровни. При этом часть электронов должна сменить энергетический уровень. Дополнительная энергия появляется за счет работы, которую нужно затратить, чтобы сблизить атомы и обеспечить положительную энергию взаимодействия частиц.

Потенциал, описывающий взаимодействие частиц при  $a_0 < r \ll d$  (потенциал Борна — Майера), имеет вид

$$V(r) = A \exp\left(-\frac{r}{b}\right),$$

где  $A, b$  — константы пары налетающая частица — ядро мишени.

При  $r < a_0$  ядра становятся ближайшей парой заряженных частиц в системе и кулоновский потенциал взаимодействия преобладает над всеми другими:

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r^2},$$

где  $Z_1, Z_2$  — порядковые номера взаимодействующих ядер (их заряд);  $e$  — заряд электрона.

С увеличением расстояния становится возможным проникновение электронов в пространство между ядрами. Потенциал взаимодействия уменьшается (по отношению к кулоновскому потенциалу взаимодействия) вследствие электростатического

экранирования ядерных зарядов пространственным зарядом самых глубоких электронных оболочек. В этом случае используется экранированный кулоновский потенциал:

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r^2} f\left(\frac{r}{a}\right), \quad (1.1)$$

где  $f(r/a)$  – функция экранирования.

Экранированный кулоновский потенциал можно вычислить, используя метод Томаса – Ферми. Для представления этого потенциала не существует простой функции, но при  $r < a_0$  хорошим приближением является потенциал

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r^2} \exp\left(-\frac{r}{a}\right). \quad (1.2)$$

В формулах (1.1), (1.2)  $a$  – радиус экранирования, который определяется следующим образом:

$$a = \frac{0,8853a_0}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}}.$$

Взаимодействие излучений с твердым телом сводится к трем первичным процессам:

- 1) возбуждение электронной и ядерной подсистем;
- 2) ядерные реакции;
- 3) смещение атомов из первоначальных равновесных положений.

Возбуждение электронной и ядерной подсистем играет особую роль в образовании радиационных дефектов в ионных кристаллах и полупроводниках. Металлы после подобного возбуждения без каких-либо последствий быстро возвращаются в равновесное состояние.

При ядерных реакциях в облучаемом материале образуются атомы примеси – трансмутанты – и изменяется химический состав облучаемого материала.

### ***Смещение атомов из узлов кристаллической решетки***

В основе большинства явлений радиационной повреждаемости материалов лежит смещение атомов из узлов кристаллической решетки (рис. 1.2).

При столкновении налетающая частица, испытывая упругое или неупругое взаимодействие, передает атому мишени часть

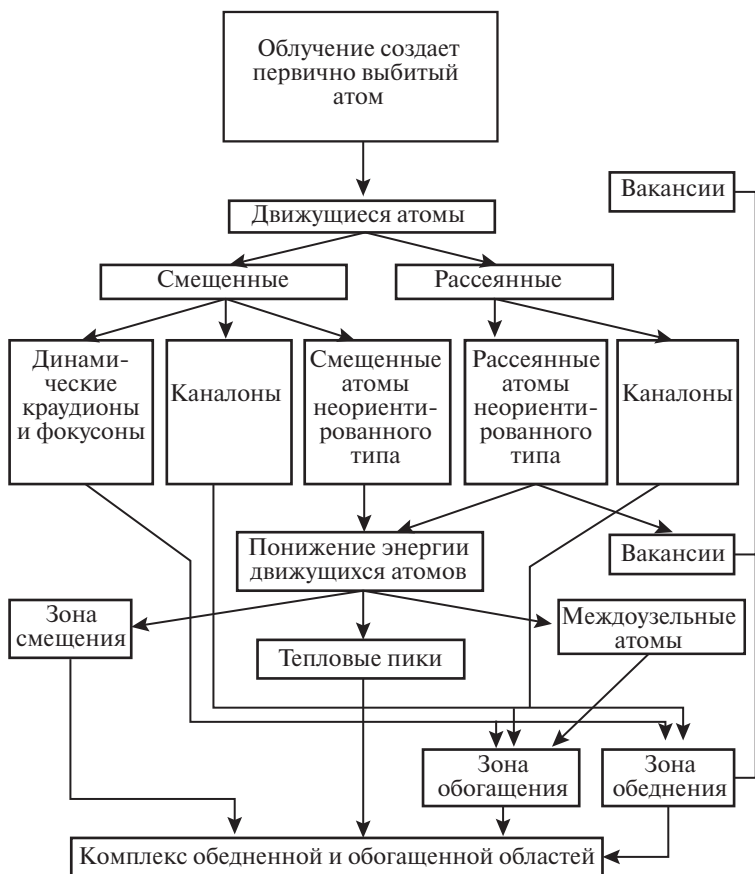


Рис. 1.2. Схема развития радиационного каскада в кристалле

энергии  $T_{12}$ . В зависимости от энергии, переданной атому при столкновении, последний либо только отклоняется от своего первоначального равновесного положения, либо смещается на большое расстояние, превышающее так называемый *радиус спонтанной рекомбинации*, и создает устойчивую пару Френкеля вакансии – междоузельный атом. Минимальное значение переданной атому мишени энергии  $T_{12}$ , при котором происходит необратимое смещение атома из первоначального положения в кристаллической решетке, принято называть *энергией смещения* и обозначать  $E_d$ . Для различных металлов и кристаллографических ориентаций  $E_d$  составляет  $\approx 15 \dots 90$  эВ.

С точки зрения возникновения в материалах радиационных повреждений представляют интерес потоки частиц и излучений, передающих атомам мишени энергию  $T_{12}$ , равную или превышающую порог смещения  $E_d \approx 4\epsilon_s$  ( $\epsilon_s$  – энергия сублимации).

*Первично выбитый атом* (ПВА) – это атом, смещенный из узла кристаллической решетки при непосредственном взаимодействии с частицей излучения. Если ПВА способен передавать другому атому решетки энергию  $T > E_d$ , то он выбивает второй атом, который при том же условии смещает третий атом, и т.д. Таким образом высокоэнергетические частицы создают в твердых телах целые каскады атом-атомных смещений.

В табл. 1.1 приведены расчетные значения начальной энергии  $E_i$  для частиц различного сорта, необходимой для передачи атомам мишени (никель) энергии, равной пороговой (около 30 эВ) и значительно превышающей ее (50 кэВ). В первом случае образуются отдельные пары Френкеля, во втором – каскады смещений.

Таблица 1.1

**Расчетные значения начальной энергии частиц  $E_i$ , при которых энергия смещенных атомов в никеле  $T_{12}$  соответствует 30 и 50 000 эВ**

| Тип частиц    | $E_i$ , эВ           |
|---------------|----------------------|
| Ион никеля    | 60 и 100 000         |
| Альфа-частица | 250 и 400 000        |
| Нейтрон       | 860 и 1 600 000      |
| Электрон      | 800 000 и 91 000 000 |

## 1.2. Характеристика степени радиационных повреждений

Для характеристики степени радиационных повреждений используют *число атомных смещений в единице объема в единицу времени*:

$$R = \frac{\text{Смещения}}{\text{см}^3 \cdot \text{с}} = N \int_{\hat{E}}^{\hat{E}} \varphi(E_i) \sigma_D(E_i) dE_i,$$

где  $N$  – атомная плотность твердого тела;  $\hat{E}$  – максимальная энергия падающей частицы;  $\check{E}$  – минимальная энергия пада-

ющей частицы;  $\Phi$  — зависящая от энергии плотность потока частиц;  $\sigma_D$  — зависящее от энергии сечение образования смещений:

$$\sigma_D = \int_{\check{T}}^{\hat{T}} \nu(T) \sigma(E_i, T) dT, \quad (1.3)$$

где  $\hat{T}$  — максимальная энергия, передаваемая атому решетки при столкновении с ним частицы с энергией  $E_i$ ;  $\check{T}$  — минимальная энергия, передаваемая атому решетки при столкновении с ним частицы с энергией  $E_i$ ;  $\nu(T)$  — число смещений, приходящихся на ПВА с энергией  $T$ ;  $\sigma(E_i, T)$  — поперечное сечение взаимодействия частицы с энергией  $E_i$  и атома решетки, при котором последний приобретает энергию  $T$ .

В результате имеем:

$$R = N \int_{\check{T}}^{\hat{T}} \int_{\check{E}}^{\hat{E}} \Phi(E_i) \sigma(E_i, T) \nu(T) dE_i dT. \quad (1.4)$$

В формуле (1.4) есть две основные величины:  $\sigma(E_i, T)$ , которая описывает передачу энергии от частицы излучения к ПВА, и  $\nu(T)$ , которая определяет, сколько смещений вызовет данный ПВА при дальнейшем взаимодействии.

Полное дифференциальное сечение  $\frac{d\sigma}{dT}$  образования ПВА с энергией  $T$  равно сумме дифференциальных сечений в упругих  $\left(\frac{d\sigma}{dT}\right)_y$  и неупругих  $\left(\frac{d\sigma}{dT}\right)_н$  процессах взаимодействия потока частиц с веществом:

$$\left(\frac{d\sigma}{dT}\right) = \left(\frac{d\sigma}{dT}\right)_y + \left(\frac{d\sigma}{dT}\right)_н.$$

Потери энергии и вклад каждого из процессов взаимодействия потока частиц с веществом в создание смещенных атомов зависят от энергии, заряда и массы бомбардирующих частиц, а также от заряда и массы атомов мишени. В настоящее время принято условное деление бомбардирующих частиц: в зависимости от массы — на *легкие* ( $M_1 < M_p$ , где  $M_p$  — масса протона) и *тяжелые* ( $M_1 > M_p$ ); в зависимости от заряда — на *нейтральные* и *заряженные*; в зависимости от энергии — на *медленные* ( $E_i < 1$  кэВ), *промежуточные* ( $1 \text{ кэВ} < E_i < 100 \text{ кэВ}$ ) и *быстрые*

( $E_i > 100$  кэВ). Ядра мишени в зависимости от массы подразделяются на *легкие* ( $A < 25$ ), *промежуточные* ( $25 < A < 80$ ) и *тяжелые* ( $A > 80$ ).

Таблица 1.2

**Энергия образования смещений для некоторых металлов**

| Металл            | Кристаллическая решетка | $E_{d\min}$ , эВ | $E_d$ , эВ |
|-------------------|-------------------------|------------------|------------|
| Алюминий          | ГЦК                     | 16               | 25         |
| Титан             | ГПУ                     | 19               | 30         |
| Ванадий           | ОЦК                     | —                | 40         |
| Хром              |                         | 28               | 40         |
| Марганец          |                         | —                | 40         |
| Железо            |                         | 20               | 40         |
| Кобальт           | ГЦК                     | 22               | 40         |
| Никель            |                         | 23               | 40         |
| Медь              |                         | 19               | 30         |
| Цирконий          | ГПУ                     | 21               | 40         |
| Ниобий            | ОЦК                     | 36               | 60         |
| Молибден          |                         | 33               | 60         |
| Тантал            |                         | 34               | 90         |
| Вольфрам          |                         | 40               | 90         |
| Свинец            | ГЦК                     | 14               | 25         |
| Нержавеющая сталь |                         | —                | 40         |

**Примечание.** Условные обозначения: ГЦК — гранецентрированная кубическая решетка; ГПУ — гексагональная плотноупакованная решетка; ОЦК — объемноцентрированная кубическая решетка.

Одной из ключевых величин радиационной физики является *энергия образования смещений*  $E_d$ . Это энергия, которую необходимо сообщить атому кристаллической решетки, чтобы сместить его из положения равновесия в решетке. В табл. 1.2 приведены значения энергии образования смещений для некоторых металлов.

### 1.3. Облучение нейтронами

Нейтроны являются электрически нейтральными частицами и поэтому взаимодействуют в основном с ядрами мишени. Сечение взаимодействия нейтронов с ядрами гораздо меньше,

чем сечение взаимодействия других частиц, имеющих заряд, поэтому нейтроны обладают большей проникающей способностью (несколько миллиметров). Взаимодействие нейтронов с ядрами может быть как упругим, так и неупругим.

Рассмотрим, как вычисляется сечение образования смещений в случае упругого рассеяния нейтронов. Для этого в формуле (1.3) необходимо знать значения величин  $v(T)$  и  $\sigma(E_i, T)$ . Как правило,  $v(T)$  рассчитывается по ТРН-стандарту (модель Торренса – Робинсона – Норкетта). Рассмотрим вычисление  $\sigma(E_i, T)$ .

Пусть  $\sigma(E_i, \varphi)$  – дифференциальное сечение упругого рассеяния нейтрона с начальной энергией  $E_i$  на угол  $\varphi$ . Рассматривая упругое рассеяние нейтрона, можно пользоваться хорошо известной моделью соударения твердых шаров. Можно показать, что

$$\sigma(E_i, T) = \frac{4\pi}{\gamma E_i} \sigma(E_i, \varphi),$$

где  $\gamma = \frac{4A}{(1+A)^2}$ ;  $A$  – массовое число атома решетки.

Для большинства атомных ядер в широком интервале энергий нейтронов (0,02...15,0 МэВ) формулу для дифференциального сечения передачи энергии можно записать так:

$$\sigma(E_i, T) = \frac{\sigma(E_i)}{\gamma E_i},$$

где  $\sigma(E_i)$  – полное сечение упругого рассеяния нейтронов с энергией  $E_i$ , которое можно вычислить на основании модели упругого столкновения шаров.

Для вычисления  $v(T)$  по ТРН-стандарту необходимо знать кинетическую энергию, передаваемую ПВА от нейтрона. Используя модель упругого столкновения твердых шаров, можно получить кинетическую энергию атома отдачи при рассеянии на угол  $\varphi$ :

$$T = \frac{\gamma}{2} E_i (1 - \cos \varphi). \quad (1.5)$$

Интерес представляет также средняя кинетическая энергия, которую приобретает атом при взаимодействии с нейтроном. Она вычисляется по формуле

$$\bar{T} = \frac{\int_{\hat{T}}^{\check{T}} T \sigma(E_i, T) dT}{\int_{\check{T}}^{\hat{T}} \sigma(E_i, T) dT} = \frac{\hat{T} + \check{T}}{2} \approx \frac{\hat{T}}{2} = \frac{\gamma E_i}{2}.$$

Для нейтронов с энергией 1 МэВ имеем:

$$\bar{T}_{\text{Fe}} = 0,035 \text{ МэВ}, \bar{T}_{\text{C}} = 0,14 \text{ МэВ}, \bar{T}_{\text{U}} = 0,009 \text{ МэВ}.$$

С увеличением энергии растет вероятность неупругого рассеяния нейтронов. При неупругом рассеянии ядром поглощается некоторая часть энергии падающего нейтрона и ядро переходит в возбужденное состояние. Возврат возбужденного ядра в равновесное состояние сопровождается вторичным излучением ( $\gamma$ -квантов, нейтронов,  $\beta$ -электронов). Переданная атомам при неупругом рассеянии средняя энергия

$$\bar{T} = \frac{\gamma E_i}{2} - \frac{E_{\gamma}}{A+1},$$

где  $E_{\gamma}$  — энергия, израсходованная на возбуждение ядра и испускаемая с вторичным излучением.

В случае неупругого рассеяния сечение рассеяния в формуле (1.3) представляет собой сумму сечений упругого и неупругого рассеяний. С точки зрения практической значимости наиболее важными реакциями при взаимодействии нейтронов с веществом являются реакции  $(n, \gamma)$  и  $(n, 2n)$ . Расчеты дифференциального сечения рассеяния и кинетической энергии, которую приобретают атомы, можно найти в работе [9].

## 1.4. Облучение ионами

*Ионы* — тяжелые заряженные частицы. Они имеют самое большое дифференциальное сечение рассеяния среди всех типов радиационного излучения, поэтому воздействие ионов характеризуется малой проникающей способностью (доли микрометра) и сильными радиационными повреждениями.

Взаимодействие ионов с атомами или атомов с атомами включает взаимодействие электронных оболочек, взаимодействие электронных оболочек и ядер и взаимодействие ядер. Для

описания взаимодействия того или иного типа используют потенциал взаимодействия. Величины, входящие в формулу (1.3), а также процессы, происходящие при столкновениях ион – атом, определяются именно потенциалом взаимодействия (см. § 1.1). Наиболее распространенные потенциалы взаимодействия, а также области их применения даны в табл. 1 из приложения.

Рассеяние иона на атоме решетки может быть как упругим, так и неупругим. Теория, касающаяся упругого рассеяния иона на атоме при некотором потенциале взаимодействия  $V(r)$ , изложена в работе [9]. Рассмотрим основные результаты.

Пусть  $b$  – прицельный параметр иона, а  $\phi$  – угол, на который он рассеялся. Для вычисления радиационных повреждений необходимо знать  $v(T)$  и  $\sigma(E_i, T)$ . Для этого нужно вычислить дифференциальное сечение рассеяния иона на атомах решетки.

Дифференциальное сечение рассеяния определяется по следующей формуле:

$$\sigma(E_i, T) = 2\pi b \frac{db}{d\phi} \frac{d\phi}{dT}. \quad (1.6)$$

Для нахождения производной  $\frac{db}{d\phi}$  используют уравнение

$$\phi = \pi - 2 \int_0^{1/\rho} \left[ \frac{1}{b^2} \left( 1 - \frac{V(x)}{\eta E_i} \right) - x^2 \right]^{-1/2} dx, \quad (1.7)$$

где  $\rho$  – расстояние наибольшего сближения иона и атома;

$\eta = \frac{M_2}{M_2 + M_1}$ ;  $M_2$  – масса атома;  $M_1$  – масса иона.

Расстояние  $\rho$  можно найти из уравнения

$$\eta E_i = \frac{V(\rho)}{1 - b^2/\rho^2}. \quad (1.8)$$

Для нахождения  $d\phi/dT$  необходимо воспользоваться уравнением (1.5).

Таким образом, можно найти сечение рассеяния. Для этого для заданной кинетической энергии ПВА необходимо по формуле (1.5) вычислить  $\phi$ , затем по формуле (1.7) вычислить  $b$ , после чего подставить соответствующие производные в формулу (1.6). Далее, используя методы численного интегрирования, нужно вычислить интеграл в формуле (1.3). За нижний

предел интегрирования следует взять энергию образования смещений, а за верхний предел интегрирования —  $\gamma E_i$ , где

$$\gamma = \frac{4M_1M_2}{(M_1M_2)^2} \text{ (индекс 1 относится к падающему иону).}$$

Отметим, что формулы (1.6)–(1.8) справедливы только в случае упругого рассеяния. В случае неупругого рассеяния формулы будут другими.

С практической точки зрения наиболее важны ионы трех классов:

- 1) легкие ионы с энергией  $E_i > 1$  МэВ;
- 2) высокоэнергетические тяжелые ионы с энергией  $E_i > 10^2$  МэВ, являющиеся продуктами реакции деления;
- 3) низкоэнергетические тяжелые ионы с энергией  $E_i < 1$  МэВ.

Наиболее простыми случаями взаимодействия ионов с атомами вещества являются резерфордское рассеяние и рассеяние с потенциалом упругих шаров.

Рассмотрим более детально резерфордское рассеяние. В данном случае потенциал является кулоновским.

Дифференциальное сечение рассеяния в случае кулоновского рассеяния будет вычисляться по формуле

$$\sigma(E_i, T) = \frac{\pi b_0^2}{4} \frac{E_i \gamma}{T^2},$$

где  $b_0 = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{\eta E_i}$ ;  $\gamma = \frac{4M_1 M_2}{(M_1 M_2)^2}$ ;  $M_1, M_2$  — масса соответственно налетающего иона и атома мишени.

Средняя кинетическая энергия, которую приобретает атом,

$$\bar{T} = \frac{\int_{\hat{T}}^{\hat{T}} T \sigma(E_i, T) dT}{\int_{\hat{T}}^{\hat{T}} \sigma(E_i, T) dT} = \frac{\overset{\vee}{T} \ln(\hat{T}/\overset{\vee}{T})}{1 - \hat{T}/\overset{\vee}{T}} = \frac{E_d \ln(\gamma E_i / T_d)}{1 - (T_d / \gamma E_i)}. \quad (1.9)$$

Для определения пределов применимости резерфордского рассеяния вводятся энергии  $E_a$  и  $E_b$ . Поясним их смысл.

Если энергия иона  $E_i \gg E_a$ , то кулоновскими можно считать только лобовые столкновения, а если  $E_i \gg E_b$ , то кулоновскими являются любые столкновения. К этой категории относятся легкие ионы (протоны или  $\alpha$ -частицы) с энергией  $E_i > 1$  МэВ,

в то время как продукты реакции деления имеют энергию  $E_a < E_i < E_b$ , а атомы отдачи имеют энергию меньше  $E_a$ . Приведем формулы для вычисления этих энергий:

$$E_a = 2E_R(Z_1Z_2)^{7/6} \frac{M_1 + M_2}{eM_2},$$

$$E_b = \frac{e^2 \gamma E_a^2}{4E_d},$$

где  $E_R$  — энергия Ридберга;  $e$  — основание натурального логарифма;  $E_d$  — энергия образования смещений.

В табл. 2 из приложения приведены значения энергий  $E_a$  и  $E_b$  для бомбардирующих ионов и мишеней некоторых типов.

Если выполняется условие  $E_i \gg E_b$ , то взаимодействие иона и атома можно считать кулоновским и сечение образования смещений будет вычисляться по формуле

$$\sigma_d = \frac{4\pi a_0^2 M_1 Z_1^2 Z_2^2 E_R^2}{M_2 E_i E_d} \left( 1 - \frac{E_d}{\alpha E_i} \right).$$

Для ионов с энергией меньше  $E_b$  ( $E_a < E_i \leq E_b$ ) наряду с лобовыми столкновениями ( $r \ll a$ ) следует учесть и скользящие столкновения, для которых  $r \approx a$ . Наиболее приемлемой для расчета спектров ПВА в этом случае является модель экранированного кулоновского взаимодействия в аппроксимации Линдхарда.

При  $E_i \leq E_a$  нельзя пренебрегать лобовыми столкновениями, но необходимо учитывать скользящие столкновения с прицельным параметром вплоть до  $10a$ , т.е. при  $E_i \leq E_a$  представляют интерес столкновения, для которых  $n < r < 10a$ . Для столкновений этого класса полное сечение рассеяния (здесь нет формулы для средней энергии)

$$\sigma_d = \frac{4\pi a_0^2 M_1 Z_1^2 Z_2^2 E_R^2}{M_2 E_i E_d} \left( 1 - \frac{E_d}{\gamma E_i} \right).$$

Если необходимо использовать другой потенциал взаимодействия, то следует рассчитать  $\sigma(E_i, T)$  по формулам (1.6)–(1.8), а также  $\nu(T)$ , используя ТРН-стандарт, затем применить уравнение (1.3), чтобы вычислить сечение образования смещений. Для вычисления среднего числа смещений, приходящихся на атом, нужно по формуле (1.9) рассчитать среднюю кинетическую энергию  $\nu(T)$ , используя ТРН-стандарт.

Однако кроме упругого рассеяния заряженные ионы при прохождении через твердое тело испытывают неупругое рассеяние, а также теряют энергию на тормозное излучение. Для большинства ионов радиационные потери в практически значимых случаях несущественны. При неупругом рассеянии часть энергии тратится на возбуждение электронной оболочки атома или на ионизацию. Это связано с тем, что высокоэнергетические ионы могут проникнуть под облако атомных электронов; при этом часть энергии ионов расходуется на ионизацию.

По мере проникновения в глубь мишени уменьшается энергия ионов, изменяются механизм и сечение их взаимодействия с атомами мишени, что вызывает изменение скорости повреждения по глубине пробега ионов. Разработан ряд программ для расчета профилей повреждения (SRIM, TRIM, MARLOWE, MOLLY-код и др.) и созданы таблицы профилей повреждений. Эти программы и таблицы следует использовать как стандарты для расчета уровня повреждений при ионном облучении.

## 1.5. Облучение электронами

Электроны также являются заряженными частицами, однако по сравнению с ионами они обладают намного меньшей массой. По этой причине, во-первых, электрон при рассеянии отклоняется на большие углы; во-вторых, радиационные потери при движении электрона сопоставимы с ионизационными; в-третьих, длина пробега электронов в материале составляет десятки микрон.

Вследствие малой массы энергия электронов, способных привести к структурным нарушениям в металлах, превышает 0,5 МэВ. Для электронов с такой высокой энергией можно пренебречь экранированием, обусловленным орбитальными электронами, и использовать релятивистское описание процесса передачи энергии электронов ядрам мишени. При энергии пучка электронов около 1 МэВ расчет скорости образования смещений наиболее прост, поскольку первично выбитые атомы не способны вызвать повторное смещение и развитие каскадов смещений.

При упругом рассеянии электрона с энергией  $E_i$  на угол  $\phi$  атом приобретает кинетическую энергию

$$T = \frac{2E_i}{M_2c^2}(E_i + 2m_e c^2) \sin^2\left(\frac{\phi}{2}\right),$$

а средняя и максимальная кинетические энергии, приобретаемые атомами, равны:

$$\bar{T} = \frac{\gamma E_i E_d}{\gamma E_i - E_d} \ln \left( \frac{\gamma E_i}{E_d} \right),$$

$$\hat{T} = \frac{2E_i}{Mc^2} (E_i + 2m_e c^2).$$

Сечение взаимодействия релятивистского электрона (только такие электроны могут вызывать радиационные повреждения) с атомом в переменных  $E_i, T$

$$\sigma_S(E_i, T) = \frac{4\pi a_0^2 Z_2^2 E_R^2}{m_e^2 c^4} \frac{1-\beta^2}{\beta^4} \left[ 1 - \beta^2 \frac{T}{\hat{T}} + \pi \frac{\alpha'}{\beta} \left( \left( \frac{T}{\hat{T}} \right)^{1/2} - \frac{T}{\hat{T}} \right) \right] \frac{\hat{T}}{T^2},$$

где  $\beta = v_e/c$ ;  $v_e$  – скорость электронов с энергией  $E_i$ ;  $\alpha' = Z_2/137$ .

Для электронов с энергией, ненамного превышающей пороговую энергию образования смещений, а следовательно, с  $\alpha E_i/E_d$  незначительно больше единицы,

$$\sigma_S(E_i, T) = \frac{4\pi a_0^2 Z_2^2 E_R^2}{m_e^2 c^4} \frac{1-\beta^2}{\beta^4} \left( \frac{\gamma E_i}{E_d} - 1 \right).$$

При достаточно высоких энергиях электронов ( $E_i \gg m_e c^2$ )

$$\sigma_S \rightarrow \frac{8\pi a_0^2 Z_2^2 E_R^2}{E_d M_2 c^2}.$$

Это уравнение используется обычно для оценочных расчетов полного сечения рассеяния электронов на атомах твердого тела.

При энергии электронов выше порога ядерных реакций ( $E_i \gg 10$  МэВ) в дополнение к упругому рассеянию частиц необходимо учесть нарушения за счет протекания процессов неупругого взаимодействия (возникновение ядер отдачи, нуклонов,  $\gamma$ -квантов).

Прохождение высокоэнергетических (десятки и сотни мегаэлектронвольт) электронов через вещество связано с развитием электронно-фотонного ливня. С увеличением глубины проникновения электронов в твердое тело возрастает число лавинных частиц, уменьшается их энергия и увеличивается количество  $\gamma$ -квантов, способных внести существенный вклад в дефектообразование.

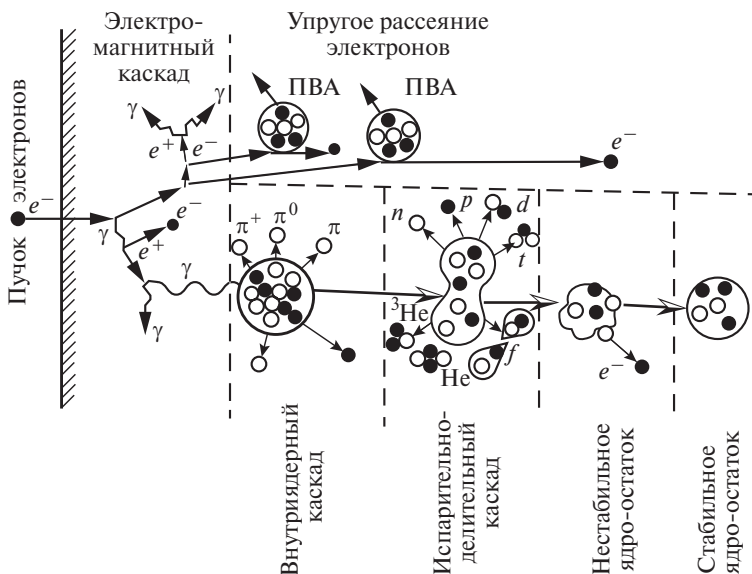


Рис. 1.3. Схема процессов, протекающих в материале под воздействием высокоэнергетичных электронов и  $\gamma$ -квантов

Процессы, протекающие при облучении материалов быстрыми электронами и  $\gamma$ -квантами, схематически приведены на рис. 1.3.

## 1.6. Облучение $\gamma$ -квантами

Гамма-кванты — это высокоэнергетические фотоны. Несмотря на то что их дефектообразующая способность по сравнению с быстрыми нейтронами мала, этот вид облучения имеет место в активной зоне реакторов всех типов.

Максимальная энергия, которую способен передать атомам  $\gamma$ -квант с энергией  $E_i$ ,

$$T = E_i \left( 1 + \frac{M_2 c^2}{2E_i} \right)^{-1}.$$

При  $E_i \gg M_2 c^2$  эта формула принимает вид

$$T = E_i - \frac{M_2 c^2}{2}.$$

При энергии  $E_i = 10$  МэВ значение  $T$  составляет несколько десятков электронвольт и непосредственное взаимодействие  $\gamma$ -квантов с атомами не приводит к существенным структурным нарушениям. Кроме того, сечение прямого взаимодействия  $\gamma$ -квантов указанной энергии и ядер очень мало.

Смещения атомов решетки при облучении  $\gamma$ -квантами вызывают в основном не прямые процессы их взаимодействия с атомами мишени (фотоэффект, эффект Комптона, образование электрон-позитронных пар), в результате которых образуются высокоэнергетические электроны, способные привести к смещению атомов.

При облучении  $\gamma$ -квантами с высокой энергией ( $E_i > 10$  МэВ) в твердых телах идут фотоядерные реакции. Переданная ядру при поглощении  $\gamma$ -кванта энергия отдачи достаточна для смещения атомов из первоначальных положений в решетке кристалла.

Высокая эффективность действия облучения  $\gamma$ -квантами с энергией десятки и сотни мегаэлектронвольт на материалы позволяет имитировать с их помощью явления радиационной повреждаемости материалов в ядерных и термоядерных реакторах.

При расчетах радиационных повреждений в случае облучения  $\gamma$ -квантами необходимо рассчитывать энергетический спектр и распределения образованных ими электронов, а затем применять формулы для взаимодействия электронов с твердым телом.

## ГЛАВА 2

# ОБРАЗОВАНИЕ ДЕФЕКТОВ И ИХ СКОПЛЕНИЙ ПРИ РАДИАЦИОННОМ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ

---

### 2.1. Простейшие типы повреждений и их эволюция

#### *Общие сведения*

В данной главе речь пойдет о второй стадии развития радиационных повреждений ( $10^{-13} \dots 10^{-11}$  с), а именно об образовании характерных для радиационных повреждений дефектов, их эволюции и взаимодействии друг с другом и с атомами вещества.

Простейшими типами повреждений при облучении являются междоузельный атом и вакансии в кристаллической решетке. Образование единичного междоузельного атома происходит в том случае, когда атом покидает узел решетки кристалла и располагается в одном из междоузлий кристаллической решетки. Энергия кристалла увеличивается во время такого перехода на величину  $E_m$ , называемую *энергией образования междоузельного атома*. Удаление атома из внутреннего узла решетки и расположение его на поверхности кристалла приводит к возникновению вакансии. Энергия кристалла при этом еще раз возрастает на величину  $E_v$ , называемую *энергией образования вакансий*.

Равновесная концентрация дефектов, присутствующих в кристалле при какой-либо температуре, определяется энергией их образования. Концентрация вакансий в твердом теле, находящемся в состоянии теплового равновесия, может быть представлена выражением

$$C_v \approx \exp\left(-\frac{E_v}{kT}\right).$$

В табл. 3 из приложения приведены некоторые значения характеристик дефектов в различных металлах.

Одиночные дефекты подвижны. Пусть междоузельный атом при температуре абсолютного нуля находится в потенциальной

яме. Увеличение температуры заставляет его совершать тепловые колебания внутри потенциальной ямы, в результате чего с ростом температуры возрастает вероятность того, что междоузельный атом выскочит из нее, попав, однако, в точно такую же соседнюю. Частота перескоков междоузельного атома из одной потенциальной ямы в соседнюю записывается следующим образом:

$$\nu = \nu_0 \exp\left(\frac{E_{\text{д.м}}}{kT}\right),$$

где  $\nu_0$  — дебаевская частота колебаний атомов в кристалле; для большинства кристаллов  $\nu_0 = 10^{13} \dots 10^{14} \text{ с}^{-1}$ .

Соседние с вакансией атомы имеют возможность занять ее в случае получения ими достаточной тепловой энергии. Этот процесс эквивалентен движению вакансии. Величины  $E_{\text{д.в}}$  и  $E_{\text{д.м}}$  известны соответственно как *энергия активации движения вакансии* и *энергия междоузельного атома*. Теоретические и экспериментальные оценки величин  $E_{\text{м}}$ ,  $E_{\text{в}}$ ,  $E_{\text{д.м}}$  и  $E_{\text{д.в}}$  выполнены для многих материалов. Расчетные значения энергий образования и движения вакансий и междоузельных атомов для плотноупакованных решеток металлов обычно составляют:

$$E_{\text{в}} \approx 1 \text{ эВ}, E_{\text{д.в}} \approx 1 \text{ эВ}, E_{\text{м}} \approx 5 \text{ эВ}, E_{\text{д.м}} \approx 0,1 \text{ эВ}.$$

Основную роль во всех явлениях радиационной повреждаемости играют смещения атомов кристаллической решетки за счет процессов упругого или неупругого взаимодействия налетающих частиц (нейтронов, ионов, электронов) с атомом мишени. При этом одновременно создаются вакансии и собственный междоузельный атом, которые получили название *пары Френкеля*. Естественно, что при формировании пар Френкеля вакансии и междоузлия всегда создаются в равных количествах.

В зависимости от полученной энергии атом мишени может либо отклониться от своего первоначального положения и передать избыток энергии решетке, либо сместиться на малое расстояние и образовать неустойчивую пару Френкеля, либо сместиться на расстояние, превышающее радиус зоны спонтанной рекомбинации, и образовать устойчивую пару Френкеля (рис. 2.1).

Главным требованием для формирования стабильной пары Френкеля является передача атому решетки кинетической

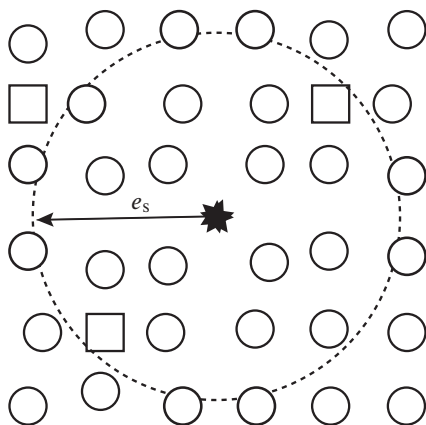


Рис. 2.1. Формирование пар Френкеля в материале при облучении:

○ — атом кристаллической решетки; □ — вакансия;  $r_s$  — радиус спонтанной рекомбинации

энергии, превышающей некую *пороговую энергию смещения*  $E_d$ . Эта пороговая энергия для различных металлов и кристаллографических направлений в одном и том же кристалле неодинакова. Для большинства металлов она составляет порядка 20...90 эВ.

Атомы решетки, непосредственно смещенные налетающими частицами, определяются как ПВА. Облучения разных типов различаются количеством и энергетическим спектром ПВА.

Современные реакторы на тепловых и быстрых нейтронах имеют разные спектральные и энергетические параметры. Эти различия будут сохраняться и в разрабатываемых в настоящее время реакторах новых поколений. В связи с этим важнейшим практическим вопросом является подсчет количества радиационных повреждений, которое выражается в количестве атомных смещений  $\nu(T)$ , приходящихся на ПВА. *Смещение на атом* (сна) в настоящее время рассматривается как единица дозы облучения, являющаяся физическим базисом для сравнения уровней повреждений в реакторах с различным нейтронным спектром и при облучении различными частицами. Рассмотрим модели расчета  $\nu(T)$ .

### ***Простейшая модель расчета $\nu(T)$***

Обозначим  $P_d(T)$  вероятность того, что атом сместится из узла решетки с кинетической энергией  $T$ . Если атом получил

от налетающей частицы энергию меньше  $E_d$ , то вероятность равна нулю, а если больше — то единице:

$$P_d = \begin{cases} 0, & \text{при } T < E_d, \\ 1, & \text{при } T \geq E_d. \end{cases}$$

В реальности под влиянием температуры, а также в связи с различием энергий смещения для разных кристаллографических направлений ступенька становится плавной (рис. 2.2).

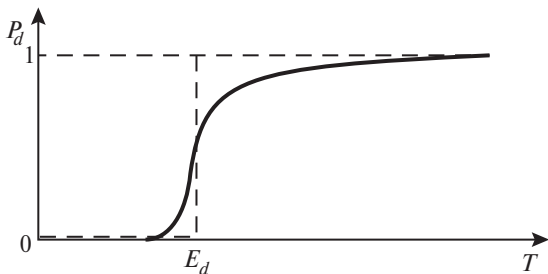


Рис. 2.2. Зависимость вероятности смещения атома от переданной ему энергии  $T$

### *Модель Кинчина — Пизе*

Среди существующих моделей подсчета ПВА наиболее известна сравнительно простая модель Кинчина — Пизе. Она основана на следующих условиях:

1) каскад столкновений образуется посредством только упругих парных столкновений;

2) вероятность смещения  $P_d$  равна единице при  $T > E_d$  и нулю при  $T < E_d$ ;

3) если после столкновения атома с энергией  $T$  с другим атомом кинетическая энергия первого станет равна  $T'$ , а второй сместится, приобретя при этом кинетическую энергию  $\varepsilon$ , то  $T' + \varepsilon = T$ ;

4) потери энергии на электронное возбуждения характеризуются энергией  $E_c$ . Если энергия атома больше  $E_c$ , то она уменьшается только за счет электронного возбуждения и этот атом не смещает другие атомы;

5) для характеристики взаимодействия и расчета поперечного сечения используется модель твердых шаров;

6) эффекты, связанные с кристаллической структурой вещества, не учитываются.

Можно показать, что при указанных условиях количество приходящихся на ПВА смещений

$$v(T) = \begin{cases} 0 & \text{при } T < E_d, \\ 1 & \text{при } E_d < T < 2E_d, \\ \frac{T}{2E_d} & \text{при } 2E_d < T < E_c, \\ \frac{E_c}{2E_d} & \text{при } T \geq E_c. \end{cases}$$

На рис. 2.3 приведен график зависимости  $v(T)$  от  $T$  в модели Кинчина – Пизе.

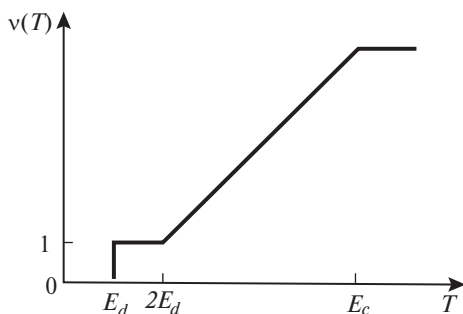


Рис. 2.3. Зависимость числа смещений  $v(T)$ , приходящихся на ПВА, от кинетической энергии  $T$  ПВА в модели Кинчина – Пизе

Дальнейшее рассмотрение моделей расчета количества смещений, приходящихся на ПВА, будет вестись на основе определенных изменений модели Кинчина – Пизе.

### ***Модификация модели Кинчина – Пизе (нарушение условия 3)***

Если посмотреть на условие 3, то можно заметить, что оно, вообще говоря, является приближенным, поскольку закон сохранения энергии должен записываться следующим образом:

$$T' + \varepsilon + E_d = T, \quad (2.1)$$

поэтому условие 3 предполагает, что  $\varepsilon \gg E_d$ . Учет выражения (2.1) приводит к тому, что если  $\varepsilon < E_d$ , то атомы все равно сме-

щаются. Вследствие этого к модели Кинчина — Пизе добавляется дополнительное выражение

$$\nu(T) = 0,56 \left( 1 + \frac{T}{E_d} \right), \quad T > 4E_d.$$

### ***Модификация модели Кинчина — Пизе (нарушение условия 5)***

Одним из самых слабых условий в модели Кинчина — Пизе является использование потенциала взаимодействия из модели столкновения твердых шаров. Дж. Сандерс нашел  $\nu(T)$  для потенциала ( $r^{-s}$ ):

$$\nu(T) = s \left( 2^{\frac{1}{s+1}} - 1 \right) \frac{T}{2E_d}.$$

Например, ионы с разной энергией характеризуются различными потенциалами взаимодействия с атомом. П. Зигмунд определил число смещений, приходящихся на ПВА в случае потенциала Томаса — Ферми:

$$\nu(T) = \frac{6}{\pi^2} \frac{T}{U} \ln \left( 1 + \frac{U}{E_d} \right), \quad (2.2)$$

где  $U$  — потери энергии связи атомом при смещении из узла кристаллической решетки. Обычно она составляет несколько электронвольт и ею можно пренебречь, тогда выражение (2.2) можно упростить:

$$\nu(T) = \frac{6}{\pi^2} \left( \frac{T}{2E_d} \right).$$

### ***Модель Линдхарда***

Приближенным является также условие 4, поскольку потери энергии на возбуждение электронов и на выбивание атомов являются конкурирующими процессами и их нужно рассматривать одновременно и независимо. Дж. Линдхард с соавторами предложили одно из наиболее полных описаний процессов столкновений ПВА, которое учитывает как атомные потенциалы, так и распределение энергии между процессами ядерного и электронного торможения. Согласно Линдхарду:

$$\nu(T) = \xi(T) \left( \frac{T}{2E_d} \right),$$

$$\xi(T) = \frac{1}{1 + 0,13(3,4\epsilon_T^{1/6} + 0,4\epsilon_T^{3/4} + \epsilon_T)},$$

$$\epsilon_T = \frac{T}{2Z^2\epsilon^2/a}, \quad a = \frac{0,8853a_0}{Z^{1/3}},$$

где  $\epsilon$  – заряд электрона;  $Z$  – заряд атомов решетки;  $a$  – радиус экранирования;  $a_0$  – боровский радиус.

### ***ТРН-стандарт***

В настоящее время общепринятым для расчета количества смещений в каскаде, приходящихся на ПВА с энергией  $T$ , является ТРН-стандарт, основанный на модели Линдхарда. Согласно данной модели

$$\nu(T) = \frac{kE_D}{2E_d} = \frac{k(T - \eta)}{2E_d},$$

где  $T$  – полная энергия ПВА;  $k$  – коэффициент, называемый эффективностью смещений;  $k = 0,8$  и не зависит от  $M_2$ ,  $T$  или температуры;  $E_D$  – энергия, необходимая для образования смещений;  $\eta$  – полные потери энергии в каскаде на электронное возбуждение.

Величину  $E_D$  находят следующим образом:

$$E_D = \frac{T}{1 + k_N g(\epsilon_N)},$$

где  $k_N = 0,1337 Z_1^{1/6} \left( \frac{Z_1}{A_1} \right)^{1/2}$ ;  $g(\epsilon_N) = 3,4008\epsilon_N^{1/6} + 0,40244\epsilon_N^{3/4} + \epsilon_N$ ;

$\epsilon_N = \frac{A_2 T}{A_1 + A_2} \frac{a}{Z_1 Z_2 \epsilon^2}$ ;  $a = \left( \frac{9\pi^2}{128} \right)^{1/3} a_0 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{-1/2}$ ;  $a_0$  – радиус

Бора;  $\epsilon$  – единичный заряд электрона.

Если  $E_D \approx 40$  эВ, то  $\nu(T) = 10 E_D$ , где  $E_D$  выражается в килоэлектронвольтах.

Знание числа  $\nu(T)$  и дифференциального сечения взаимодействия  $\sigma(E_i, T)$  для энергии, передаваемой ПВА, позволяет подсчитать скорость образования смещений, которая является одним из ключевых параметров для оценки повреждающей способности реакторного облучения и подобия эффектов облучения различными частицами.

## 2.2. Фокусировка и каналирование пучков частиц в кристалле

В модели Кинчина — Пизе было сформулировано условие 6, согласно которому при расчете количества смещений, приходящихся на ПВА, не учитывались эффекты, связанные с кристаллической структурой вещества. К таким эффектам относятся фокусировка и каналирование.

*Фокусировка* — это передача энергии через лобовые столкновения атомов, находящихся в одном кристаллографическом ряду. Рассмотрим явление фокусировки на примере модели твердых шаров (рис. 2.4). Пусть расстояние между атомами вдоль данного кристаллографического направления равно  $D$ . Радиус  $R$  твердых шаров можно установить исходя из потенциала Борна — Майера. Пусть первый атом получает энергию  $T$  и начинает двигаться в направлении  $AP$ . Сталкиваясь со следующим атомом, он смещает его в направлении  $PB$ .

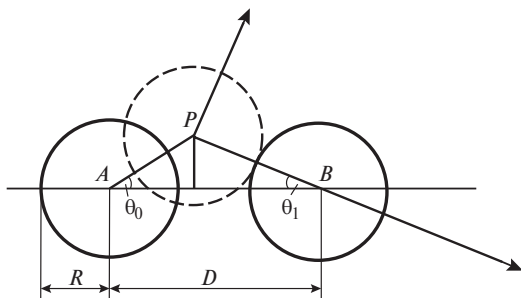


Рис. 2.4. Простой эффект фокусировки, предполагающий модель столкновения твердых шаров

При малых углах  $\theta_1$  и  $\theta_0$  из простых геометрических соотношений можно найти:

$$f = \frac{\theta_1}{\theta_0} = \frac{D}{2R} - 1,$$

где  $f$  — параметр фокусировки.

Если рассматривать дальнейшие соударения, то угол  $\theta_n$  рассеяния  $n$ -го атома в цепочке соударения будет вычисляться по формуле

$$\theta_n = f^n \theta_0 = \left( \frac{D}{2R} - 1 \right)^n \theta_0.$$

При  $D > 4R$  параметр фокусировки больше единицы и угол увеличивается, если же  $D < 4R$ , то угол рассеяния уменьшается и фокусировка станет возможной. Поскольку радиус  $R$  зависит от энергии соударяющихся атомов, то для данного кристаллографического направления существует критическая энергия  $E_f^{hkl}$ , ниже которой  $f < 1$  и фокусировка возможна. Например, в меди в направлении  $\langle 110 \rangle$  это значение составляет 60 эВ, а в золоте — 600 эВ. *Критической* называется такая фокусировка, при которой  $f = 1$ .

При рассмотрении фокусировки необходимо принимать во внимание также ближайших соседей рассеивающихся атомов, поскольку, отталкивая рассеянный атом, они действуют как линзы и помогают процессу фокусировки, тем самым увеличивая  $E_f^{hkl}$  и делая фокусировку более возможной.

На рис. 2.5 показаны зависимости длины цепочки соударений при фокусировке и вероятности такой фокусировки от энергии ПВА.

Следует также отметить, что фокусировка более вероятна в тех направлениях, для которых  $D$  меньше.

Для понимания сути каналирования рассмотрим сначала упрощенную задачу. Пусть ион с энергией  $E_i$  направлен на цепочку атомов, расположенных на равном расстоянии  $d_a$  друг от друга (рис. 2.6).

Угол между осью цепочки и направлением движения иона на расстоянии, где его взаимодействием с атомами можно пренебречь, достаточно мал и равен  $\theta$ . В этой ситуации ион испытал бы лобовое соударение с атомом цепочки  $A$ , если бы на него не воздействовали предыдущие атомы этой цепочки. На самом деле при приближении иона к атомному ряду на него действуют силы отталкивания, причем из-за упорядоченного расположения атомов это отталкивание коррелированно, т.е. направлено все время в одну сторону. В результате лобового

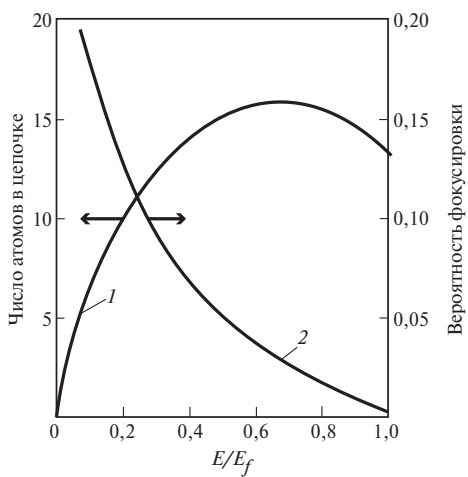


Рис. 2.5. Зависимость длины цепочки соударений (кривая 1) и вероятности фокусировки (кривая 2) от энергии ПВА

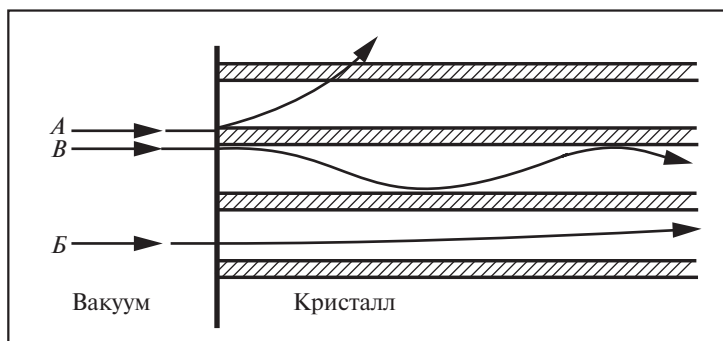
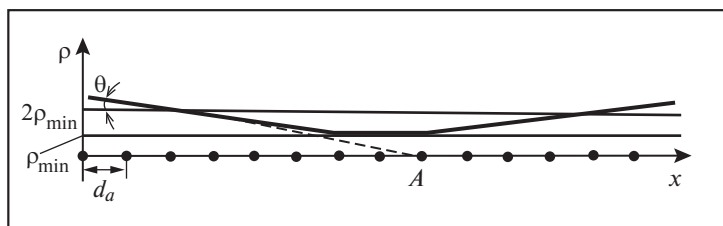


Рис. 2.6. Схематическое изображение фокусировки

соударения не происходит. Ион просто отражается от такой цепочки, приблизившись к ней на расстояние  $\rho_{\min}(E_i, d_a, \theta)$ , которое может существенно превышать расстояние максимального сближения для случая лобового столкновения иона, имеющего энергию  $E_i$ , с атомом группы  $A$ . Очевидно, что такая корреляция столкновений происходит, если в процессе движения к оси цепочки ион взаимодействует с достаточно большим числом атомов. В этом случае можно рассматривать рассеяние не на потенциале каждого атома, а на усредненном потенциале  $U(\rho)$  всех атомов цепочки.

Ион, подлетающий к цепочке атомов под углом  $\theta$ , меньшим критического угла  $\theta_{\text{кр}}$ , вместо того чтобы испытать сильное рассеяние, отражается от нее под тем же углом  $\theta$ . При этом он не может приблизиться к оси атомного ряда на расстояние, меньшее, чем параметр экранирования  $a$ .

Рассмотрим детальнее рис. 2.6. Очевидно, что ионы группы  $A$  не будут испытывать коррелированных соударений, т.е. в первом приближении их движение можно рассматривать как движение в неупорядоченной среде. Ионы группы  $B$ , прицельные параметры для соударения с поверхностными атомами которых оказываются достаточно велики, рассеиваются на углы, малые по сравнению с критическим. Эти ионы отражаются от атомных цепочек, осциллируя между ними, но все время оставаясь на больших по сравнению с  $a$  расстояниях от осей атомных рядов. Пространственный период колебаний ионов группы  $B$  должен быть очень велик и значительно превосходить межатомное расстояние  $d_a$ .

Наконец, группе  $B$  соответствуют ионы, рассеянные на углы, близкие к  $\theta_{\text{кр}}$ . Период осцилляции между атомными цепочками для этих ионов относительно мал и составляет единицы межатомного расстояния. При рассеянии на цепочках ионы группы  $B$  приближаются к их осям на расстояния, сравнимые с постоянной экранирования.

Ионы групп  $B$  и  $B$  называют *каналируемыми*, а сам эффект коррелированного движения ионов в пространстве между атомными рядами или плоскостями — *каналированием*. Если движение каналируемых частиц определяется рассеянием на атомных цепочках, то говорят об *аксиальном каналировании*, а если на плоскостях — то о *плоскостном каналировании*.

Таким образом, при проникновении пучка ионов внутрь монокристалла он распадается на два компонента: хаотический пучок (группа  $A$ ) и *каналируемый пучок* (группы  $B$  и  $B$ ).

Если каналирование существенно, то для ионов этой группы наблюдается второй максимум в распределении внедренных ионов, расположенный глубже максимума, соответствующего хаотическому пучку.

Если в результате, например, тепловых колебаний или взаимодействия с дефектами решетки ионы из группы *B* рассеиваются на углы, большие  $\theta_{кр}$ , то произойдет *деканалирование*, т.е. такие ионы перестанут быть каналированными.

Распределение, полученное экспериментально при внедрении ионов  $K^+$  с энергией  $E_1 = 500$  кэВ в монокристалл вольфрама вдоль направления  $\langle 111 \rangle$ , показано на рис. 2.7.

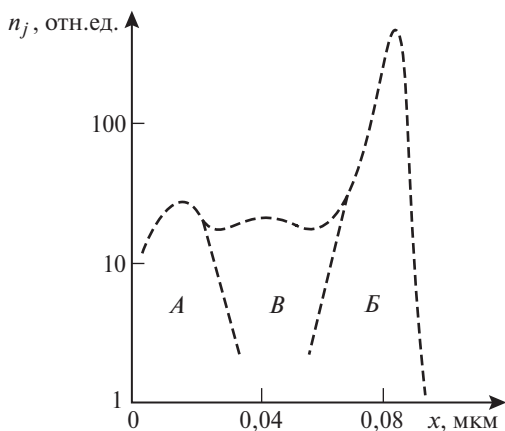


Рис. 2.7. Распределение внедренных в монокристалл вольфрама вдоль направления  $\langle 111 \rangle$  ионов при наличии каналирования

Угол  $\theta_{кр}$  обратно пропорционален энергии, следовательно, существует критическая энергия  $E_{кр}$ . Если энергия атома меньше этой величины, то каналирования не происходит. Для меди данная величина составляет примерно 300 эВ.

Эффекты каналирования и фокусировки влияют на вероятность смещения атома  $P(T)$ . Поскольку критическая энергия фокусировки  $E_f^{hkl} \approx 100$  эВ, то влияние фокусировки довольно мало. Можно показать, что с учетом этих эффектов число смещений, приходящихся на ПВА, будет вычисляться по формуле

$$\nu(T) = \left( \frac{T}{2E_d} \right)^{1-2P(T)}.$$

При больших энергиях ПВА эффект каналирования оказывается существенным.

### 2.3. Особенности каскада столкновений при облучении различного типа

В том случае, когда ПВА способен передать другому атому решетки энергию  $T \gg E_d$ , образуется второй выбитый атом, который при том же условии может создать третий выбитый атом, и т.д. Таким образом, высокоэнергетичные частицы могут создавать целый *каскад атом-атомных столкновений*. Другими словами, в каскаде атомы отдачи, которые могут иметь энергию десятки килоэлектронвольт, теряют эту энергию в диаметре нескольких десятков нанометров, создавая локально высокую концентрацию смещенных атомов — так называемую *обедненную зону* (рис. 2.8). В общем случае образование каскадов происходит тогда, когда энергия ПВА превышает 10 пороговых энергий.

Эволюция повреждений, вызванных энергетическими нейтронами или ионами, предполагает несколько стадий.

В результате передачи атому решетки энергии, значительно превышающей  $E_d$ , энергия, высвобождающаяся в каскаде столкновений, трансформируется главным образом в тепловую,

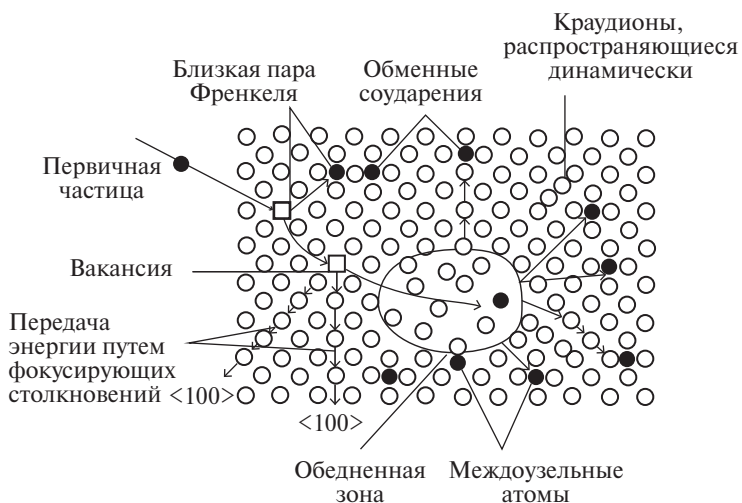


Рис. 2.8. Модель радиационных повреждений при соударении одного нейтрона с атомами решетки

которая диссипирует по прилегающему объему материала. В данном временном интервале происходит интенсивное атомное перемешивание. При этом 70...80% образовавшихся дефектов — вакансий и междоузлий — рекомбинирует, а на месте прохождения каскада менее чем через 100 пс формируется обедненная зона — *вакансионное ядро*, окруженное междоузельной «шубой» (рис. 2.9). Дефекты, избежавшие внутрикаскадной рекомбинации, могут вступать в реакцию с дефектами, «выжившими» в других каскадах.

Можно считать, что ПВА с энергией 50 кэВ формируют типичный каскад диаметром около 7 нм. Облучение тяжелыми ионами и нейтронами вызывает формирование значительной части ПВА с еще большими энергиями отдачи.

При соответствующих энергиях каскадные области атомных столкновений состоят из отдельных *субкаскадов*. Считается, что причиной образования субкаскадов являются процессы каналирования отдельных выбитых атомов.

Тип кристаллической решетки облучаемого материала не оказывает заметного влияния на характеристики субкаскадной структуры. Среднее расстояние между субкаскадами составляет около 40 параметров решетки в меди и серебре (ГЦК), железе и вольфраме (ОЦК), облученных ионами никеля с энергией 300 кэВ.

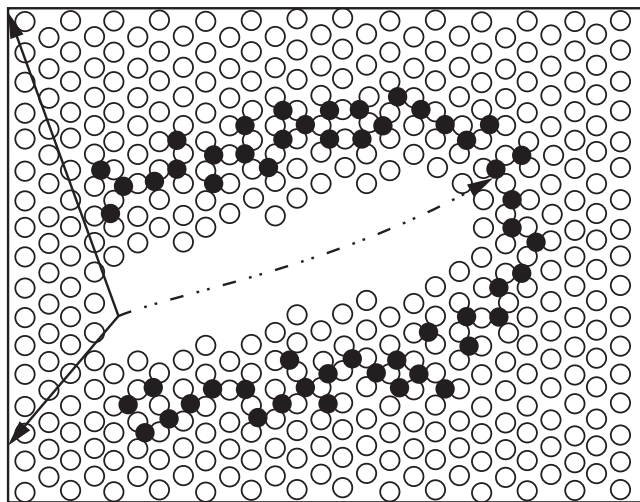


Рис. 2.9. Каскад столкновений при прохождении нейтрона через вещество

Каскады оказывают существенное влияние на микроструктурную эволюцию при облучении тяжелыми энергетическими частицами, поскольку они:

- модифицируют эффективность выживания точечных дефектов и, следовательно, изменяют эффективное количество смещений;
- обуславливают высокую локальную плотность дефектов, что существенно изменяет вероятность кластеризации вакансий либо атермического захлопывания вакансионного ядра, либо перестройки атомов в ядре термически, механически или термодинамически и влияет на изменение кинетики дефектов — как междоузлий, так и вакансий;
- способствуют атомному перемешиванию, растворению и образованию новых выделений.

Важно, что при облучении различных видов и соответственно при различных спектрах ПВА наблюдается неодинаковое пространственное распределение дефектов, сформированных каскадами. На рис. 2.10 проиллюстрированы основные особенности облучения различных типов.

Из рис. 2.10 следует, что при одинаковой энергии частиц наибольшая энергия ПВА наблюдается в случае нейтронного облучения. Нейтроны проникают глубоко в вещество, не взаимодействуя с материалом большую часть пути. Во время же ак-

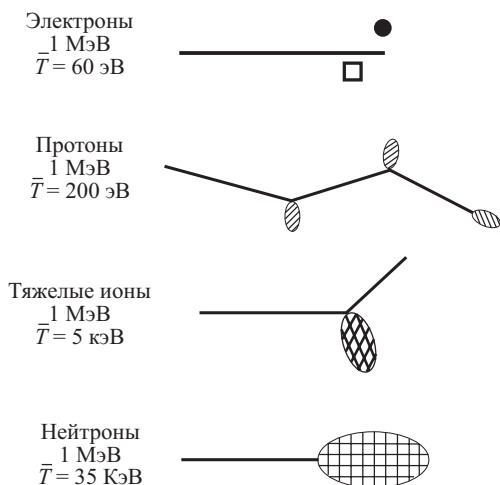


Рис. 2.10. Схематическое изображение радиационных повреждений при воздействии облучения различных типов

тов взаимодействия ПВА приобретают большую энергию, достаточную для образования каскада смещений.

Тяжелые заряженные частицы (протоны,  $\alpha$ -частицы, ионы) с увеличением массы передают ПВА больше энергии, в результате чего образуется субкаскадная структура, размеры субкаскадов которой также увеличиваются вместе с массой частиц излучения. Электроны способны вызвать образование лишь отдельных пар Френкеля.

Для сравнения структур повреждений, т.е. распределения по размерам каскадов, создаваемых в материале при облучении различными частицами сразу после зарождения каскада до наступления периода термической миграции, было предложено ввести нормированную функцию  $W(T)$ , определяющую долю пар Френкеля, которые образуются в каскадах, инициированных ПВА с энергией меньше  $T$ .

На рис. 2.11 показана зависимость  $W(T)$  для облучения разных типов. Соответствующим параметром для характеристики облучения является энергия  $T_{1/2}$ , для которой  $W(T) = 0,5$ . Часть пар Френкеля образует ПВА с энергией меньше  $T_{1/2}$ , а часть — ПВА с энергией больше  $T_{1/2}$ .

Поскольку в больших каскадах междоузлия и вакансии перемешиваются, а их локальная концентрация очень высока, зна-

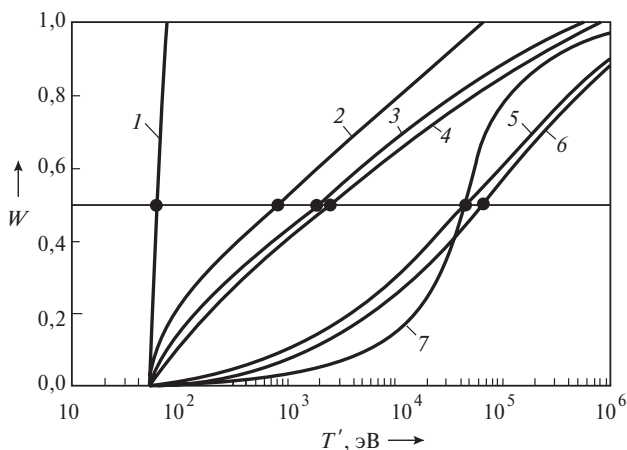


Рис. 2.11. Подсчитанная доля дефектов ( $W$ ), образованных первичными атомами с энергией меньше  $T'$ , для облучения различных видов:

1 — 1 МэВ — электроны; 2 — 1 МэВ — водород; 3 — 2 МэВ — гелий; 4 — 2 МэВ — литий; 5 — 3 МэВ — никель; 6 — 3,25 МэВ — никель; 7 — нейтроны ( $E > 0,1$  МэВ)

чительная часть пар Френкеля, генерированных в каскадах, исчезает при спонтанной рекомбинации, временной фактор которой равен приблизительно  $10^{-11}$  с.

Таким образом, количество стабильных дефектов, которые «выживают», меньше, чем количество первоначально смещенных атомов, на фактор (называемый *эффективностью каскада*), который имеет значение порядка 0,5 (рис. 2.12).

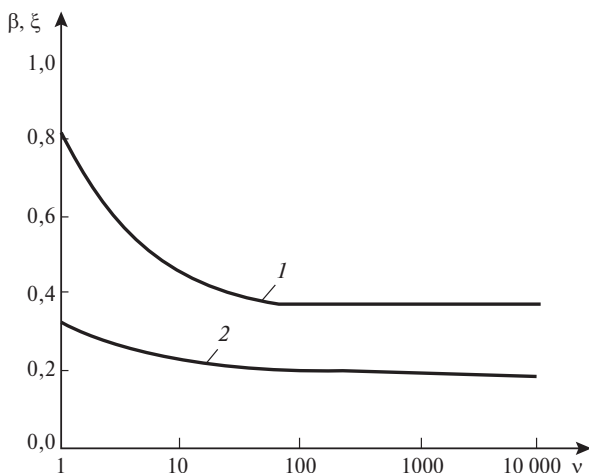


Рис. 2.12. Значения каскадного коэффициента  $\beta$  (кривая 1) и коэффициента повреждений  $\xi$  (кривая 2) как функции смещений на ПВА для меди

Каскадный коэффициент  $\beta$  учитывает лишь спонтанную рекомбинацию внутри каскада, тогда как коэффициент повреждений  $\xi$  содержит информацию и о процессе термического отжига.

## 2.4. Кластеры

Компьютерное моделирование на атомном уровне с использованием *метода молекулярной динамики* (МД) показало, что существенная часть дефектов, сформировавшихся в высокоэнергетических каскадах смещений, существует в форме скоплений. Скопления вакансий и собственных междоузельных атомов оказывают чрезвычайно большое влияние на дальнейшее развитие дефектной микроструктуры, так как они являются

ся в высшей мере стабильными и для них характерно быстрое термоактивированное одномерное скольжение.

МД-моделирование внутрикаскадного образования скоплений вакансий и междоузельных атомов показывает, что фракция междоузлий в скоплениях имеет форму скользящих совершенных дислокационных петель. Их фракция наименьшая (всего несколько процентов) в ОЦК-металлах и наибольшая (до 30...40%) в ГЦК-металлах с низкой энергией дефектов упаковки.

Образование скоплений вакансий в значительной степени зависит от структуры кристалла. Например, крупные компактные скопления наблюдаются только при моделировании ГЦК-и ГПУ-металлов. В ОЦК-металлах не наблюдалось ни крупных компактных плоскостных, ни трехмерных скоплений вакансий.

Стабильность вакансионных кластеров определяется также кристаллической структурой. Наиболее стабильные вакансионные скопления в ГЦК-меди были стабильны при МД-моделировании до температуры 1000 К в течение по меньшей мере нескольких наносекунд. Энергия связи дефектов в кластерах различного типа указана на рис. 2.13.

Все типы скоплений *собственных междоузельных атомов* (СМА) во всех металлических структурах имеют очень высокую энергию связи — порядка 2...3 эВ/СМА. Они не могут разлагаться термически, но могут превращаться из метастабильной конфигурации в стабильную.

Термически активированное движение скоплений подавляется при большом размере кластеров (100—300 междоузлий, в зависимости от материала).

На рис. 2.14 представлена типичная микроструктура аустенитной стали ЭИ-847 и никеля, облученных тяжелыми ионами в низкотемпературной области ( $\sim 100^\circ\text{C}$ ). Доминирующей микроструктурной особенностью является высокая концентрация мелких кластеров *black dots*. Средний размер этих кластеров превышает 3 нм. Расчеты, выполненные на сплавах Fe—Cr—Ni и чистых ГЦК-металлах, показали, что большинство кластеров типа *black dots* создаются прямо в каскадах смещения во время «отжига» каскада.

Резюмируя, можно сказать, что значительная часть дефектов, образованных в каскадах, исчезает вследствие *внутрикаскадной спонтанной рекомбинации*, формирования неподвижных кластеров и рекомбинации на стоках, существующих в облучаемом материале.

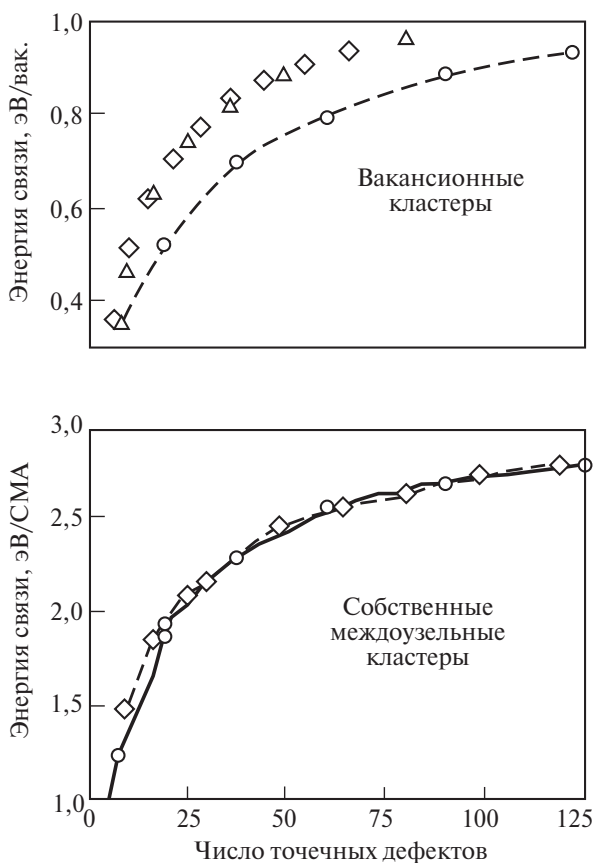


Рис. 2.13. Энергия связи собственных междоузельных и вакансионных кластеров в меди:

○ —  $1/3\langle 111 \rangle$  — дефектные петли Франка; ◇ —  $\langle 111 \rangle$  — идеальные петли; Δ — четырехгранные дефекты упаковки

Именно часть «выживших» (так называемых *свободно мигрирующих*) дефектов ответственна за всю дальнейшую эволюцию микроструктуры в каскадной области.

На рис. 2.15 схематически показана кинетика эволюции каскада в случае облучения нейтронами или тяжелыми ионами при высоких температурах. В процессе облучения образуются мобильные моновакансии ( $v$ ) и мономеждоузлия ( $i$ ), также как и малые кластеры дефектов ( $v_n, i_n$ ). Реакции между мобильны-

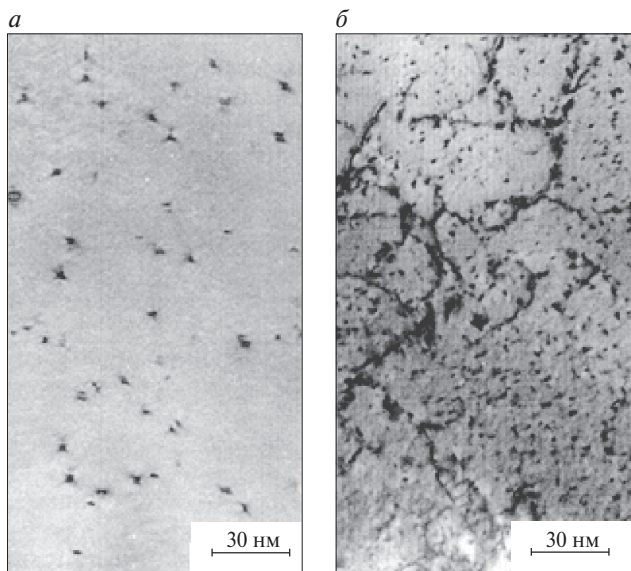


Рис. 2.14. Микроструктура стали ЭИ-847 (а) и никеля (б), облученных ионами никеля:

а –  $D = 40$  сна; б –  $D = 20$  сна

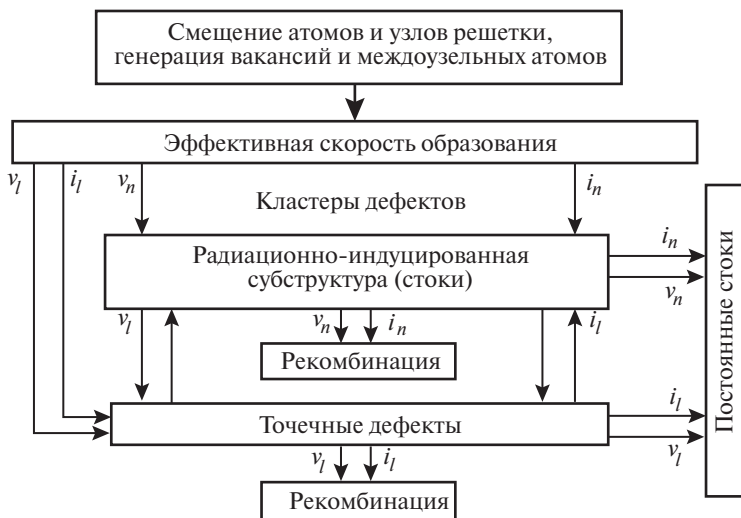


Рис. 2.15. Схема эволюции каскада повреждений при высоких температурах

ми дефектами и между дефектами и стоками указывают на то, что часть дефектов участвует в реакциях рекомбинации и существует поток радиационно-индуцированных дефектов на постоянные стоки. В процессе облучения происходит и распад кластеров на точечные дефекты.

Доли как «выживших», так и кластеризованных и изолированных точечных дефектов являются функцией и температуры, и энергии ПВА.

## 2.5. Взаимодействие дефектов

### Общие сведения

В процессе облучения происходят реакции между дефектами различных типов, образованными при облучении. Причина рекомбинации междоузлия и вакансии определяется деформацией противоположных знаков, которая вызвана напряжениями, возникающими при их образовании. Эффекты, вносимые междоузельным атомом, по абсолютной величине в несколько раз превышают эффекты, вносимые вакансиями.

Междоузельный атом приводит к локальным искажениям кристаллической решетки в пределах не менее пяти координационных сфер. На рис. 2.16 представлены некоторые результаты возможных реакций между дефектами в металлах, облученных при высоких температурах.

| Взаимодействие                                                                                                                                                                                                       | Результат                  |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------|
| <p>Рекомбинация собственного междоузельного атома и вакансий</p> <p> <math>r_p</math> <math>r_{iv}</math><br/>         скоррелированная <math>f_{кор} = 2r_v / r_p</math><br/>         нескоррелированная       </p> | <p>Прямая рекомбинация</p> |

Рис. 2.16. Примеры взаимодействия дефектов в облучаемых материалах при высоких температурах:

\* — собственные междоузельные атомы;  $\square$  — вакансии;  $r_p$  — начальное расстояние между СМА и вакансией непосредственно после их возникновения; радиусы эффективного взаимодействия:  $r_{iv}$  — между СМА и вакансией;  $r_{ii}$  — между двумя СМА;  $r_{vv}$  — между двумя вакансиями;  $r_{ii}$  — между СМА и атомом примеси;  $r_{id}$  — между СМА и дислокацией

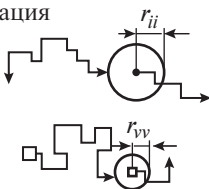
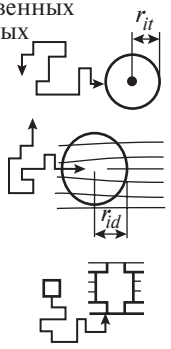
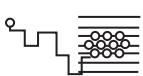
| Взаимодействие                                                                                                                                                                                                                                              | Результат                                                                                                                                                                                 |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| <p>Кластеризация</p>  <p>собственных<br/>междоузельных<br/>атомов</p> <p>вакансий</p>                                                                                      | <p>Димеждоузлия<br/>Тримеждоузлия</p> <p>Дислокационные<br/>петли</p> <p>Дивакансии<br/>Тривакансии</p> <p>Дислокационные<br/>петли</p> <p>Тетраэдры дефекта<br/>упаковки</p> <p>Поры</p> |
| <p>Захват собственных<br/>междоузельных<br/>атомов<br/>и вакансий</p>  <p>на примеси</p> <p>на дислокации</p> <p>на поре,<br/>на границах зерен,<br/>выделениях и т.п.</p> | <p>Смешанные<br/>гантели</p> <p>Дислокационные<br/>переплетения</p> <p>Рост пор</p>                                                                                                       |
| <p>Кластеризация<br/>атомов гелия</p>                                                                                                                                     | <p>Гелиевые<br/>зародыши</p>                                                                                                                                                              |

Рис. 2.16. Окончание

### Отжиг радиационных дефектов

Большая часть информации о реакциях между дефектами получена в экспериментах по отжигу (рис. 2.17). Из пяти стадий отжига радиационных дефектов для рассмотрения технологически важных радиационных явлений (распухание материалов, радиационная ползучесть, высокотемпературное радиационное охрупчивание) наибольший интерес представляет изучение реакций между дефектами на III и IV стадиях отжига, т.е. в температурном интервале  $(0,2...0,4)T_{пл}$ , где  $T_{пл}$  — температура плавления.

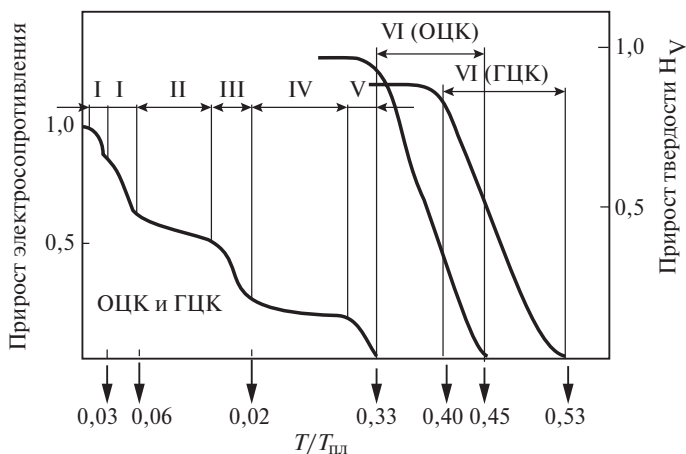


Рис. 2.17. Стадии отжига радиационных дефектов в облученном материале с ОЦК- и ГЦК-структурой

На стадии III предложены следующие пять механизмов отжига дефектов:

- 1) диссоциация димеждоузлий и последующая их рекомбинация с вакансиями;
- 2) миграция димеждоузлий и их объединение с другими дефектами;
- 3) миграция вакансий и их рекомбинация с «выжившими» после стадии II собственными атомами, захваченными примесными атомами, а также объединение движущихся вакансий с неподвижными комплексами;
- 4) миграция дивакансий и их объединение с неподвижными комплексами;
- 5) миграция конфигураций междоузельных атомов, неподвижных вплоть до стадии III, их рекомбинация с вакансиями и объединение с неподвижными комплексами.

Основное отличие стадии IV от всех предыдущих — активное участие в реакциях вакансий, образующих вакансионные комплексы. На этой стадии мигрируют и участвуют в реакциях с идентичными и другими дефектами структуры вакансии, «выжившие» на предыдущих трех стадиях отжига.

На стадии V происходит отжиг скоплений и устанавливается состояние термодинамического равновесия.

Выяснено, что большинство примесных атомов в металлах представляют собой эффективные ловушки для междоузлий.

Подразмерные примеси формируют с междоузлиями стабильные комплексы. Эти комплексы термически не диссоциируют ниже температур, при которых вакансии становятся мобильными.

Таким образом, экспериментально установлено, что в облучаемом материале часть дефектов объединяется, образуя скопления (дислокационные петли, поры и др.).

### ***Зарождение и рост дислокационных петель***

Дислокационные петли подразделяются на *междоузельные* и *вакансионные*. Из-за больших искажений развитие трехмерных скоплений междоузельных атомов энергетически невыгодно. Объединяясь, они образуют скопления только одного типа — *дислокационные петли*. В условиях низкотемпературного облучения рост междоузельных петель обусловлен *преференсом* (предпочтением в поглощении) дислокаций по отношению к междоузельным атомам. При высокой температуре облучения их росту способствует и термическая эмиссия вакансий из петель. Зависимость концентрации междоузельных дислокационных петель от длительности облучения показана на рис. 2.18.

С повышением температуры облучения (увеличением подвижности вакансий) продлевается этап зарождения междоузельных дислокационных петель. При высоких температурах облучения их зарождение происходит непрерывно в течение длительного облучения.

Местами, благоприятными для зарождения и роста междоузельных дислокационных петель, часто являются некоторые из структурных несовершенств: дефекты упаковки, границы двойников, плоскости, по которым произошло скольжение, и т.д.

В нержавеющей стали, облучаемых в реакторе, одноосное растягивающее напряжение, как правило, вызывает увеличение скорости зарождения и роста междоузельных петель в плоскостях, перпендикулярных к действию нагрузки, а в плоскостях, параллельных нагрузке, их зарождение и рост замедляются.

В отличие от междоузельных петель вакансионные петли при облучении являются дефектами нестабильными. В условиях низкотемпературного облучения вакансионные петли растворяются из-за преферанса дислокаций по отношению к междоузельным атомам; при высокой температуре облучения их растворение ускоряется термической эмиссией вакансий из петель.

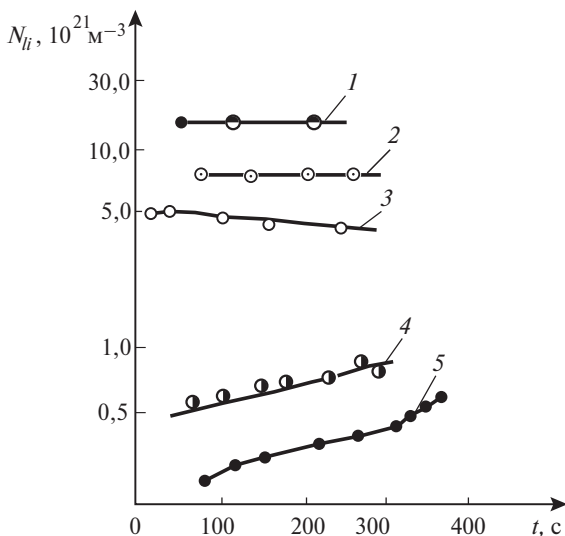


Рис. 2.18. Зависимость концентрации междоузельных дислокационных петель ( $N_{li}$ ) от продолжительности облучения ( $t$ ) в высовольтном электронном микроскопе (ВВЭМ):

1 — в никеле при температуре 273 К; 2 — в алюминии при температуре 298 К; 3, 4 — в золоте при температуре соответственно 298 и 448 К; 5 — в меди при температуре 393...473 К

Предполагается, что фактором, стабилизирующим вакансионные петли при электронном облучении, является сегрегация примесей в плоскости расположения петель.

Исходный размер вакансионных петель, образующихся при ионном и нейтронном облучении металлов, настолько велик, что при низких температурах облучения, несмотря на последующее растворение, они сохраняются в течение длительного времени. В центральных областях каскадов, обогащенных вакансиями, образуются вакансионные петли.

Эволюция вакансионных петель изучается в основном в экспериментах с облучением объектов низкоэнергетическими ионами (до 100 кэВ). Установлено, что они образуются при энергии налетающих ионов, превышающей некоторую критическую энергию  $E_{кр}$ . При меньшей энергии ионов каскад либо разрушается с образованием скопления, слишком малого для обнаружения (меньше 1,5...2,0 нм), либо остается в неразрушенном состоянии. Так, для пары  $Cu^+ \rightarrow Cu$  критическая энергия  $E_{кр} = 6$  кэВ.

С увеличением *энергонапряженности каскада* (энергетических потерь на один атом в каскаде) или, что адекватно, с увеличением плотности вакансий в обедненной зоне каскада возрастает вероятность образования вакансионных петель. *Повреждающая способность облучения* — доля каскадов, разрушающихся с образованием вакансионных петель ( $\epsilon_k$ ), и доля вакансий, входящих в вакансионную петлю при разрушении каскада, или каскадной эффективности ( $\epsilon_n$ ) от массы бомбардирующих частиц, их энергии и размера каскадов смещений, возникающих под действием облучения.

При облучении меди ионами золота ( $E_i = 10 \dots 70$  кэВ) каскадная эффективность монотонно уменьшается с ростом энергии ионов от  $\epsilon_v = 0,5$  при  $E_i = 10$  кэВ до  $\epsilon_v = 0,25$  при  $E_i = 70$  кэВ. В экспериментах с облучением алюминия ионами золота получен аналогичный результат:  $\epsilon_v = 0,045$  при  $E_i = 20$  кэВ и  $\epsilon_v = 0,017$  при  $E_i = 70$  кэВ.

Газовые примеси в металлах, как правило, уменьшают долю каскадов, разрушающихся с образованием вакансионных петель, и каскадную эффективность.

Отметим, что у каждого типа облучения есть как достоинства, так и недостатки (см. табл. 4 из приложения).

# ГЛАВА 3

## РАДИАЦИОННО-ИНДУЦИРОВАННЫЕ И РАДИАЦИОННО-СТИМУЛИРОВАННЫЕ ПРОЦЕССЫ И ЯВЛЕНИЯ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ

---

### 3.1. Диффузия и перераспределение атомов

#### *Механизмы диффузии*

*Диффузией* называется направленное движение частиц в веществе под действием градиента электрохимического потенциала, *самодиффузией* — диффузия собственных атомов вещества, *гетеродиффузией* — диффузия примесных атомов в чистом материале, например в металле. Диффузия приводит к изменению распределения элементов в веществе.

С макроскопической точки зрения диффузия объясняется на основе двух фундаментальных законов Фика. Согласно первому закону поток компонента  $J$  пропорционален градиенту концентрации данного компонента  $\nabla C$ :

$$J = -D\nabla C,$$

где  $D$  — коэффициент пропорциональности, называемый *коэффициентом диффузии*,  $\text{м}^2/\text{с}$ .

Второй закон связывает скорость изменения концентрации компонента с градиентом концентрации данного компонента в данной точке:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -D\nabla^2 C.$$

С микроскопической точки зрения существует несколько механизмов диффузии: посредством вакансий, посредством междоузлий с замещением и без замещения, механизм «гантели», краудинный механизм, обмен атомами и кольцевой механизм. Однако из всех перечисленных механизмов диффузии наиболее важными являются вакансионный механизм и механизм с участием междоузлия.

Согласно вакансионному механизму диффузии (рис. 3.1, а) атом переходит в близлежащую вакансию, а на его месте об-

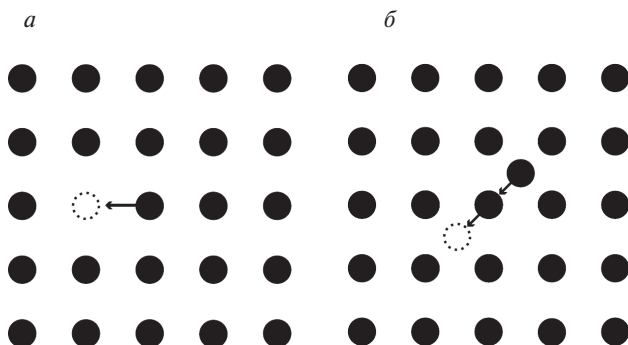


Рис. 3.1. Механизмы диффузии

разуется новая вакансия. Данный процесс можно рассматривать как с точки зрения движения атома, так и с точки зрения движения вакансии.

Механизмы диффузии с участием междоузлий (рис. 3.1, б) бывают нескольких типов (например, перемещение атома из одного междоузлия в соседнее). Однако наиболее вероятным механизмом является механизм с замещением. В данном случае междоузельный атом занимает равновесное положение в решетке, одновременно выбивая другой атом в междоузлие.

Основной причиной возникновения диффузии являются тепловые колебания атомов и молекул. В твердом теле частота таких колебаний составляет примерно  $10^{13} \text{ с}^{-1}$ , а частота скачков атомов —  $10^8 \text{ с}^{-1}$ . Таким образом, получается, что за  $10^5$  периодов тепловых колебаний атома он совершает один скачок.

В большинстве твердых кристаллов диффузионные явления связаны с движением термовакансий, и, следовательно, появление вакансий в результате облучения, вообще говоря, ускоряет диффузионные процессы. Согласно микроскопической теории диффузии выражение для коэффициента диффузии  $D$  выглядит следующим образом:

$$D = Av_0 a^2 C_v \exp\left(-\frac{E_{\text{д.в}}}{kT}\right),$$

где  $A$  — постоянная, приближенно равная 10 и связанная с геометрическими параметрами и энтропией;  $v_0$  — дебаевская частота колебаний решетки;  $a^2$  — квадрат средней длины скач-

ка;  $C_v$  — концентрация вакансий;  $E_{д.в}$  — энергия активации движения вакансий.

Облучение приводит к увеличению концентрации вакансий  $C_v$ , а следовательно, к возрастанию  $D$ . Скорость образования вакансий в результате облучения определяется величиной потока бомбардирующих частиц, а равновесная концентрация зависит от скорости образования вакансий и скорости их потери на стоках. Концентрация термовакансий увеличивается с повышением температуры по экспоненциальному закону, и, следовательно, при высокой температуре она станет преобладающей. При низкой температуре гораздо большей оказывается концентрация вакансий, введенных в результате облучения. Следовательно, можно ожидать, что коэффициент диффузии будет расти при облучении в области низких температур и останется без изменений при высокой температуре.

Если предположить, что поток бомбардирующих частиц обеспечивает равновесную концентрацию вакансий, равную  $10^{-3}$ , и что  $v_0 \approx 10^{13} \text{ с}^{-1}$ ,  $E_{д.в} = 0,7 \text{ эВ}$ ,  $a^2 = 10^{-15} \text{ см}^2$ , то для указанной концентрации вакансий получают значения коэффициента диффузии, указанные в табл. 3.1.

Таблица 3.1

**Зависимость коэффициента диффузии от температуры при облучении**

| $D, \text{ см}^2/\text{с}$ | $10^{-21,5}$ | $10^{-15,5}$ | $10^{-12,5}$ |
|----------------------------|--------------|--------------|--------------|
| Температура, К             | 200          | 300          | 400          |

В отсутствие облучения ожидаемое значение  $D$  при температуре 400 К равно  $10^{-24} \text{ см}^2/\text{с}$ , а в результате трехмесячного испытания получено значение  $D = 10^{-16} \text{ см}^2/\text{с}$ , что соответствует длине диффузии порядка 1 мкм. Сравнение указанных данных с оценками величины  $D$  в присутствии облучения свидетельствует о возможности эффекта ускорения диффузионного процесса при облучении.

***Радиационно-стимулированная диффузия***

Облучение твердых тел приводит к образованию в кристаллической решетке большого числа вакансий и междоузельных атомов, что повышает скорость диффузии. Радиационно-стимулированная диффузия (РСД) является одной из причин, приводящих к нестабильности реакторных материалов.

Как и в случае обычной термодиффузии, суммарный эффект РСД будет состоять из суммы микродиффузионных перемещений атомов.

Наряду с перемещениями, стимулированными тепловой энергией, учитываются и перемещения атомов, стимулированные прямым воздействием на них излучения в результате упругих соударений, а также перемещения, активированные суммарным эффектом тепловой энергии и энергии, переданной электронно-ионной подсистеме быстрой заряженной частицей при ее торможении в системе ион — электронный газ. В области низких температур тепловой энергии недостаточно для микродиффузионного перемещения дефектов. В этом случае влияние средней энергии, приобретенной решеткой в результате взаимодействия с излучением, должно проявляться более четко.

Радиационно-стимулированная диффузия зависит от числа свободно мигрирующих дефектов, создаваемых облучением, и параметров облучения, которые влияют на миграцию дефектов. Значительные потоки дефектов создаются только тогда, когда при облучении точечные дефекты обоих типов являются подвижными. В других случаях доминирует рекомбинация дефектов, которая существенно подавляет массоперенос на большие расстояния. Температурный интервал, в котором РСД может создавать перераспределение элементов сплава на больших расстояниях, равен  $(0,3...0,6)T_{пл}$ .

Рекомбинация дефектов на стоках играет важную роль при более высоких температурах, а коэффициент диффузии тогда не зависит от температуры в указанном интервале температур. При высокотемпературных облучениях полная концентрация вакансий приблизительно равна их равновесной концентрации, а количество рекомбинировавших дефектов на единицу дозы не зависит от плотности ионного пучка.

При ионной бомбардировке достаточно быстро устанавливается квазистационарное равновесие концентрации дефектов, при котором количество образующихся дефектов контролируется процессами их рекомбинации, образования кластеров и рекомбинации на стоках.

На рис. 3.2 приведен график зависимости коэффициента диффузии от температуры для системы алюминий — цинк, из которого следует, что при высоких температурах определяющей является термодиффузия, однако при низких температурах РСД вносит значительный вклад. При очень низких температурах перемешивание происходит только на стадии образования каскада.

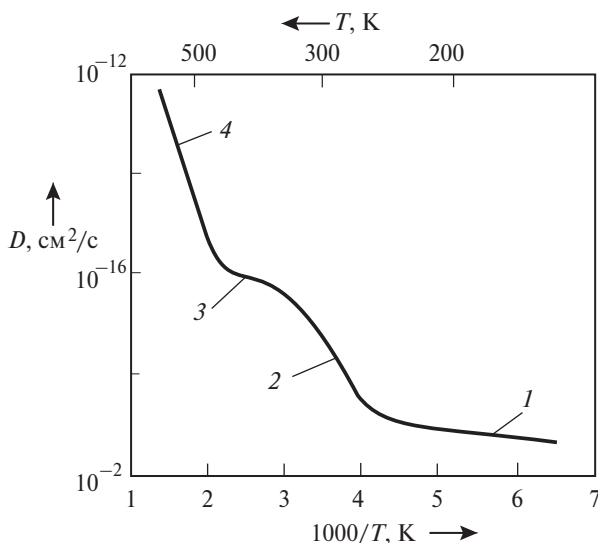


Рис. 3.2. Зависимость коэффициента диффузии от температуры для системы алюминий — цинк:

1 — доминирование каскадного перемешивания; 2 — радиационно-стимулированная диффузия через рекомбинацию; 3 — радиационно-стимулированная диффузия через фиксированные стоки; 4 — термическая диффузия

### **Особенности диффузии в поликристаллах**

Металлы и сплавы, используемые как структурные материалы, являются поликристаллами. Их структура характеризуется присутствием дислокаций, границ зерен и внутренних границ раздела фаз. Эти дефекты определенным образом влияют на протекание диффузионных процессов. Во-первых, диффузия в поликристаллах изотропна. Во-вторых, присутствие в материале линейных и плоских дефектов ускоряет диффузию по сравнению с ее скоростью в объеме чистого материала. Например, границы зерен характеризуются менее плотной упаковкой атомов по сравнению с чистым кристаллом, что значительно повышает скорость протекания диффузии (рис. 3.3).

Пространственное распределение областей образования и рекомбинации радиационных дефектов обуславливает существование потоков дефектов, что в свою очередь вызывает движение атомов, которое приводит к неоднородному распределению их в объеме, т.е. к сегрегации.

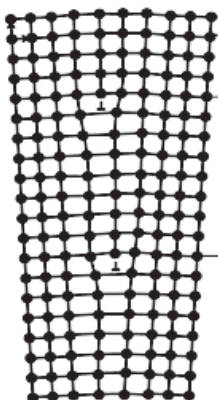


Рис. 3.3. Дислокационная модель границы зерен в развернутом виде

### 3.2. Сегрегация, рафинирование и геттерирование примесей, очистка от них материалов

#### *Сегрегация*

Явление *радиационно-индуцированной сегрегации* (РИС) состоит в перераспределении примесных атомов либо собственных компонентов вещества после облучения. В противоположность РСД, которая ускоряет достижение термодинамического равновесия элементов, РИС способствует возникновению концентрационных градиентов компонентов материала.

В результате непрерывного образования в процессе облучения пар Френкеля и сильного взаимодействия растворенных атомов твердого раствора и точечных дефектов в материале устанавливаются квазистационарные потоки подвижных точечных дефектов и их комплексов на стоки различных типов. К последним относятся как стоки, существовавшие перед облучением (выделения вторых фаз, границы зерен, исходная дислокационная структура), так и стоки, возникшие в процессе облучения (компоненты радиационно-индуцированной микроструктуры). Это является причиной РИС и распада твердого раствора.

#### *Механизмы сегрегации*

При облучении материалов возникает дополнительное количество точечных дефектов. Если эти дефекты подвижны,

то они двигаются в направлении стоков, которыми являются, как правило, дислокации и границы зерен. Как было показано в § 3.1, движение вакансий можно ассоциировать с движением атомов. В многокомпонентных системах точечные дефекты, такие как вакансии и междоузлия, могут быть преимущественно связанными с определенными компонентами, поэтому потоки атомов, связанные с потоками дефектов, для разных компонентов материала различны, что приводит к обогащению этими компонентами или обеднению областей вблизи стоков, т.е. к возникновению градиентов концентрации.

При облучении значительные потоки дефектов возникают только тогда, когда дефекты обоих типов (вакансии и междоузельные атомы) подвижны. В противном случае преобладают рекомбинация и массоперенос на большие расстояния, приводящий к перераспределению элементов, невелик.

Температурный интервал, в котором в результате сегрегации может происходить перераспределение компонентов сплава на значительные расстояния, составляет  $(0,25...0,55)T_{пл}$ . Генерируемые в процессе облучения потоки дефектов на стоки и возникающий градиент концентрации дефектов индуцируют поток компонентов сплава. Следовательно, потоки точечных дефектов могут создавать градиенты концентраций растворенных атомов в первоначально однородных сплавах. Это явление называется *обратным эффектом Киркендалла*.

Обратный эффект Киркендалла может обеспечиваться как вакансиями, так и междоузельными атомами радиационного происхождения (рис. 3.4).

В случае потока вакансий предпочтительная миграция атомов возникает из-за различий в скоростях обмена атомов и вакансий. Очевидно, что потоки атомов движутся в направлении, противоположном направлению вакансионного потока, таким образом, что наиболее медленно диффундирующий элемент обогащается на стоках точечных дефектов, в то время как быстро диффундирующие элементы обедняются.

Обратный эффект Киркендалла по междоузельному механизму РИС аналогичен вакансионному, однако в этом случае поток атомов движется в том же направлении, что и поток дефектов. В настоящее время очень мало известно о парциальных коэффициентах диффузии по междоузлиям, поэтому точно определить вклад междоузельного механизма в сегрегационный процесс затруднительно.

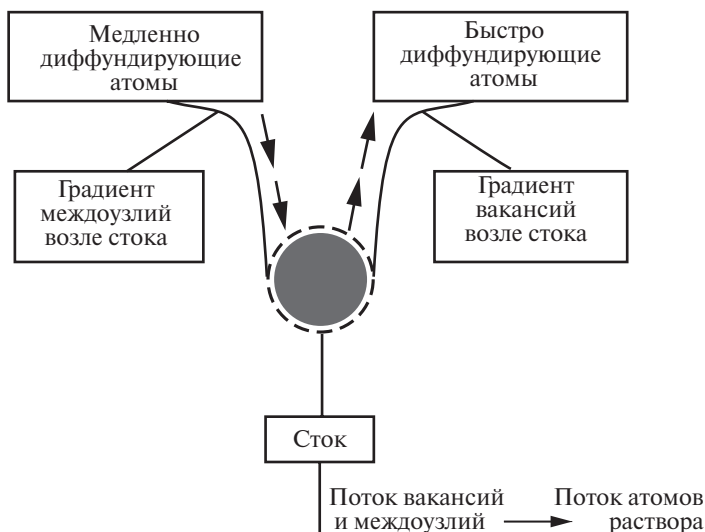


Рис. 3.4. Схема обратного эффекта Киркендалла вблизи стока дефектов

Миграция комплексов междоузлие — атом оказывается очень существенной для сегрегации компонентов с атомным радиусом, меньшим радиуса атомов матрицы, особенно для микролегирующих элементов (фосфор, кремний) в технологически важных сталях.

Таким образом, РИС имеет место при выполнении следующих двух условий:

- 1) наличие устойчивых потоков дефектов из отдельных пространственных областей или в них;
- 2) преимущественное взаимодействие потоков атомов отдельных элементов сплава с этими потоками дефектов.

Степень сегрегации определяется соотношением потоков атомов по различным механизмам и в свою очередь зависит от парциальных коэффициентов диффузии, чувствительных к составу и структуре сплава.

### ***Простейший пример сегрегации***

Рассмотрим двухкомпонентную систему, состоящую из компонентов *A* и *B*. На рис. 3.5 изображены концентрационные профили вакансий и междоузлий вблизи некоторого стока (в начале координат).

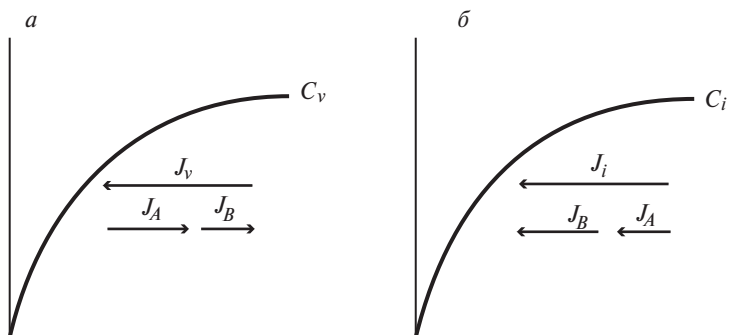


Рис. 3.5. Концентрации вакансий (а) и междоузлий (б) вблизи стока ( $J_A$ ,  $J_B$  — потоки компонентов системы;  $J_v$  — поток вакансий;  $J_i$  — поток междоузлий)

В случае сегрегации по вакансионному механизму потоки компонентов противоположны по направлению потоку вакансий, а в случае междоузельного механизма сегрегации они совпадают с направлением потока междоузлий. Как видно из рисунка, к стоку мигрирует больше атомов компонента  $B$ , чем  $A$ . От стока же мигрирует больше атомов компонента  $A$ , чем  $B$ . Это приводит к тому, что область вблизи стока обедняется компонентом  $A$ , но обогащается компонентом  $B$  (рис. 3.6).

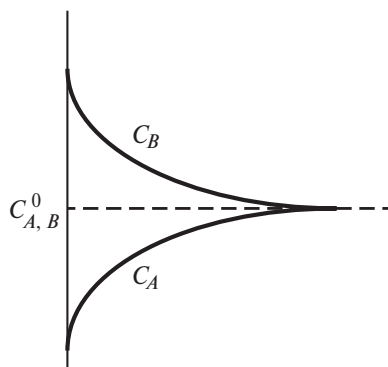


Рис. 3.6. Перераспределение компонентов системы вблизи стоков дефектов

В табл. 5 из приложения приведены теоретически предсказываемые и экспериментально наблюдаемые направления сегрегации, а также указано влияние на это размерного фактора.

## *Влияние стоков на сегрегацию*

Основными типами стоков при радиационном облучении являются дислокации, поры и границы зерен. Предполагается, что наиболее важный фактор для модификации РИС — увеличение количества внутренних стоков, таких как мелкие поры и дислокации, которое может существенно зависеть от примесей. Если эти стоки являются преференциальными, то поток междоузлий на границу зерен будет уменьшаться, а вакансий — увеличиваться.

Дислокационные петли в процессе эволюции облучаемой структуры являются основным стоком точечных дефектов, а параметры дислокационной структуры прямым образом определяют степень сегрегации. Рост больших дислокационных петель продолжается в течение значительно большего времени, чем малых петель, а следовательно, у них больше шансов для развития зоны РИС.

Как известно, интегральный поток растворенных атомов на дислокационную петлю пропорционален интегральному потоку точечных дефектов (междоузлий, вакансий или совместно тех и других, в зависимости от действующего механизма сегрегации) на эту петлю. При четырехкратном различии в размерах (30 нм по сравнению со 120 нм) количество точечных дефектов, рекомбинирующих на большой петле, возрастает в 16 раз. Соответственно во столько же раз возрастает и количество транспортированных этими дефектами растворенных примесей, сегрегирующих на поверхности петли.

Малые петли являются сильным преференциальным стоком для междоузлий. С увеличением диаметра дислокационной петли эффективность поглощения междоузлий снижается. Как следствие этого на дислокационной петле, поглощающей поток точечных дефектов, фактор предпочтения междоузлий будет более высоким на первоначальной стадии роста. На последующих стадиях роста вакансионный поток превышает поток междоузлий или становится почти равным ему.

Можно предположить, что уровень сегрегации на дислокационных петлях изменяется в процессе эволюции общей дефектной структуры.

Следует учитывать, что роль всех описанных сегрегационных механизмов естественно изменяется в процессе облучения. Нельзя сравнивать петли в начале облучения, на завершающей стадии инкубационного периода и на стадии стационарного распухания.

## Сегрегация в аустенитных и ферритных сталях

Представленные на рис. 3.7 спектры измеренных концентраций распределения основных и легирующих компонентов твердого раствора (хром, никель, кремний) как функции расстояния от стационарной границы зерна в образцах аустенитной стали ЭИ-847, облученной в реакторе, показывают, что облучение нейтронами до дозы 8 сна при температуре облучения  $T_{\text{обл}} = 340^\circ\text{C}$  незначительно изменяет концентрацию элементов у границы зерен. Сегрегационные профили для этой же стали, облученной при температуре  $T_{\text{обл}} = 440^\circ\text{C}$  до дозы 13 сна, однозначно свидетельствуют об обеднении границ хромом и обогащении никелем. Следует отметить, что пик у никеля более узкий, чем у хрома, но все профили обладают достаточной симметрией относительно фиксированной линии изображения границы.

Различие в величине пиков концентрации хрома и никеля иллюстрирует сильную температурную зависимость процессов распада твердого раствора и процессов собственно РИС, так как в обоих экспериментах дозы облучения различаются незначительно.

Ситуация в реальных облучаемых сталях осложняется тем, что значительная ( $> 70\%$ ) часть границ зерен не фиксирована, а мигрирует в процессе облучения.

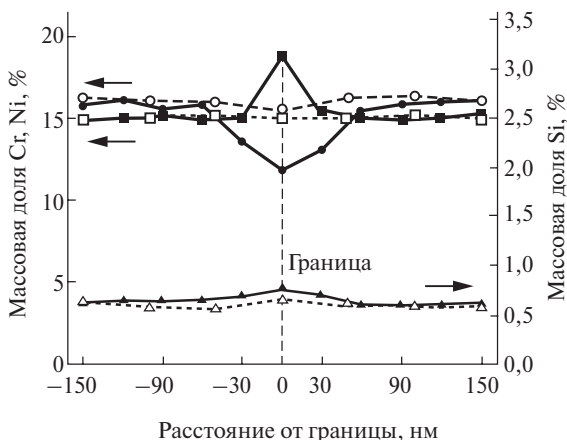


Рис. 3.7. Профили сегрегации элементов на границе зерна в облученной стали ЭИ-847:

$\Delta$ ,  $\blacktriangle$  — кремний;  $\square$ ,  $\blacksquare$  — никель;  $\circ$ ,  $\bullet$  — хром ( $\Delta$ ,  $\square$ ,  $\circ$  —  $D = 8$  сна,  $T_{\text{обл}} = 340^\circ\text{C}$ ;  $\blacktriangle$ ,  $\blacksquare$ ,  $\bullet$  —  $D = 13$  сна,  $T_{\text{обл}} = 440^\circ\text{C}$ )

Представленные на рис. 3.8 профили распределения основных и легирующих элементов на мигрирующей границе (сталь ЭИ-847, облучение ионами  $\text{Cr}^{3+}$  с энергией 3 МэВ,  $T_{\text{обл}} = 600^\circ\text{C}$ ,  $D = 80$  сна) показывают, что сегрегационные профили теряют свою симметричность. Объем, «заметаемый» мигрирующей границей, обогащен никелем и обеднен хромом и молибденом, однако значительного различия в концентрации кремния в матрице и объеме не наблюдается. Перед фронтом мигрирующей границы имеет место образование сравнительно узкой ( $\sim 100$  нм шириной) зоны с обратным изменением композиции, где происходит обеднение никелем и обогащение хромом.

Процессы сегрегации на дислокационных сегментах, составляющих часть дислокационной сетки, протекают аналогичным образом.

Профили сегрегации на большой дефектной петле Франка (рис. 3.9) связаны с более значительным по сравнению с дислокационным сегментом возрастанием концентрации никеля и кремния, а также снижением концентрации хрома и железа.

Уменьшение размера петли значительно снижает уровень сегрегации всех элементов. До 80% дислокационных петель

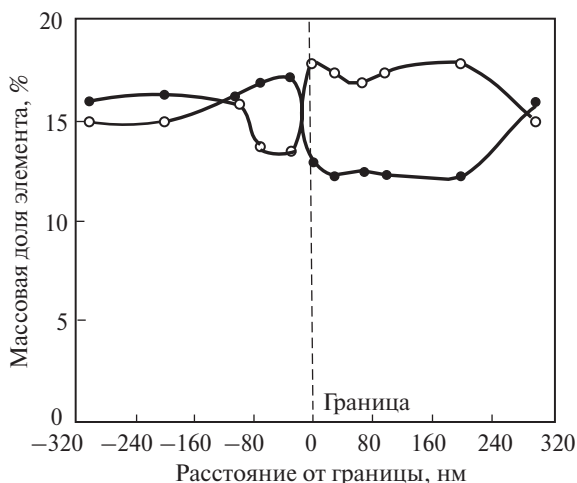


Рис. 3.8. Профили распределения элементов у мигрирующей границы в стали ЭИ-847 ( $\text{Cr}^{3+}$ ,  $E = 3$  МэВ,  $D = 80$  сна,  $T_{\text{обл}} = 600^\circ\text{C}$ ):

○ — никеля; ● — хрома

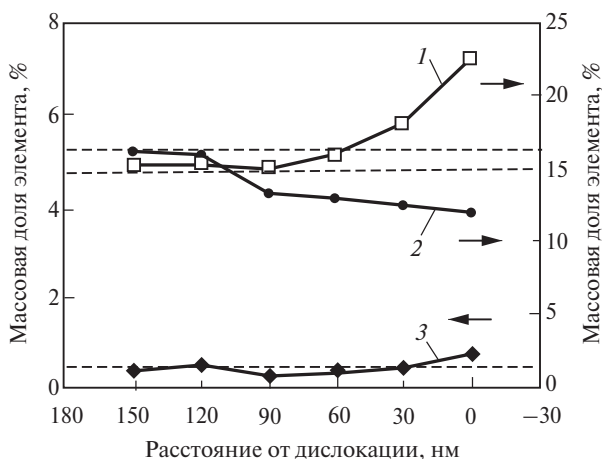


Рис. 3.9. Распределение элементов в плоскости дефекта упаковки петли Франка (штриховые линии показывают среднее содержание элементов в матрице):

1 — никель; 2 — хром; 3 — кремний (ЭИ-847,  $\text{Cr}^{3+}$ ,  $E = 3 \text{ МэВ}$ ,  $T_{\text{обл}} = 600 \text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $D = 25 \text{ сна}$ )

диаметром более 80 нм обнаруживали детектируемую сегрегацию, а петли размером менее 40 нм такой сегрегации не показывали.

В материалах ферритного класса, как и в аустенитных сталях, под действием облучения происходит распад твердого раствора и сегрегация в результате взаимодействия радиационно-индуцированных точечных дефектов и атомов твердого раствора.

В ферритных сталях эти процессы имеют свои характерные особенности. Сегрегационный профиль границы феррит — феррит в облученной стали ЭП-450 (рис. 3.10) демонстрирует, что при  $T_{\text{обл}} = 400 \text{ }^{\circ}\text{C}$  в пределах ошибки измерений существенного изменения концентраций кремния и хрома не наблюдается. Максимально регистрируемое обогащение границы кремнием и обеднение хромом в экспериментах облучение ( $\text{Cr}^{3+}$ ,  $E = 4,5 \text{ МэВ}$ ) происходит при температуре  $500 \text{ }^{\circ}\text{C}$ .

Анализ сегрегационного профиля (рис. 3.11) показывает, что на междоузельных петлях с вектором Бюргерса  $a <100>$  в процессе облучения имеет место обогащение хромом по сравнению с матрицей (фактор обогащения составляет 1,12). Следует отметить, что на дислокационных петлях, имеющих меньшие векторы Бюргерса, обогащения хромом не наблюдается.

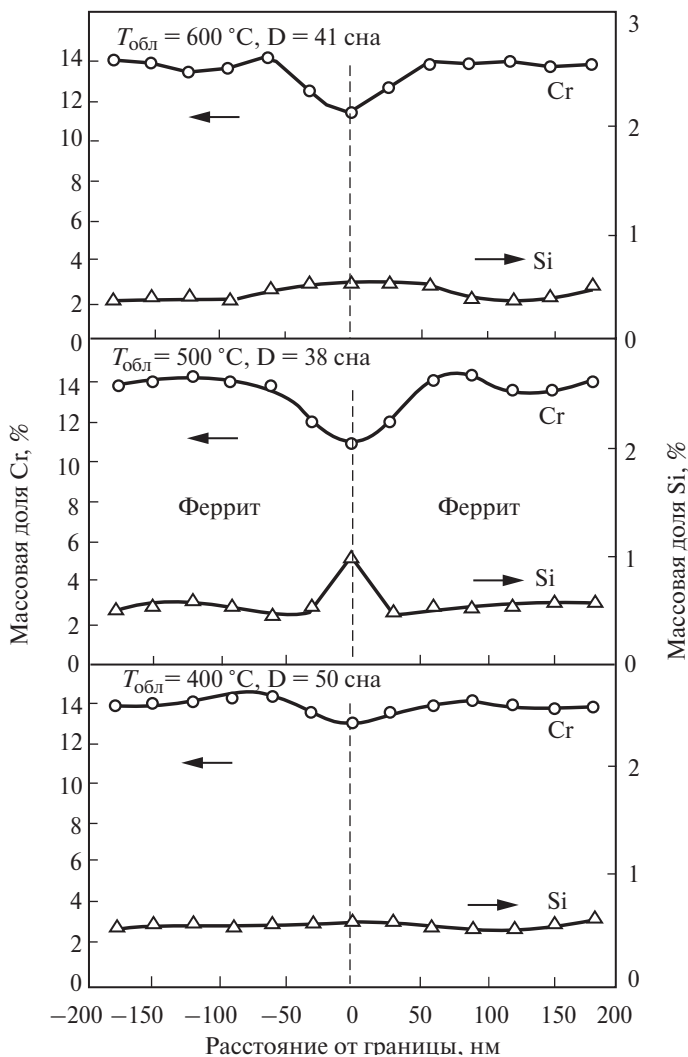


Рис. 3.10. Температурная зависимость профиля сегрегации в стали ЭП-450 ( $\text{Cr}^{3+}$ ,  $E = 4,5\text{ МэВ}$ ,  $k = 5 \cdot 10^{-3}\text{ снa/c}$ )

Описанные различия в распределении компонентов в ферритных и аустенитных сталях обусловлены разной степенью влияния тех или иных механизмов сегрегации.

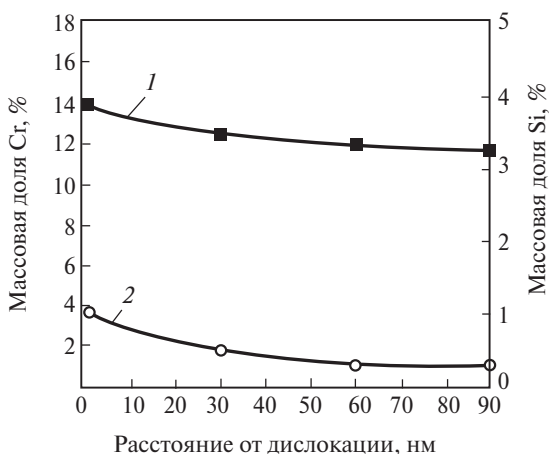


Рис. 3.11. Сегрегационный профиль у большой дислокационной петли в стали ЭП-450 ( $\text{Cr}^{3+}$ ,  $E = 4,5$  МэВ,  $D = 48$  сна,  $T_{\text{обл}} = 575$  °С):  
1 — хром; 2 — кремний

Таким образом, важной особенностью РИС в аустенитных сталях является то, что миграция комплексов междоузлие — примесный атом дает более сильное обогащение, чем вакансионный обратный эффект Киркендалла. Этот механизм доминирует, даже если вакансионный обратный эффект Киркендалла действует в противоположном направлении. Обнаружено, что основной вклад в фазовую нестабильность аустенитной матрицы вносит сегрегация на компонентах дислокационной структуры.

Наблюдаемые эффекты сегрегации в ферритных сталях определенным образом можно связать с различиями в атомных радиусах компонентов и примесных атомов по сравнению с основным компонентом этих сталей — железом. Обоеднение хрома на границах зерен объясняется тем, что хром, являясь надразмерным атомом, сегрегирует от границы по вакансионному механизму в соответствии с обратным эффектом Киркендалла или образует мобильный комплекс междоузлие — примесный атом и также сегрегирует от границы. Аналогично объясняется поведение других технологически важных примесей — молибдена и ванадия. Наблюдаемое обеднение этими элементами границ зерен связывают с действием вакансионного обратного эффекта Киркендалла и механизма слабой связи атомов примесей с потоком междоузлий.

Поведение никеля в ферритных сталях значительно отличается от его поведения в аустенитных сталях, в которых на стоках обязательно происходит обогащение никелем, а также кремнием.

Разница в поведении никеля в аустенитных и ферритных сталях может быть связана с различием в размерах атомов. В аустенитных сплавах никель — подрамерный элемент, поэтому предполагается, что он сильно взаимодействует с междоузлиями. В этом случае обогащение никелем происходит даже на стоках с вакансионным предпочтением, так как они все равно поглощают междоузлия. В ферритных сталях ситуация несколько изменяется: так как размер атомов никеля очень близок к размеру атомов матрицы, взаимодействия с точечными дефектами становятся более слабыми и сложными.

Эффект температурной зависимости сегрегации как в ферритных, так и в аустенитных сталях объясняется различием в поведении вакансий при изменении температуры облучения. При низких температурах ( $\sim 350^\circ\text{C}$ ) имеет место лишь незначительная сегрегация, поскольку вакансии остаются относительно неподвижными. Их концентрация увеличивается, и соответственно большинство междоузлий рекомбинирует с вакансиями раньше, чем диффундирует к границам и другим стокам дефектов. Это затрудняет формирование потока точечных дефектов.

При облучении стали в области высоких температур ( $\sim 450^\circ\text{C}$ ) вакансии становятся подвижными, мигрируют к стокам. Из-за снижения степени взаимной рекомбинации междоузлия образуют поток к границам, а это приводит к интенсификации сегрегационных эффектов.

Пик сегрегации наблюдается при температуре  $500^\circ\text{C}$ , а дальнейшее повышение температуры до  $600^\circ\text{C}$  снова приводит к снижению количества сегрегирующего элемента уже из-за эффективной диффузии хрома от обогащенного района.

На рис. 1–3 из приложения приводятся теоретические зависимости РИС от типа облучаемых частиц, скорости образования смещений, времени облучения, а также от температуры.

### ***Рафинирование***

Одной из традиционных и важнейших задач современной металлургии является очистка (иначе называемая *рафинированием*) первичных (черновых) металлов от примесей. Особо

чистые материалы необходимы для получения сплавов с заранее заданными свойствами, для ионной имплантации, легирования полупроводников, нанесения проводящих покрытий в технологиях электронного машиностроения.

В основе большинства методов рафинирования (пирометаллургических, электролитических и химических) лежит различие некоторых свойств рафинируемых элементов (температур плавления, плотности). Для рафинирования благородных металлов (называемого *аффинажем*) также существуют свои специальные методы. Однако они довольно сложные, энергоемкие и не всегда обеспечивают заданное качество рафинирования. Здесь успешным оказалось применение лазеров и пучков заряженных частиц. Например, лазерное импульсное облучение использовалось для разделения элементов в сплавах. Но для реализации такого процесса необходимо обеспечить высокую степень чистоты поверхности сплава до обработки. Кроме того, недостатком этого способа является малая глубина обработки ( $\sim 0,1$  мкм).

Более высокое качество рафинирования обеспечивает комбинированная электронно-лучевая плавка меди в высоком вакууме с последующей перекристаллизацией из расплава. Но для осуществления этого способа необходимы высокий вакуум и несколько электронных пушек для плавки металла, а кристаллизация металла из расплава не всегда обеспечивает требуемое качество рафинирования. Его можно повысить, используя электронное облучение. При этом варьируемыми внешними факторами являются:

1) параметры электронного облучения — энергия частиц  $E$ , плотность тока  $j$ , интегральный поток  $\Phi$ ;

2) угол  $\varphi$  между осью пучка и облучаемой поверхностью;

3) температура образца, регулирование которой обеспечивается выбором режима обдувки передней и задней поверхностей образца инертным газом.

Выходным оптимизируемым параметром при эксперименте являлась степень чистоты получаемого материала (качество рафинирования). Поперечные размеры образцов при однородном облучении всей поверхности на качество рафинирования не влияли, а их толщина определяла длительность процесса. Наилучшие результаты были получены при  $E = 2...10$  МэВ,  $j = 10...100$  мкА/см<sup>2</sup>,  $\Phi = 10^{16}...10^{17}$  см<sup>-2</sup>,  $\varphi = 80...100^\circ$ ; температура в центре образца была равна 600...800 °С.

Выбор указанных режимов облучения обуславливался следующим. Минимальная энергия электронов (2 МэВ) является пороговой. Максимальная энергия (10 МэВ) определяет максимально допустимый градиент температуры. Нижний предел ( $j = 10$  мкА/см<sup>2</sup>) создает минимальную требуемую температуру, верхний ( $j = 100$  мкА/см<sup>2</sup>) обоснован тем, что при больших плотностях образцы начинают плавиться. Значение  $\Phi = 10^{16} \dots 10^{17}$  см<sup>-2</sup> связано с тем, что при меньших дозах рафинирование еще не закончено, а дозы выше  $10^{17}$  см<sup>-2</sup> практически не влияют на его качество. Диапазон углов  $\varphi = 80 \dots 100^\circ$  подтвержден экспериментально; ему соответствует максимальная эффективность рафинирования. Обдув образца потоком инертного газа при облучении охлаждает поверхность, способствует созданию градиента температур и предотвращает радиационную коррозию поверхности.

После облучения материал обычно подвергается механической обработке. В том случае, если на поверхность вышел чистый материал, он удаляется, затем сошлифовывается слой концентрированной примеси и облучение повторяется. Если на поверхность вышла примесь, то сначала сошлифовывают ее слой, затем снимают слой чистого материала и повторяют облучение до полного рафинирования всего образца.

Рассмотренный способ позволяет производить рафинирование без расплавления материала. При этом имеет место радиационно-стимулированный процесс (эффект) расслаивания материала, т.е. выход одного элемента на поверхность и миграция другого вглубь. Последнее обусловлено двумя взаимосвязанными процессами. Во-первых, в зависимости от сечения рассеяния пучка электронов разные атомы получают различные импульсы: атомы с большим сечением смещаются в глубь образца, с меньшим — мигрируют к поверхности. Во-вторых, распределение поглощенной дозы имеет максимум на глубине  $(0,2 \dots 0,3)R_0$ , где  $R_0$  — средний пробег электронов с данной энергией, которому соответствует максимальная температура. Варьируя плотность тока и скорость обдува поверхности, можно создать значительные градиенты температуры (до 2000 К/см), вызывающие перераспределение элементов: более подвижные атомы смещаются к холодному концу (к поверхности), менее подвижные — к горячему. После облучения в течение 40 мин никрома (никель — 50%, хром — 50%) электронами ( $E = 10$  МэВ,  $j = 60$  мкА/см<sup>2</sup>) с одновременной обдувкой потоком азота об-

лучаемых передней и задней поверхностей на внешней поверхности образца образовался слой хрома толщиной 20 мкм со средней концентрацией 99,9%, затем следовала зона смешанного состава (~50 мкм), за которой был слой никеля (~25 мкм) с концентрацией 99,9%.

Экспериментально установлено, что радиационно-стимулированное рафинирование применимо практически для всех твердых элементов Периодической системы и ряда химических соединений. При этом рафинирование производят при низких температурах без расслаивания материалов, степень же чистоты получаемого материала достигает 99,9%. Низкая энергоемкость и универсальность в сочетании с высоким качеством рафинирования позволяет использовать этот способ в современных промышленных технологиях.

### *Геттерирование примесей*

Под *геттерированием* обычно подразумевается процесс удаления неконтролируемых примесей и дефектов из активной зоны пролупроводниковых приборов и их перемещение в пассивные области. Для этого в пассивных областях пластин или приборов либо формируются специальные стоки и центры преципитации геттерируемой примеси (*релаксационное геттерирование*), либо создаются условия для повышенной растворимости этой примеси (*сегрегационное геттерирование*). При этом геттерируемые примеси удаляются из приповерхностного рабочего слоя пластины в ее объем (*внутреннее геттерирование*) или с рабочей поверхности и объема на тыльную нерабочую сторону пластины (*внешнее геттерирование*).

В последние годы значительное внимание уделялось разработке процессов геттерирования с использованием высокодозной ионной имплантации различных элементов — бора, углерода, азота, кремния, аргона, водорода, гелия и др. Основное достоинство данного метода геттерирования — точность и воспроизводимость при создании геттерирующих областей в непосредственной близости от активных слоев полупроводниковых приборов. Это позволяет уменьшить дистанцию диффузии геттерируемых примесей на стоки, снизить температуру и длительность процесса геттерирования и повысить эффективность удаления неконтролируемых примесей. Следует отметить,

что сравнение технологий геттерирования при использовании имплантации различных ионов показало, что применение имплантации ионов водорода или гелия в режиме формирования скрытых пористых слоев имеет ряд преимуществ.

Геттерирование примесей металлов, наиболее часто загрязняющих активные слои полупроводниковых приборов, позволяет снизить деградацию их электрических характеристик. Сравнение эффективностей геттерирования железа с использованием внутреннего геттерирования и геттерирования скрытыми пористыми слоями, созданными имплантацией ионов гелия с энергией 1,5 МэВ, выявило ряд преимуществ в последнем случае:

1) пористый слой может быть сформирован в непосредственной близости от рабочей поверхности;

2) поры в пористом слое образуют плотную квазинепрерывную систему геттерирующих стоков в отличие от рассредоточенных по объему пластины центров внутреннего геттерирования;

3) в порах геттерирование примесей происходит как за счет их захвата на ненасыщенные связи на внутренней поверхности пор, так и за счет образования и роста силицидов металлов.

Таким образом, метод геттерирования примесей с использованием скрытых пористых слоев является наиболее эффективным при геттерировании примесей металлов в полупроводниковых пластинах. Он может быть с успехом использован также как для внешнего геттерирования примесей на тыльную сторону пластин, так и для *локального геттерирования* примесей из приборной зоны интегральных схем на ближайшие стоки.

### 3.3. Фазовые превращения

#### *Общие сведения*

Следствием распада гомогенного твердого раствора в облучаемом материале являются два важных взаимосвязанных процесса:

1) перераспределение и локальное изменение композиционного и примесного состава материалов;

2) зарождение и рост новых выделений вторых фаз и модификация композиций фаз, существовавших до облучения.

Облучение сплавов, первоначально находящихся в нестабильном состоянии, может приближать их к более устойчивому, равновесному состоянию. И наоборот, если исходный сплав находится в устойчивом структурном состоянии, то облучение может перевести его в метастабильное состояние. Нарушая структурную стабильность сплава, облучение в одних случаях вызывает выделение частиц новой фазы (например, интерметаллидов, карбидов, карбонитридов и т.д.), а в других — их распад и растворение.

Анализ совокупности существующих экспериментальных и теоретических результатов и литературных источников дает основание считать, что к главным факторам, оказывающим влияние на фазовую стабильность в процессе облучения, относятся:

1) *радиационно-ускоренная диффузия (РУД)*. Этот эффект является первопричиной формирования термических выделений, а также оказывает влияние на радиационную модификацию выделений и коалесценцию выделений под облучением;

2) *растворение выделений при каскадообразующем облучении*. Этот эффект часто является основным дестабилизирующим фактором для выделений, существующих в условиях облучения;

3) *радиационно-индуцированная сегрегация атомов*. Этот эффект — причина образования радиационно-индуцированных и радиационно-модифицированных выделений в аустенитных нержавеющих сталях;

4) *эффект пересыщения точечными дефектами*. Пересыщение вакансиями и междоузлиями в процессе облучения может существовать как в матрице, так и в фазовых выделениях.

В общем случае механизмы 1 и 2 оказывают влияние на стабильность частиц выделений вторых фаз только в процессе их формирования, поэтому только механизмы 3 и 4 могут объяснить образование неравновесных или «не ожидавшихся» из диаграммы состояния фаз в процессе облучения.

Рассмотрим классические примеры радиационно-индуцированного фазообразования. В системе Ni — Si атомы кремния имеют меньший размер, чем атомы никеля, поэтому стоки дефектов обогащаются кремнием. Сегрегация приводит к тому, что концентрация кремния вблизи стоков становится больше предела растворимости кремния в никеле. В результате появляется новая фаза  $\text{Ni}_3\text{Si}$  на поверхности, на границах зерен и на дислокационных петлях (рис. 3.12).

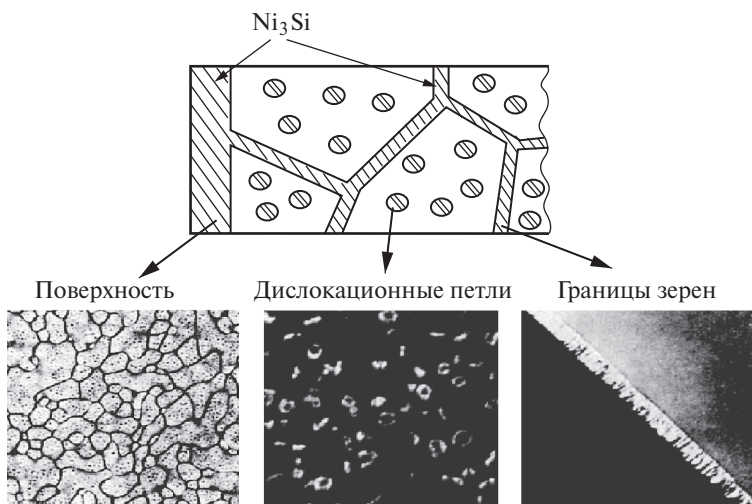


Рис. 3.12. Формирование фазы  $\text{Ni}_3\text{Si}$  на стоках дефектов в твердом растворе  $\text{Ni} - 6 \text{ ат. \% Si}$

В системе  $\text{Ni} - \text{Al}$  атомы алюминия имеют больший размер по сравнению с атомами никеля, поэтому вблизи стоков дефектов возникает область, обедненная алюминием. Но область, находящаяся вблизи обедненных зон, обогащается алюминием. Если его концентрация превышает предел растворимости в никеле, то выпадает фаза  $\text{Ni}_3\text{Al}$  (рис. 3.13).

При воздействии облучения на вещество могут появляться метастабильные фазы. В данном случае могут происходить процессы четырех типов: разупорядочение структуры, аморфизация, изменение кристаллической структуры и образование квазикристаллической фазы.

*Разупорядочение структуры* заключается в потере дальнего порядка вследствие радиации. Примером изменения кристаллической структуры служит переход из ГЦК-структуры в ГПУ-структуру при облучении.

*Квазикристаллической* называется такая фаза, которую нельзя отнести ни к кристаллической, ни к аморфной. В данном случае, зная положение одной элементарной ячейки, можно предсказать положения других ячеек. Однако они не будут располагаться в пространстве периодически.

В табл. 6 из приложения приведены образующиеся фазы для некоторых бинарных сплавов.

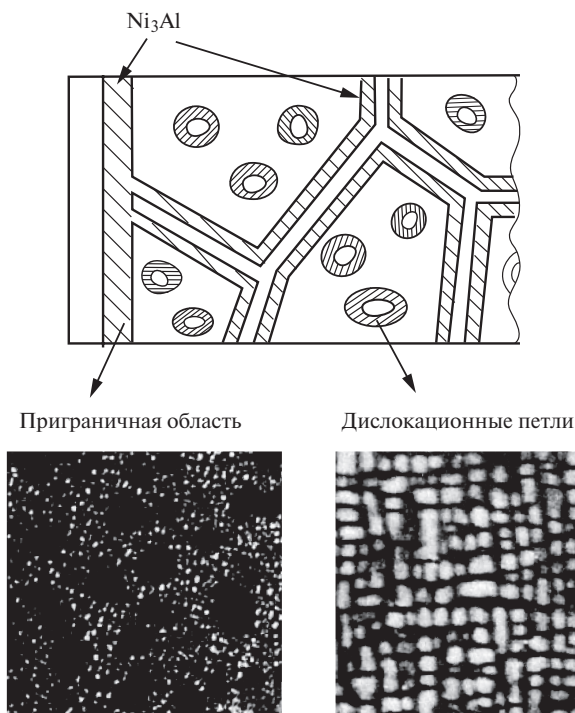


Рис. 3.13. Формирование фазы  $\text{Ni}_3\text{Al}$  на стоках дефектов в твердом растворе Ni – 12,8 ат. % Al

### Аустенитные стали

Существующая в настоящее время классификация выделений вторых фаз в аустенитных сталях (радиационно-индуцированные, радиационно-модифицированные и радиационно-стимулированные) хорошо отражает физику их формирования и эволюцию в процессе облучения.

*Радиационно-индуцированные фазы* — это фазы, которые образуются только при облучении материала. В аустенитных сталях к ним относится, например, *G*-фаза, представляющая собой двойной силицид стехиометрического состава  $\text{A}_6\text{M}_{12}\text{X}_7$ , где  $\text{A} = \text{Ti}, \text{Cr}, \text{Mn}$ ;  $\text{M} = \text{Ni}, \text{Fe}$ ;  $\text{X} = \text{Si}, \text{B}, \text{C}$ . Результаты, полученные в последние годы, дают основание утверждать, что *G*-фаза является одной из основных фаз, образующихся в процессе облучения сталей данного типа и определяющих их ра-

диационную стабильность. Выделения *G*-фазы являются преобладающей фазой в Ti- и Nb-модифицированных аустенитных сталях в процессе нейтронного облучения.

*Радиационно-модифицированные фазы* — это фазы, которые проявляются в результате как облучения аустенитных сталей, так и термической обработки. Карбиды MC (NbC, TiC, VC и т.д.) являются представителями данной группы.

Обязательное наличие в композиционном составе исследуемых сталей сильных карбидообразующих элементов, вводимых как для увеличения сопротивления ползучести и уменьшения образования коррозионных трещин, так и для снижения радиационного распухания и гелиевого охрупчивания, приводит к выделению в структуре материала карбидов (карбонитридов) MC. Эти выделения (NbC, TiC, VC и т.д.) могут быть крупнозернистыми (первично остались нерастворенными в процессе обработки в растворе) и мелкодисперсными, содержащими небольшие количества кремния. Мелкие внутризеренные (вторичные) карбидные выделения являются следствием облучения, так как подобные выделения не характерны для состаренных, обработанных в растворе аустенитных сталей. Зарождение этих выделений происходит, как правило, на дислокациях или дефектах упаковки.

Наличие муарового узора на электронно-микроскопическом изображении выделения NbC свидетельствует о его высокой когерентности с матрицей (рис. 3.14).

Основные карбидообразующие элементы в аустенитных сталях, применяемых в настоящее время в активных зонах реакторов, — титан и ниобий. Сейчас предполагается использовать для этих же целей ванадий и цирконий. Ключевым вопросом поведения выделений является их термическая и радиационная стабильность.

*Радиационно-стимулированные фазы* — это фазы, которые также возникают как при облучении, так и при термической обработке, но рост которых при низких температурах значительно более интенсивный в случае радиационного воздействия. Представителем данной фазы является  $\eta$ -фаза ( $M_6C$ ). Основная особенность этих фаз при облучении — увеличение количества кремния по сравнению с термическим старением. Важно то, что в процессе нейтронного облучения существенное формирование выделений  $\eta$ -фазы происходит при значительно более низких температурах (по сравнению с оригинальной сталью) при сравнимых периодах экспозиции.

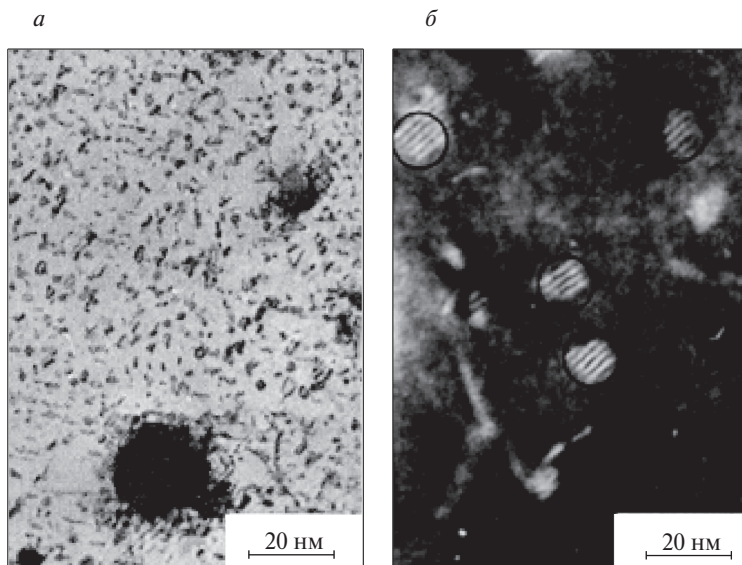


Рис. 3.14. Выделения МС в стали ЭИ-847:

*а* — первичные карбиды ( $\text{Cr}^{3+}$ ,  $E = 3$  МэВ,  $T_{\text{обл}} = 625$  °С,  $D = 2$  сна); *б* — вторичные карбиды

В табл. 7, а также на рис. 4 из приложения показаны фазы, образующиеся в аустенитных сталях при облучении.

### **Ферритные стали**

Классификация выделений вторых фаз в ферритомартенситных сталях выражена менее отчетливо по отношению к аустенитным сталям, что связывается с неадекватным поведением хрома. В частности, в температурном интервале 350...425 °С (ионы  $\text{Cr}^{3+}$ ,  $E = 3$  МэВ,  $D = 10$  сна и выше, сталь ЭП-450) облучение приводит к образованию большого количества мелкодисперсных выделений второй фазы. При температуре облучения 350 °С их концентрация достигает  $5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ , а размер — 1,5...2,0 нм. Наноразмерность максимально затрудняет идентификацию наблюдаемой фазы. С ростом температуры облучения (400 °С) концентрация выделений второй фазы несколько падает (до  $10^{17} \text{ см}^{-3}$ ), а размер увеличивается (до 5...10 нм). Выделения гомогенно распределены по ферриту и сорбиту. Большинство выделений обладает муаровым узором,

что свидетельствует о когерентности второй фазы (рис. 3.15). Микрорентгеновский спектр говорит об обогащении этих выделений хромом.

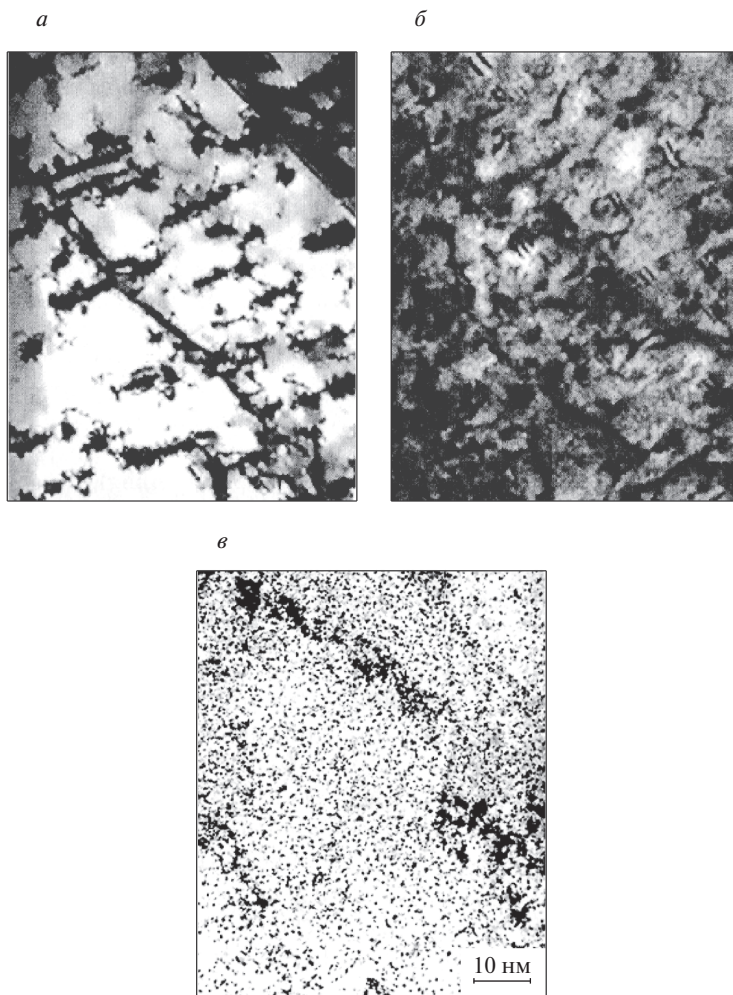


Рис. 3.15. Светлопольное электронно-микроскопическое изображение вторых фаз:

*а* —  $\alpha'$ -фаза в стали ЭП-450 ( $\text{Cr}^{3+}$ ,  $E = 3$  МэВ,  $D = 150$  сна,  $T_{\text{обл}} = 412^\circ\text{C}$ ); *б* — выделения фазы  $\text{M}_2\text{X}$  в феррите (ЭП-450,  $\text{Cr}^{3+}$ ,  $E = 3$  МэВ,  $D = 80$  сна,  $T_{\text{обл}} = 510^\circ\text{C}$ ); *в* — мелкодисперсные выделения  $\text{M}_6\text{C}$  в стали ЭП-823, облученной при температурах в интервале  $365\ldots 385^\circ\text{C}$  до дозы 50,5 сна

Формирование мелкодисперсной  $\alpha'$ -фазы (обогащенного хромом феррита) наблюдается также в целом ряде ферритных сталей с содержанием 9 и 12% хрома, облученных в быстрых реакторах, причем отмечается чрезвычайная чувствительность образования  $\alpha'$ -фазы к температуре облучения.

В ферритомартенситных сталях главную роль в процессах РИС играет или сегрегация хрома, или локальное пересыщение им. При повышенных температурах кроме перечисленных фаз в сталях наблюдаются фазы Лавеса,  $\sigma$ - и  $\chi$ -фазы, являющиеся термически устойчивыми и не имеющие хорошей когерентности с матрицей. По-видимому, при указанных температурах РИС существенно не влияет на устойчивость вторых фаз.

### *Механизмы эволюции выделений вторых фаз*

Созданные в процессе облучения потоки точечных дефектов, чрезвычайно подвижных при исследуемых температурах, будут стимулировать эволюцию выделений второй фазы. Эта эволюция может происходить по нескольким направлениям:

- 1) рост выделений;
- 2) растворение выделений;
- 3) инфильтрация (переход элементов твердого раствора в выделение и наоборот).

Экспериментальные результаты демонстрируют, что указанные возможности динамического поведения выделений могут быть реализованы в аустенитных и ферритных нержавеющих сталях в различных комбинациях. Один из вероятных результатов таких эффектов — неожиданные фазовые превращения.

Несмотря на различия процессов РИС в материалах аустенитного и ферритного класса, поведение выделений в облученных аустенитных и ферритных сталях имеет много общего. Можно выделить ряд общих черт эволюции фазового состава многокомпонентных материалов.

Во всех случаях поведение выделения под действием облучения зависит от структуры межфазной границы и может изменяться при изменении характера сопряжения решеток выделения и матрицы. Вследствие взаимодействия потоков растворенного вещества и потоков точечных дефектов скорость роста выделений сильно зависит от структурного состояния,

т.е. от того, содержит ли поверхность раздела (или само выделение) стоки для точечных дефектов. Исследованные выделения обладают различным размерным несоответствием с матрицей и различным (с кристаллографической точки зрения) сопряжением с решеткой или матрицей.

Установлено, что наличие в матрице сплавов выделений второй фазы с различной степенью сопряжения или без него приводит к перераспределению потоков точечных дефектов и избирательному развитию радиационно-индуцированной микроструктуры.

После облучения большими дозами в материале сохраняются преимущественно выделения, имеющие когерентные границы или границы с малой степенью некогерентности, причем эти выделения могут быть в исходных образцах либо появляются в процессе облучения. Повышенная устойчивость когерентных выделений объясняется тем, что когерентная граница не содержит дефектные места и не поглощает точечные дефекты, поэтому в окрестности когерентного выделения, расположенного вдали от стоков точечных дефектов, не возникает сегрегационных эффектов, т.е. состав сплава под действием облучения не изменяется.

Состав некогерентного выделения под облучением изменяется. С ростом дозы облучения некогерентное выделение либо растворяется, либо трансформируется в выделение с большой степенью когерентности.

Примеси, которые мигрируют к границе поверхности раздела по междоузельному механизму и рекомбинируют на поверхностях раздела дислокаций, могут мигрировать в соседнюю фазу, если на эту дислокацию одновременно приходит вакансия. В соответствии с этим механизмом происходит «впрыскивание» атомов твердого раствора в выделение. Известно, что никель практически не растворяется в карбидах NbC, TiC, но в результате описанного выше механизма происходит принудительное легирование этих карбидов никелем.

### **3.4. Распухание и порообразование**

#### *Общие сведения*

При облучении образцов урана относительно небольшим флюенсом нейтронов в области низких температур изменение

их объема незначительно, а изменение формы образцов связано главным образом с явлением радиационного роста. Если же выгорание увеличивается и достигает нескольких тысяч от всего числа атомов урана и если облучение ведется при температурах верхней области существования  $\alpha$ -урана ( $T_{\text{обл}} = 400 \dots 600 \text{ } ^\circ\text{C}$ ), то происходит явление *радиационного распухания* (или *свеллинг*), состоящее как в изменении геометрии уранового образца, так и в уменьшении его плотности.

Величина радиационного распухания  $S$  определяется так:

$$S = \frac{\Delta V}{V},$$

где  $\Delta V$  — изменение объема  $V$  исходного образца в результате выгорания топлива.

Радиационное распухание делящихся материалов можно характеризовать также параметром распухания  $S_p$ :

$$S_p = \frac{\Delta V/V}{\Delta n/n},$$

где  $\Delta V/V$  — относительное увеличение объема (величина распухания);  $\Delta n/n$  — степень выгорания топлива.

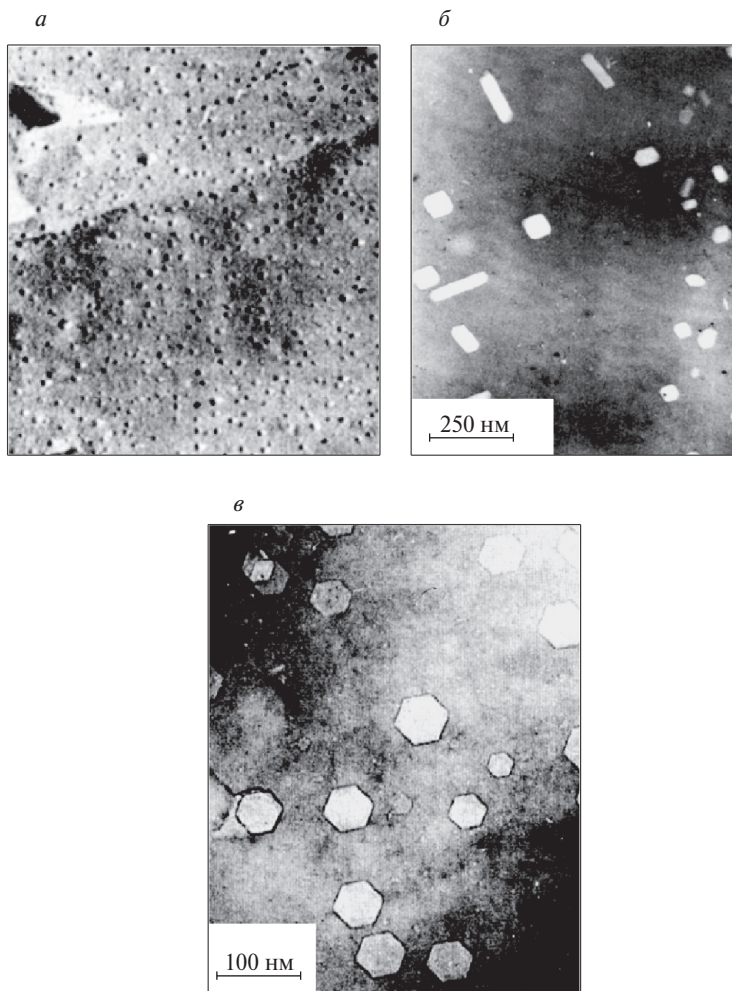
Радиационное распухание обусловлено образованием в материале при облучении большого количества газовых пузырьков или пор (рис. 3.16).

Соотношение изменения объема (распухания), обусловленного развитием пористости, температуры, структурного состояния и флюенса облучения, в общем виде можно записать как произведение трех сомножителей:

$$S = f(T)J(T)\psi(\Phi), \quad (3.1)$$

где  $f(T)$ ,  $J(T)$ ,  $\psi(\Phi)$  — функциональные зависимости распухания соответственно от температуры, структуры (также зависящей от температуры) и флюенса облучения (степени повреждений).

Основные причины распухания материалов под действием облучения — образование и рост многочисленных газовых и вакансионных пор.



*Рис. 3.16. Радиационное распухание в материалах:*

*а* — газовые пузырьки в  $\alpha$ -уране, облученном при температуре 300 °С до выгорания 0,39%; *б* — радиационно-индуцированные поры в нержавеющей стали; *в* — радиационно-индуцированные поры в алюминии

### ***Распухание в уране***

На рис. 3.17 показана зависимость изменения плотности урана от степени выгорания. В настоящее время явление ради-

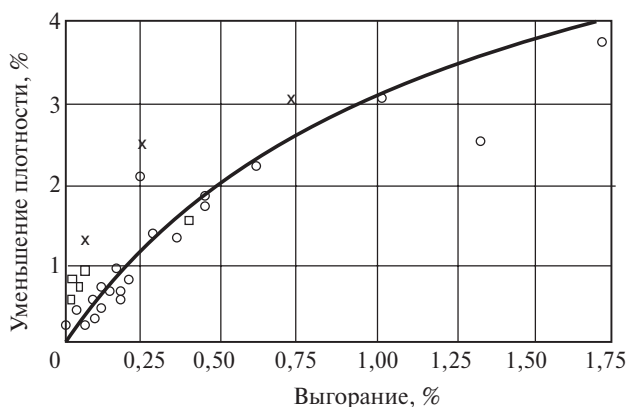


Рис. 3.17. Зависимость удельной плотности урана от степени выгорания

ационного распухания — главное препятствие, ограничивающее использование металлического  $\alpha$ -урана в качестве топлива в атомном реакторе, где требуется высокая степень выгорания и работа в условиях повышенных температур.

Радиационное распухание, вызывающее увеличение объема топлива, является результатом накопления осколков деления. Например, при делении ядер урана образуются твердые и газообразные продукты деления (ГПД), общая доля которых составляет 30%. Они состоят в основном из атомов криптона и ксенона. По этой причине распухание топлива рассматривается как сумма двух составляющих, одна из которых обусловлена образованием атомов газов (*газовое распухание*), а другая — атомов твердых продуктов деления (ТПД) (*твердое распухание*).

Проведенные микроскопические исследования показывают, что внутри облученных образцов урана (выгорание 0,3...0,4%) имеется большое количество мелких пузырьков диаметром 0,1 мкм, распределенных довольно равномерно по объему при среднем расстоянии друг от друга 0,5 мкм. Относительный объем этих пузырьков составляет 1% всего объема металла. При дальнейшем увеличении выгорания распухание возрастает, но в то же время соотношение увеличения объема и степени выгорания становится менее регулярным и не подчиняется простой закономерности.

Рассмотрим механизм образования газовых пузырьков. Атомы ксенона и криптона практически нерастворимы

в  $\alpha$ -уране и не взаимодействуют ни с атомами урана, ни с продуктами деления. Обладая достаточно высокой подвижностью в кристаллической решетке урана, атомы газа могут относительно легко передвигаться и накапливаться в дефектах кристаллического строения. Однако было показано, что дефекты структуры, имеющиеся в уране, не сильно влияют на распределение пузырьков, содержащих газообразные продукты деления. Большинство экспериментов свидетельствует о том, что образующиеся газовые пузырьки зарождаются гомогенно. Механизм зарождения может быть объяснен следующим образом.

При увеличении концентрации образующихся атомов газа они могут встречаться друг с другом, соединяться и образовывать комплексы — зародыши газовых пузырьков. Поскольку между атомами инертных газов нет химической связи, эти комплексы могут быть стабильными лишь при дополнительной адсорбции вакансий. Считается, что первичным стабильным зародышем газового пузырька является комбинация из двух осколочных атомов и одной вакансии. Такие стабильные зародыши начинают расти, поглощая вновь образующиеся осколочные газовые атомы и вакансии, создаваемые в большом количестве вследствие соударения осколков и атомов среды. Возникает почти однородное распределение газовых пузырьков (см. рис. 3.16, а).

Давление в газовом пузырьке уравнивается за счет сопротивления окружающей среды. Такое сопротивление, как правило, разделяют на две части:

1) обычное упругое сопротивление среды, которое может вызывать остаточную деформацию путем ползучести или пластических сдвигов;

2) капиллярное сжатие пузырька, стремящееся уменьшить его объем, которое носит название *внутреннего давления*.

Пузырьки являются эффективными центрами притяжения вакансий и атомов инертного газа. Диффузия атомов газа в пузырек сопровождается одновременным увеличением его объема за счет поглощения вакансий. На начальной стадии этот процесс происходит медленно. Данная стадия является областью устойчивого распухания, величина которого зависит от общего числа образовавшихся пузырьков.

Мелкие газовые пузырьки подвержены броуновскому движению и, перемещаясь в материале, могут встречаться друг

с другом и коагулировать. При наличии градиента температур могут перемещаться и большие пузырьки за счет процессов испарения и конденсации на поверхности пор или за счет поверхностной диффузии атомов урана из «горячей» области в более «холодную».

Вследствие слияния будет происходить укрупнение пузырьков, приводящее к ослаблению капиллярного сжатия. Возникающее при этом избыточное по сравнению с равновесным давление, которое передается в окружающую среду, может вызвать пластическую деформацию, ускорение ползучести и создать кризис распухания, вызывающий разрушение материала.

Поскольку укрупнение размеров пузырьков по изложенным выше механизмам представляет собой статистически случайный процесс, это может отчасти объяснить нерегулярный характер разрушающего распухания.

Распухание топливных материалов происходит также из-за образующихся атомов твердых продуктов деления. Но вклад в распухание газообразных продуктов деления оказывается намного большим.

### *Распухание в металлах и сплавах*

В материалах, в которых не образуется газообразных продуктов деления, также наблюдается эффект распухания. Причиной распухания металлов и сплавов является образование в теле кристалла полостей (см. рис. 3.16, б, в). В металлах и сплавах оно происходит вследствие пересыщения их точечными радиационными дефектами.

Возникающие при нейтронном облучении микропустоты нельзя рассматривать как газовые пузырьки по следующим причинам. Во-первых, количество растворенного до облучения и выделившегося в результате реакций газа недостаточно для стабилизации столь значительного количества микрополостей; во-вторых, данные микрополости полностью отжигаются при температурах отжига выше  $0,6T_{пл}$ .

Для зарождения и роста пор в облучаемом материале необходимо, чтобы выполнялись три условия:

- 1) *термодинамическое условие* — достаточно высокое вакансионное пересыщение;
- 2) *кинетическое условие* — достаточно высокая подвижность вакансий и решеточных атомов, обеспечивающая приход ва-

кансий к позициям роста пор в решетке и уход атомов от этих позиций;

3) *условие стабилизации трехмерного вакансионного скопления* — действие сил, препятствующих разрушению трехмерного вакансионного скопления до дислокационной петли.

Выполнение перечисленных условий в свою очередь зависит от структурного состояния материала, энергетических характеристик дефектов структуры (энергии образования и миграции точечных дефектов, энергии взаимодействия дефектов в структуре, энергии дефектов упаковки и т.д.) и параметров облучения (температуры облучения, вида и энергии бомбардирующих частиц, интенсивности потока и интегрального потока), что обуславливает зависимость поведения материалов под облучением от этих факторов.

Рассмотрим, как эффект распухания зависит от различных параметров материала и облучения.

### ***Зависимость распухания от температуры облучения***

Важнейшим параметром, который определяет зарождение, рост и морфологию образующихся пор, является температура облучения. При низких температурах облучения рекомбинация вакансий и междоузельных атомов довольно значительная, из-за чего скорость роста микрополостей является невысокой. При высоких температурах становится достаточно большой равновесная концентрация вакансий. В связи с этим наибольшее распухание должно происходить при средних температурах облучения.

Экспериментально установлено, что распухание конструкционных материалов происходит в узком температурном интервале — от  $(0,2...0,3)T_{пл}$  до  $(0,50...0,55)T_{пл}$  — и при определенной температуре становится максимальным (рис. 3.18). Например, при реакторном облучении никеля порообразование имеет место при температурах в интервале  $(0,30...0,55)T_{пл}$  с максимумом при  $0,45T_{пл}$ .

Таким образом, с выполнением кинетического и термодинамического условий развития радиационной пористости связано наличие нижнего ( $T_n$ ) и верхнего ( $T_v$ ) температурных пределов порообразования: поры зарождаются и растут в интервале температур, в котором как междоузельные атомы, так и вакансии подвижны и вакансионное пересыщение достаточ-

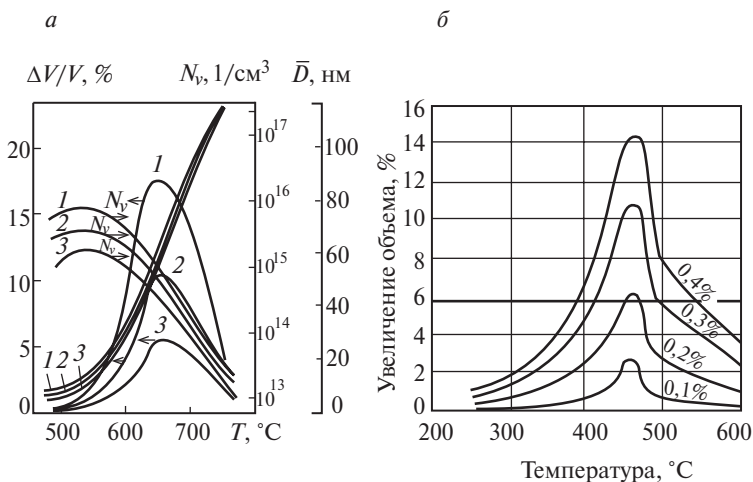


Рис. 3.18. Температурные зависимости:

$a$  – концентрации ( $N_v$ ), размера пор ( $\bar{D}$ ) и распухания ( $S = \Delta V/V$ ) для аустенитной стали 09X16H15M3B, облученной ионами  $\text{Cr}^+$ ,  $D = 100$  сна, при различной холодной деформации  $\varepsilon$  ( $1 - \varepsilon = 0$ ;  $2 - \varepsilon = 10\%$ ;  $3 - \varepsilon = 30\%$ );  $b$  – газового выгорания урана при различных степенях выгорания

но высокое. Положения нижнего и верхнего температурных пределов порообразования и максимума распухания ( $T_{\max}$ ) определяются энергетическими свойствами точечных дефектов и их скоплений. Чем меньше отношение энергии миграции вакансий к температуре плавления и ниже термическая стабильность вакансионных петель в облучаемом металле, тем ниже гомологическая температура облучения, при которой начинают образовываться поры. Так, в вольфраме обнаружены поры после облучения в реакторе до флюенса  $4 \cdot 10^{26}$  нейтр./ $\text{м}^2$  ( $E > 1$  МэВ) при температуре  $0,177 T_{\text{пл}}$ .

Формула для определения члена  $f(T)$ , учитывающего влияние температуры на распухание, приведена в работе [4, с. 333]. Следует отметить, что температура оказывает влияние также на структурный фактор  $J(T)$  в формуле для распухания (3.1), так как дефектная структура, которая также влияет на процессы распухания, зависит от температуры.

С введением газов в металлы температурный интервал порообразования расширяется и в области высоких температур появляется второй максимум распухания.

## Зависимость распухания от дозы

На кривой, характеризующей зависимость распухания от дозы (рис. 3.19), обычно выделяются три периода (стадии): инкубационный, переходный и установившийся.

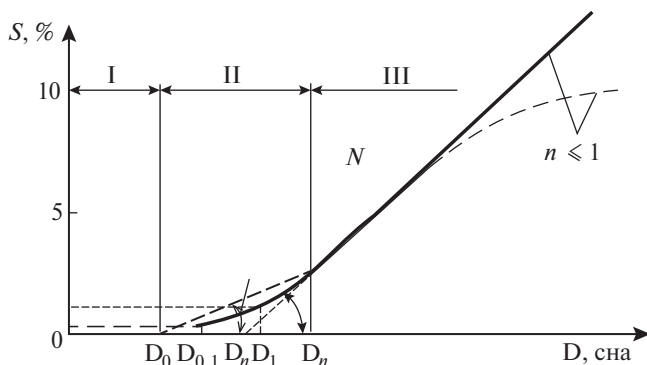


Рис. 3.19. Схематическое представление зависимости распухания металлов от дозы:

I — инкубационный период; II — переходный; III — установившийся

Во время инкубационного периода величина распухания составляет менее 1%. Инкубационный период предшествует интенсивному зарождению и росту пор в облучаемом материале. В настоящее время отсутствуют достаточно четкие представления о процессах, происходящих в течение инкубационного периода, что обусловлено трудностями изучения в динамике поведения дефектов малого размера в связи с отсутствием необходимого оборудования. На практике используется несколько характеристик инкубационного периода: порог порообразования, порог распухания, условный порог распухания.

*Порог порообразования*  $D_0$  — доза, при которой поры достигают размера, достаточного для их фиксации. Согласно теоретическим представлениям за время инкубационного периода обеспечивается избыточный, достаточный для интенсивного роста пор поток вакансий в поры. Дозу, при которой такое состояние достигается и резко ускоряется процесс роста пор, принимают за *порог распухания* ( $D_p$ ). Дозу, при которой распухание составляет 0,1 (или 1%), называют *условным порогом распухания* (соответственно  $D_{0,1}$ ,  $D_1$ ).

Длительность инкубационного периода зависит от свойств материала, его структурного состояния и химического состава, вида и энергии бомбардирующих частиц, скорости введения газов. В зависимости от перечисленных факторов значение  $D_0$  изменяется от 4 до 10 сна. Инкубационный период, как правило, сокращается с увеличением энергии дефектов упаковки в облучаемом материале, а также при предварительном и одновременном со смещением атомов введении газа, под действием растягивающего напряжения и с уменьшением степени каскадности повреждения. Зависимость длительности инкубационного периода от плотности дислокаций в облучаемом материале проходит через минимум при плотности дислокаций порядка  $10^{14} \text{ м}^{-2}$ .

На переходной стадии зависимость распухания от дозы может быть представлена в виде степенной функции

$$S \approx (D - D_0)^n, \quad n \geq 1.$$

В большинстве случаев на переходной стадии распухание ускоряется с увеличением дозы ( $n > 1$ ). Это может быть вызвано более эффективным (чем популяция пор) действием дислокаций как стоков для точечных дефектов, перестройкой дефектной структуры в облучаемом материале и потерей термодинамической устойчивости исходного структурного состояния материала. В течение переходной стадии устанавливается характерная для данного материала и условий облучения плотность дислокаций, а концентрация пор достигает максимального значения. Например, в зависимости от процентного соотношения основных составляющих сплава, концентрации легирующих элементов и примесей, исходной структуры, напряженного состояния и условий облучения длительность переходного периода для сплавов Fe—Cr—Ni изменяется в широких пределах (1...150 сна).

По завершении процессов, вызывающих ускорение распухания с дозой, происходит переход к установившейся стадии распухания. Аналитически зависимость распухания материалов от дозы на установившейся стадии может быть представлена в виде  $S \approx (D - D'_n)$ . Для металлов и сплавов с плотноупакованной решеткой (ГЦК и ГПУ) установившаяся стадия, как правило, длительная, и после переходного периода распухание линейно увеличивается с ростом дозы:  $S = R(D - D'_n)$ . Например, на установившейся стадии скорость распухания аустенит-

ных сплавов Fe—Cr—Ni составляет 0,1...1% снa при температуре максимального набухания.

Насыщение или замедление набухания с ростом дозы обусловлено многими причинами, среди которых можно выделить образование решетки пор, наличие примесных атмосфер у дислокаций, образование когерентных выделений, играющих роль центров рекомбинации вакансий и междоузельных атомов, и др.

### *Зависимость набухания от скорости повреждения*

К основным радиационным эффектам, связанным с увеличением скорости повреждения, относятся температурный сдвиг, измельчение пороковой структуры, повышение термической устойчивости пор и вакансионных петель, изменение в процессах фазовых превращений. В связи с этим температурная зависимость набухания и соответствующая максимуму набухания температура ( $T_{\max}$ ) при одинаковой интегральной дозе сдвигаются с ростом скорости создания точечных дефектов в область более высоких температур (рис. 3.20).

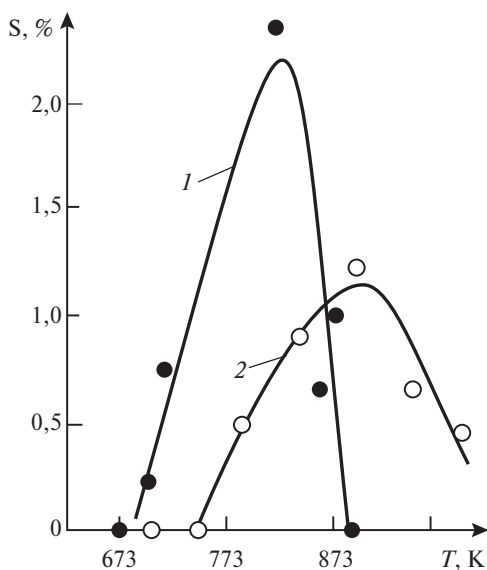


Рис. 3.20. Температурная зависимость набухания никеля при облучении ионами  $\text{Ni}^+$  ( $E = 2,8$  МэВ,  $D = 8,1$  снa) при различных скоростях повреждения  $K$ :  
 $1 - K = 4 \cdot 10^{-4}$  снa/с;  $2 - K = 4 \cdot 10^{-2}$  снa/с

Для значений скоростей возникновения дефектов в реакторе на быстрых нейтронах ( $K_1 = 10^{-6}$  сна/с) и на ускорителях ( $K_2 = 10^{-3}$  сна/с) этот сдвиг для различных материалов составляет обычно 100...250 К.

Сдвиг температурного интервала порообразования обусловлен прежде всего изменениями в процессах преобразования дислокационной структуры и зарождения вакансионных скоплений, вызванных увеличением вакансионного пересыщения. Если газовые атомы успевают подойти к зародышам пор до того, как они вырастают до критического размера, то образуются поры. В противном случае возникшие сначала трехмерные вакансионные скопления по достижении критического размера разрушаются до дислокационной петли. Время, за которое зародыши пор вырастают до критического размера, уменьшается с увеличением вакансионного пересыщения. При этом возрастает вероятность образования вакансионных петель, а также их жизнеспособность.

### ***Влияние структуры первичных радиационных повреждений на распухание материалов***

Структура первичных радиационных повреждений при электронном облучении значительно отличается от образованной при ионном и нейтронном облучении. Рассмотрим примеры влияния структуры первичных радиационных повреждений на распухание материалов.

При одинаковой дозе, выраженной в количестве смещений на атом, радиационное распухание при электронном облучении выше, чем при каскадном повреждении. Различие в структуре первичных радиационных повреждений вызывает более быстрое (примерно в 2 раза) распухание аустенитных сталей при облучении легкими ионами ( $C^{2+}$ , 20 МэВ). При исследовании никеля, облученного в идентичных условиях, указанного различия в скорости распухания не обнаружено. В случае электронного облучения аустенитных сталей доза до порообразования меньше 1 сна, в то время как в условиях ионного облучения пористость проявляется по достижении дозы в несколько смещений на атом.

Таким образом, изменение структуры первичных радиационных повреждений от образования каскадов смещений к формированию отдельных пар Френкеля приводит:

- к сокращению инкубационного периода;

- уменьшению дозы, при которой концентрация пор выходит на насыщение или начинает уменьшаться;
- увеличению скорости набухания;
- смещению нижнего температурного предела порообразования в область более низких температур.

### ***Влияние кристаллического строения металлов на порообразование***

Зарождение и рост пор при облучении — процесс, характерный для металлов и сплавов с различным типом кристаллической решетки: ГЦК (алюминий, медь, никель, платина, аустенитные стали, высоконикелевые сплавы); ОЦК (ванадий, молибден, тантал, железо, хром, ферритные и ферритомартенситные стали); ГПУ (магний, рений, титан).

Закономерной связи между склонностью металла к радиационному набуханию и его кристаллическим строением не установлено. Среди металлов каждой кристаллографической сингонии есть как подверженные интенсивному порообразованию, так и те, в которых развитие пористости либо подавлено, либо замедлено.

### ***Роль дислокационной структуры в порообразовании***

Согласно современным представлениям движущей силой зарождения и роста пор в облучаемом материале является вакансионное пересыщение, обусловленное неадекватностью взаимодействия вакансий и междоузельных атомов с дислокациями. По этой причине характер распределения дислокаций и дислокационных петель, а также эволюция дислокационной структуры определяют процессы зарождения и роста пор и их пространственное распределение в объеме облучаемого материала.

Из анализа результатов совместного исследования дислокационной структуры и развития радиационной пористости вытекают следующие закономерности:

- 1) необходимым условием для зарождения пор в облучаемом материале является достаточно высокая исходная плотность дислокаций;
- 2) увеличение подвижности дислокаций сопровождается увеличением скорости роста пор;

3) интенсивное развитие вакансионных петель в облучаемом материале замедляет, а иногда и вообще подавляет развитие пористости;

4) дислокации, присутствующие в сплавах и металлах с примесями до облучения, часто являются местами интенсивного зарождения и роста пор (дислокации покрыты строчками пор).

С ростом дозы облучения преобразуется дислокационная структура как отожженного, так и деформированного материала. При этом скорости зарождения пор и их рост определяются текущей плотностью дислокаций. В облучаемом материале плотность дислокаций и концентрация пор взаимосвязаны. Так, например, в нейтронно-облученном магнии концентрация пор увеличивается с ростом плотности дислокаций (рис. 3.21).

Согласно закономерности изменения скорости распухания с изменением плотности дислокаций следует, что повысить стойкость материала к радиационному распуханию можно как путем отжига дислокаций, так и путем введения многочисленных дислокаций, поглощающих практически все дефекты, генерируемые облучением.

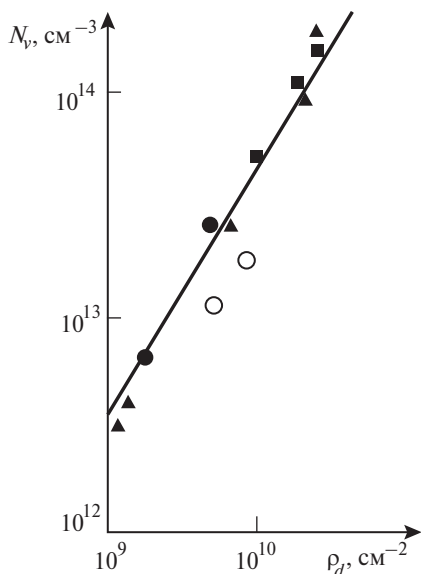


Рис. 3.21. Соотношение концентрации  $N_v$  пор и плотности дислокаций  $\rho_d$  в нейтронно-облученном магнии:

○ —  $\phi = 9,9 \cdot 10^{16}$  нейтр./ $(\text{м}^2 \cdot \text{с})$ ; ● —  $\phi = 4 \cdot 10^{17}$  нейтр./ $(\text{м}^2 \cdot \text{с})$ ;  
 ▲ —  $\phi = 1,3 \cdot 10^{18}$  нейтр./ $(\text{м}^2 \cdot \text{с})$ ; ■ —  $\phi = 3 \cdot 10^{18}$  нейтр./ $(\text{м}^2 \cdot \text{с})$

Предварительный отжиг дислокаций не является радикальной мерой, позволяющей подавить порообразование в облучаемых материалах вплоть до высоких доз. Его влияние сводится к увеличению длительности инкубационного и переходного периодов. Доза, до которой в материалах с очень низкой исходной плотностью дислокаций эффективно сдерживается распухание, обычно не превышает 10 сна. Следует отметить, что глубокую очистку металлов (а тем более сложных композиционных сплавов) от дислокаций трудно реализовать на практике.

### ***Влияние двухмерных протяженных дефектов на порообразование в материалах***

Поверхности кристаллов, границы зерен и двойников относятся к стокам точечных дефектов (двухмерным протяженным дефектам), действие которых вызывает пространственную неоднородность в развитии пористости. Вдоль границ зерен, как правило, образуются свободные от пор (обедненные) зоны.

Развитие свободных от пор зон подтвердило представление о границах зерен и поверхности образца как о неограниченных стоках для междоузельных атомов, вакансий, атомов газа и дислокаций.

Влияние поверхности и границ зерен проявляется в образовании не только обедненных зон, но и зон повышенной пористости, в которых распухание, размер и концентрация пор или дислокационных петель значительно больше, чем в центральной части зерна и в глубине поврежденного слоя. Существует несколько причин возникновения таких зон. Одна из них — то, что междоузельные атомы вследствие более высокой подвижности мигрируют к границам интенсивнее по сравнению с вакансиями, что приводит к образованию на некотором расстоянии от этих границ слоя с высоким вакансионным пересыщением.

### ***Влияние напряжений на распухание материалов***

В активной зоне ядерных установок большинство элементов конструкции работает под напряжением. Под напряжением находится и повреждаемый слой материала при ионном и электронном облучении. В оболочках тепловыделяющих элементов

(твэлов) в процессе работы реактора уровень напряжений составляет обычно 50...150 МПа.

Радиационное распухание металлов и сплавов связано со следующими процессами: генерацией и диффузией точечных дефектов; преобразованием дислокационной структуры в облучаемом материале; распадом твердого раствора и растворением выделений. Указанные процессы в материале, облучаемом под нагрузкой, претерпевают значительные изменения.

Расчеты показывают, что скорость генерации точечных дефектов и их подвижность увеличиваются под действием растягивающего напряжения.

Любая анизотропия в поле напряжений вызывает соответствующую ей анизотропию пространственного распределения дислокационных петель.

Наряду с *ИНПА-механизмом* (индуцированная напряжением предпочтительная абсорбция точечных дефектов различными ориентированными дислокациями), вызывающим пространственную неоднородность потоков точечных дефектов и, как следствие, изменение пространственного распределения дислокационных петель, в материале, облучаемом под нагрузкой, действуют индуцированные напряжением переползание и скольжение дислокаций (*П–С-механизм*).

Напряжение вызывает изменения в развитии радиационной пористости вследствие влияния на процессы генерации и диффузии точечных дефектов, формирование дислокационной сетки и микрохимические преобразования в облучаемом материале. Механизмы действия напряжения на развитие радиационной пористости посредством влияния на сопутствующие процессы дополняют механизмы, в основу которых положено изменение под напряжением энергетических характеристик образующихся пор и их термической стабильности. В данную группу механизмов входят *SAVN-механизм* (stress-assisted void nucleation – стимулированное напряжением зарождения пор) и *эмиссия точечных дефектов из стоков*. В SAVN-механизме предполагается, что эффективность действия пор как стоков для точечных дефектов зависит от уровня внешних напряжений. В поле растягивающего напряжения скорость термической эмиссии вакансий из пор уменьшается. Это повышает термическую стабильность пор и стимулирует их развитие. Процесс термической эмиссии вакансий из стоков оказывает значительное влияние на развитие пористости при высоких температурах облучения.

Следует отметить, что известен и достаточно хорошо изучен процесс развития пористости под действием напряжений — *кавитация*. В области перехода от преимущественно радиационной пористости к преимущественной кавитации наблюдается пространственное перераспределение пор относительно оси нагрузки.

Теоретически доказано, что при нагрузке выше пороговой на поре флуктуационно возникают дислокационные петли, которые скользят в глубь образца. В зависимости от нагрузки (сжатие или растяжение) поры будут соответственно растворяться, распадаясь на вакансионные петли, или расти, испуская междоузельные петли.

### ***Роль нестационарных полей температуры и радиации в развитии пористости***

Элементы активной зоны ядерных (термоядерных) реакторов работают в сложных и, как правило, нестационарных режимах по температуре, потоку частиц, механической нагрузке и другим воздействиям. Нестационарность температурного и радиационного режимов облучения может вызвать значительные изменения в эволюции дислокационной структуры и развитии радиационной пористости.

В эксперименте со скачкообразным изменением температуры от 748 до 848 К ( $T_{\text{н}} \rightarrow T_{\text{в}}$ ) и наоборот ( $T_{\text{в}} \rightarrow T_{\text{н}}$ ) в облученной электронами стали М316 (40 сна) выявлено, что при циклах  $T_{\text{н}} \rightarrow T_{\text{в}}$  и  $T_{\text{в}} \rightarrow T_{\text{н}}$  наблюдается значительное различие в развитии пористости и дислокационной структуры.

При цикле  $T_{\text{в}} \rightarrow T_{\text{н}}$  плотность дислокаций на втором этапе облучения быстро увеличивается с ростом дозы, в то время как при цикле  $T_{\text{н}} \rightarrow T_{\text{в}}$  плотность дислокаций на том же этапе практически постоянна.

Теоретически показано, что влияние циклического изменения температуры на развитие пористости при двухстадийном облучении (цикл  $T_{\text{в}} \rightarrow T_{\text{н}}$ ) связано с развитием двух популяций пор.

Две популяции пор (крупные и мелкие) обнаружены в никеле, облученном ионами  $\text{Ni}^+$ . Изменение температуры от 823 до 573 или 323 К при дозе 20 сна ведет к растворению пор и их полному исчезновению с увеличением дозы на 20 сна.

При импульсном облучении эволюция дислокационной и поровой составляющих радиационного повреждения зависит

как от температуры облучения, длительности импульса и скважности, так и от их соотношения.

### ***Влияние газов на порообразование в материалах***

Реакторное облучение металлов и сплавов наряду со смещением атомов из узлов решетки приводит к накоплению ядер-трансмутантов, из которых особую роль в развитии пористости играют гелий и водород. При этом газовые атомы стимулируют объединение вакансий в комплексы и стабилизируют трехмерные вакансионные скопления, препятствуя их разрушению до дислокационной петли. Введение гелия и других газов в металлы и сплавы способствует процессу зарождения пор и замедляет их рост. При этом характер изменения скорости и величины распухания (уменьшение или увеличение) зависит от свойств материала и условий облучения.

На рис. 3.22 приведена зависимость концентрации пор в стали AISI304, облученной ионами  $\text{Si}^{6+}$ , от концентрации гелия при трех способах его введения: предварительное введение

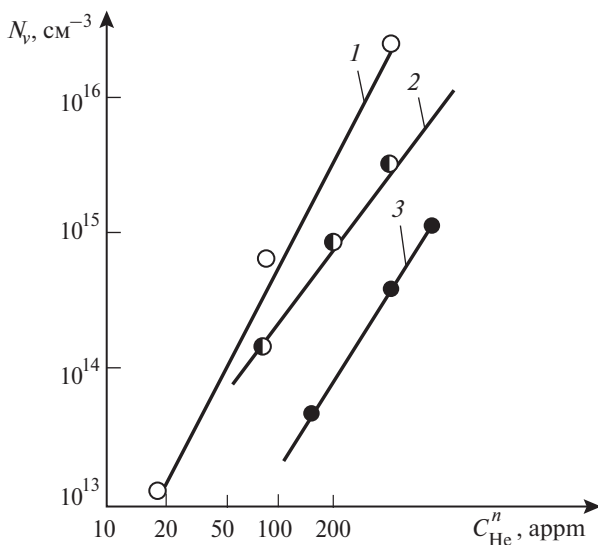


Рис. 3.22. Зависимость концентрации пор в стали AISI304, облученной ионами  $\text{Si}^{6+}$  ( $E = 28$  МэВ) при температуре 973 К до  $D = 3$  сна, от концентрации гелия, введенного предварительно при температуре 298 К (1) и 973 К (2) при одновременном облучении с ионами  $\text{Si}^{6+}$  (3)

гелия при комнатной температуре и температуре последующего ионного облучения, одновременное облучение ионами  $\text{Si}^{6+}$  и  $\text{He}^+$ . Вне зависимости от способа введения гелия концентрация пор в стали AISI304 пропорциональна корню квадратному от концентрации гелия.

С введением газа в облучаемый материал и увеличением его концентрации температурный максимум распухания и верхний температурный предел порообразования сдвигаются в область более высоких температур. На рис. 3.23 приведены температурные зависимости распухания сплава инколой-825 без гелия и сплава, содержащего 10 атпрм гелия.

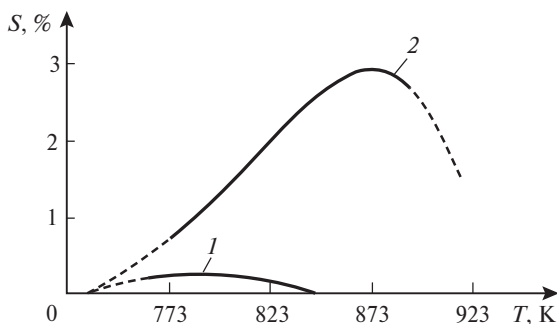


Рис. 3.23. Температурная зависимость распухания сплава инколой-825 при электронном облучении:

1 — 50 сна; 2 — 10 атпрм He, 10 сна

В образцах, насыщенных газом, свободные от пор вдоль границ зерен и поверхности образца зоны значительно уже или вообще отсутствуют. Кроме того, для газовых пузырьков границы зерен являются местами наиболее интенсивного зарождения и роста.

При введении инертных газов иногда возникают две системы пор. Например, совместное развитие мелких гелиевых пузырьков и крупных (преимущественно вакансионных) пор происходит в сталях, облучаемых в реакторах на быстрых нейтронах при температурах  $\approx 873$  К. При облучении никеля в термоядерном реакторе в двух температурных интервалах (при температурах ниже  $0,3T_{\text{пл}}$  и выше  $0,5T_{\text{пл}}$ ) образуются газовые пузырьки, а в промежуточном температурном интервале  $(0,3...0,5)T_{\text{пл}}$  основным процессом является развитие преимущественно вакансионной пористости.

В высокотемпературном интервале газовые пузырьки зарождаются и растут за счет термически активируемых процессов объединения мигрирующих вакансий и газовых атомов и слияния газовых пузырьков. Рост газовых пузырьков за счет испускания междоузельных атомов и междоузельных петель при высоких температурах облучения действует, но не является преобладающим. Четкой границы между температурными интервалами развития вакансионной и газовой пористости нет. Области перекрытия этих температурных интервалов являются температурными интервалами развития двух систем пор.

### ***Форма и упорядочение пор***

В облученных металлах поры часто имеют огранку, зависящую от кристаллического строения металла. Поры могут также образовывать решетку. Во всех металлах развитие упорядоченной структуры пор наряду с частными особенностями подчиняется некоторым общим закономерностям.

Симметрия и ориентация решетки пор и основной кристаллической решетки совпадают.

Решетка пор имеет такие дефекты, как краевые дислокации с экстраплоскостями из пор, вакантные позиции и междоузлия, смещения пор из узлов решетки, несколько пор в одном узле решетки, различие в размере пор, составляющих решетку. Следует подчеркнуть, что решетка пор дает соответствующие ей рефлексы на электронограмме.

При одновременном со смещением атомов из узлов решетки введении газа происходит упорядочение газовых пузырьков. Решетка из газовых пузырьков обычно дает размытое кольцо на электронограмме.

Установлено, что образованию совершенной решетки пор предшествует инкубационный период, включающий развитие неупорядоченной и частично упорядоченной пористости. Например, до трехмерного пространственного упорядочения поры выстраиваются в ряды; упорядочение пор в отдельных областях происходит до того, как охватывается весь объем. Доза до частичного упорядочения пористости в молибдене, облучаемом в реакторах или на ускорителях тяжелых ионов при температуре  $0,4T_{пл}$ , составляет 2 сна; при дозе около 10 сна образуется решетка пор; при дальнейшем увеличении дозы возрастает степень ее совершенства.

Природа упорядочения пор и газовых пузырьков в облученных материалах связана с широко распространенными в твердых телах механизмами процессов упорядочения:

- установление периодичности расположения дефектов упаковки, антифазных границ, плоскостей скольжения, двойников и выделений;
- образование решетки из вакансий и междоузельных атомов в упорядоченных сплавах;
- упорядочение атомов при кристаллизации.

В основе упорядочения или усиления тенденции к упорядочению пор (и газовых, и пузырьковых) могут лежать процессы, обусловленные стремлением системы к минимуму энергии, эффектами анизотропии, некоторыми неравновесными процессами. В основе большинства известных на сегодняшний день случаев упорядочения пор лежит единый процесс (или единая комбинация процессов, например стремление системы к минимальной энергии, усиленное эффектами анизотропии), о чем свидетельствует наличие целого ряда общих закономерностей развития упорядоченной структуры пор. Все остальные механизмы только усиливают или ослабляют его действие.

Образование решетки пор коррелирует со скоростью их зарождения. Являясь характерной особенностью эволюции пористости в молибдене и вольфраме — металлах с экстремально высокой скоростью зарождения пор, — в других металлах упорядочение происходит эпизодически. Этому способствуют введение инертного газа, примесей, предварительное низкотемпературное облучение и другие меры стимуляции процесса зарождения пор. Достаточно высокая концентрация пор — условие, необходимое для их упорядочения.

Тенденция к упорядочению пор усиливается с увеличением степени каскадности повреждения. Во многих металлах и сплавах решетка пор образуется при ионном и нейтронном облучении, вызывающем развитие каскадов смещения, и только при наличии примесей внедрения у очень ограниченного круга материалов происходит упорядочение пор при электронном облучении.

### ***Способы уменьшения распухания***

Рассмотрим возможные способы уменьшения распухания.

1. Общее число центров зарождения пузырьков должно быть по возможности большим. В частности, легирование урана 0,15 мас. % Al с последующей термообработкой позволяет спла-

вам выдерживать выгорание 0,7% без существенного распухания.

2. Эффект образования вдоль границ зерен свободных от пор (обедненных) зон положен в основу одного из методов создания радиационно стойких материалов — *диспергирования зеренной структуры*. В результате исследований, проведенных на материалах с ультрамелкозернистой структурой, установлено, что диспергирование только в том случае эффективно сдерживает развитие пористости, если оно не приводит к обеднению матрицы легирующими элементами, сдерживающими распухание, а размер зерен соизмерим с шириной обедненных зон.

3. Фактор, ускоряющий распухание  $\alpha$ -урана, — неравномерный термический режим (*термоциклирование*). Характеристики стоков точечных дефектов изменяются с температурой облучения и контролируют развитие пористости в облучаемых материалах. Контролируемое изменение эффективности действия стоков точечных дефектов является одним из основных методов управления процессом развития пористости в облучаемых материалах.

4. Для уменьшения распухания используется возможность его внешнего ограничения за счет прочной оболочки, принимающей на себя часть давления газа, которая не сдерживается внутренним сопротивлением самого урана.

На рис. 5 и 6 из приложения приведены фотографии болта, являвшегося частью реактора, на которых видны последствия радиационного распухания.

### 3.5. Радиационный рост

Радиационный рост наблюдается как на делящихся, так и на конструкционных материалах. В настоящее время под *радиационным ростом* подразумевают изменение размеров кристаллов при облучении без приложения внешней нагрузки, не сопровождающееся заметным изменением объема. Следовательно, применительно к урану и его сплавам радиационный рост проявляется при относительно низком выгорании (флюенсе облучения), когда еще не наблюдается существенного увеличения объема образцов, т.е. радиационного распухания.

Способность «расти» под действием облучением — одно из наиболее своеобразных свойств урана. Впервые рост урана был обнаружен на холоднотянутых проволоках и прокатанных лен-

тах. Как те, так и другие удлиняются в направлении вытяжки или прокатки и в то же время сокращаются в направлении, перпендикулярном к первому. При этом если в проволоках все направления в поперечном сечении сокращаются одинаково, то в прокатанной фольге сокращается только ее толщина, а ширина не изменяется.

Кристаллы урана под облучением увеличиваются в размере по направлению оси [010] и укорачиваются по направлению оси [100]. В направлении оси [001] их размер не изменяется.

Особенностью холоднотянутых и прокатанных образцов урана является наличие в них текстуры, т.е. предпочтительной кристаллографической ориентации зерен. Было установлено, что радиационный рост урана прекращается при нарушении текстуры, созданной предварительным деформированием.

Сначала, когда был обнаружен рост под облучением урановых изделий, полученных деформированием, полагали, что это своеобразное явление происходит вследствие взаимодействия отдельных зерен поликристаллического металла, так как подобное явление роста наблюдается в текстурированном поликристаллическом уране при многократном циклическом изменении температуры (термоциклировании). Благодаря значительному различию значений коэффициента термического расширения урана по разным кристаллографическим направлениям (табл. 3.2) при термоциклировании между зернами возникают большие напряжения, способные вызвать локальную пластическую деформацию и рост образцов. Однако вскоре было показано, что явление радиационного роста свойственно также и монокристаллам  $\alpha$ -урана, тогда как циклические колебания температуры в свободном (ненагруженном) монокристалле никакого изменения формы не вызывают. Следовательно, первоначальная теория радиационного роста урана оказалась ошибочной.

Таблица 3.2

**Зависимость коэффициентов термического расширения и радиационного роста от кристаллографической ориентации монокристаллического урана**

| Кристаллографическое направление | Коэффициент термического расширения, $10^6 \text{ K}^{-1}$ |                                  | Коэффициент радиационного роста |
|----------------------------------|------------------------------------------------------------|----------------------------------|---------------------------------|
|                                  | $T_{\text{обл}} = 300 \text{ K}$                           | $T_{\text{обл}} = 600 \text{ K}$ |                                 |
| [100]                            | 26,0                                                       | 46,6                             | –420 (сжатие)                   |
| [010]                            | 0,4                                                        | –17,2                            | + 420 (рост)                    |
| [001]                            | 18,0                                                       | 41,6                             | 0                               |

Явление радиационного роста количественно характеризуется *коэффициентом радиационного роста*  $G_i$  – безразмерной величиной, представляющей собой относительное удлинение образца за одно деление атома урана:

$$G_i = \frac{1}{l} \frac{dl}{dN} \approx \frac{\ln(l/l_0)}{\Delta N},$$

где  $i$  – индекс кристаллографического направления;  $l$ ,  $l_0$  – соответственно конечная и исходная длина образца;  $\Delta N = \Delta n/n$  – отношение числа атомов ( $\Delta n$ ), испытавших деление, к общему числу атомов ( $n$ ).

В тех случаях, когда изменения длины образца малы, может применяться следующее приближенное выражение:

$$G_i = \frac{\text{Процент изменения длины}}{\text{Процент выгорания}}.$$

Значения коэффициента радиационного роста для образцов монокристаллического  $\alpha$ -урана различной ориентации, облученных при нормальной температуре, приведены в табл. 3.2. Однако рост монокристаллов урана различной степени совершенства также различен: чем выше степень совершенства монокристалла, тем ниже коэффициент радиационного роста (табл. 3.3).

Таблица 3.3

**Значения коэффициента радиационного роста  $G_i$  образцов монокристаллического  $\alpha$ -урана различной степени совершенства**

| Тип монокристалла                | $G_i$ | $\bar{G}_i$ |
|----------------------------------|-------|-------------|
| Совершенный монокристалл [010]   | 260   | 318         |
|                                  | 340   |             |
|                                  | 260   |             |
|                                  | 290   |             |
|                                  | 440   |             |
| Несовершенный монокристалл [010] | 480   | 625         |
|                                  | 850   |             |

Как видно из данных, приведенных в табл. 3.3, значения  $G_i$  сильно изменяются от образца к образцу, поэтому усреднение величин для малого числа кристаллов не вполне оправдано.

В образцах из поликристаллического урана, имеющего хаотичное расположение зерен, т.е. при отсутствии текстуры, поверхность под действием облучения становится шероховатой, жеванной (так называемый *эффект жеванности* или апельсиновой корки). До настоящего времени нет единой методики количественной оценки степени жеванности. Наиболее часто используется так называемый *параметр жеванности* ( $W$ ), представляющий собой суммарное отклонение от среднего диаметра цилиндрического образца независимо от знака (при измерениях диаметра образца через 1 см).

Поверхностная жеванность поликристаллического металла является результатом различного роста отдельных зерен под действием облучения и зависит от температуры мишени. Наибольшая жеванность появляется при температурах облучения в интервале 150...200 °С, а при температурах выше 350 °С значение параметра жеванности резко уменьшается. Борьба с этим нежелательным явлением на поверхности урана идет главным образом путем уменьшения размеров кристаллических зерен и получения мелкокристаллической разноориентированной структуры.

Значения коэффициента  $G_i$  для образцов поликристаллического текстурированного урана зависит от нескольких технологических факторов, и в первую очередь от характера и степени совершенства структуры. Поскольку кристаллы  $\alpha$ -урана растут в направлении [010] и сокращаются в направлении [100], рост продольной оси прутка будет зависеть от того, насколько доля зерен, ориентированных в направлении [010] параллельно этой оси, превышает число зерен, ориентированных в кристаллическом направлении [100].

На рис. 3.24 показано влияние различных технологических обработок на изменение длины образцов под облучением при разных степенях выгорания.

В случае обработки образцов урана в области  $\alpha$ -фазы при температуре 300 °С прокаткой или волочением кристаллы урана располагаются кристаллографическим направлением [010] в направлении прокатки металла, т.е. уран приобретает определенную текстуру. По мере возрастания температуры прокатки выше температуры начала рекристаллизации (~400 °С) в текстуре появляется компонент [110], а при более высоких темпе-

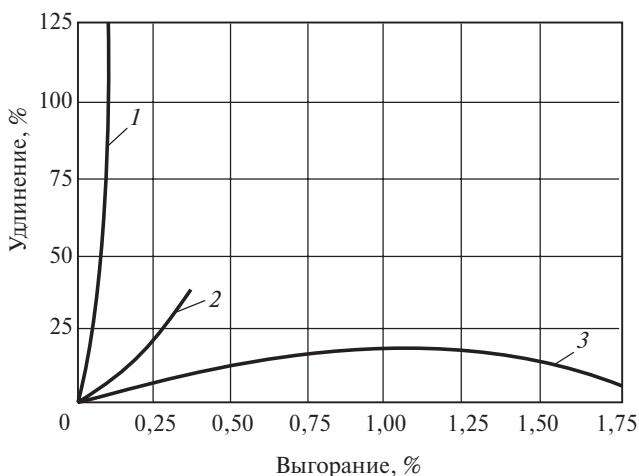


Рис. 3.24. Влияние различных технологических обработок на рост урана под облучением:

1 — прокатка при  $T = 300\text{ }^{\circ}\text{C}$ ; 2 — прокатка при  $T = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$ ; 3 — прокатка при  $T = 300\text{ }^{\circ}\text{C}$  и закалка из  $\alpha$ -фазы

ратурах — и компонент [100]. В то же время компонент [010] исходной текстуры постепенно ослабевает. Изменение соотношения компонентов текстуры в уране, деформированном при различных температурах  $\alpha$ -фазы, приводит к изменению скорости роста под действием облучения и даже к изменению его направления в зависимости от температуры прокатки.

На рис. 3.25 приведена зависимость коэффициента радиационного роста урана от температуры облучения. Как видно из рисунка, при возрастании температуры облучения от комнатной до  $300\text{ }^{\circ}\text{C}$  радиационный рост урана несколько увеличивается, хотя причины этого еще недостаточно изучены.

Гораздо более точно установлен факт значительного ускорения роста, происходящего при уменьшении температуры ниже комнатной. Эксперименты показали, что коэффициент радиационного роста, измеренный при температуре  $196\text{ }^{\circ}\text{C}$  на текстурированных поликристаллических образцах как со структурой рекристаллизованного урана, так и со структурой холоднодеформированного урана, оказался очень высоким — соответственно 6800 и 23 300. В области температур  $450\ldots 500\text{ }^{\circ}\text{C}$  радиационный рост резко ослабевает как у монокристаллов, так и у поликристаллов.

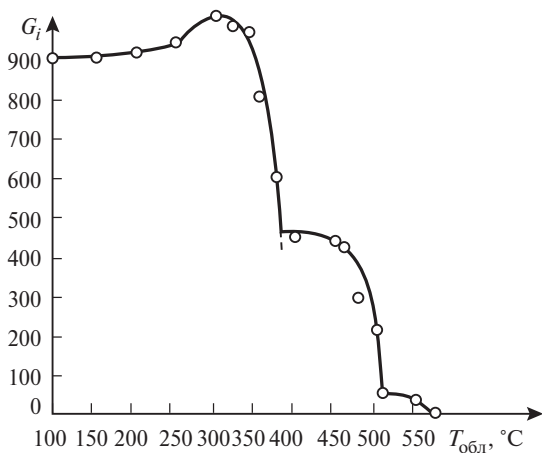


Рис. 3.25. Влияние температуры облучения на коэффициент радиационного роста урана

Как известно, из экономических соображений желательно, чтобы выгорание ядерного топлива в сердечниках твэлов достигало максимума перед их выгрузкой и происходило при возможно более высоких температурах. Степень выгорания (или срок «жизни» топлива в реакторе) обычно ограничивается одним из следующих факторов:

- падением реактивности ниже допустимого уровня из-за изменения в изотопном составе (выгорание делящегося изотопа);
- сильным повреждением топлива из-за радиационного воздействия и накопления продуктов деления.

Естественно, что одной из причин снижения работоспособности твэлов в реакторе может являться радиационный рост ядерного топлива.

Применительно к эксплуатации атомных реакторов отклонение от первоначальных размеров твэлов может быть столь значительным, что приведет к нарушению подачи охладителя в канал.

Для объяснения явления роста образцов  $\alpha$ -урана под действием облучения выдвигалось несколько моделей, которые основаны в большей степени на анизотропии его структуры и, как следствие, анизотропии свойств.

Структура  $\alpha$ -урана может быть представлена в виде «гофрированных» атомных слоев, параллельных плоскости (010). Рас-

стояние между атомами внутри слоя меньше, чем расстояние между разными слоями. Поскольку прочность связей увеличивается с уменьшением расстояния между атомами, то прочность связей атомов в «гофрированных» плоскостях больше, чем между плоскостями. Вследствие этого  $\alpha$ -уран обладает сильной анизотропией свойств.

*Термомеханическая теория (теория Пью)* основана на рассмотрении механизма деформации вблизи сильно нагретой области термического пика. Согласно этой теории решетка в зоне термического пика испытывает сжимающие напряжения, так как она окружена холодным металлом, не допускающим ее расширения, а в объеме металла, окружающем пик, возникают растягивающие напряжения, а сжимающие напряжения вызывают двойникование по направлению [010], что приводит к удлинению в сжатых объемах. Возникающие в окружающей пик зоне растягивающие напряжения превышают сопротивление сдвигу и вызывают пластическую деформацию, которая сначала должна происходить в наиболее слабом направлении. Таким направлением кристаллографической решетки урана является направление [010].

Оцениваемая результирующая деформация согласуется с экспериментальными результатами в том смысле, что кроме растяжения вдоль направления [010] происходит также сжатие по направлению [100] при сохранении размеров вдоль направления [001]. Эта модель позволяет получить на основе ряда допущений количественно подходящее значение коэффициента радиационного роста. Резкое снижение скорости роста при повышении температуры до 500 °С также просто объясняется этой теорией в связи с уменьшением уровня внутренних напряжений и возрастанием изотропии решетки с повышением температуры.

Главные возражения, которые выдвигают противники данной теории, заключаются в том, что время существования термического пика ( $\sim 10^{-11} \dots 10^{-13}$  с) мало для того, чтобы можно было ожидать развития пластической деформации. Кроме того, малые размеры области термического пика ( $\sim 10^{-18}$  см<sup>3</sup>) делают маловероятным существование в ней дислокаций и их источников, необходимых для развития пластической деформации путем скольжения.

Основное отличие *диффузионной теории (теории Сигля — Опинского)* заключается в том, что радиационный рост  $\alpha$ -урана

объясняют анизотропией скорости перемещения (коэффициентов диффузии) точечных дефектов (смещенных атомов и вакансий) в решетке урана при облучении с учетом того, что диффузия представляет собой термически активируемый процесс. При этом роль облучения сводится только к созданию большого количества радиационных дефектов.

Согласно основному положению диффузионной теории смещенные атомы перемещаются в направлении оси [010], т.е. перпендикулярно к «гофрированным» слоям, а вакансии — по направлению [100]. Энергия связи между «гофрированными» слоями в решетке урана невелика, следовательно, здесь имеются места (поры) для энергетически выгодного размещения смещенных атомов. Движущиеся вдоль оси [010] смещенные атомы локализуются в этих порах между «гофрированными» слоями атомов и образуют новые атомные слои, что и объясняет рост урана вдоль данной оси.

Расчеты показывают, что для количественного объяснения радиационного роста вдоль оси [010] достаточно примерно 1% образующихся смещенных атомов. Смещенные атомы (98%) рекомбинируют при встрече их с вакансиями, а 1% поглощается дислокациями.

Уменьшение радиационного роста при увеличении температуры хорошо объясняется в диффузионной теории происходящим повышением скорости рекомбинации смещенных атомов и вакансий при возрастании температуры. Вследствие этого уменьшается возможность образования новых «гофрированных» слоев и выхода вакансий на границы зерен и дефекты.

Согласно данной теории требуется уменьшение скорости радиационного роста с понижением температуры ниже комнатной вследствие уменьшения при этом коэффициента диффузии. Но это противоречит экспериментальным данным.

*Теория Гонзера* базируется на направленном движении смещенных атомов с выходом их на границы зерен и поверхность кристалла, но не в результате термически активируемой диффузии, а благодаря коррелятивным процессам движения, вызываемым атомными столкновениями. Вследствие упорядоченного расположения атомов в кристаллической решетке и образования атомных рядов процессы столкновения (например, под действием нейтронов или осколков деления) происходят коррелятивно в определенной зависимости от энергии,

передаваемой в столкновениях, и направления импульса относительно кристаллической решетки. Это связано с эффектом фокусировки, вызывающим образование фокусонов и краудионов.

Согласно модели Гонзера и проведенным расчетам вдоль наиболее плотноупакованного направления  $[100]$  решетки  $\alpha$ -урана должны распространяться в основном фокусоны, а по направлению  $[010]$  в результате столкновений возникает динамический краудион. При этом в процессе развития динамического краудиона замещающие столкновения атомов цепочки в конце концов приводят к тому, что краудионный процесс задерживается на границах субзерен или соседних зерен. В этом случае скопившиеся на границе атомы образуют новый «гофрированный» слой в направлении  $[010]$ , что и приводит к радиационному росту урана в этом направлении.

В направлении  $[100]$  распространения фокусонов в случаях, когда последнему атому рассматриваемой цепочки передается энергия, достаточная для того, чтобы выбить его из узла решетки, смещенный атом попадает либо на границу соседнего зерна или субзерна, либо на дислокацию и т.п. Он фактически встраивается в зону того или иного дефекта и покидает рассматриваемую цепочку атомов. В результате этого в ряду атомов становится одним атомом меньше, т.е. происходит уменьшение длины.

В направлении  $[001]$  вообще отсутствуют плотноупакованные цепочки атомов. При таких условиях частицы с большой энергией не могут передать ее путем динамических коррелятивных процессов (возникновение фокусона или краудиона), вследствие чего радиационные изменения размеров в этом направлении отсутствуют. Расчет абсолютной величины радиационного роста по этой теории позволяет получить значение коэффициента радиационного роста порядка нескольких сотен, что соответствует экспериментальным данным. Однако эта теория неприменима к ГПУ-металлам (например, к цирконию), у которых в направлении наиболее плотной упаковки наблюдается не сжатие, а расширение.

Существует еще *теория Коттрелла*, основанная на анизотропии коэффициента термического расширения  $\alpha$ -урана. Данная теория позволяет объяснить главные явления радиационного роста урана.

Наиболее поздней по времени является *теория роста (теория Бакли)*. В ней радиационный рост рассматривается как

результат постоянной конденсации (сегрегации) дефектов (междоузельных атомов) внутри кристаллической решетки с образованием дополнительных атомных слоев в одних направлениях и слоев сконденсированных вакансий в других. Большинство экспериментальных фактов удовлетворительно объясняется данной теорией. Особенно надежные подтверждения она получает благодаря результатам электронной микроскопии, с помощью которой экспериментально установлено образование дислокаций и дислокационных петель при облучении и наличие их преимущественной ориентации в зависимости от типа петель (вакансионных или междоузельных атомов).

В основе теории роста лежит представление о сегрегации точечных дефектов, создаваемых облучением. В термическом пике вследствие анизотропии коэффициента термического расширения  $\alpha$ -урана возникают большие напряжения. В направлениях наименьшего термического расширения, каким в кристалле  $\alpha$ -урана является направление  $[010]$ , возникают растягивающие напряжения, а перпендикулярно к ним — сжимающие напряжения. При этом в области термического пика должна существовать такая ориентировка дислокаций, которая способствует ослаблению напряженного состояния. Вследствие этого конденсация атомов произойдет по тем атомным плоскостям, вдоль нормалей к которым возникают растягивающие напряжения и увеличиваются размеры кристалла, т.е. в направлении  $[010]$ . Наоборот, в направлениях  $[100]$ , перпендикулярных к нему, где имеет место сжатие, будет происходить конденсация вакансий.

В настоящее время теория роста получила наибольшее признание, поскольку отвечает практически на все вопросы, вытекающие из экспериментальных исследований. Однако следует признать, что другие различные механизмы, описанные выше, также могут играть значительную роль в радиационном росте облучаемых материалов.

Экспериментальные исследования показали, что анизотропные конструкционные материалы (например, цирконий и его сплавы, графит и др.) при определенных условиях облучения также испытывают радиационный рост. Среди конструкционных материалов радиационный рост впервые был обнаружен в облученном цирконии, имеющем ГПУ-решетку. Позднее появились экспериментальные доказательства того, что при

определенных условиях явление радиационного роста может проявляться в металлах и сплавах с ГЦК- и ОЦК-решетками. Эти результаты опровергают первоначальное мнение о том, что «расти» под облучением могут только кристаллы с анизотропной решеткой.

Таким образом, основные физические механизмы, лежащие в основе явления радиационного роста, должны являться следствием более общих процессов, происходящих в материалах под действием облучения.

Для конструкционных материалов коэффициент радиационного роста выражается как относительное изменение размера образца в результате каждого столкновения быстрой частицы (нейтрона) с атомом решетки.

На рис. 3.26 представлены экспериментальные данные по радиационному росту образцов монокристаллов циркония, облученных при температуре 353 К. Как видно из рисунка, размеры облученных монокристаллических образцов увеличивались вдоль оси  $a$  и уменьшались вдоль оси  $c$ . При этом в обоих случаях сначала происходило достаточно быстрое изменение размеров (переходная стадия), а при более высоких флюенсах облучения наблюдалось насыщение эффекта. Подобные зависимости выявлены и при более высоких температурах облучения ( $T = 533$  К).

При послерадиационном отжиге облученных образцов наблюдается частичный возврат деформации радиационного

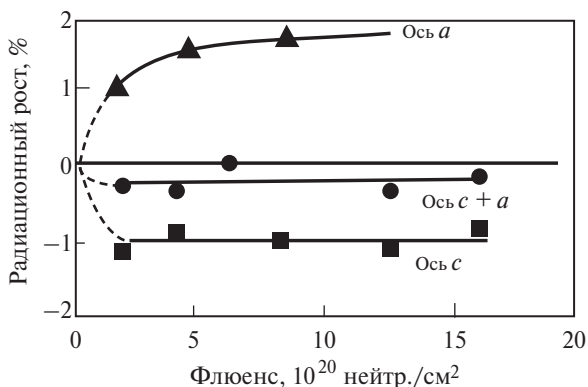


Рис. 3.26. Зависимость степени радиационного роста монокристаллов циркония от флюенса нейтронов

роста: при температурах отжига выше 620 К происходит уменьшение длины образцов, увеличенной в процессе облучения. При этом, например, для облученных образцов рекристаллизованного сплава циркалой возврат может достигать 100%.

На основании анализа результатов большого количества экспериментальных исследований, в которых контролировались условия облучения и параметры микроструктуры образцов, был сделан вывод, что радиационный рост циркониевых сплавов обусловлен радиационными повреждениями и предварительной холодной деформацией. Оба компонента зависят главным образом от кристаллографической текстуры образцов. Деформационная составляющая зависит также от формы исходных зерен и от анизотропии дислокаций в распределении векторов Бюргера.

При оценке размерных изменений образцов коррозионно-стойких сталей в условиях реакторного облучения обычно ограничиваются учетом двух физических явлений — вакансионного распухания и радиационной ползучести.

На основании результатов обработки экспериментальных данных измерения размеров облученных оболочек твэлов из стали SS316 в двух направлениях одновременно с измерениями плотности образцов был обнаружен дополнительный компонент деформации, который можно приписать их радиационному росту.

Радиационный рост наблюдался как на холоднодеформированных (рис. 3.27, *а*), так и на отожженных (рис. 3.27, *б*) образцах стали. При этом относительная скорость радиационного роста образцов деформированной стали составляла  $10^{-3}/10^{22}$  нейтр./см<sup>2</sup> ( $E > 0,1$  МэВ) и зависела от температуры облучения. Следует отметить, что радиационный рост образцов из отожженной стали выражен слабее и характеризуется более сложной зависимостью от флюенса нейтронов.

В настоящее время можно считать установленным, что анизотропные кристаллы различных материалов (цирконий, титан, бериллий, кадмий, цинк и др.) подвергаются радиационному росту, причем растут в направлении наименьшего значения коэффициента термического расширения. Изотропные металлы в условиях облучения растут только при температурах в интервале  $(1/4 \dots 1/3)T_{\text{пл}}$  в случае, если они подвергались предварительной холодной деформации, причем изменения размеров наиболее значительны в направлении, совпадающем с направлением предшествующей холодной деформации.

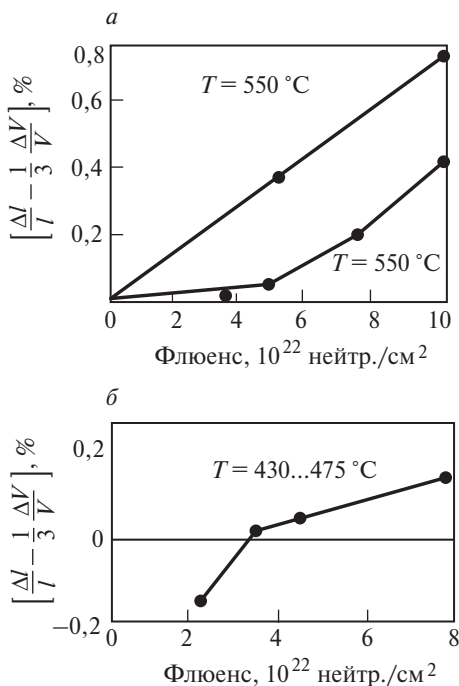


Рис. 3.27. Зависимость степени радиационного роста образцов холоднодеформированной на 20% (а) и отожженной (б) стали SS316 от флюенса облучения

Касаясь физической интерпретации экспериментальных данных по радиационному росту конструкционных материалов, необходимо отметить, что наличие текстуры является обязательным условием проявления данного эффекта. Под текстурой здесь понимается макроанизотропия материала в целом, которая связывается не только с анизотропией кристаллической структуры или с преимущественной ориентацией кристаллов в поликристаллическом материале, но и с другими факторами, в частности с преимущественной ориентацией вектора Бюргерса элементов дислокационной структуры, формирующейся в результате направленной пластической деформации или образования субструктуры в процессе облучения, когда радиационно-индуцируемые дислокационные петли могут обладать вектором Бюргерса преимущественной ориентировки. Отсюда становится понятным, почему радиационный рост металлов с изотропной решеткой

(ГЦК- и ОЦК-структуры) при небольших флюенсах облучения проявляется только на образцах, подвергнутых предварительной пластической деформации, которая вызывает появление анизотропии, связанной с преимущественной ориентацией вектора Бюргерса дислокаций, образовавшихся при деформации. При достаточно больших флюенсах радиационный рост изотропных материалов возможен и в отожженном состоянии, поскольку в этом случае могут образовываться радиационно-стимулированные дислокационные петли с преимущественной ориентацией вектора Бюргерса.

Известно, что когда концентрация точечных дефектов, возникающих при облучении, значительно превышает равновесную, могут образовываться различные комплексы. Процесс образования скоплений (комплексов) может быть результатом случайной встречи одинаковых дефектов при их миграции в кристалле. Кроме того, при облучении тяжелыми частицами (ионами) и нейтронами, когда образуются высокоэнергетические атомы отдачи, скопления могут возникать в каскадах смещений. Наибольший интерес в данном случае представляет образование скоплений в виде дислокационных петель. На рис. 3.28 приведена зависимость изменения плотности дислокационных петель от флюенса нейтронов ( $E > 1$  МэВ) для сплава циркалой-2, облученного при температуре 300 °С.

Как видно из рисунка, плотность дислокационных петель имеет насыщение при флюенсе около  $10^{22}$  нейтр./см<sup>2</sup>. После

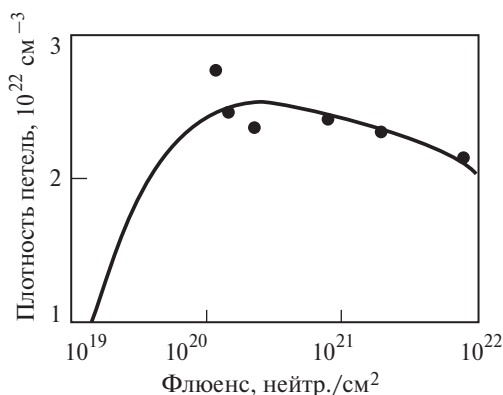


Рис. 3.28. Зависимость плотности дислокационных петель в сплаве циркалой-2 от флюенса нейтронов

того как достигается насыщение, в цирконии и его сплавах формируется своеобразная субструктура, что связано с взаимодействием дислокационных петель как друг с другом, так и с элементами исходной дислокационной структуры.

Образование дислокационных петель эквивалентно внедрению или удалению части плотноупакованного слоя в кристалле. Следовательно, дислокационная петля междоузельного типа обуславливает рост, а вакансионная — сжатие кристалла в направлении своего вектора Бюргерса. Для кристаллов с изотропной решеткой эффект радиационного роста за счет такого процесса должен отсутствовать из-за симметричного распределения петель обоих типов по кристаллографическим плоскостям. В случае анизотропных кристаллов распределение петель должно быть несимметричным, в результате чего междоузельные петли вызывают удлинение в одних направлениях, а вакансионные — сжатие в других.

Есть достаточно веские основания считать, что при облучении тяжелыми частицами зарождение дислокационных петель и ориентация их вектора Бюргерса происходят непосредственно в каскадах смещений. Структуру каскада, образованного тяжелой частицей, можно представить в виде обедненной центральной зоны, окруженной облаком смещенных атомов.

Вследствие процессов каналирования и фокусировки пространственное распределение междоузельных атомов может быть анизотропным. Эти процессы способствуют эффективному разделению вакансий и смещенных атомов, препятствуя их рекомбинации. Локальные концентрации точечных дефектов, избежавших рекомбинации, достаточны для образования скоплений в виде петель в каскаде из-за перегрева за время его существования. В кристаллах с анизотропной кристаллической структурой асимметрия в распределении векторов Бюргерса петель вакансионного и междоузельного типа может быть следствием анизотропии мощных локальных напряжений, обусловленных анизотропией коэффициента термического расширения и анизотропным выбросом смещенных атомов из центральной зоны каскада смещения.

Таким образом, отмеченное выше определенное несоответствие экспериментальным данным простой модели радиационного роста Бакли есть следствие ограниченности области применимости данной модели высокими флюенсами облучения.

### 3.6. Блистеринг и флекинг

#### Общие сведения

При бомбардировке поверхности металлов ионами слабо растворимых в них газов ( $H^+$ ,  $D^+$ ,  $T^+$ ,  $He^+$ ,  $Ne^+$ ,  $Ar^+$  и др.) с энергиями от нескольких килоэлектронвольт до нескольких мегаэлектронвольт происходят накопления этих атомов в приповерхностном слое и при достижении больших концентраций ( $\sim 10...50$  ат. % в области проектного пробега  $R_p$ ) внедренных атомов газа — отрыв участков этого приповерхностного слоя. В результате на поверхности наблюдается образование вздутий — *блистеров*, — имеющих правильную куполообразную форму (рис. 3.29, *а*), или отшелушивание слоев — *флекинг*

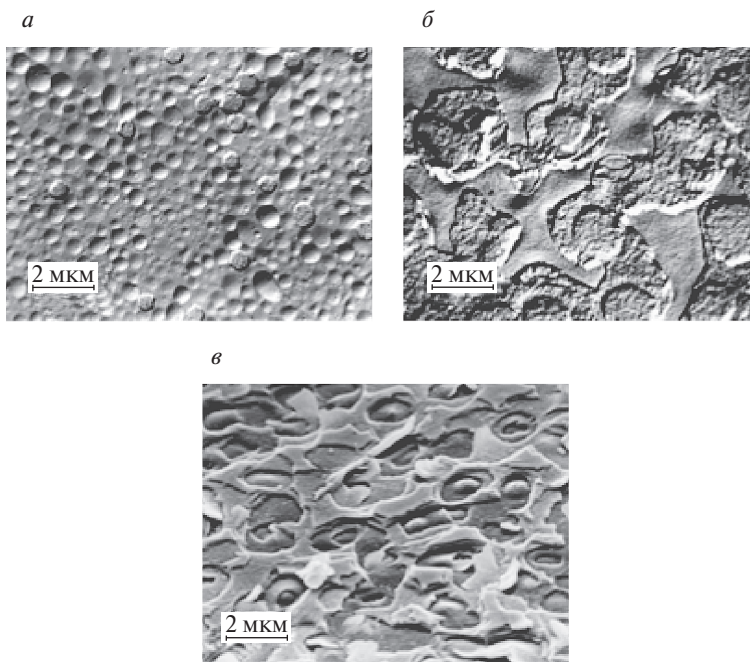


Рис. 3.29. Радиационный блистеринг сплавов тугоплавких металлов, облученных ионами гелия:

*а* — Мо — 1,2 мас. % V,  $E = 20$  кэВ,  $T = 60$  °C,  $\Phi = 5 \cdot 10^{17}$  ион/см<sup>2</sup>; *б* — ванадий электронно-лучевой плавки (ВЭЛ-2),  $E = 20$  кэВ,  $T = 500$  °C,  $\Phi = 5 \cdot 10^{18}$  ион/см<sup>2</sup>; *в* — V — 8 мас. % Cr,  $E = 100$  кэВ,  $T = 500$  °C,  $\Phi = 5 \cdot 10^{18}$  ион/см<sup>2</sup>

(рис. 3.29, б, в). В ряде случаев происходит отделение от матрицы сплошной пленки облучаемого участка.

В современной литературе существует установившаяся терминология, согласно которой под *радиационным блистерингом* понимается общее явление деформации и разрушения поверхности, включая как флекинг, так и собственно блистеринг. В дальнейшем будем придерживаться такого понимания радиационного блистеринга, но различать механизмы эрозии. Шелушение путем образования и отщепления куполов отдельных блистеров называется *эрозией по механизму блистеринга*; шелушение большими кусочками, включая и эрозию, происходящую путем совместного отщепления нескольких блистеров, — *эрозией по механизму флекинга*.

Блистеринг наблюдается практически на всех материалах, применяемых в технике (металлы и сплавы, углеграфитовые материалы, диэлектрики и т.д.), при облучении их ионами газов ( $\text{He}^+$ ,  $\text{H}^+$ ,  $\text{D}^+$ ,  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Ar}^+$  и др.) или потоками плазмы после достижения критического флюенса  $D_{\text{кр}}$  при температурах облучения ниже  $0,5T_{\text{пл}}$  и при условии, что глубина проникновения внедряемых ионов больше толщины слоя, распыляемого при данном флюенсе.

В реальных условиях при работе реактора синтеза поверхность элементов конструкции первой стенки может быть подвергнута радиационному блистерингу.

### ***Природа образования блистеров***

Основной причиной блистерообразования и шелушения поверхности при внедрении ионов является накопление малорастворимых газов в тонком поверхностном слое материалов, к числу которых относятся все инертные газы, включая гелий, а в некоторых материалах — и водород.

На начальном этапе облучения (флюенсы менее  $10^{13}$  ион/см<sup>2</sup>) внедренные атомы гелия мигрируют внутри материала по междоузельному механизму и захватываются ловушками, в качестве которых могут выступать точечные дефекты, границы зерен и другие дефекты структуры. Наиболее высокой вероятностью захвата атомов гелия обладают вакансии и атомы примеси. Одна вакансия может захватывать несколько атомов гелия. При количестве атомов гелия, превышающем некоторое критическое число  $n$ , в таком комплексе образуются новые комплексы,

которые связывают газ сильнее, чем одна вакансия. Эти комплексы состоят из нескольких вакансий и атомов гелия. Например, в никеле эта реакция протекает при  $n \geq 6$ .

С увеличением дозы облучения растет вероятность образования сложных комплексов. Такие комплексы, содержащие 100 и более атомов гелия, представляют собой кластеры.

В отличие от гелия водород взаимодействует с местами захвата (ловушками) слабее, поэтому он может эффективно внедряться и накапливаться только в крупных дефектах материала (порах, пустотах), на фазовых границах или в других структурных дефектах, а также взаимодействовать химически с образованием гидридов металла.

С увеличением дозы облучения количество захваченного в материалах газа возрастает, причем при умеренных температурах облучения (вблизи комнатной и ниже) и флюенсах порядка  $10^{17}$  ион/см<sup>2</sup> захватывается весь внедряемый гелий, а при некоторой определенной дозе захват гелия выходит на насыщение (рис. 3.30)

Дозам от  $10^{16}$ ... $10^{17}$  ион/см<sup>2</sup> соответствует образование гелиевых пузырьков, их рост, миграция и формирование решетки пузырьков. Критическая доза блистерообразования  $D_{кр} \approx (2...5) \cdot 10^{17}$  ион/см<sup>2</sup>.

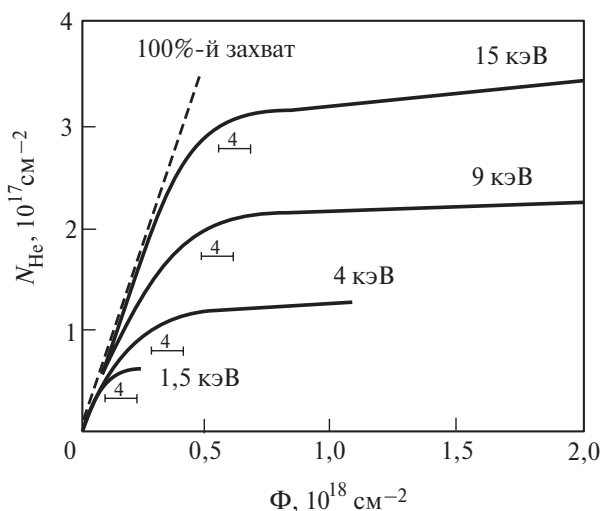


Рис. 3.30. Зависимость количества захваченных атомов гелия в ниобии от флюенса облучения при комнатной температуре

Развитие газовой пористости при увеличении дозы характеризуется увеличением давления газа в пузырьках и возникновением в облучаемом слое внутренних сжимающих напряжений вследствие распухания поверхностного слоя. В результате в зоне максимальной концентрации пузырьков зарождаются микротрещины, вызывающие расслаивание и, возможно, блистеринг отслоившегося материала. В зависимости от условий облучения и вида материала характер разрушения поверхностного слоя различен и либо наблюдаются блистеры, либо происходит отшелушивание материала без видимого деформирования поверхностного слоя, т.е. флекинг.

В диапазоне температур, характерных для блистеринга, облучение поверхности материала после достижения критической дозы приводит к росту плотности блистеров, а затем к отрыву крышек блистеров от матрицы. На участках поверхности, где произошел отрыв крышек, возникает новое поколение блистеров. Число поколений блистеров ограничено и увеличивается с ростом энергии бомбардирующих ионов. Так, например, при энергии ионов  $E = 100$  кэВ возникает до шести поколений блистеров. После образования последнего поколения дальнейшее ионное облучение приводит к созданию губчатой структуры.

До сих пор остаются недостаточно ясными механизмы вспучивания поверхности и отрыва пленки от подложки, образующей затем крышку блистера. Известны два фактора, определяющих отрыв участка пленки и возникновение купола блистера: давление газа, выделяющегося в возникшую полость, и поперечные напряжения, обусловленные давлением слоя внедренного газа. Неясной остается природа «толчка», определяющего момент отрыва будущей крышки блистера от подложки.

В настоящее время имеются три модели для описания последней стадии в формировании блистеров. Одна из них базируется на представлениях о коалесценции газовых пузырьков и возникновении избыточного газового давления в полости, образующейся по различным механизмам; вторая — на возникновении больших поперечных напряжений в имплантированном слое; третья — на сильной зависимости коэффициентов диффузии атомов газа или их комплексов с вакансиями от концентрации таких атомов и возможности спонтанного истечения их из решетки в пузырьки при достижении критической концентрации. Это приводит к ускоренному росту пузырьков и образованию блистеров.

## *Основные закономерности радиационного блистеринга*

Наиболее полно изучены энергетическая, дозовая и температурная зависимости блистеринга при облучении ионами  $\text{He}^+$  и изотопами водорода ( $\text{H}^+$ ,  $\text{D}^+$ ). Основной вклад в радиационную эрозию вносит гелиевый блистеринг (или флекинг), для которого при больших флюенсах наблюдается интенсивное шелушение поверхности. При облучении ионами изотопов водорода блистеры также образуются, однако при температурах облучения, превышающих комнатную, они практически не разрушаются, а следовательно, эрозия отсутствует.

Энергия внедряемых ионов определяет глубину их проникновения, количество радиационных дефектов, создаваемых в структуре материала, и влияет на параметры блистерообразования, характер и степень разрушения поверхности. Основные закономерности изменения параметров блистеринга в зависимости от энергии ионов практически одинаковы для всех исследованных в настоящее время материалов. При малых дозах облучения увеличение энергии ионов сверх 100 кэВ уменьшает эрозию стали, так как увеличивается глубина проникновения ионов и шелушение не успевает произойти. При высоких дозах облучения эрозия с увеличением энергии ионов возрастает за счет увеличения толщины и диаметра крышек блистеров, увеличения количества отшелушенных слоев и их суммарной площади. Например, при возрастании энергии ионов гелия от 20 до 95 кэВ эрозия образцов из стали увеличивается в 30 раз, а ванадия — в 15 раз.

Существует пороговая энергия, ниже которой блистеры не образуются и эрозия идет в основном за счет распыления поверхности. Блистеры начинают образовываться при энергиях ионов  $\text{He}^+$  порядка 1 кэВ и выше.

Зависимость радиационного блистеринга от дозы заключается в том, что флюенс ионов является одним из основных факторов, определяющих величину и характер эрозии поверхности. Процессы блистеринга и флекинга происходят при дозах облучения, превышающих критическое значение  $D_{\text{кр}}$ , зависящее от температуры облучения, вида и энергии ионов, угла падения ионов, растворимости и диффузионной подвижности внедренного газа в материале мишени, структуры и прочностных свойств материала, кристаллографической ориентации поверхности и т.д.

Критическая доза блистерообразования примерно соответствует флюенсу насыщения захвата внедряемых ионов, причем начало образования блистеров сопровождается интенсивным газовыделением. Она возрастает при увеличении энергии ионов, выходит на насыщение при больших энергиях и практически не зависит от нее в интервале энергий 200...2000 кэВ. При этом  $D_{кр}$  уменьшается с ростом температуры мишени и в определенной степени зависит от предварительной обработки материалов и их состава. Существенно влияет на  $D_{кр}$  кристаллографическая ориентация материалов, так как для разных кристаллографических ориентаций изменяются условия каналирования.

Разрушение блистеров происходит по достижении определенного флюенса — критической дозы, которая также является функцией температуры облучения, энергии ионов и факторов, связанных с природой материалов и подготовкой поверхности мишени. Затем происходит разрушение блистеров, причем эрозия материала сначала увеличивается, достигает максимума при определенной дозе, а затем уменьшается и совсем прекращается при достижении некоторой критической дозы обрыва блистеринга. При больших флюенсах эрозия определяется в основном распылением поверхностного слоя. При этом на облучаемой поверхности формируется равновесная структура (как правило, губчатая), характер которой не изменяется с увеличением дозы облучения до максимального значения. В настоящее время обрыв блистеринга экспериментально обнаружен при энергии ионов гелия до 40 кэВ.

Одним из важнейших факторов, определяющих развитие радиационного блистеринга, является температура. Температурная зависимость коэффициента эрозии имеет универсальный экстремальный характер (рис. 3.31).

Температура максимума эрозии возрастает с увеличением температуры плавления материалов. Анализ полученных результатов температурной зависимости эрозии металлов и сплавов по шкале гомологических температур показывает, что в целом характер разрушения поверхности с ростом температуры изменяется в такой последовательности: блистеринг —  $T_{обл} = (0,10...0,25) T_{пл}$ ; шелушение —  $T_{обл} = (0,1...0,4) T_{пл}$ ; высокотемпературный блистеринг —  $T_{обл} = (0,4...0,8) T_{пл}$ ; пористая структура —  $T_{обл} > (0,45...0,80) T_{пл}$ .

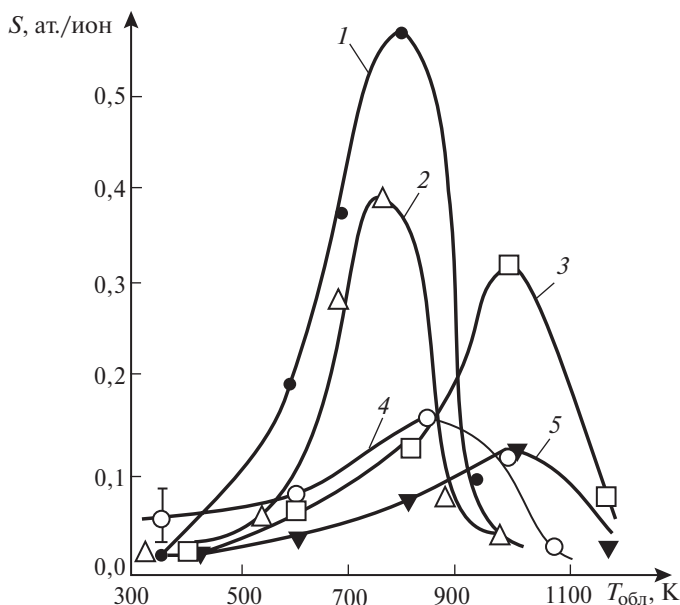


Рис. 3.31. Температурная зависимость коэффициентов эрозии различных сплавов, облученных ионами  $\text{He}^+$  с энергией 20 кэВ до флюенса  $10^{18}$  ион/см<sup>2</sup>: 1 – ванадий электронно-лучевой плавки; 2 – V – 2,5Zr–0,4C–0,06Y; 3 – Nb – 4,1Mo–0,8Zr–0,02C; 4 – Mo – 0,05Al–0,003B–0,008C; 5 – Nb – 1,0Zr–0,1C; содержание элементов в сплаве указано в массовых процентах

### 3.7. Распыление поверхности материалов при ионном облучении

#### Общие сведения

Бомбардировка поверхности твердого тела ионами с достаточно высокой энергией сопровождается эмиссией частиц вещества мишени в вакуум, т.е. *распылением мишени*.

Эффективность распыления принято характеризовать *коэффициентом распыления*  $S$ . Естественно, что  $S$  как величина среднестатистическая может выражаться нецелым числом. Следует сразу же оговорить, что при распылении частицы могут покидать поверхность в разных зарядовых состояниях – нейтральном, положительно и отрицательно заряженном. В двух последних случаях имеем дело соответственно с положительной и отрицательной ионно-ионной эмиссией.

Исследование закономерностей процесса распыления имеет важное значение с точки зрения определения эрозионной стойкости материалов, в частности выбираемых для использования в качестве первой стенки термоядерных установок, а также использования распыления для поверхностного ионного травления, анализа поверхности и получения тонких пленок.

*Самораспылением* называется распыление мишени при бомбардировке ионами тех же атомов.

Коэффициент распыления зависит от условий облучения (энергии, массы и флюенса бомбардирующих частиц, угла их падения относительно нормали к поверхности мишени), а также типа распыляемого материала, его структурно-фазового состояния и в особенности структуры и состава поверхности. Экспериментально определяемые значения коэффициентов распыления обычно лежат в интервале от  $10^{-3}$  до  $10^{-1}$  ат./част. Однако для тяжелых ионов значение коэффициента распыления может достигать нескольких атомов на одну падающую частицу.

Распыление разделяется на физическое и химическое.

### ***Физическое распыление***

*Физическое распыление* является результатом передачи атомам мишени кинетической энергии, вносимой первичным бомбардирующим ионом. Оно происходит при энергиях падающих частиц, изменяемых в широком интервале — от десятков электронвольт до мегаэлектронвольт.

Однако существует минимальная пороговая энергия, ниже которой распыления не наблюдается. Для того чтобы атом покинул поверхность твердого тела, она должна превышать энергию связи этого атома с телом. Естественным результатом такого подхода является введение понятия *пороговой энергии распыления*  $E_s$ . Если энергия налетающей частицы  $E_i < E_s$ , то атому мишени не может быть сообщена энергия, большая энергии связи, и распыления не происходит. При  $E_i \geq E_s$  с ростом энергии  $E_i$  увеличивается количество атомов в поверхностных слоях мишени, которым в результате торможения первичного иона будет передана энергия, большая энергии связи. Обычно энергия порога распыления  $E_s$  для разных комбинаций ион — твердое тело составляет 10...30 эВ. Следует иметь в виду, что понятие пороговой энергии распыления удобно вводить для идеализированной модели твердого тела. Для реальных твердотельных

мишеней из-за наличия ступенек атомного размера на поверхности, адсорбированных или примесных атомов, различных дефектов структуры, например дислокаций, характерно не одно дискретное значение энергии связи, а некоторое распределение по энергиям.

Передача атомам мишени энергии и импульса, необходимых для того, чтобы они покинули твердое тело и вышли в вакуум, может осуществляться разными путями. На рис. 3.32, *а* показан механизм распыления рикошетом, когда атом отдачи, получивший энергию от первичного иона, столкнувшись с другим атомом мишени, сразу же рикошетом вылетает в вакуум. Схема, приведенная на рис. 3.27, *б*, соответствует распылению атомов отдачи, получивших энергию непосредственно от первичного иона. До выхода в вакуум атом претерпевает серию последовательных столкновений, при каждом из которых уменьшается его энергия и изменяется направление движения. Наконец, на рис. 3.32, *в* показан каскад столкновений, рожденный первичным ионом. В результате передачи энергии от первоначально смещенных атомов другим атомам мишени и далее происходит ее распыление.

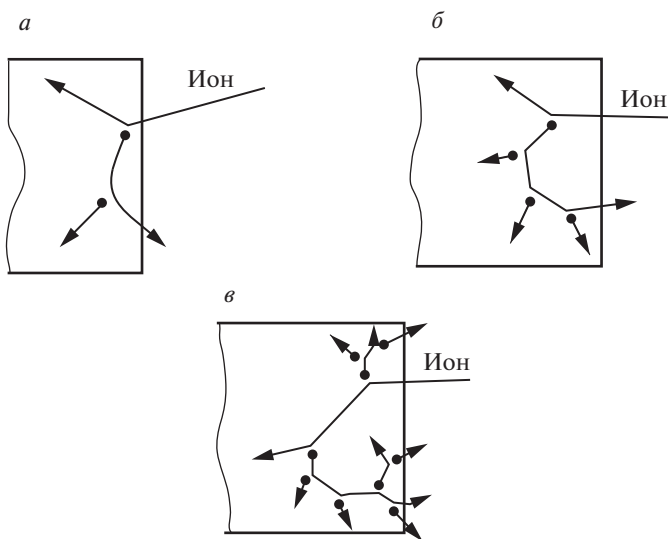


Рис. 3.32. Схемы столкновений, приводящих к распылению:

*а* — вылет рикошетом; *б* — выход первично смещенных атомов отдачи; *в* — выбивание атомов в каскаде столкновений

Рисунки 3.32, *а*, *б* соответствуют быстрым процессам, для которых характерны времена  $t \approx 10^{-15} \dots 10^{-14}$  с, а рис. 3.32, *в* — медленным процессам с характерными временами  $t \approx 10^{-14} \dots 10^{-12}$  с. Кроме этих процессов вклад в распыление могут вносить также фокусированные столкновения.

Очевидно, что эмиссия атомов при бомбардировке ионами может быть обусловлена также их термическим испарением из области теплового пика. Характерное время этого процесса лежит в интервале  $10^{-12} \dots 10^{-10}$  с.

В предположении, что именно представленные на рис. 3.32 процессы определяют распыление твердых тел ионами, П. Зигмунд разработал теорию катодного распыления аморфных и поликристаллических материалов, наилучшим образом описывающую экспериментально наблюдаемые закономерности этого явления. Согласно этой теории коэффициент распыления  $S$  прямо пропорционален сечению упругого торможения  $S_n$  при  $E = E_i$  и обратно пропорционален энергии связи атомов  $E_b$  на поверхности. В области энергий ионов  $E_i \geq 1$  кэВ эта зависимость с достаточной точностью описывается формулой

$$S(0) = 4,2 \cdot 10^{14} \alpha_s S_n / E_b.$$

Здесь  $4,2 \cdot 10^{14}$  — множитель, имеющий размерность  $\text{см}^{-2}$ ;  $\alpha_s$  — безразмерный коэффициент, характеризующий эффективность передачи энергии, который зависит от отношения масс взаимодействующих частиц и слабо изменяется с энергией первичных ионов;  $S_n$  измеряется в  $\text{эВ} \cdot \text{см}^2$ ; энергия  $E_b$  выражена в электронвольтах.

Коэффициент  $\alpha_s$  растет с увеличением  $M_2/M_1$  (отношение массы иона к массе атома мишени), что является следствием увеличения вероятности рассеяния первичного иона на большие углы, в результате чего часть каскадов столкновений оказывается сконцентрирована вблизи поверхности. При  $M_2/M_1 < 1$  ион движется практически по прямой линии и большинство столкновений в каскадах происходит уже далеко от поверхности, откуда выход атомов в вакуум затруднен.

Энергия  $E_b$  связи атомов на поверхности для различных материалов лежит обычно в интервале 2...8 эВ.

Коэффициент распыления имеет экстремальную зависимость от энергии ионов.

Толщина слоя, из которого в вакуум выходит основное количество распыленных атомов, обычно составляет 1...2 нм, что,

как правило, значительно меньше глубины проникновения ионов. Из-за этого коэффициент распыления зависит от угла падения ионов  $\vartheta$ , отсчитываемого от нормали к поверхности. Отметим, что при наклонном падении ионов на мишень в дополнение к столкновениям, показанным на рис. 3.32, становятся возможными такие соударения, когда ион сразу же выбивает атом в вакуум.

Экспериментальные угловые зависимости коэффициента распыления поликристаллических образцов приведены на рис. 3.33. При углах падения, больших некоторого критического угла  $\vartheta_{\max}$ , происходит уменьшение коэффициента распыления, что обусловлено увеличением с ростом  $\vartheta$  количества отраженных от поверхности мишени первичных ионов и их «выходом из игры» до развития полного каскада столкновений.

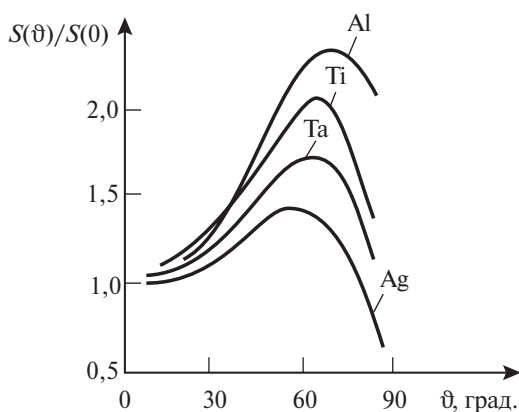


Рис. 3.33. Угловые зависимости коэффициента распыления поликристаллических образцов ионами  $\text{Ar}^+$  с  $E_i = 1 \text{ кэВ}$

Коэффициент распыления нейтронами исследован очень плохо, поскольку возможные в экспериментах дозы нейтронного облучения еще довольно низкие. Немногочисленные измеренные значения коэффициента распыления составляют в среднем  $10^{-5}$  ат./нейтр. (в прямом направлении), что удовлетворительно согласуется с расчетами по каскадной теории. Несколько лучше исследована эмиссия с поверхности радиоактивных первично выбитых атомов, поскольку такие атомы гораздо легче регистрировать.

Распыление нейтронами представляет некоторый интерес в исследованиях по управляемому термоядерному синтезу в связи с тем, что распыленные атомы стенки могут попадать в качестве примеси в плазму. Эмиссия радиоактивных первично выбитых атомов на установке с большими потоками высокоэнергетических нейтронов может приводить к радиоактивному заражению жидкости, применяемой для охлаждения.

### *Химическое распыление*

*Химическое распыление* обусловлено химическими реакциями, происходящими между бомбардирующими частицами и атомами твердого тела, в результате которых на поверхности мишени образуется нестабильное (легколетучее) соединение. В противоположность физическому распылению химическое распыление может иметь место вплоть до очень низких энергий бомбардирующих частиц.

Химическое распыление приводит к аномально высоким значениям коэффициента распыления в определенном интервале температур. Это связано с образованием при некоторых температурах легколетучих соединений. Химическое распыление характеризуется экстремальной зависимостью от энергии ионов с максимумом при энергиях, меньших 1 кэВ.

Коэффициент химического распыления материалов, склонных к образованию легколетучих соединений с бомбардирующими частицами, в определенном интервале температур может более чем на порядок превышать значения коэффициента физического распыления. Данный эффект необходимо учитывать при выборе материалов для ограничительных диафрагм, защитных экранов или покрытий для термоядерных реакторов и условий их эксплуатации.

## **3.8. Трекообразование**

### *Механизмы трекообразования*

Для быстрых ионов с кинетической энергией  $E \geq 1 \text{ МэВ} \cdot \text{а.е.м.}^{-1}$  интенсивность выделения энергии в электронную подсистему  $(dE/dx)_e$  в  $10^3 - 10^4$  раз превышает выделение энергии в ядерную подсистему твердого тела  $(dE/dx)_n$ . Например,  $(dE/dx)_e$  составляет  $20 \dots 30 \text{ кэВ} \cdot \text{нм}^{-1}$  для тяжелых ионов массой  $100 \text{ а.е.м.}$  и  $E \approx 1 \text{ МэВ/а.е.м.}$

Высокая скорость выделения энергии в электронную подсистему усиливает роль электронных возбуждений в генерации дефектов структуры, вызывает интенсивное неупругое распыление материалов и инициирует ряд специфических эффектов, таких как формирование треков, локальное плавление, аморфизация, создание необычных фаз (фазы высокого давления, фуллерены, нанотрубки). Наиболее важным и интересным результатом прохождения высокоэнергетических ионов в твердых телах является формирование специфических пространственно распространенных макродефектов — *треков*. В англоязычной литературе такие дефекты называют *latent tracks*.

Существует несколько механизмов образования треков.

1. Механизм так называемого *кулоновского взрыва*, который эффективен, когда скорость ионов становится близкой к скорости электронов  $K$ -оболочки атомов мишени. Он может быть ответствен за образование треков в легких мишенях (LiF, пластмасса, алмаз, кубический нитрид бора и др.). Движущийся ион создает в мишени цилиндрическую высокоионизованную среду, которая нестабильна из-за кулоновского расталкивания электростатических зарядов одного знака (ионные остовы).

2. Высокая плотность ионизации приводит к значительному снижению пороговой энергии смещения  $E_d$  атомов из узлов решетки. Низкие значения  $E_d$  увеличивают вероятность смещения тех матричных атомов, которые получают малое количество упругой энергии от движущегося иона.

3. В рамках механизма *термического пика* считается, что энергия от возбуждаемой электронной подсистемы передается в решетку через электрон-фононные взаимодействия.

Процессы трекообразования при облучении материалов высокоэнергетическими ионами способствуют образованию дискретных прерывистых треков, геометрия которых изменяется от квазинепрерывной до бусинкообразной по мере прохождения иона в глубь мишени. Для интерпретации этих данных привлекаются различные механизмы.

При первом подходе предполагается, что треки образуются преимущественно за счет ионизации внутренних оболочек атомов тормозящей среды, которая сопровождается интенсивным образованием низкоэнергетических  $\delta$ -электронов. Считается, что дискретность треков является следствием дискретности процесса ионизации внутренних электронных обо-

лочек. При этом отмечается, что только малая часть энергии иона может быть высвобождена в результате ионизации внутренних оболочек атомов тормозящей среды.

Предполагают, что главным «топливом» для трекообразования является непрерывное выделение энергии ионов в электронную подсистему твердого тела. Кроме того, на тех участках траектории иона в мишени, где ионизация внутренних электронных оболочек отсутствует, треки вообще не образуются.

Второй подход, относящийся к структуре треков, связывается с дискретностью формирования потока электронов вдоль пути иона, обусловленной действием закона сохранения импульса.

Третий подход связан с предположением о том, что среднее число наблюдаемых в треке дефектов напрямую связано с флуктуацией в плотности ионизации, а не с ее средним значением. Однако, как и в других указанных выше подходах, здесь не рассматриваются первичные процессы, связанные со статистическими флуктуациями зарядового состояния движущихся в твердом теле ионов за счет процессов «обдирки» и захвата электронов. Именно флуктуации зарядового состояния иона могут приводить к значительному изменению выделяемых в электронную подсистему потерь энергии на определенных участках траектории иона. Роль этих процессов становится заметной, когда энергия движущегося иона близка к энергии, которой соответствуют пороговые значения средних потерь энергии  $(dE/dx)_{e,th}$  для образования трека.

Таким образом, наблюдаемые в экспериментах прерывистые треки могут быть обусловлены статистическими флуктуациями в процессе перезарядки с потерей ионом одного или нескольких электронов, когда величина  $(dE/dx)_e$  становится на определенном отрезке пути иона больше, чем  $(dE/dx)_{e,th}$  для трекообразования. Средний путь пробега иона до изменения зарядового состояния будет определять длину дефектной области в прерывистом треке и расстояние между такими дефектами, а диаметр или геометрия дефекта определяется числом оторванных в одном акте электронов.

## *Металлы*

Установлено, что электронные возбуждения высокой плотности вызывают образование дефектов в некоторых кристаллических металлах. Например, исследование титана, облучен-

ного ионами свинца с энергией  $E = 1...5$  ГэВ, с помощью электронного микроскопа просвечивающего типа выявило формирование плотных агломераций кластеров дефектов, ориентированных вдоль направления пучка ионов. Площадь сечения дефектообразования ( $\sigma$ ), полученная экспериментально по измерениям электросопротивления при криогенных температурах, была значительно больше теоретической оценки  $\sigma_{\text{calc}}$ , полученной при учете только упругих смещений атомов матрицы. Эффективность дефектообразования  $\xi$  определяется как  $\xi = \sigma/\sigma_{\text{calc}}$ . Так, для титана, облученного ионами свинца с энергией  $E = 4,484$  ГэВ,  $\xi$  достигает 21,5, а для сплава  $\text{Fe}_{60}\text{Co}_{40}$ , облученного ионами серебра с энергией  $E = 445$  МэВ,  $\xi = 22,8$ .

Подтверждением особой пространственной локализации нарушений является аморфизация металлических сплавов в индивидуальной трековой области около траектории иона. Исследования облученных сплавов  $\text{NiZr}_2$  позволили непосредственно измерить средний диаметр трека ( $\approx 4$  нм). Первоначальная вытянутая каплеобразная форма треков с ростом  $(dE/dx)_e$  постепенно переходит в непрерывную цилиндрическую.

В металлах электронные возбуждения вызывают образование дефектов только при очень высокой плотности энергии, выделяемой в электронную подсистему. Например, прерывистые треки формируются в  $\text{NiZr}_2$ , когда скорость выделения энергии на электронные возбуждения превышает  $40 \text{ кэВ} \cdot \text{нм}^{-1}$ , в то время как типичные пороговые значения  $(dE/dx)_e$  для образования треков в изоляторах приблизительно на порядок меньше. Для того чтобы в полной мере рассмотреть проблему формирования дефектов в металлах за счет электронных возбуждений, необходимо сначала выделить основные процессы:

- 1) релаксацию сильного электронного возбуждения с передачей части энергии в атомную подсистему;
- 2) последующую термализацию возмущенных атомов с передачей избытка энергии в окружающую матрицу.

Релаксация определяется типом материала (металл, полупроводник или диэлектрик), концентрацией электронов в зоне проводимости (на уровне Ферми) и их подвижностью. Транспорт энергии из электронной подсистемы в атомную также зависит от типа материала, его структурных особенностей (массив, тонкая пленка, размер зерен в поликристаллах, концентрация и тип примесей и т.д.).

Процесс термализации и структурные особенности области после «остывания», как и при низкоэнергетической имплантации, зависят от вида материала, типа кристаллической решетки, соотношения объемов материала в жидкой и твердой фазах, наличия аллотропных форм.

Впервые треки в металлических массивных материалах наблюдались в интерметаллических сплавах (аморфные области). К первому классу относятся сложные по составу материалы, которые легко аморфизуются за счет упругих столкновений при их облучении низкоэнергетическими ионами или электронами и характеризуются низкой локальной кристаллографической симметрией. Среди них такие, как  $\text{NiZr}_2$ ,  $\text{NiTi}$  и  $\text{Ni}_3\text{B}$ , имеют особую практическую значимость. Второй класс включает материалы, характеризующиеся высокой локальной симметрией ( $\text{LI}_2$ -кристаллографические структуры). В него входят сплавы  $\text{Zr}_3\text{Al}$ , который достаточно трудно аморфизовать за счет упругих столкновений, и  $\text{Cu}_3\text{Al}$ , который никогда не аморфизуется, но может претерпевать химическое разупорядочение при низкотемпературном облучении в режиме упругих столкновений.

В сплаве  $\text{NiTi}$  чувствительность кубической и моноклинной фаз к электронным возбуждениям различна. Выше порогового значения  $(dE/dx)_e \approx 48 \text{ кэВ} \cdot \text{нм}^{-1}$  треки в этом сплаве наблюдаются только в тех областях образца, которые были в моноклинной фазе в процессе облучения. На рис. 3.34 представлены электронные микрофотографии образцов, в которых при облучении присутствовали обе фазы. Треки видны в моноклинной прослойке и отсутствуют в окружающей кубической матрице.

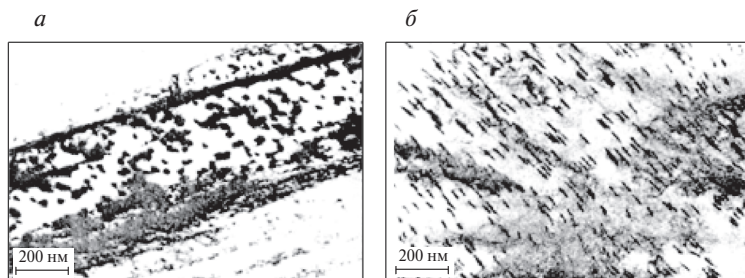


Рис. 3.34. Светлопольные электронные микрофотографии: *а* — образца  $\text{NiTi}$ , облученного при температуре 300 К ионами свинца с  $E = 0,84 \text{ ГэВ}$ ,  $(dE/dx)_e \approx 52 \text{ кэВ} \cdot \text{нм}^{-1}$  и дозой  $10^{11} \text{ ион/см}^2$ ; *б* — моноклинного образца  $\text{NiTi}$ , облученного при температуре 80 К ионами урана с  $E = 0,76 \text{ ГэВ}$ ,  $(dE/dx)_e \approx 57 \text{ кэВ} \cdot \text{нм}^{-1}$  и дозой  $5 \cdot 10^{10} \text{ ион/см}^2$  (снимок получен при температуре 300 К)

Треки, созданные в низкотемпературной фазе, четко выявляются, имеют диаметр 12 нм и представляют собой гомогенно нарушенные цилиндрические области. Согласно данным электронной дифракции они аморфны и остаются стабильными, когда образец переходит обратно в кубическую структурную модификацию при температуре сплава 300 К.

### *Полупроводники*

Условия формирования треков и их внутренняя структура (фазовый состав) в металлах и полупроводниках сильно различаются. Наиболее обстоятельные исследования трекообразования в полупроводниках типа  $A_3B_5$  были выполнены при облучении монокристаллов InP высокоэнергетическими ионами  $He^+$  и  $Kr^+$ . Детальные исследования методом просвечивающей электронной микроскопии поперечного сечения кристаллического InP, облученного ионами  $He^+$  с энергией  $E = 250$  МэВ и флюенсом  $7 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$  при комнатной температуре, выявили ряд характерных особенностей в распределении нарушений по глубине кристалла (рис. 3.35).

В результате облучения ксеноном в InP создаются две базовые зоны нарушений. Первая зона формируется на глубине между 19 и 21 мкм и представляет собой слой сильно нарушенного InP, состоящий из аморфных и кристаллических областей и по положению совпадающий с максимумом упруго выделенной энергии. Вторая приповерхностная зона до глубины около 10 мкм содержит скрытые треки диаметром от 7 до 15 нм. Треки представляют собой непрерывные прямые цилиндры длиной в несколько микрон или вытянутые дефекты, похожие на цепочку жемчужин, расположенные вдоль траектории ионов на глубине от 35 до 100 нм и от 7 до 10 мкм.

Полученные данные описываются моделью трекообразования в InP, базирующейся на приближении термопиков и предполагающей плавление материала вокруг траектории иона до глубин, на которых электронные потери энергии превышают критическое значение  $(dE/dx)_{e,th}$ . Критические потери энергии зависят от материала мишени (а также от степени совершенства кристаллической структуры) и отражают эффективность механизма, который преобразует энергию электронных возбуждений в движение атомов. Критическое значение электронных потерь энергии для трекообразования в кристаллическом InP равно  $13 \text{ кэВ} \cdot \text{нм}^{-1}$ .

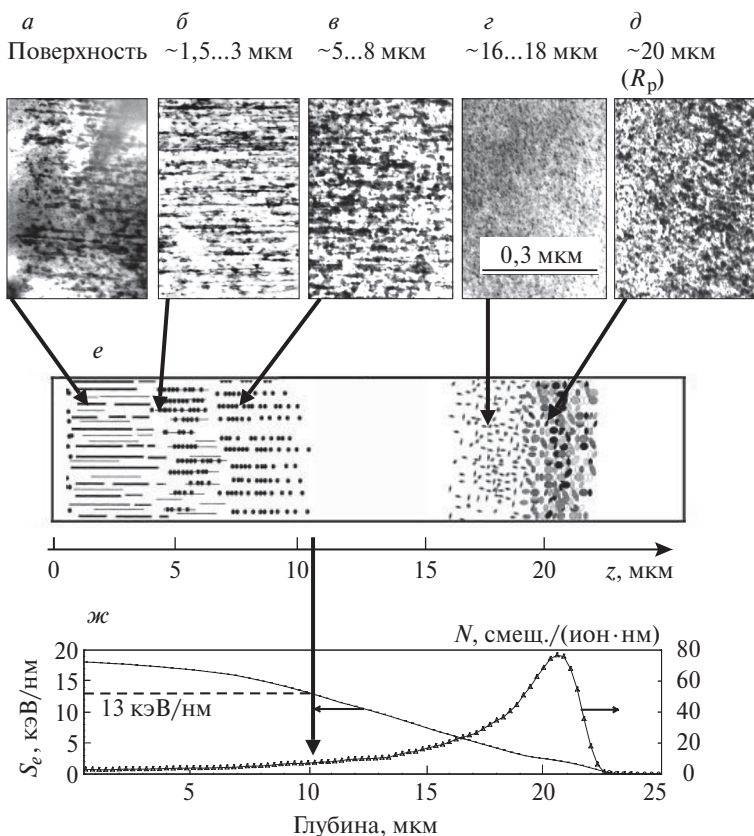


Рис. 3.35. Светлопольные электронные фотографии структуры InP, полученные в поперечном сечении одного образца на различной глубине от поверхности (*a–д*). Кристалл InP был имплантирован ионами  $\text{Xe}^+$  с энергией 250 МэВ до дозы  $7 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$  при температуре 300 К. Соответствующее схематическое изображение распределения дефектов по глубине (*е*) воссоздано по данным электронно-микроскопических исследований. Профили распределения по глубине (*ж*):  $S_e$  – энергии, выделенной в электронную подсистему;  $N$  – количества атомов, смещенных ионом  $\text{Xe}^+$  на 1 нм длины пути за счет ядерных потерь энергии

Особенности процесса затвердевания расплава, создаваемого вокруг траектории иона, предлагается рассматривать в качестве критерия трекообразования. Расплавление трека сопровождается быстрым охлаждением и *ресолидификацией* окружающей матрицы. В исходном образце расплавленные ядра

окружены совершенным кристаллом, и в течение процесса закали термопика должна происходить эпитаксиальная рекристаллизация. Однако рекристаллизованная область не совсем совершенна, в ней остается определенное количество точечных дефектов и комплексов дефектов. Когда на кристалл падают последующие ионы, эпитаксиальная рекристаллизация трековых областей может не достигаться, так как окружающий кристалл уже не совершенен. При дальнейшем облучении скорость рекристаллизации может стать значительно меньшей, чем скорость затвердевания, что приводит к «замораживанию» достаточно непрерывного аморфного трека.

### 3.9. Дальнодействие

#### *Общие сведения*

*Эффект дальнодействия* при ионной имплантации кристаллических твердых тел заключается в изменении структурно-фазового состояния в приповерхностном слое, толщина которого существенно больше толщины поверхностного легируемого при имплантации слоя мишени.

Необходимо отметить, что подобное радиационно-стимулированное явление формирования дефектных структур и их пространственная локализация (эффект дальнодействия) в различных материалах должны наблюдаться и при энергетическом воздействии других видов, таких как мощные ионные пучки, мощное импульсное СВЧ-излучение, рентгеновское и лазерное излучение, потоки плазмы различной интенсивности, электронные пучки и т.п. Воздействие излучения любого вида фактически является своеобразным «нагрузением» подобно механическому нагружению. При этом в «нагружаемый» кристалл происходит «закачка» (диссипация) энергии. Как правило, инициируются и высокие напряжения, природа которых определяется видом и характером энергетического воздействия.

#### *Эффект дальнодействия в металлах*

Отметим основные особенности эффекта дальнодействия в металлических материалах. Скалярная плотность дислокаций на один-два порядка превышает плотность дислокаций в ис-

ходном состоянии мишени. Скалярная плотность дислокаций в приповерхностном слое с удалением от ионно-имплантированной поверхности мишени меняется немонотонным образом. Как правило, зависимость скалярной плотности дислокаций в подслое от расстояния до ионно-имплантированной поверхности имеет максимум, локализованный на расстоянии 2...15 мкм от облученной поверхности. Величина эффекта (толщина подслоя с измененной дислокационной структурой и максимальная плотность дислокаций в указанном слое) зависит от дефектной исходной структуры мишени и параметров ионной имплантации процессов, происходящих в поверхностном ионно-имплантируемом слое.

Максимальный эффект наблюдается при ионной имплантации чистых, хорошо отоженных металлов, которые имели низкую плотность дислокаций в исходном состоянии. Повышение плотности дислокаций в мишени до ионной имплантации снижает эффект. В сильно деформированных металлах, где сформирована исходная дислокационная структура высокой плотности, эффект дальнего действия практически не проявляется.

Ионная имплантация приводит к существенному изменению дислокационной структуры в подслое мишени не только в чистых металлах, имеющих низкий предел текучести и высокую пластичность, но и в упрочненных материалах. Величина эффекта зависит от исходного структурно-фазового состояния мишени. Важнейшим условием проявления эффекта дальнего действия является невысокая плотность дислокаций в исходном состоянии мишени до ионной имплантации. Наличие барьеров для движения дислокаций снижает величину эффекта.

Исследования показывают, что формирующаяся в подслое ионно-имплантированной металлической мишени дислокационная структура — это результат деформационных процессов, протекающих в мишени в ходе ионной имплантации и, по-видимому, в последующий за ионной имплантацией промежуток времени. Дислокации могут генерироваться и в приповерхностном слое, а также инжектироваться из поверхностного слоя мишени. Инжекция дислокаций из поверхностного слоя в подслой есть также результат релаксации как *статических напряжений*, связанных с изменением объема поверхностного слоя, так и *динамических напряжений*, инициируемых при внедрении ионов в мишень.

## Механизмы дальнего действия

Во многих работах при объяснении дальнего действия предполагалось глубокое проникновение радиационных дефектов. Однако при типичных параметрах ионного облучения (температура и время) точечные дефекты могут диффундировать всего лишь на глубины не более микрона.

Другой причиной радиационно-ускоренного глубинного переноса внедренных при ионной имплантации атомов могут быть *упругие напряжения*, возникающие в ионно-имплантируемом слое.

Напряжения, создаваемые внедренными атомами, могут увеличивать глубину проникновения примеси почти на порядок, но реально наблюдаемые глубины проникновения примеси могут быть значительно больше. Ряд авторов при объяснении эффектов дальнего действия обращают внимание на генерацию упругих или акустических волн при ионной имплантации. При этом волна может либо трансформироваться в *ударную волну*, либо распространяться как простая *акустическая волна*. При этом ударная волна способна генерировать дефекты, инициировать смещения примесных атомов, освобождать их из ловушек и переводить из положения замещения в междоузельные положения.

Фазовые переходы на больших глубинах теоретически изучены в меньшей степени, чем другие проявления эффекта дальнего действия. Если фазовые переходы происходят в результате изменения химического состава мишени, их дальнее действие обусловлено теми же причинами, что и глубокое проникновение примеси.

Рассмотренные представления касаются природы возникновения движущей силы, приводящей к эффектам дальнего действия при ионном воздействии. Обсуждаются два подхода — генерация напряжений статического либо динамического типа, а также генерация упругих волн.

Между тем, требует своего объяснения эффект дальнего действия, связанный с изменением дислокационной структуры и повышением плотности дислокаций. Предлагается механизм изменения дислокационной структуры за счет перемещения дислокационных петель, возникающих при коалесценции точечных дефектов в ионно-имплантируемом поверхностном слое, в нижележащий слой мишени за счет упругого взаимодействия дислокационных петель и дальнейшей их коалесценции.

Внешнее высокоэнергетическое воздействие на материал может вызвать генерацию в нем *солитонообразных импульсов*. Данные возбуждения могут распространяться в бездефектном материале на значительные расстояния, практически не изменяя своей формы и амплитуды.

Результаты моделирования показали возможность генерации солитонообразных импульсов при высокоэнергетическом воздействии на группу или на отдельный атом свободной поверхности. Такого рода воздействия могут иметь место при облучении материала электронными пучками, радиационной или ионной бомбардировке.

При ионной имплантации металлургическими дозами ( $10^{15} \dots 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ) генерируется огромное число импульсов. Это должно приводить к «закачке» энергии как в поверхностную ионно-легируемую область, так и в дефектные области (границы зерен, области с повышенной концентрацией вакансий и т.д.), расположенные в глубине материала. Кроме того, они могут способствовать также и перемещению уже имеющихся дислокаций от поверхности в глубь материала.

Изменение плотности дислокаций возможно и за счет перемещения дислокационных петель, возникающих при коалесценции точечных дефектов. Дислокационные петли перемещаются в нижележащий слой мишени вследствие их упругого взаимодействия и дальнейшей коалесценции. Перемещаясь на значительные расстояния по сравнению с толщиной ионно-легированного слоя, дислокационные петли могут формировать в подслое материала дислокационную структуру высокой плотности, что и наблюдается в эксперименте (рис. 3.36).

Если пренебречь дефектной исходной структурой, то характерной глубиной, на которой останавливаются петли и образуется развитая дислокационная структура, является длина пробега сталкивающихся дислокаций, которая может достигать 100 мкм. Эта величина соответствует экспериментально наблюдаемой толщине подслоя, в котором при ионной имплантации формируется развитая дислокационная структура.

Известна гипотеза, базирующаяся на идее возбуждения в кристаллических решетках нелинейных колебаний, которые приводят к действию процессов *самоорганизации в ионной подсистеме*. Так, в случае низкоэнергетического облучения ( $\leq 1 \text{ кэВ}$ ) переданная атомам мишени энергия оказывается меньше пороговой энергии, которая необходима для образования точечных дефектов, но достаточна для возбуждения не-

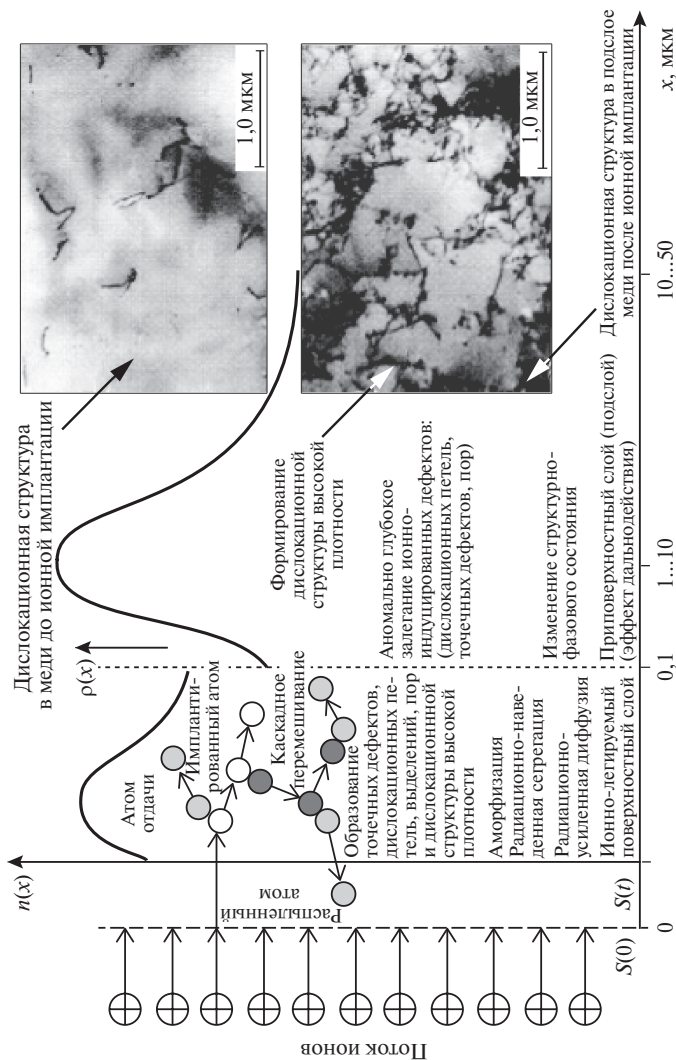


Рис. 3.36. Схема физических процессов и эффектов дальнего действия в металлической мишени при ионной имплантации ( $n(x)$  — концентрация ионно-имплантируемых атомов;  $\rho(x)$  — скалярная плотность дислокаций;  $S(0)$ ,  $S(t)$  — положения поверхности мишени соответственно до и после ионной имплантации)

линейных колебаний в ионной подсистеме решетки. К тому моменту, когда нелинейные колебания прекращаются, атомы стабилизируются в новых позициях. Время стабилизации на несколько порядков выше, чем время обычных атомных релаксаций. В результате формируются новые долгоживущие метастабильные структурные состояния кристаллической решетки. Имеется целый спектр новых коллективных состояний атомов в решетках после затухания нелинейных колебаний. Однако конкретный вид этих новых гетерогенных структур зависит от потенциала, характеризующего связи между атомными осцилляторами, и величины внешнего возбуждения.

### 3.10. Напряжения и деформация

#### *Статические и динамические напряжения*

При радиационном воздействии в мишени формируются наведенные (индуцированные облучением) механические напряжения, являющиеся одним из основных факторов эволюции дефектной и дислокационной структур. При этом следует различать напряжения, инициируемые в мишени непосредственно в момент облучения (радиационно-индуцированные напряжения), и напряжения, инициируемые в пострadiационный период (остаточные напряжения). В соответствии с механизмами образования механические напряжения, инициируемые в процессе ионной имплантации, могут быть статическими и динамическими. Именно эти напряжения и определяют динамику генерации и движения дислокаций при ионной имплантации и ряд других процессов. *Статические напряжения* обусловлены изменением объема тонкого поверхностного слоя мишени, легируемого при ионной имплантации. *Динамические напряжения* связаны с генерацией и суперпозицией упругих волн от каскадов смещений, возникающих при внедрении ионов в мишень.

При рассмотрении поздних стадий развития каскада, которые и являются определяющими для формирования динамических напряжений, когда возмущенная область охватывает тысячи и десятки тысяч атомов, удобным оказывается способ описания, основанный на законах сохранения массы, импульса и энергии. При этом атомистическое строение вещества не принимается во внимание и его рассматривают как непрерывную среду (так называемый *континуальный подход*). По-

мимо каскадов наблюдаются и другие картины коллективного поглощения энергии, которые еще мало изучены (например, явление *вскипания* области мишени вокруг траектории движения внедряющегося иона).

Переход к такому описанию возможен, если время между столкновениями частиц много больше среднего времени, т.е.  $10^{-14}$  с, а пространственные масштабы изменения средних величин должны значительно превышать длину свободного пробега. Для энергий порядка энергии связи атомов в кристалле длина свободного пробега оказывается меньше параметра решетки. Так, ионная имплантация происходит при энергии ионов в десятки килоэлектронвольт, что многократно превосходит энергию связи атомов в мишени, а время деформирования каскада составляет  $10^{-11}$  с.

Начальным условием для континуального рассмотрения является энерговыделение в области пространства, ограниченной пробегом первичной частицы. Оказалось, что при наличии резкой границы между возмущенной и невозмущенной областями и превышении величиной *удельного критического энерговыделения* некоторого критического значения, которое для типичных металлов составляет 0,3 эВ/ат., на границе области формируется расходящаяся *пластическая ударная волна*, которая по мере своего распространения вырождается в *упругий продольный импульс*. Распространение такого нелинейного импульса с длиной волны порядка нескольких межатомных расстояний обычно описывается аналитически с учетом нелинейности и дисперсии в первом порядке теории возмущений.

Упругие импульсы, величина которых сопоставима с пределом текучести (или превышает его), могут оказывать влияние на дефектную структуру материала даже на значительном удалении от поверхностного имплантируемого слоя. Однако и в наиболее благоприятном случае на расстоянии 1 мкм смещение дислокации за счет отдельного импульса не превышает нескольких векторов Бюргерса. Ситуация резко меняется, если учесть совместное действие упругих волн от многих каскадов. Обычно случайная сила, действующая на дислокацию в кристалле вследствие динамических напряжений от каскадов, представляет собой «белый шум».

Понятно, что эффективность динамических напряжений будет значительно выше при высокой плотности ионного тока. Такой режим ионного облучения реализуется при импульсной

ионной обработке. Динамические напряжения будут эффективны для генерации дефектной структуры за пределами ионно-легируемого слоя мишени только при импульсном ионном облучении. При этом плотность ионного тока в импульсе должна быть не меньше  $1 \text{ А/см}^2$ .

Генерация дефектов (например, дислокаций) имеет место в поверхностном легируемом слое под действием суперпозиции статических и динамических напряжений. Кроме того, возможные флуктуации «белого шума» могут приводить к значительным всплескам динамических напряжений. Фактически динамические напряжения являются дополнительным необходимым фактором, определяющим генерацию дефектов при ионной имплантации.

В процессе облучения различных материалов ионными пучками регистрируются сигналы акустической эмиссии в широком диапазоне частот (до  $10^8 \text{ Гц}$ ). Спектр акустических сигналов содержит непрерывный фон и дискретные импульсы. Непрерывный сигнал, связанный с образованием точечных радиационных дефектов, регистрируется начиная с малых ионных доз ( $10^{11} \dots 10^{12} \text{ ион/см}^2$ ). Дискретные сигналы регистрируются при средних и больших ионных дозах ( $10^{15} \dots 10^{18} \text{ ион/см}^2$ ). Анализ источников генерации дискретных акустических сигналов показал, что процесс инициирования акустических сигналов связан со структурно-фазовыми превращениями в облучаемой мишени. Процессы можно разделить на три основные группы: пластическая деформация мишени; фазовые превращения; появление новых образований в виде кластеров, пор и т.п.

### ***Остаточные напряжения***

Напряжения, сохраняющиеся в облученном образце после формирования дефектной структуры, носят название *остаточных напряжений*. Они существенно ниже напряжений, индуцированных в образце в процессе радиационного воздействия. Последнее обусловлено релаксационными процессами, протекающими в мишени как в момент облучения, так и в пострadiационный период. В зависимости от масштабного фактора (от десятков до сотен и более нанометров), связанного локальностью анализа (просвечивающая электронная микроскопия и рентгеновская дифрактометрия), их можно разбить на *локальные* и *слоевые остаточные напряжения*.

Просвечивающая электронная микроскопия позволяет не только существенно уменьшить локальность измерения напряжений, но и варьировать ее в широких пределах (от 100 до 10 нм). Напряжение может быть измерено несколькими способами:

- 1) по радиусу изгиба дислокации в плоскости скольжения;
- 2) по расстоянию между дислокациями и параметрам дислокационных скоплений;
- 3) по расстоянию между активными плоскостями скольжения;
- 4) по параметрам изгибных экстинкционных контуров.

Всю совокупность источников напряжений можно классифицировать на три группы. К первой группе относятся источники *пластического происхождения* (дислокации, группы дислокаций, скопления дислокаций, дислокационные заряды, оборванные границы и т.п.). Вторая группа — источники, имеющие *упругое происхождение* (стыки границ зерен, дисперсные недеформируемые частицы, композиты и т.д.). И, наконец, при частичной релаксации полей напряжений путем размножения и движения дислокаций источники приобретают *упругопластический характер*, их относят к третьей группе.

В ионно-облученных материалах источником напряжений является также и сам имплантированный слой, в котором при ионной имплантации инициируются значительные напряжения. Они превышают предел текучести, поэтому при ионной имплантации, а также в постимплантационный период будет иметь место *пластическая релаксация напряжений*, т.е. источники напряжений имеют упругопластический характер. Такая релаксация напряжений приводит к перераспределению уже имеющихся в мишени дислокаций, генерации новых дислокаций, а тем самым — и к росту плотности дислокаций и формированию наблюдаемых в подслое мишени дислокационных субструктур.

Поскольку формирующиеся в приповерхностном слое ионно-имплантированных металлических материалов дислокационные субструктуры являются неразориентированными, наиболее пригодным электронно-микроскопическим методом для измерения локальных внутренних напряжений является первый метод — по радиусу изгиба дислокации.

Результаты измерения напряжений по электронно-микроскопическим снимкам дислокационной структуры приведены на рис. 3.37, где представлены зависимости среднего значения

остаточных локальных напряжений от расстояния до облученной поверхности для  $\alpha$ -железа. Кривая имеет максимум, расположенный на расстоянии около 10 мкм от поверхности. Форма кривых повторяет вид зависимостей скалярной плотности

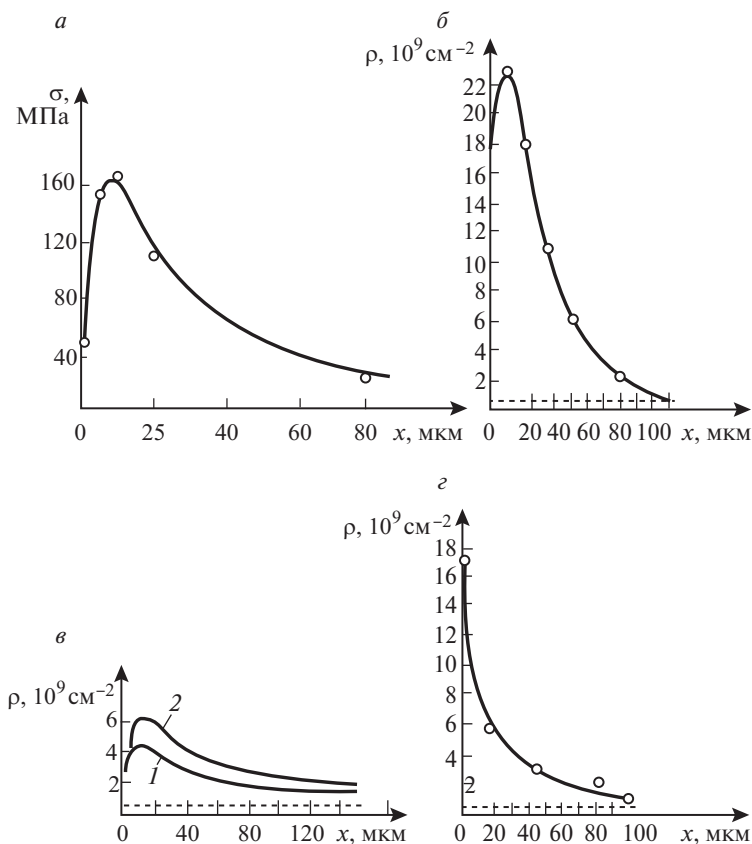


Рис. 3.37. Зависимость остаточных локальных внутренних напряжений (а), измеренных по радиусу кривизны дислокаций, и скалярной плотности дислокаций (б–е) от расстояния до ионно-имплантированной поверхности  $\alpha$ -железа (б – ионы ванадия, доза падающих ионов  $2 \cdot 10^{17}$  ион/см $^2$ ; в – ионы углерода, дозы падающих ионов, ион/см $^2$ : 1 –  $1 \cdot 10^{16}$ , 2 –  $1 \cdot 10^{18}$ ; г – ионы железа, доза падающих ионов  $1 \cdot 10^{18}$  ион/см $^2$ ; д – ионы аргона, дозы падающих ионов, ион/см $^2$ : 1 –  $2 \cdot 10^{16}$ , 2 –  $5 \cdot 10^{16}$ , 3 –  $1 \cdot 10^{17}$ ; е – ионы гафния, дозы падающих ионов, ион/см $^2$ : 1 –  $0,9 \cdot 10^{17}$ , 2 –  $1,5 \cdot 10^{17}$ , 3 –  $0,22 \cdot 10^{18}$ ); плотность дислокаций в исходном состоянии показана штриховой линией

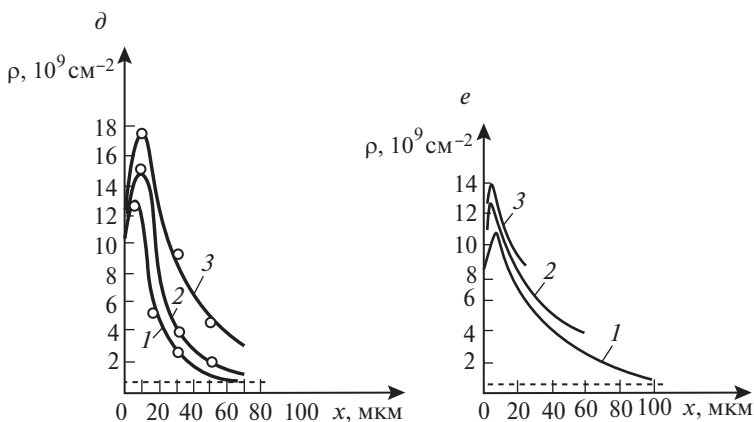


Рис. 3.37. Окончание

дислокаций от расстояния до ионно-имплантированной поверхности.

Максимальное локальное внутреннее напряжение для  $\alpha$ -железа составляет 165 МПа. В большей части приповерхностного слоя ионно-имплантированной мишени, где проявляется эффект дальнего действия, остаточные напряжения превосходят предел текучести  $\alpha$ -железа (45 МПа). При анализе данных, приведенных на рис. 3.37, следует иметь в виду, что здесь представлены амплитуды полей напряжений после релаксации и утонения фольги для электронной микроскопии. В процессе ионной имплантации и начала формирования дислокационной структуры амплитуда этих полей была выше. Несомненно, что локальные источники внутренних полей напряжений во многом способствуют формированию дислокационной структуры при ионной имплантации.

Использование геометрии скользящего падающего рентгеновского луча позволяет анализировать зависимость усредненных слоевых остаточных напряжений от толщины эффективно рассеивающего слоя как в субмикронном, так и в микронном диапазоне.

Результаты измерений напряжения, зависящего от толщины рассеивающего слоя, для ионно-имплантированных образцов представлены на рис. 3.38. В исходном состоянии напряжения отсутствуют. Видно, что в образце, облученном при дозе  $6 \cdot 10^{16}$  ион/ $\text{см}^2$  (кривая 1), с приближением к ионно-ле-

гированному слою напряжение монотонно увеличивается, достигая 200 МПа на глубине 0,25 мкм. В образце, облученном при дозе  $6 \cdot 10^{17}$  ион/см<sup>2</sup>, на таком же расстоянии от поверхности действует растягивающее напряжение порядка 300 МПа (кривая 2). В последнем образце напряжение резко уменьшается с удалением от поверхности и на глубине 0,4 мкм меняет знак. Как видно из рис. 3.38, на глубине 1 мкм в этом образце возникает максимум сжимающих напряжений порядка 150 МПа.

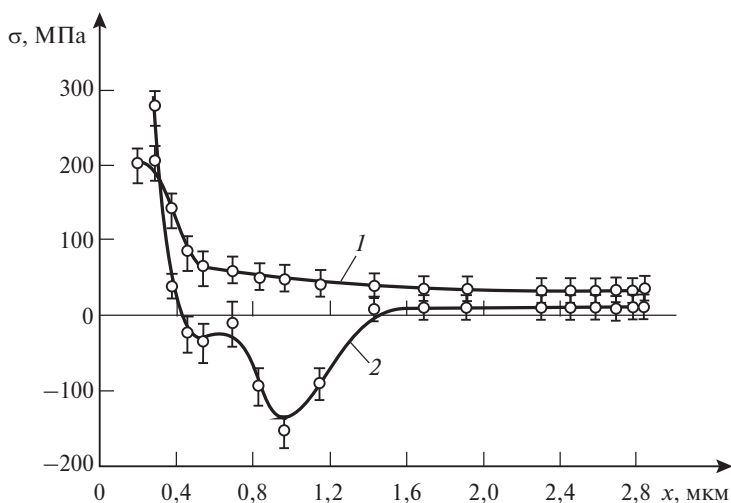


Рис. 3.38. Зависимость остаточных напряжений в разупорядоченном сплаве  $\text{Ni}_3\text{Fe}$ , имплантированном ионами  $\text{Zr}^{+}$ , от толщины анализируемого приповерхностного слоя:

1 — доза облучения  $6 \cdot 10^{16}$  ион/см<sup>2</sup>; 2 — доза облучения  $6 \cdot 10^{17}$  ион/см<sup>2</sup>

Из рис. 3.38 видно, что остаточные напряжения в дислокационном слое могут меняться с расстоянием различным образом: уменьшаться при увеличении расстояния или выходить на асимптоту; дважды менять знак, изменяясь от напряжения растяжения к напряжению сжатия, и наоборот.

Поля остаточных упругих напряжений, сохраняющихся в приповерхностных слоях металлических материалов после радиационного воздействия, играют важную роль в радиационно-индуцированных механических эффектах, таких как упрочнение, охрупчивание и ползучесть.

В табл. 8 из приложения указаны основные причины возникновения напряжений в различных частях реактора.

### 3.11. Радиационное упрочнение и охрупчивание

#### Общие сведения

Радиационные нарушения, возникающие в процессе облучения, вызывают существенное изменение характеристик прочности материалов (пределов текучести и прочности, твердости). При этом, как правило, наблюдается *радиационное упрочнение*, которое почти всегда сопровождается значительным уменьшением пластичности облучаемых материалов — *радиационным охрупчиванием*.

В настоящее время рассматриваются два механизма явления радиационного упрочнения. При первом из них упрочнение связывают с образованием при облучении радиационных дефектов, которые являются дополнительными центрами закрепления дислокаций и снижают эффективность действия источников дислокаций. Второй механизм радиационного упрочнения заключается в образовании в кристаллической решетке дефектов-барьеров (например, кластеры, дислокационные петли и вакансионные поры), препятствующих движению дислокаций в своих плоскостях скольжения.

В пользу первого механизма свидетельствуют такие факты, как появление ярко выраженного «зуба текучести» на диаграмме растяжения (напряжение — деформация) при испытании моно- и поликристаллических образцов облученных материалов (рис. 3.39).

В барьерном механизме увеличение критического напряжения сдвига или предела текучести в результате облучения свя-

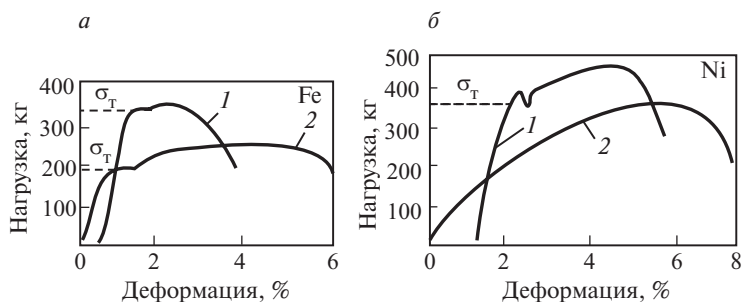
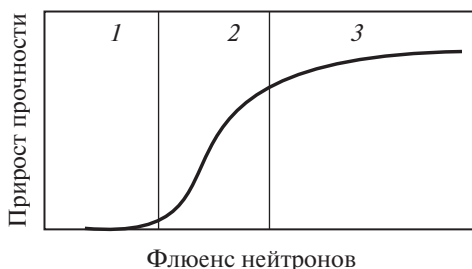


Рис. 3.39. Кривые напряжение — деформация для облученных (1) и необлученных (2) нейтронами образцов железа и никеля. Доза облучения  $1,1 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ ,  $\sigma_T$  — предел текучести

зывают с «трением» дислокаций о различные скопления точечных дефектов (кластеры, дислокационные петли и вакансионные поры), которые возникают из-за упругого и контактного взаимодействия данных скоплений и дислокаций.

### ***Влияние флюенса и типа бомбардирующих частиц на степень радиационного упрочнения***

Изменение прочностных характеристик металлов при температурах облучения  $0,2T_{пл}$  в зависимости от флюенса облучения схематично можно представить в виде кривой, приведенной на рис. 3.40.



*Рис. 3.40. Обобщенный вид зависимости изменения прочности ГЦК-металлов от флюенса нейтронов*

Условно кривую можно разделить на три области: 1 — инкубационный период, когда прочностные характеристики практически не изменяются; 2 — область интенсивного возрастания прочностных свойств; 3 — область незначительного изменения свойств с увеличением флюенса. В случае облучения меди нейтронами область 1 охватывает интервал флюенсов до  $5 \cdot 10^{16}$  нейтр./см<sup>2</sup>, область 2 — от  $5 \cdot 10^{16}$  до  $5 \cdot 10^{18}$ , а область 3 — флюенсы выше  $5 \cdot 10^{18}$  нейтр./см<sup>2</sup>. Результаты экспериментальных исследований показывают, что продолжительность каждого периода упрочнения зависит как от исходных свойств облучаемого материала, так и от условий облучения.

В настоящее время наибольшее количество экспериментальных данных, полученных на облученных нейтронами образцах, описывается несколько отличающимися друг от друга эмпирическими зависимостями прироста предела текучести от флюенса. Некоторые экспериментальные данные хорошо описываются выражением

$$\Delta\sigma_{\tau} = A_{\tau}(\varphi t)^{1/3}, \quad (3.2)$$

где  $A_{\tau}$  — коэффициент, зависящий в основном от температуры облучения;  $\varphi t$  — флюенс нейтронов.

Другие результаты лучше удовлетворяют соотношению

$$\Delta\sigma_{\tau} = B_{\tau}(\varphi t)^{1/2}, \quad (3.3)$$

где коэффициент  $B_{\tau}$  представляет собой неявную функцию, зависящую от флюенса и учитывающую эффекты радиационного отжига и насыщения.

Обе приведенные формулы не предсказывают наличия инкубационного периода, однако выражение (3.2) более корректно описывает экспериментальные результаты, полученные при облучении небольшими флюенсами, а формула (3.3) — результаты, полученные при обработке более высокими флюенсами.

Облучение, проводимое бомбардирующими частицами других типов (электронами, протонами,  $\alpha$ -частицами), приводит к тому, что эффект насыщения достигается при значительно меньшей степени радиационного повреждения образцов, чем в случае облучения нейтронами. Оказалось, что значение коэффициента  $A_{\tau}$  в формуле (3.2) определяется типом бомбардирующих частиц. Например, для меди и никеля наибольшее значение  $A_{\tau}$  получается при их облучении  $\alpha$ -частицами, а наименьшее — при облучении нейтронами.

Таким образом, одинаковая степень радиационного упрочнения достигается при значительно различающихся величинах флюенсов для  $\alpha$ -частиц, протонов и нейтронов, в частности увеличение предела текучести меди на 110% в случае облучения достигается при соотношении флюенсов для данных частиц 1 : 7 : 28. При одинаковом флюенсе для разных частиц наибольшее упрочнение металла наблюдается в случае облучения  $\alpha$ -частицами, наименьшее — нейтронами, а протоны занимают промежуточное положение.

Приведенные результаты трудно объяснить в предположении, что степень радиационного повреждения, а следовательно, число и мощность упрочняющих дефектов определяются количеством первично выбитых атомов. Например, прирост предела текучести никеля, облученного до степени повреждения  $10^{-3}$  сна, составляет при облучении высокоэнергетическими протонами  $\approx 55$  МПа, а при облучении  $\alpha$ -частицами  $\approx 31$  МПа. Следовательно, степень радиационного упрочнения металлов зависит в пер-

вую очередь не от числа атомных смещений, а от реальной конечной дефектной структуры облучаемого металла, т.е. от концентрации, размеров и типов скоплений точечных дефектов, являющихся барьерами на пути движения дислокаций.

В ряде работ показано, что процесс образования упрочняющих радиационных дефектов в зависимости от флюенса облучения проходит в два этапа с характерной для каждого из них скоростью упрочнения. Как видно на рис. 3.41, на первом этапе (флюенс облучения до  $10^{19}$  нейтр./см<sup>2</sup>  $\approx 3 \cdot 10^{-3}$  сна) радиационное упрочнение обусловлено в основном кластерами междоузельного типа, зарождающимися гомогенно, а на втором этапе (при флюенсах, превышающих  $10^{19}$  нейтр./см<sup>2</sup>) — кластерами вакансионного типа, образующимися гетерогенно в каскадах.

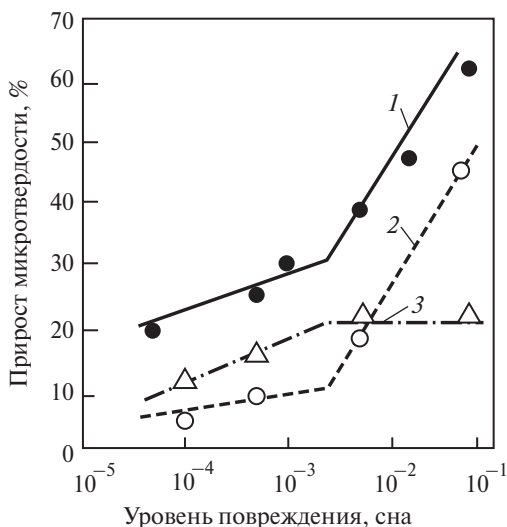


Рис. 3.41. Изменение прироста микротвердости для меди в зависимости от степени повреждения нейтронами:

1 — суммарный прирост; 2 — вклад малых ( $d < 5$  нм) кластеров междоузельного типа; 3 — вклад малых ( $d < 5$  нм) кластеров вакансионного типа

### ***Влияние энергии бомбардирующих частиц на степень упрочнения металлов***

Повышение энергии бомбардирующих частиц, а следовательно, жесткости спектра образующихся ПВА чаще всего

приводит к возрастанию степени упрочнения металлов. В частности, после облучения образцов меди нейтронами с энергией 14 МэВ прирост критического скалывающего напряжения в 6 раз выше, чем в результате облучения при таком же флюенсе нейтронами меньшей (1 МэВ) энергии.

В то же время имеются экспериментальные данные, свидетельствующие о том, что после облучения легкими частицами с достаточно широким интервалом энергий степень упрочнения металлических образцов практически не зависит от энергии. Так, в результате облучения электронами прирост пределов текучести образцов никеля и алюминия не изменяется в интервале энергий 8...25 МэВ, однако при дальнейшем повышении энергии возрастает почти линейно с увеличением энергии вплоть до 225 МэВ. Прирост предела текучести и твердости образцов никеля и меди, облученных при температуре около 60 °С, остается неизменным при увеличении энергии  $\alpha$ -частиц — от 10 до 50 МэВ, а протонов — от 10 до 30 МэВ, хотя число выбитых атомов при этом значительно уменьшается. В частности, при облучении меди  $\alpha$ -частицами с энергией 10 МэВ образуется в 4 раза больше радиационных дефектов, чем при ее облучении  $\alpha$ -частицами с энергией 50 МэВ. Отсюда следует, что, во-первых, количество ПВА не определяет степень радиационного упрочнения металлов; во-вторых, значительную роль в возникновении упрочняющих дефектов, вероятно, играют высокоэнергетические первично выбитые атомы.

### ***Влияние температуры облучения на степень упрочнения металлов***

Обобщенные результаты по влиянию температуры облучения на радиационное упрочнение ГЦК-металлов приведены на рис. 3.42.

Как видно из рисунка, в широком интервале температур облучения (примерно до  $0,25 T_{пл}$ ) степень радиационного упрочнения слабо зависит от температуры. Однако в области температур от  $0,25 T_{пл}$  до  $0,6 T_{пл}$  наблюдается сильная зависимость, а при более высоких температурах облучения радиационного упрочнения практически не происходит. Так, критическое напряжение сдвига для образцов из меди, облученных нейтронами при температуре 4,2 К, лишь на 10% отличается от значения напряжения сдвига образцов, облученных при температуре

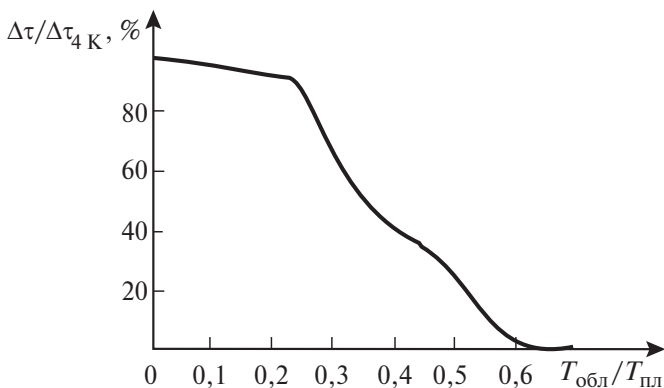


Рис. 3.42. Обобщенный вид зависимости степени упрочнения ГЦК-металлов от температуры облучения

300 К, а облучение нейтронами при температуре  $0,35T_{\text{пл}}$  вызывает на 50...60% меньшее упрочнение по сравнению с облучением при температуре ниже  $0,25T_{\text{пл}}$ .

Представленная на рис. 3.42 зависимость хорошо согласуется с механизмом барьерного упрочнения. Согласно электронно-микроскопическим исследованиям концентрация и размеры барьеров кластеров существенно зависят от температуры облучения. С повышением температуры число кластеров уменьшается, а их размер увеличивается, поэтому заметно уменьшается степень радиационного упрочнения металла. При температурах выше  $0,6T_{\text{пл}}$  диффузионная подвижность междоузельных атомов и вакансий слишком высока и кластеры практически не образуются.

Иная картина наблюдается при изучении влияния температуры облучения на радиационное упрочнение ОЦК-металлов. Установлено, что при облучении образцов железа нейтронами при температуре ниже 90 К предел текучести не возрастает, а, наоборот, уменьшается. Так, облучение образцов монокристаллов железа при температуре 5 К флюенсом  $3 \cdot 10^{17}$  нейтр./см<sup>2</sup> привело к снижению их критического напряжения сдвига на 50%. Это явление связывают с тем, что в ОЦК-материалах высокая концентрация междоузельных атомов, создаваемых при облучении, способствует увеличению подвижности винтовых дислокаций. При более высоких температурах облучения ОЦК-металлы ведут себя так же, как и металлы с ГЦК-решеткой.

## Низкотемпературное радиационное охрупчивание

Упрочнение металлов и сплавов, облученных при относительно низких температурах ( $T_{\text{обл}} < (0,3...0,4)T_{\text{пл}}$ ), сопровождается значительным охрупчиванием, т.е. уменьшением пластичности, ударной вязкости и повышением температуры перехода материала из пластичного состояния в хрупкое, причем металлы с ОЦК-решеткой и стали с ферритной структурой являются более чувствительными к облучению, чем ГЦК-металлы и коррозионно-стойкие аустенитные стали.

Как видно из рис. 3.43, в результате облучения ниобия флюенсом  $4 \cdot 10^{21}$  нейтр./см<sup>2</sup> предел текучести возрастает от 130 до 290 МПа, а относительное равномерное удлинение уменьшается почти в 6,5 раза.

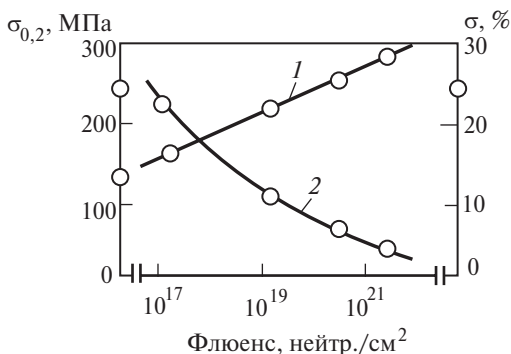


Рис. 3.43. Зависимость предела текучести (кривая 1) и равномерного удлинения (кривая 2) образцов ниобия от флюенса облучения нейтронами ( $T_{\text{обл}} \leq 60^\circ\text{C}$ )

Изменение характеристик пластичности металлов и сталей, особенно с ОЦК-структурой, в зависимости от условий облучения (флюенса, температуры, энергии частиц) происходит по закономерностям, близким к полученным при изучении радиационного упрочнения. Критическая температура хрупкости для ряда низкоуглеродистых сталей так же, как и предел текучести, возрастает пропорционально корню квадратному из флюенса нейтронов, а для сталей некоторых других марок — корню кубическому.

Влияние температуры облучения на степень охрупчивания сталей, как и на степень их упрочнения, начинается примерно с  $230^\circ\text{C}$ , и чем выше температура мишени, тем меньше отно-

сительное изменение характеристик пластичности и ударной вязкости. При температурах выше  $500\text{ }^{\circ}\text{C}$  облучение даже высокими флюенсами практически не приводит к изменению прочностных характеристик.

### ***Высокотемпературное радиационное охрупчивание***

*Высокотемпературное радиационное охрупчивание* (ВТРО) заключается в значительном и необратимом снижении пластичности материала, облученного (или испытанного на растяжение) при температурах выше  $0,5T_{\text{пл}}$ , причем с повышением температуры эффект ВТРО усиливается. Этот эффект наблюдали на никеле и его сплавах, алюминии, ванадии, меди, аустенитных и ферритных сталях и других конструкционных материалах, однако проявляется он только на поликристаллических материалах. Не наблюдается ВТРО на монокристаллах, что свидетельствует о преимущественной роли в ВТРО процессов, происходящих на границах зерен. В отличие от обычного низкотемпературного радиационного охрупчивания ВТРО не устраняется при длительных высокотемпературных отжигах вплоть до температуры  $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

### ***Механизмы ВТРО***

В материалах, облученных в реакторах, в результате нейтронного и  $\gamma$ -облучения образуются различные дефекты, их скопления и комплексы, а также продукты ядерных реакций. Многообразие происходящих изменений в значительной степени затрудняет выделение основных причин, вызывающих ВТРО.

Наиболее широкое распространение получила так называемая *гелиевая теория*. Гелий практически нерастворим в металлах и при повышенных температурах мигрирует к границам зерен и другим дефектам, где происходит образование газовых пузырьков. Гелий генерируется в конструкционных материалах в процессе облучения за счет ( $n, \alpha$ )- или ( $\gamma, \alpha$ )-реакций. Например, в аустенитных сталях при облучении тепловыми нейтронами гелий может образоваться из бора или из основных элементов стали (железо, цирконий, никель и др.).

При температурах, при которых в материалах наблюдается минимальная пластичность, одним из вероятных механизмов деформации считают скольжение по границам зерен, что может вызвать появление на их границах микропор или микротрещин.

Однако, как показывают эксперименты, в облученных образцах плотность гелиевых пузырьков на границах зерен значительно выше, чем внутри зерна, поэтому эти пузырьки закрепляют границы зерен и предотвращают их миграцию. В таком случае образование и распространение межзеренных микротрещин в процессе деформации облученных материалов будет соответствовать более низким значениям как прочности, так и пластичности.

Другой взгляд на роль гелия в ВТРО заключается в том, что основной причиной этого явления считают нарушение в облученных материалах баланса прочности тела зерна и границ зерен, вследствие чего в таких материалах происходит разрушение преимущественно по границам зерен. Такое нарушение баланса может происходить за счет того, что внутри зерна сохраняются мелкие гелиевые пузырьки, которые обуславливают его упрочнение.

Закрепление дислокаций гелиевыми пузырьками было подтверждено экспериментально с помощью электронной микроскопии, что указывает на возможность матричного упрочнения. Упрочнение зерна может произойти в результате подавления в нем в присутствии гелия процессов полигонизации и рекристаллизации. Облучение может также стимулировать перераспределение примесных элементов и образование зернограницных сегрегаций и выделений. Вследствие этого изменяется соотношение прочности матрицы и границ зерен и возрастает склонность к хрупкому разрушению по границам зерен в интервале температур 500...800 °С. К недостаткам данного механизма можно отнести то, что послерадиационный высокотемпературный отжиг не приводит к полному или существенному восстановлению пластичности облученных материалов, хотя образующиеся в процессе облучения карбиды и интерметаллиды после отжига должны полностью растворяться.

Следует подчеркнуть, что одной из основных особенностей ВТРО является *интеркристаллитное разрушение материала*, и главную роль при этом должна играть деформация по границам зерен. Такая деформация не происходит в том случае, когда прочность зерна заметно выше прочности материала приграничных зон, поэтому процессы, разупрочняющие зерна или упрочняющие их границы, способствуют снижению ВТРО. Вследствие этого в высокотемпературном радиационном охрупчивании значительную роль играют процессы, которые путем изменения структуры, свойств и химического состава

границ зерен могут вызвать снижение способности материала к зернограницному деформированию.

### ***Зависимость ВТРО от условий облучения***

Анализ экспериментальных данных не позволяет выявить существенного влияния температуры облучения на ВТРО. Склонность конструкционных материалов к ВТРО слабо зависит от температуры облучения, по крайней мере до температуры 500 °С. При более высоких температурах облучения и эквивалентных флюенсах отмечали несколько большее охрупчивание, что, вероятно, обусловлено совместным влиянием выделения вторых фаз, усиленного облучением, и образования большого количества гелиевых пузырьков на границах зерен вследствие большой подвижности атомов гелия при таких температурах.

Эффект ВТРО проявляется после облучения материалов до так называемой *пороговой дозы* (флюенса), которая зависит от химического состава материала, типа его кристаллической решетки, размера зерен, исходной механико-термической обработки, свойств облучаемого материала, энергии нейтронов. Например, для никеля пороговый флюенс равен  $10^{17} \dots 10^{18}$  нейтр./см<sup>2</sup>, а для аустенитных коррозионно-стойких сталей –  $10^{20} \dots 10^{21}$  нейтр./см<sup>2</sup>. С увеличением флюенса нейтронов пластичность материалов уменьшается, а дозовая зависимость потери пластичности для многих материалов в широком интервале температур описывается формулой

$$\Delta\delta = K \ln(\Phi - \Phi_0 - C), \quad (3.4)$$

где  $\Delta\delta$  – относительное изменение общего удлинения исходного и облученного образцов, %;  $K, C$  – константы, зависящие от материала, температуры и других условий испытания;  $\Phi, \Phi_0$  – соответственно общий и пороговый флюенсы облучения.

Зависимость (3.4) экспериментально установлена для ряда сплавов и сталей, облученных нейтронами с флюенсами, изменяющимися в интервале  $10^{18} \dots 10^{23}$  нейтр./см<sup>2</sup>. Усиление степени охрупчивания с увеличением дозы облучения связывают, как правило, с возрастанием содержания гелия, а также проявлением процессов РСД и РИС при больших дозах. Увеличение дозы облучения смещает также температуру начала проявления ВТРО в сторону более низких температур. Так, в образцах из ста-

ли X16H15M3Б, облученных нейтронами с флюенсом  $1 \cdot 10^{20}$  нейтр./см<sup>2</sup>, ВТРО проявляется при температуре 850 °С, а до флюенса  $2,5 \cdot 10^{22}$  нейтр./см<sup>2</sup> — при температуре 600 °С.

Существенное влияние на ВТРО оказывает энергетический спектр нейтронов. В частности, экспериментально установлено, что экранирование потока тепловых нейтронов в реакторе с помощью кадмиевого экрана позволяет избежать ВТРО сталей X20H15 и SS316, тогда как в контрольных образцах, облученных в этом же эксперименте без экрана, обнаружили ВТРО начиная с температуры 650 °С при флюенсе  $2 \cdot 10^{19}$  нейтр./см<sup>2</sup>. Данный эффект объясняется тем, что при облучении материалов, содержащих никель, в реакторе с тепловым спектром нейтронов накапливается гораздо больше гелия, чем в реакторе на быстрых нейтронах. Несмотря на то что реакция на быстрых нейтронах также рассматривается как источник гелия, гораздо больше гелия образуется за счет двухстадийных реакций на тепловых нейтронах:



поэтому спектр нейтронов оказывает существенное влияние на охрупчивание материалов, содержащих никель.

Результаты многочисленных исследований показали, что ферритные стали менее склонны к ВТРО, чем аустенитные стали и никелевые сплавы. Это свидетельствует о том, что наличие гелия в материалах еще не является достаточным условием для того, чтобы он был склонен к ВТРО. Важную роль играет и тип кристаллической решетки. Например, в двухфазных ферритно-мартенситных сталях ВТРО наблюдается лишь при температурах выше температуры превращения  $\alpha \rightarrow \gamma$ , а в однофазной ферритной области те же стали не проявляют склонности к ВТРО.

Все эксперименты по изучению влияния размера зерен на ВТРО свидетельствуют о том, что охрупчивание усиливается с ростом размера зерен. Такого эффекта можно было ожидать исходя из геометрических соображений. При измельчении зерен общая протяженность их границ значительно возрастает, что уменьшает относительную концентрацию гелиевых пузырьков на границах и должно способствовать уменьшению склонности материала к ВТРО. Однако следует учитывать тот факт, что при сильном измельчении зерен расстояние, необходимое для выхода пузырьков гелия на границы, резко сокращается и большее число пузырьков достигает границ зерен за более

короткое время. По-видимому, положительное влияние на снижение охрупчивания при измельчении зерен оказывает совокупность факторов, одним из которых является высокая скорость миграции границ зерен в материале с очень мелким зерном.

Прослеживается определенное влияние легирующих элементов на ВТРО. Как отмечалось ранее, увеличение содержания никеля, а также марганца в хромоникелевых и хромоникеле-марганцевых сталях аустенитного класса усиливает ВТРО при эквивалентных условиях облучения. Поскольку в ядерных реакциях на атомах марганца образуется значительно меньше гелия, чем в реакциях на атомах никеля, то влияние марганца на ВТРО нельзя связать только с образованием гелия в облученных материалах. Следует учитывать и структурный фактор, так как с увеличением содержания марганца в сплаве повышается склонность к межкристаллитному разрушению сталей и без облучения. Не исключено также, что особенности, обусловленные введением никеля, связаны с более высокой энергией дефектов упаковки.

Легирующие аустенитных коррозионно-стойких сталей молибденом, вольфрамом, ниобием и титаном способствует уменьшению склонности стали к ВТРО и сдвигает температурный интервал проявления хрупкости к более высоким температурам. Добавки в аустенитную сталь бора могут оказывать двойственное влияние. С одной стороны, бор способствует усилению ВТРО из-за образования гелия по ( $n$ ,  $\alpha$ )-реакции, а с другой — улучшает межзеренную прочность при высоких температурах и, следовательно, уменьшает склонность к ВТРО. Экспериментально установлено, что при концентрациях бора в стали, изменяющейся в интервале от 0,001 до 0,01 мас. %, проявляется его положительная роль в уменьшении склонности к ВТРО.

### ***Способы уменьшения ВТРО***

Несмотря на то что склонность к ВТРО наблюдалась практически у всех материалов, экспериментальные исследования позволяют сделать заключение, что путем соответствующего легирования и термообработки можно добиться снижения (если не полного подавления) охрупчивания. Существует несколько способов уменьшения высокотемпературного охрупчивания.

1. Использование легирующих компонентов, обладающих малым сечением ( $n$ ,  $\alpha$ )-реакций (в частности, уменьшение в сплавах содержания никеля, бора и т.п.).

2. Уменьшение размера зерен облучаемого материала.

3. Увеличение сопротивления разрушению по границам зерен путем легирования добавками, упрочняющими границы зерен.

4. Создание на границах зерен выделений, препятствующих проскальзыванию дислокаций и образованию на границах трещин.

5. Образование в матрице выделений, захватывающих атомы гелия, чтобы уменьшить выход гелия на границы зерен. Роль таких центров могут играть вторичные карбидные или интерметаллидные фазы. Равномерность распада и развитая поверхность межфазных границ способствуют закреплению гелия в местах предвыделений и обособлению вторичных карбидных и интерметаллидных фаз. Вследствие этого замедляются как процессы миграции гелия к границам зерен, так и его коагуляция внутри них.

6. Введение в матрицу дислокаций с концентрацией, которая обеспечивала бы эффективный захват атомов гелия.

### 3.12. Радиационная ползучесть

Если к какому-либо материалу приложить растягивающее напряжение, не превышающее предела текучести этого материала, то при достаточно высоких температурах он начнет деформироваться. Такую пластическую деформацию часто называют *ползучестью материала*. Она не обусловлена процессами скольжения дислокаций. За нее ответственны процессы диффузии, происходящие в напряженном кристалле. В кристалле можно создать разность концентраций вакансий, если вследствие действия приложенного внешнего напряжения энергия образований термических вакансий и химический потенциал атомов в различных точках образца различны. В этом случае возникает диффузионный поток вакансий или (что то же самое) встречный поток атомов (рис. 3.44, *a*). Такой массоперенос приводит к необратимому изменению формы тела, т.е. к пластической деформации. Естественно, что все это возможно только при достаточно высоких температурах, активизирующих процессы миграции.

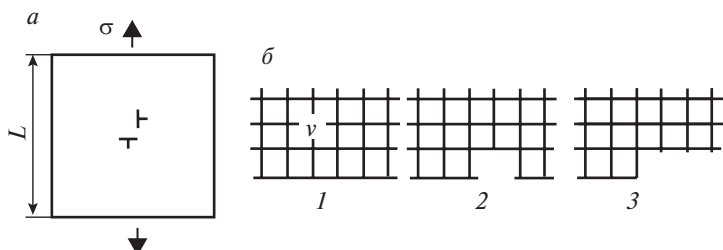


Рис. 3.44. Вакансионные потоки в кристалле под растягивающим напряжением  $\sigma$  (а) и последовательные стадии механизма переползания краевой дислокации за счет присоединения вакансий (б):

1 — гладкий край экстраплоскости; 2 — присоединена одна вакансия; 3 — ступенька на краю экстраплоскости

Имеющиеся в реальных кристаллах дислокации служат не только стоками, но и источниками вакансий, так что диффузионный путь при наличии дислокаций сокращается и определяется не размером кристалла, а гораздо меньшим расстоянием между дислокациями разной ориентации (рис. 3.44, а, в центре).

Сами дислокации, взаимодействуя с вакансиями, также перемещаются (переползают). Рассмотрим атомный механизм переползания на примере краевой дислокации в простой кубической решетке. На рис. 3.44, б представлен фрагмент атомной плоскости, содержащий вакансию  $v$ . Мигрируя по кристаллу, вакансия может выйти на край экстраплоскости, который при этом перемещается по нормали к плоскости скольжения.

Возможен также обратный процесс — отрыв вакансии от края экстраплоскости или (что то же самое) присоединение к нему атома из узла решетки, который становится вакантным. Относительная частота актов присоединения и отрыва вакансий зависит от того, какова плотность вакансий — выше или ниже термодинамически равновесной. В равновесии эти частоты равны.

Локальный избыток вакансий образуется у торцевых поверхностей растягиваемого кристалла. Если в нем имеются дислокации, то, как уже отмечалось, диффузионные потоки вакансий устанавливаются не между гранями кристалла, а между соседними дислокациями, ориентированными так, чтобы кристалл удлинялся, когда они обмениваются вакансиями (рис. 3.44, а).

Конструкционные узлы и детали современных ядерных энергетических установок находятся в напряженном состоянии

и при этом работают в условиях повышенных температур. Вследствие этого одной из главных причин изменения их размеров наряду с распуханием является ползучесть, которая значительно усиливается под действием облучения. Оказалось, что для большинства материалов скорость радиационной ползучести значительно выше, чем скорость термической ползучести.

В общем случае процесс радиационной ползучести характеризуется тремя стадиями (рис. 3.45):

I — неустановившаяся ползучесть (скорость ползучести уменьшается со временем);

II — установившаяся ползучесть (скорость постоянна);

III — разрушающая (ускоренная) ползучесть (скорость резко возрастает, происходит разрушение материала).

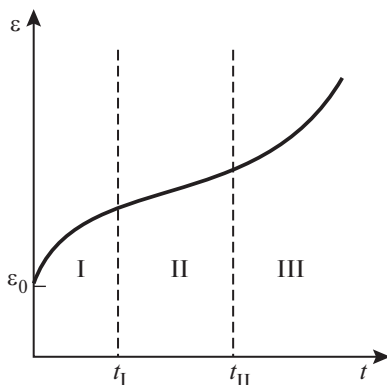


Рис. 3.45. Общий вид кривой ползучести ( $\varepsilon_0$  — мгновенная деформация)

Скорость радиационной ползучести и ее вклад в общую деформацию зависят от многих факторов, прежде всего от условий облучения (плотности потока, продолжительности облучения, приложенного напряжения, температуры).

Типичные кривые ползучести для алюминия и циркониевого сплава циркалой-2 приведены на рис. 3.46.

Как видно из рисунка, при указанных условиях испытания вклад чисто термической ползучести (кривые 2) незначителен. На кривых, полученных в процессе облучения, имеется ярко выраженная переходная стадия, на которой скорость деформации монотонно уменьшается со временем. За переходной стадией наблюдается установившаяся стадия, где скорость деформации постоянна.

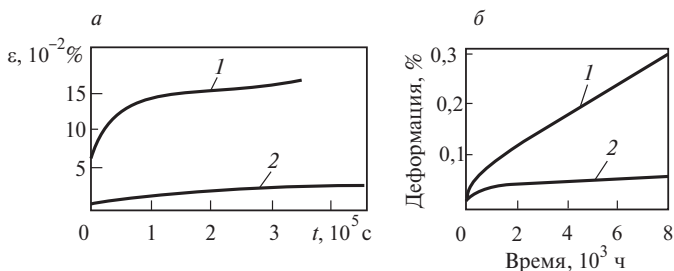


Рис. 3.46. Кривые ползучести:

*а* — алюминия при напряжении 17 МПа, температуре 160 °С (1 — в процессе реакторного облучения,  $\Phi = 1,38 \cdot 10^{14}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ ; 2 — необлученные образцы); *б* — внутриреакторной (1) и вне реакторной (2) ползучести сплава циркалой-2 (температура 300 °С, напряжение 110,3 МПа, плотность потока  $2,4 \cdot 10^{13}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ )

Продолжительность переходного периода зависит от химического состава и свойств облучаемого материала, причем для чистых металлов она значительно короче, чем для их сплавов. Продолжительность переходного периода обратно пропорциональна скорости возникновения повреждений. Для данного материала этот период заканчивается при одинаковых уровнях повреждения вне зависимости от флюенса бомбардирующих частиц.

На установившейся стадии накопление деформации в зависимости от флюенса происходит сначала по линейному закону. Однако при более высоких степенях повреждений (флюенсах выше  $10^{22}$  нейтр./ $\text{см}^2$ ) радиационная ползучесть сталей отклоняется от линейной зависимости и может быть описана степенной функцией с показателем степени, превышающим единицу.

Деформация и скорость ползучести материалов под действием облучения в значительной степени зависят от температуры испытания. Это может быть обусловлено изменением подвижности радиационных дефектов и их эволюцией, а также изменением вклада термической ползучести в общую деформацию.

На рис. 3.47 представлены зависимости термической и внутриреакторной ползучести образцов стали SS316 от обратной температуры.

При температуре ниже  $0,45 T_{\text{пл}}$  внутриреакторная деформация стали обусловлена в основном радиационной ползучестью. При этом для всех изученных условий испытаний (степени повреждаемости и приложенных напряжений) прослеживается тенденция к возрастанию радиационной ползучести с повышением температуры, однако она изменяется в существенно

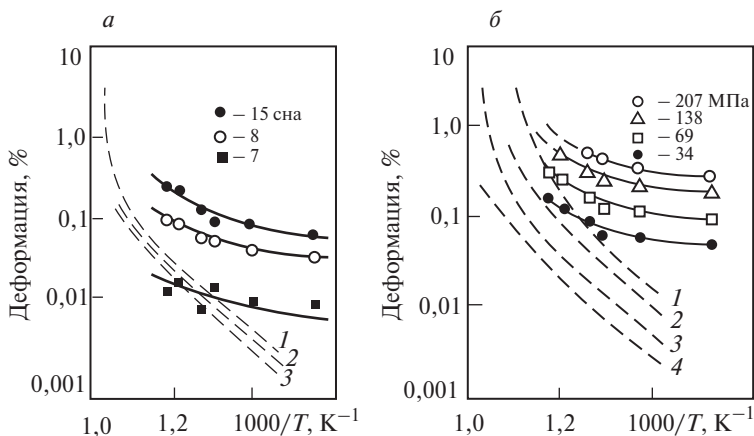


Рис. 3.47. Температурные зависимости внутриреакторной (сплошные линии) и термической (штриховые линии) ползучести стали SS316: *а* — при напряжении 70 МПа и различных уровнях повреждения; *б* — при уровне повреждения, равном 15 сна, и разных напряжениях

меньшей степени, чем термическая ползучесть. Увеличение повреждаемости (флюенса нейтронов) и напряжения, повышая уровень деформации, практически не влияет на ход кривых зависимости ползучести от температуры. В области температур около  $0,5T_{пл}$  и выше преобладающим является термический компонент ползучести.

Кратко остановимся на теоретических моделях, объясняющих *радиационно-ускоренную ползучесть*. Часто радиационная ползучесть реализуется в результате стимулированного напряжением движения дислокаций, включающего консервативную и неконсервативную составляющие. Оказалось, что облучение оказывает влияние на обе составляющие. С одной стороны, кластеры, микропоры и дислокационные петли, образующиеся в процессе облучения, становятся барьерами на пути скользящих дислокаций и тем самым замедляют процесс деформации, с другой — создаваемые в большом количестве радиационно-индуцированные точечные дефекты способствуют переползанию краевых дислокаций и, следовательно, ускоряют процесс деформации под напряжением. Последний эффект является чаще всего более существенным, именно поэтому под воздействием облучения скорость ползучести возрастает.

В соответствии со сказанным большая часть теоретических моделей радиационной ползучести так или иначе включает

процессы переползания дислокаций в результате поглощения ими точечных дефектов.

В поле внешнего напряжения происходит дополнительное взаимодействие дислокаций и точечных дефектов, обусловленное разницей упругих констант матрицы и точечных дефектов (так называемый *модульный эффект*). В результате дислокации, по-разному ориентированные по отношению к нагрузке, неодинаковым образом поглощают точечные дефекты, что приводит к различию скоростей их переползания и в конечном счете — к направленной деформации.

### 3.13. Электролизация

*Радиационно-индуцированная электролизация* связана с формированием объемных электрических зарядов (радиационная электризация) и, как правило, происходит в результате термализации заряженных частиц, фото- и комптоновского эффектов при воздействии электромагнитного излучения, активационной эмиссии заряженных частиц при нейтронном облучении.

В случае низкой проводимости облучаемого вещества время жизни образовавшихся зарядов может быть продолжительным, а электрические поля — способными вызвать электрический пробой. Опыт эксплуатации атомной и космической техники свидетельствует о том, что эффект радиационной электризации определяет радиационную стойкость диэлектрических материалов.

Измерения радиационной проводимости показали, что электрические заряды не могут существовать заметное время в облучаемых диэлектриках вследствие высоких значений проводимости. Однако при импульсном облучении сильноточным электронным пучком (СЭП) в диэлектриках электрические пробои надежно регистрируются.

Технология производства и метрология микроскопических параметров таких диэлектриков, как полимеры, керамика, стекло, композиты, недостаточны для создания строгой теории, описывающей кинетику радиационной электризации на атомно-молекулярном уровне. В данном случае наиболее приемлемым является феноменологический подход, основанный на радиационной проводимости и диэлектрической проницаемости. Исследование электростатических эффектов целесообразно до средних интенсивностей СЭП, пока другие механизмы скоростного разрушения, кроме электрического пробоя, еще не срабатывают.

Изменение силы тока во внешней цепи диэлектрика и напряженности внешнего электрического поля происходит при облучении диэлектриков интенсивными пучками электронов и протонов. О степени электризации судили по наличию *каналов пробоя* (фигур Лихтенберга).

Дефекты, которые вызваны электрическим пробоем, проявляющимся в образовании фигур Лихтенберга, расположены в основном в облученной области. Наряду с фигурами Лихтенберга в облученной части имеются и каналы пробоя с выходом на необлученную поверхность. Увеличение плотности тока пучка электронов сверх  $1 \text{ кА/см}^2$  при длительности импульса 50 нс приводит к термическому разрушению образцов. Происходит оплавление образцов и образование внутри них газовых пузырьков. Но и в этом случае интенсивному разогреву предшествует электрический пробой образца, проявляющийся в каналах разряда в отслоившихся пленках.

На рис. 3.48, *а* приведена фотография образца из полиметакрилата (ПММА), облученного электронами с энергией 800 кэВ, плотностью тока пучка  $1 \text{ кА/см}^2$ , длительностью импульса 50 нс. Электрический пробой образца, облученного СЭП, имеет характерные особенности. При указанных параметрах образуется множество фигур Лихтенберга, локализованных в плоском слое диаметром около 5 мм, а при электризации слаботочным пучком образуется одна фигура разряда, занимающая всю облученную площадь (рис. 3.48, *б*). Размер области локализации неодинаков для разных материалов и возрастает с уменьшением способности материала к накоплению объемных

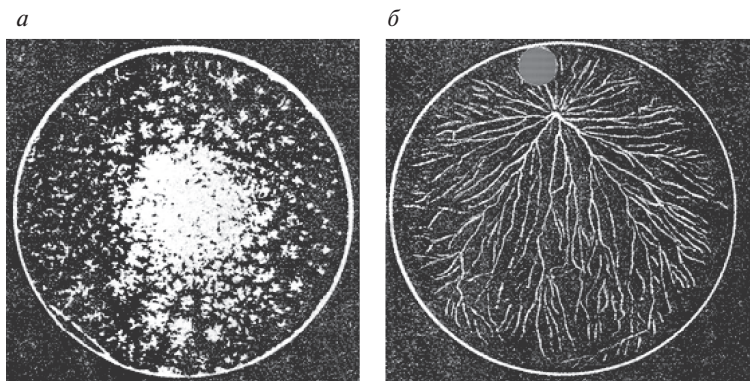


Рис. 3.48. Структура фигур Лихтенберга при мощном импульсном (*а*) и квазистационарном (*б*) облучении

зарядов. В частности, в полиэтилене число разрядов меньше, а их площадь в несколько раз больше, чем в ПММА. Отметим, что при умеренной плотности тока пучка и облучении полиэтилен не пробивается.

Высокоскоростная импульсная инжекция заряженных частиц приводит к тому, что разрушение диэлектриков электрическими пробоями происходит значительно раньше, чем их разогрев до плавления. Минимальная интенсивность пучка, при которой наступает электрический пробой, зависит от материала. Кроме индивидуальных свойств, способствующих накоплению заряда, существенную роль играют распределение поглощенной энергии, электрические и магнитные поля в образце, размер области термализации, изменение проводимости облученного вещества. В полиэтилене, например, толщина слоя, в котором происходит термализация электронов при поглощении СЭП, уменьшается до 0,1 одночастичного пробега, что приводит к уменьшению области локализации заряда в 10 раз. Эксперименты подтверждают это. Полиэтилен разрушается электрическим пробоем только в интенсивных пучках. Установлено, что в ПММА многоканальные разряды происходят при плотности тока около  $0,1 \text{ кА/см}^2$ . Повышение скорости инжекции сдвигает максимум функции накопления заряда в сторону меньших времен с одновременным увеличением максимального значения объемного заряда.

Электрический пробой материалов, стойких в слаботочных пучках, и многоканальный локальный характер областей пробоя доказывают, что в интенсивных импульсных полях заряженных частиц скорость накопления объемного заряда существенно превышает скорость его переноса в результате проводимости, а уровень накопления заряда определяется отношением скорости инжекции заряда к скорости генерации носителей при определенном значении радиационной проводимости.

К отличительным особенностям электризации в интенсивных пучках излучения следует отнести наличие экстремумов во временных зависимостях основных величин, характеризующих электризацию, — напряженности электрического поля и силы тока во внешней цепи.

### 3.14. Трансмутация

Радиационное повреждение материалов обусловлено двумя процессами:

1) обратимым процессом смещений и образования кластеров дефектов;

2) необратимым процессом трансмутации элементов исходного материала в ядерных реакциях.

Скорость генерации ядер-трансмутантов и элементов радиационной микроструктуры определяется произведением площади сечения и плотности потока нейтронов. Вследствие этого уровень генерации элементов-трансмутантов сравним с концентрацией отдельных элементов радиационной микроструктуры (или превышает ее) и может оказывать влияние на параметры и эволюцию последней.

Постоянно образуемые в ядерных реакциях трансмутации атомы элементов:

- изменяют заранее созданный баланс атомов различных элементов в сплаве;
- влияют на процесс конкуренции за наиболее важные элементы при образовании двух или нескольких фаз одновременно;
- служат катализаторами или ингибиторами твердотельных химических реакций при образовании новых фаз из выбитых атомов сплава в процессе свободной миграции, понижая или повышая их энергетический барьер;
- разрушают выделения второй фазы, образованные до облучения (в процессе термообработки), что влияет на величину свободной энергии системы;
- образуют твердый раствор внедрения из элементов-трансмутантов, не участвующих в образовании выделений.

В нержавеющей сталях различного состава генерируются в основном элементы легирующих добавок с различным объемным фактором (до  $\pm 10\%$ ), и только при наличии ванадия в сплаве происходит генерация титана и скандия с объемным размерным фактором от  $+25,8$  до  $+52,4\%$  (титан) и  $+120,5\%$  (скандий). В сплавах циркония образуется молибден с объемным размерным фактором  $-34,4\%$ , иттрий ( $+44,8\%$ ), скандий ( $+142,6\%$ ). Однако сечения реакции трансмутации позволяют получить такие ядра-трансмутанты, атомная доля которых равна  $100 \dots 1000$  артм, только в случае длительной эксплуатации реактора, поэтому основными элементами, влияющими на эволюцию радиационной микроструктуры на первых этапах эксплуатации, являются подразмерные примеси кремния, фосфора, серы и продукты их трансмутации, входящие в единую генеалогическую схему (рис. 3.49).

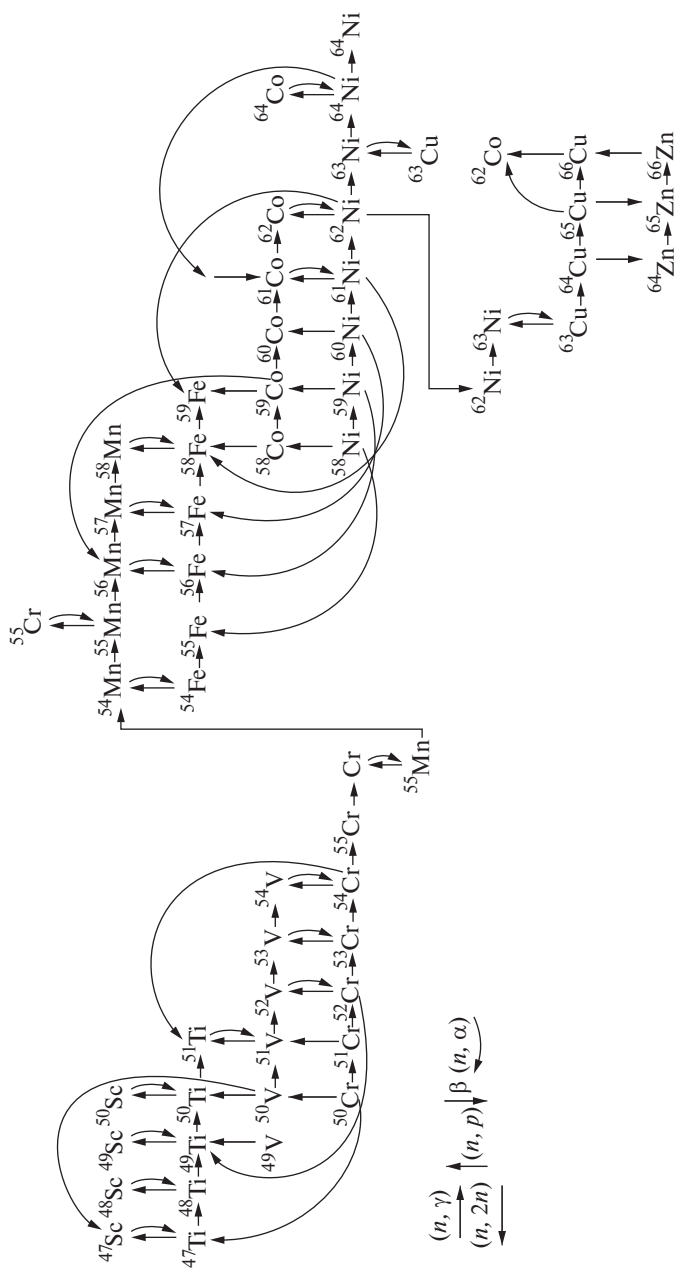
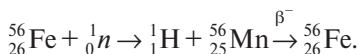


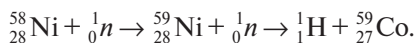
Рис. 3.49. Схема радиационных превращений элементов и изотопов, входящих в состав нержавеющей стали X18Ni10Т, в ядерных реакциях трансмутации в потоке нейтронов водо-водяного энергетического реактора ВВЭР-1000

Вопрос о генерации газообразных трансмутантов — гелия и водорода — в сталях внутрикорпусных устройств реакторов деления рассматривается уже давно в связи с их влиянием на процессы вакансионного распухания и охрупчивания. Считалось, что высокая подвижность атомов водорода и невозможность его удержания в сталях мало влияет на эти процессы. Что касается гелия, то его нерастворимость в сталях и очень низкий коэффициент диффузии не давали возможности определить механизмы его влияния. И только при высоких температурах, когда диффузия гелия заметна, была обнаружена его способность к миграции (по-видимому, по вакансионному механизму) и созданию газовых пор, приводящих к высокотемпературному охрупчиванию сталей.

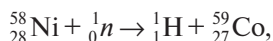
Особенностью генерации водорода при облучении быстрыми нейтронами (0,1 МэВ) в сталях различного состава является его непрерывное образование в реакциях ( $n, p$ ), не приводящих к изменению элементного состава, так как атомы (продукты этой реакции) — короткоживущие радиоактивные изотопы,  $\beta^-$ -распад которых приводит к исходному материнскому изотопу:



Присутствие никеля в сталях значительно увеличивает в них уровни генерации водорода в двухступенчатой реакции с образованием промежуточного радиоактивного изотопа  ${}^{59}\text{Ni}$  (период полураспада  $7,5 \cdot 10^4$  лет). Это приводит к задержке его поступления в сталь из никеля. Изотоп  ${}^{59}\text{Ni}$  имеет высокое сечение реакции ( $n, p$ ) в условиях активной зоны реакторов с водой под давлением ( $\sigma_p = 2,0 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2$ ):

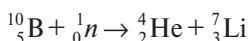


Необходимо отметить, что после первой ежегодной остановки реактора для перезагрузки топлива в сталях реактора образуется равновесная концентрация долгоживущего изотопа  ${}^{59}\text{Ni}$  (~70 аppm). По сути, после первой перезагрузки топлива стали внутрикорпусного устройства (ВКУ) будут легированы ранее отсутствующим изотопом  ${}^{59}\text{Ni}$ . При дальнейшей эксплуатации реактора это приведет к непосредственному участию данного изотопа в прямой реакции генерации водорода:



что увеличивает уровень генерации водорода в дальнейшем примерно на 30% (сталь X18H10T).

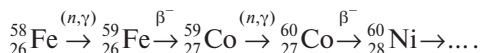
Особенностью реакторов с водой под давлением является регулирование режима их работы с помощью выгорающего поглотителя тепловых и резонансных нейтронов – изотопа  $^{10}\text{B}$ , вводимого в теплоноситель (замедлитель) первого контура охлаждения в виде борной кислоты  $\text{H}_3\text{BO}_3$  (9,0...13,5 г на 1 кг  $\text{H}_2\text{O}$ ). Захват теплового нейтрона приводит к рождению атома гелия:



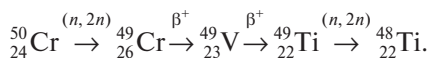
с кинетической энергией 1,8 МэВ, что позволяет ему имплантироваться в материал внутрикорпусных устройств на глубину примерно до 40 мкм от поверхности и создавать в этом слое высокую концентрацию (атомная доля  $\sim 1000$  атом гелия в год).

В термоядерных реакторах синтеза энергетический спектр нейтронов более жесткий, а большую часть потока нейтронов составляют нейтроны с энергией 14 МэВ. При такой высокой энергии на всех изотопах элементов стале преобладают реакции  $(n, 2n)$  и практически исчезают реакции радиационного захвата, сечения которых пропорциональны  $(\sqrt{E_n})^{-1}$ . Это обстоятельство изменяет направление эволюции элементного состава стале на противоположное по сравнению с аналогичной радиационной эволюцией стале в активных зонах реакторов деления.

Трансмутация элементов стале тепловыми нейтронами в реакциях  $(n, \gamma)$ , имеющих высокие сечения, в реакторах деления, увеличивает концентрацию более тяжелых изотопов и приводит к образованию следующих по номеру в Периодической системе химических элементов, например:



В термоядерном реакторе реакция  $(n, 2n)$  приводит к обратному направлению эволюции элементного состава стале, образуя более легкие изотопы и элементы с меньшим номером в Периодической системе:



В спектре нейтронов термоядерного реактора сечения реакций образования водорода и гелия примерно на 2 порядка выше, чем в реакторах деления. Она достигает более  $100 \cdot 10^{-27} \text{ см}^2$  (водород) и более  $40 \cdot 10^{-27} \text{ см}^2$  (гелий), что приводит к участию этих реакций в эволюции элементного состава облучаемого материала и возрастанию примерно на два порядка уровня их генерации, достигая для водорода 1000 арум в год. Этот уровень значительно возрастает, если сталь содержит никель ( $\sigma_p = 374 \cdot 10^{-27} \text{ см}^2$ ). Генерация газообразных атомов гелия приводит к уменьшению номера элемента-продукта в Периодической системе на две единицы:



Уровень генерации гелия в результате этих реакций достигает 200...300 арум в год.

Генерация новых элементов в ядерных реакциях зависит от концентрации элементов, входящих в состав сплавов, плотности потока нейтронов, сечения ядерных реакций и длительности облучения.

Образование твердых трансмутантов происходит в реакциях радиационного захвата тепловых и замедляющихся нейтронов и зависит от степени обогащения топлива. Вновь образованные элементы-трансмутанты, располагаясь в междоузельном пространстве матрицы, участвуют как в процессах первичного радиационного повреждения, так и в его эволюции (создание матричной радиационно-наведенной структуры, изменение размеров и концентрации выделений, их аморфизация и т.д.).

В энергетических ядерных технологиях следующего поколения (Generation IV) в электроядерных системах для генерации нейтронов будут использоваться ускорители частиц (электронов или протонов), заряженных на энергию от 100 до 1000 МэВ. В перспективе энергетический спектр нейтронов будет простирается до энергий 100 МэВ и более и сечения ядерных реакций трансмутации  $(n, 2n)$ ,  $(n, p)$  и  $(n, \alpha)$  возрастут, в связи с чем увеличится скорость трансмутационного изменения элементного состава сталей и уровень трансмутационного образования газообразных трансмутантов.

# ПРИЛОЖЕНИЕ

## Значения некоторых величин, характеризующих радиационные эффекты в твердых телах

Таблица 1

Потенциалы взаимодействия между бомбардирующими ионами и атомами

| Потенциал                  | Уравнение для $V(r) =$                                                               | Предел применимости                                               | Определения                                                                                                                                                         |
|----------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 1                          | 2                                                                                    | 3                                                                 | 4                                                                                                                                                                   |
| Твердых шаров              | $\begin{cases} 0 & \text{при } r > r_0, \\ \infty & \text{при } r < r_0 \end{cases}$ | $10^{-1} \text{ эВ} < T < 10^3 \text{ эВ}$                        | $r_0$ — размер атома                                                                                                                                                |
| Борна — Майера             | $A \exp(-r/B)$                                                                       | $10^{-1} \text{ эВ} < T < 10^3 \text{ эВ},$<br>$a_0 < r \leq r_e$ | $A, B$ определяются модулями упругости, $a_0$ — боровский радиус, $e$ — заряд электрона, $r_e$ — расстояние до минимума потенциальной энергии взаимодействия атомов |
| Простой кулоновский        | $Z_1 Z_2 e^2 / r$                                                                    | Легкие ионы с высокой энергией, $r \ll a_0$                       |                                                                                                                                                                     |
| Экранированный кулоновский | $\frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \exp\left(-\frac{r}{a}\right)$                                | Легкие ионы, $R < a_0$                                            | $a$ — радиус экранирования, $R$ — радиус иона                                                                                                                       |

| 1                  | 2                                                                                     | 3                      | 4                                                                                     |
|--------------------|---------------------------------------------------------------------------------------|------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------|
| Бринкмана (I)      | $\frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} e^{-r/a} \left(1 - \frac{r}{2a}\right)$                        | $r < a$                | $a \approx a_0 / Z^{1/3}$                                                             |
| Бринкмана (II)     | $\frac{AZ_1 Z_2 e^2 \exp(-Br)}{1 - \exp(-Ar)}$                                        | $Z > 25$               | $A = \frac{0,95 \cdot 10^{-6}}{a_0} Z_{eff}^{7/6},$<br>$B = Z_{eff}^{1/3} / (1,5a_0)$ |
| Фирсова            | $\frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \chi \left( (Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3} \frac{r}{a} \right)$ | $r \leq a_0$           | $\chi$ – экранирующая функция                                                         |
| Обратных квадратов | $\frac{2E_R}{\exp} (Z_1 Z_2)^{5/6} \left( \frac{a_0}{r} \right)^2$                    | $\frac{a}{2} < r < 5a$ | $E_R$ – энергия Ридберга                                                              |

Таблица 2

**Значения  $E_a$  и  $E_b$  для разных комбинаций бомбардирующих частиц  
и атомов мишени**

| Бомбардирующая частица | Атом мишени | $E_a$ , эВ       | $E_b$ , эВ        |
|------------------------|-------------|------------------|-------------------|
| C                      | C           | $2 \cdot 10^3$   | $8 \cdot 10^5$    |
| Al                     | Al          | $1 \cdot 10^4$   | $2 \cdot 10^7$    |
| Cu                     | Cu          | $7 \cdot 10^4$   | $1 \cdot 10^9$    |
| Au                     | Au          | $7 \cdot 10^5$   | $1 \cdot 10^{11}$ |
| Xe                     | U           | $5 \cdot 10^5$   | $3 \cdot 10^{10}$ |
| D <sup>+</sup>         | C           | $1,5 \cdot 10^2$ | $2 \cdot 10^3$    |
| D <sup>+</sup>         | Cu          | $1 \cdot 10^3$   | $2 \cdot 10^4$    |
| D <sup>+</sup>         | U           | $4 \cdot 10^3$   | $1 \cdot 10^5$    |

Таблица 3

**Некоторые характеристики радиационно-индуцированных дефектов  
в металлах**

| Параметр                           | Al                | Cu                | Pt        | Mo   | W                 |
|------------------------------------|-------------------|-------------------|-----------|------|-------------------|
| <i>Междоузлия</i>                  |                   |                   |           |      |                   |
| Энергия образования, эВ            | 3,2               | 2,2               | 3,5       | —    | —                 |
| Равновесная концентрация           | $10^{-18}$        | $10^{-7}$         | $10^{-6}$ | —    | —                 |
| Энергия миграции, эВ               | 0,12              | 0,12              | 0,06      | —    | 0,054             |
| <i>Вакансии</i>                    |                   |                   |           |      |                   |
| Энергия образования, эВ            | 0,66              | 1,27              | 1,51      | 3,20 | 3,80              |
| Энтродия образования, Дж/К         | 0,7               | 2,4               | —         | —    | 2,0               |
| Равновесная концентрация           | $9 \cdot 10^{-6}$ | $2 \cdot 10^{-6}$ | —         | —    | $4 \cdot 10^{-5}$ |
| Энергия миграции, эВ               | 0,62              | 0,80              | 1,43      | 1,30 | 1,80              |
| Энергия активации самодиффузии, эВ | 1,28              | 2,07              | 2,90      | 4,50 | 5,70              |
| <i>Пары Френкеля</i>               |                   |                   |           |      |                   |
| Энергия образования, эВ            | 3,9               | 3,5               | 5,0       | —    | —                 |

Таблица 4

**Преимущества и недостатки облучения материалов частицами разного типа**

| Тип частиц   | Преимущества                                                                                                                                                                                                                                                        | Недостатки                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |
|--------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Электроны    | Относительно простой источник (ПЭМ).<br>Высокая скорость дозы при кратковременном облучении                                                                                                                                                                         | Энергия ограничена 1 МэВ — каскады не образуются.<br>Высокая мощность дозы — высокая температура облучения (большой температурный сдвиг).<br>Слабый контроль температуры образца.<br>Резко выраженная форма распределения электронов в пучке по энергиям (распределение Гаусса).<br>Отсутствует возможность трансмутации |
| Тяжелые ионы | Высокая скорость дозы при кратковременном облучении.<br>Образование каскада                                                                                                                                                                                         | Малая глубина проникновения.<br>Энергия повреждений максимальна на определенной глубине пробега ионов.<br>Высокая мощность дозы — высокая температура облучения (большой температурный сдвиг).<br>Нет трансмутации. Возможно изменение состава при имплантации ионов                                                     |
| Протоны      | Небольшие дозы набираются за достаточно короткое время.<br>Низкая мощность дозы — невысокая температура облучения (небольшой температурный сдвиг).<br>Большая глубина проникновения.<br>Энергия повреждений постоянна на протяжении нескольких десятков микрометров | Незначительная активация образца.<br>Образование повреждений в виде изолированных пар Френкеля или малых кластеров.<br>Нет трансмутации                                                                                                                                                                                  |

Таблица 5

**Влияние несоответствия объемов атомов твердого раствора на радиационно-индуцированную сегрегацию**

| Раствор | Несоответствие объемов, % | Направление сегрегации |             |
|---------|---------------------------|------------------------|-------------|
|         |                           | предсказанное          | наблюдаемое |
| 1       | 2                         | 3                      | 4           |
| Pd—Cu   | —20                       | +                      | +           |
| Pd—Fe   | —27                       | +                      | +           |

| 1        | 2   | 3 | 4 |
|----------|-----|---|---|
| Pd–Mo    | –3  | + | + |
| Pd–Ni    | –26 | + | + |
| Pd–W     | –2  | + | + |
| Al–Ge    | –37 | + | + |
| Al–Si    | –45 | + | + |
| Al–Zn    | –19 | + | + |
| Fe–Cr    | +4  | – | – |
| Mg–Cd    | –19 | + | + |
| Ti–Al    | –3  | + | + |
| Ti–V     | –26 | + | + |
| Ni–Al    | +52 | – | – |
| Ni–Au    | +55 | – | – |
| Ni–Be    | –29 | + | + |
| Ni–Cr    | +1  | – | – |
| Ni–Ge    | –5  | + | + |
| Ni–Mn    | +32 | – | – |
| Ni–Mo    | +31 | – | – |
| Ni–Sb    | +21 | – | – |
| Ni–Si    | –16 | + | + |
| Ni–Ti    | +57 | – | – |
| Cu–Ag    | +44 | – | – |
| Cu–Be    | –34 | + | + |
| Cu–Fe    | –8  | + | + |
| Cu–Ni    | –7  | + | + |
| SS316–Ni | –3  | + | + |
| SS316–Cr | +5  | – | – |
| SS316–Si | –3  | + | + |
| SS316–C  | +54 | – |   |
| SS316–Mn | +3  | – | – |
| SS316–Mo | +36 | – | – |
| SS316–Cu | +9  | – |   |

**Радиационно-индуцированные фазовые выделения в непересыщенных  
бинарных сплавах**

| Сплав                 | Частица        | Выделение                      | Морфология                                                    |
|-----------------------|----------------|--------------------------------|---------------------------------------------------------------|
| MgCd                  | $e^-$          | $Mg_3CD$                       | —                                                             |
| AlZn                  | n              | $\beta - Zn$                   | Однородное выделение                                          |
|                       | $e^-$          | $\beta - Zn$                   | То же                                                         |
| AlAg                  | $e^-$          | (100) Ag-обогащенные пластинки | »                                                             |
| NiBe                  | $Ni^+$         | $\beta - NiBe$                 | На междоузельных дислокационных петлях                        |
|                       | $e^-$          | $\beta - NiBe$                 | Однородное выделение и на междоузельных дислокационных петлях |
| NiSi                  | n              | $\gamma' - Ni_3Si$             | На междоузельных дислокационных петлях                        |
|                       | $Ni^+$         | $\gamma' - Ni_3Si$             | То же                                                         |
|                       | $e^-$          | $\gamma' - Ni_3Si$             | »                                                             |
|                       | $H^+$          | $\gamma' - Ni_3Si$             | Когерентность, вызванная неоднородностью образования дефектов |
| NiGe                  | $e^-$          | $\gamma' - Ni_3Ge$             | В полостях и на дислокациях                                   |
| CuBe                  | $e^-$          | Зоны Генье – Престона          | Однородное выделение                                          |
|                       | $Cu^+$         | $\gamma$                       | На каскадах                                                   |
| PdMo                  | $Cu^+$         | Mo                             | На дислокационных петлях                                      |
| PdFe                  | $H^+$          | $\gamma' - Pd_3Fe$             | То же                                                         |
| PdW                   | $H^+ N^+ e^-$  | W                              | »                                                             |
| WRe                   | n              | $WRe_3, WRe$                   | Однородное выделение                                          |
| FeV                   | $e^-$          | Не определено                  | То же                                                         |
| FeCr                  | $e^-$          | То же                          | »                                                             |
| Разные тройные сплавы | n, ионы, $e^-$ | Изменения состава              | —                                                             |

Фазы, наблюдаемые в сплавах аустенитной стали после нейтронного облучения

| Фаза           | Кристаллическая структура                | Параметр решетки (нм)    | Морфология                |
|----------------|------------------------------------------|--------------------------|---------------------------|
| Индупирующая   | $\gamma'(\text{Ni}_3\text{Si})$          | 0,35                     | Сферическая               |
|                | $G(\text{M}_6\text{Ni}_{16}\text{Si}_7)$ | 1,12                     | Маленькие стержни         |
|                | $\text{M}_2\text{P}(\text{FeTiP})$       | 0,6<br>( $c/a = 0,6$ )   | —                         |
|                | $\text{Cr}_3\text{P}$                    | 0,92<br>( $c/a = 0,5$ )  | Тонкая пластинка          |
| Модифицирующая | $\eta(\text{M}_6\text{C})$               | 1,08                     | —                         |
|                | Фаза Лавеса ( $\text{A}_2\text{B}$ )     | 0,47<br>( $c/a = 0,77$ ) | Нарушенная пластинка      |
|                | $\text{M}_2\text{P}(\text{FeTiP})$       | 0,47<br>( $c/a = 0,77$ ) | То же                     |
|                | То же                                    |                          |                           |
| Ускоренная     | МС                                       | 0,43                     | Сферическая               |
|                | $\eta(\text{M}_6\text{C})$               | 0,43                     | То же                     |
|                | $\tau(\text{M}_{23}\text{C}_6)$          | 1,06                     | Ромбоэдрическая пластинка |
|                | Фаза Лавеса ( $\text{A}_2\text{B}$ )     | 1,06                     | То же                     |
|                | »                                        |                          |                           |
|                | Тетрагональная                           | 0,88<br>( $c/a = 0,52$ ) | Разная                    |
|                | $\chi$                                   | 0,89                     | То же                     |

Источники напряжения в различных частях реактора

| Компонент                                 | Сплав            | Тип реактора | Возможные источники напряжения |
|-------------------------------------------|------------------|--------------|--------------------------------|
| Оболочка твэла                            | SS304            | KBP (BWR)    | Распухание топлива             |
|                                           | SS304            | PWR          | То же                          |
|                                           | 20%Cr – 25%Ni–Nb | AGR          | »                              |
| Ободок оболочки твэла                     | 20%Cr – 25%Ni–Nb | SGHWR        | Производство                   |
| Держатели нейтронных источников           | SS304            | KBP (BWR)    | Сварка и распухание бериллия   |
| Поглощающие трубки регулирующих стержней  | 304/304L/316L SS | То же        | Распухание B <sub>4</sub> C    |
| Винты топливных связок                    | SS304            | »            | Производство                   |
| Заклепки толкателя регулирующих стержней  | SS304            | »            | То же                          |
| Ручка управляющей лопатки                 | SS304            | »            | Малые напряжения               |
| Оболочка управляющей лопатки              | SS304            | »            | То же                          |
| Управляющие лопатки                       | SS304            | PWR          | »                              |
| Листообразная управляющая лопатка         | SS304            | KBP (BWR)    | »                              |
| Различные болты/винты                     | A-286            | PWR и BWR    | Обслуживание                   |
| Винты сушильного барабана сепаратора пара | A-286            | KBP (BWR)    | То же                          |
| Болты крышки реактора                     | 600              | То же        | »                              |

|                               |                  |           |                                        |
|-------------------------------|------------------|-----------|----------------------------------------|
| Различные болты               | X-750            | PWR и BWR | »                                      |
| Болты опор направляющей трубы | X-750            | PWR       | »                                      |
| Болты эжектора                | X-750            | BWR       | »                                      |
| Различные пружины             | X-750            | PWR и BWR | »                                      |
|                               | 718              | PWR       | »                                      |
| Болты отражателей             | SS316 Cold-work  | То же     | Распухание                             |
| Кожух реактора                | 304/316/347/L SS | BWR       | Остаточные напряжения в сварочных швах |
| Верхняя направляющая          | SS304            | То же     | Малые напряжения (изгиб)               |

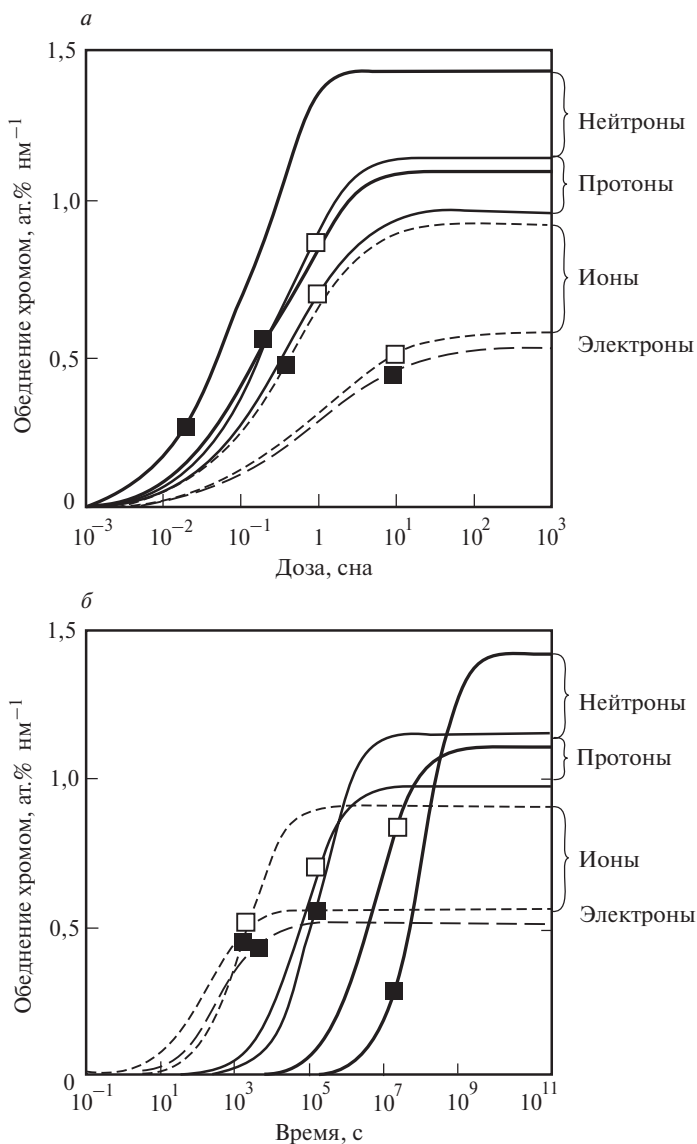


Рис. 1. Зависимость содержания хрома от дозы (а) и времени (б) облучения для частиц нескольких типов:

□ — нескорректированная скорость образования смещений, сна/с; ■ — скорректированная скорость образования смещений, сна/с

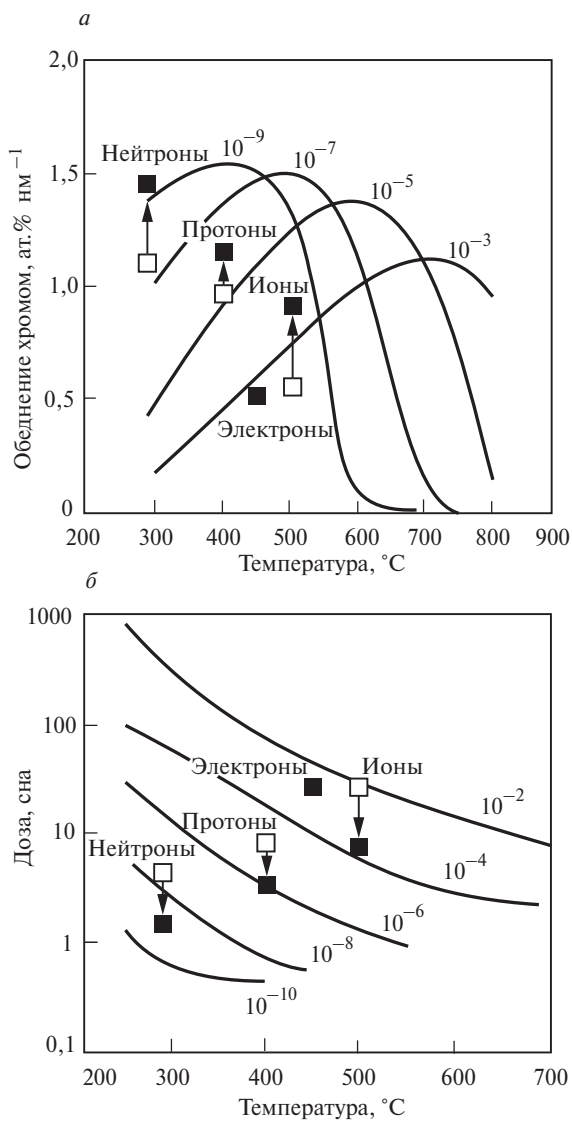


Рис. 2. Зависимость содержания хрома (а) и дозы облучения, необходимой для достижения стационарного состояния (б), от температуры, скорости дозы и эффективности частиц:

□, ■ — соответственно нескорректированная и скорректированная скорость образования смещений, сн/с

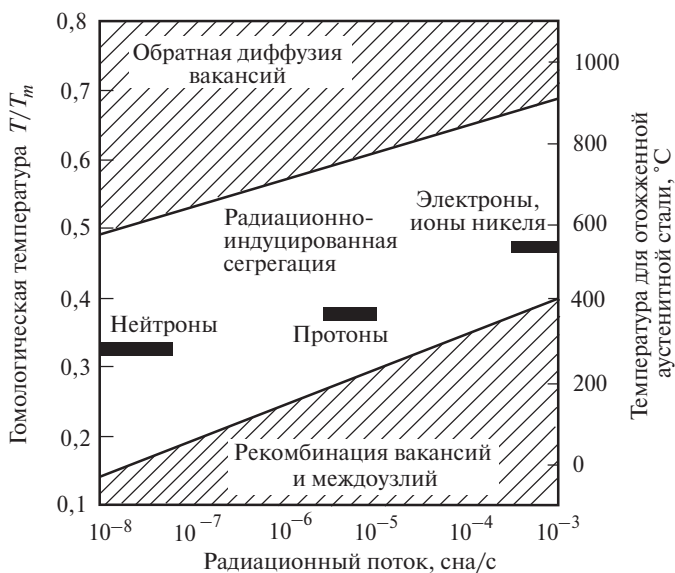


Рис. 3. Соотношение температуры и скорости набора дозы облучения в случае радиационно-индуцированной сегрегации

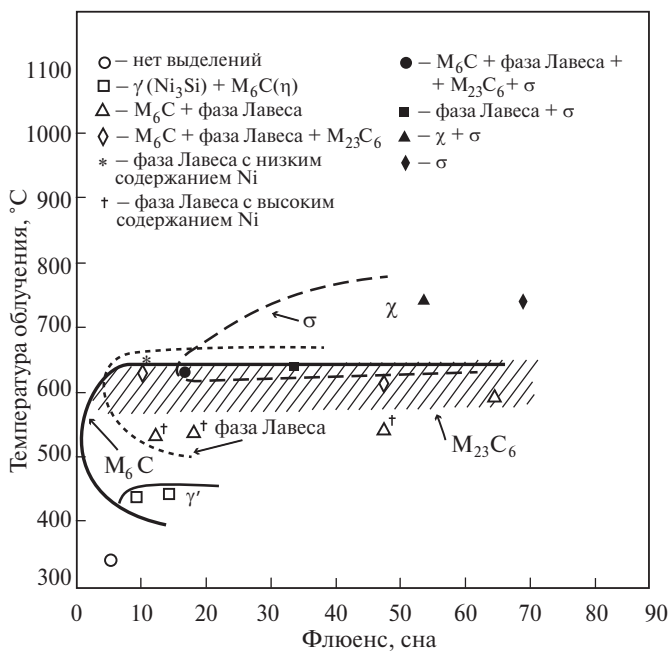
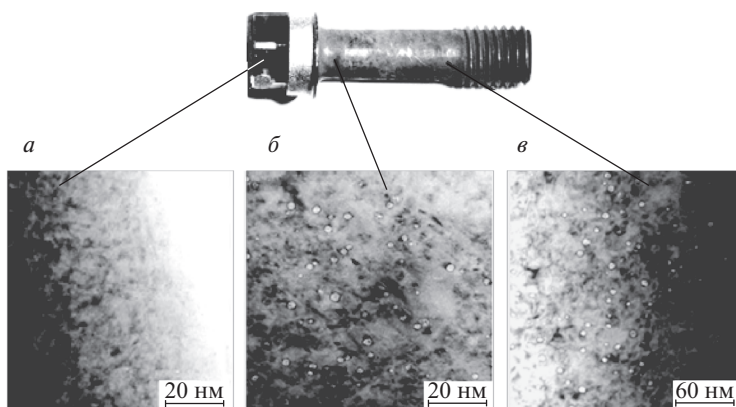
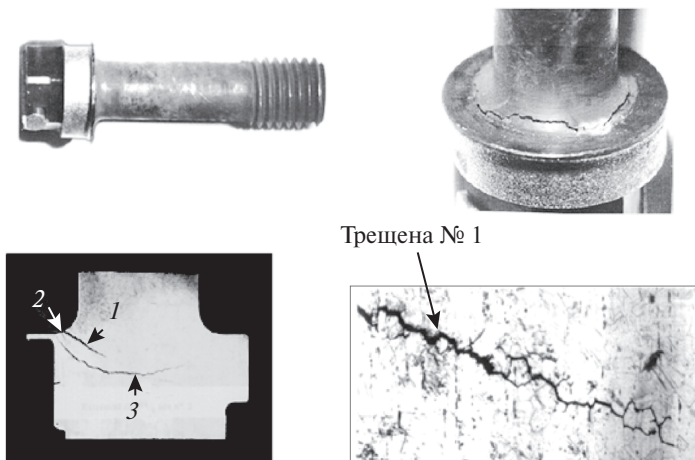


Рис. 4. Дозовая и температурная зависимости образования выделений фаз в отожженной коррозионно-стойкой стали SS316, облученной в реакторе HFIR



*Рис. 5.* Распухание в холодноедеформированном болте (сталь SS316) из ядерного реактора как функция от расстояния вдоль болта (головка болта находилась ближе к активной зоне):

*a* — поверхность головки болта, 19 сна, 320 °С; *б* — верх стержня, расстояние от поверхности 25 мм, 12,2 сна, 340 °С; *в* — около резьбы, расстояние от поверхности 55 мм, 7,5 сна, 330 °С



*Рис. 6.* Трещины в холодноедеформированном болте (сталь SS316) из ядерного реактора. В месте положения трещин полученная доза нейтронов составила 7 сна при температуре 310 °С

# ЛИТЕРАТУРА

## Основная

1. *Воеводин, В.Н.* Эволюция структурно-фазового состояния и радиационная стойкость конструкционных материалов / В.Н. Воеводин, И.М. Неклюдов. Киев, 2006.
2. *Достанко, А.П.* Модификация поверхности твердых тел в неравновесной газоразрядной плазме / А.П. Достанко, М.Н. Босяков, С.А. Кухарев. Минск, 1996.
3. *Зеленский, В.Ф.* Радиационные дефекты и набухание металлов / В.Ф. Зеленский, И.М. Неклюдов, Т.П. Черняева. Киев, 1988.
4. Ионно-лучевая обработка металлов, сплавов и керамических материалов / А.В. Белый [и др.]. Минск, 1998.
5. Пространственные распределения энергии, выделенной в каскаде атомных столкновений в твердых телах / А. Ф. Буренков [и др.]. М., 1985.
6. Таблицы параметров пространственного распределения ионно-имплантированных примесей / А.Ф. Буренков, [и др.] Минск, 1980.
7. Физическое материаловедение. В 7 т. Т. 4. Физические основы прочности. Радиационная физика твердого тела. Компьютерное моделирование / под ред. Б.А. Калина. М., 2008.
8. Эффекты дальнего действия в ионно-имплантированных металлических материалах / А.Н. Диденко [и др.]. Томск, 2004.
9. *Was, G.S.* Fundamentals of Radiation Materials Science. Metals and Alloys. / Gary S. Was.; Heidelberg, 2007.

## Дополнительная

10. *Аброян, И.А.* Физические основы электронной и ионной технологии / И.А. Аброян, А.Н. Андронов, А.И. Титов. М., 1984.
11. *Бойко, В.И.* Введение в физику взаимодействия сильноточных пучков заряженных частиц с веществом / В.И. Бойко, В.В. Евстигнеев. М., 1988.
12. *Домкус, М.* Механические напряжения в имплантированных твердых телах / М. Домкус, Л. Пранявичюс. Вильнюс, 1990.
13. *Келли, Б.* Радиационное повреждение твердых тел / Б. Келли. М., 1970.
14. *Кирсанов, В.В.* Процессы радиационного дефектообразования в металле / В.В. Кирсанов, А.Л. Суворов, Ю.В. Трушин. М., 1985.
15. *Комаров, Ф.Ф.* Ионная и фотонная обработка материалов / Ф.Ф. Комаров. Минск, 1998.
16. *Комаров, Ф.Ф.* Ионная имплантация / Ф.Ф. Комаров, А.П. Новиков, А.Ф. Буренков. Минск, 1994.
17. *Комаров, Ф.Ф.* Ионная имплантация в металлы / Ф.Ф. Комаров. М., 1990.

18. Перспективные радиационно-пучковые технологии обработки материалов / В.А. Грибков [и др.]; под общ. ред. Б.А. Калина. М., 2001.
19. Фазовые превращения при облучении / под ред. Ф. Нолфи. Челябинск, 1989.
20. *Черемской, Г.П.* Поры в твердом теле / П.Г. Черемской, В.В. Следов, В.И. Бетехтин. М., 1990.
21. *Шалаев, А.М.* Радиационно-стимулированное изменение электронной структуры / А.М. Шалаев, А.А. Адаменко. М., 1977.

# ОГЛАВЛЕНИЕ

|                                                                                              |           |
|----------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| Предисловие .....                                                                            | 3         |
| Список основных сокращений и обозначений .....                                               | 5         |
| <b>ГЛАВА 1. ПЕРВИЧНЫЕ ПРОЦЕССЫ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ<br/>ПРИ РАДИАЦИОННОМ ВОЗДЕЙСТВИИ .....</b>    | <b>7</b>  |
| 1.1. Физические основы процессов взаимодействия<br>ионизирующего излучения с веществом ..... | 7         |
| Общие сведения .....                                                                         | 7         |
| Флюенс .....                                                                                 | 8         |
| Физические основы первичных процессов .....                                                  | 9         |
| Атомные потенциалы взаимодействия .....                                                      | 10        |
| Смещение атомов из узлов кристаллической решетки .....                                       | 11        |
| 1.2. Характеристика степени радиационных повреждений .....                                   | 13        |
| 1.3. Облучение нейтронами .....                                                              | 15        |
| 1.4. Облучение ионами .....                                                                  | 17        |
| 1.5. Облучение электронами .....                                                             | 21        |
| 1.6. Облучение $\gamma$ -квантами .....                                                      | 23        |
| <b>ГЛАВА 2. ОБРАЗОВАНИЕ ДЕФЕКТОВ И ИХ СКОПЛЕНИЙ<br/>ПРИ РАДИАЦИОННОМ ВОЗДЕЙСТВИИ .....</b>   | <b>25</b> |
| 2.1. Простейшие типы повреждений и их эволюция .....                                         | 25        |
| Общие сведения .....                                                                         | 25        |
| Простейшая модель расчета $\nu(T)$ .....                                                     | 27        |
| Модель Кинчина – Пизе .....                                                                  | 28        |
| Модификация модели Кинчина – Пизе<br>(нарушение условия 3) .....                             | 29        |
| Модификация модели Кинчина – Пизе<br>(нарушение условия 5) .....                             | 30        |
| Модель Линдхарда .....                                                                       | 30        |
| ТРН-стандарт .....                                                                           | 31        |
| 2.2. Фокусировка и каналирование пучков частиц в кристалле .....                             | 32        |
| 2.3. Особенности каскада столкновений при облучении<br>различного типа .....                 | 37        |
| 2.4. Кластеры .....                                                                          | 41        |
| 2.5. Взаимодействие дефектов .....                                                           | 45        |

|                                                                                                                           |           |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| Общие сведения .....                                                                                                      | 45        |
| Отжиг радиационных дефектов .....                                                                                         | 46        |
| Зарождение и рост дислокационных петель .....                                                                             | 48        |
| <b>ГЛАВА 3. РАДИАЦИОННО-ИНДУЦИРОВАННЫЕ<br/>И РАДИАЦИОННО-СТИМУЛИРОВАННЫЕ ПРОЦЕССЫ<br/>И ЯВЛЕНИЯ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ .....</b> | <b>51</b> |
| 3.1. Диффузия и перераспределение атомов .....                                                                            | 51        |
| Механизмы диффузии .....                                                                                                  | 51        |
| Радиационно-стимулированная диффузия .....                                                                                | 53        |
| Особенности диффузии в поликристаллах .....                                                                               | 55        |
| 3.2. Сегрегация, рафинирование и геттерирование примесей,<br>очистка от них материалов .....                              | 56        |
| Сегрегация .....                                                                                                          | 56        |
| Механизмы сегрегации .....                                                                                                | 56        |
| Простейший пример сегрегации .....                                                                                        | 58        |
| Влияние стоков на сегрегацию .....                                                                                        | 60        |
| Сегрегация в аустенитных и ферритных сталях .....                                                                         | 61        |
| Рафинирование .....                                                                                                       | 66        |
| Геттерирование примесей .....                                                                                             | 69        |
| 3.3. Фазовые превращения .....                                                                                            | 70        |
| Общие сведения .....                                                                                                      | 70        |
| Аустенитные стали .....                                                                                                   | 73        |
| Ферритные стали .....                                                                                                     | 75        |
| Механизмы эволюции выделений вторых фаз .....                                                                             | 77        |
| 3.4. Распухание и порообразование .....                                                                                   | 78        |
| Общие сведения .....                                                                                                      | 78        |
| Распухание в уране .....                                                                                                  | 80        |
| Распухание в металлах и сплавах .....                                                                                     | 83        |
| Зависимость распухания от температуры облучения .....                                                                     | 84        |
| Зависимость распухания от дозы .....                                                                                      | 86        |
| Зависимость распухания от скорости повреждения .....                                                                      | 88        |
| Влияние структуры первичных радиационных повреждений<br>на распухание материалов .....                                    | 89        |
| Влияние кристаллического строения металлов<br>на порообразование .....                                                    | 90        |
| Роль дислокационной структуры в порообразовании .....                                                                     | 90        |
| Влияние двухмерных протяженных дефектов<br>на порообразование в материалах .....                                          | 92        |
| Влияние напряжений на распухание материалов .....                                                                         | 92        |

|                                                                                           |     |
|-------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| Роль нестационарных полей температуры и радиации<br>в развитии пористости .....           | 94  |
| Влияние газов на порообразование в материалах .....                                       | 95  |
| Форма и упорядочение пор .....                                                            | 97  |
| Способы уменьшения распухания .....                                                       | 98  |
| 3.5. Радиационный рост .....                                                              | 99  |
| 3.6. Блистеринг и флекинг .....                                                           | 114 |
| Общие сведения .....                                                                      | 114 |
| Природа образования блистеров .....                                                       | 115 |
| Основные закономерности радиационного блистеринга ....                                    | 118 |
| 3.7. Распыление поверхности материалов при ионном<br>облучении .....                      | 120 |
| Общие сведения .....                                                                      | 120 |
| Физическое распыление .....                                                               | 121 |
| Химическое распыление .....                                                               | 125 |
| 3.8. Трекообразование .....                                                               | 125 |
| Механизмы трекообразования .....                                                          | 125 |
| Металлы .....                                                                             | 127 |
| Полупроводники .....                                                                      | 130 |
| 3.9. Дальнодействие .....                                                                 | 132 |
| Общие сведения .....                                                                      | 132 |
| Эффект дальнодействия в металлах .....                                                    | 132 |
| Механизмы дальнодействия .....                                                            | 134 |
| 3.10. Напряжения и деформация .....                                                       | 137 |
| Статические и динамические напряжения .....                                               | 137 |
| Остаточные напряжения .....                                                               | 139 |
| 3.11. Радиационное упрочнение и охрупчивание .....                                        | 144 |
| Общие сведения .....                                                                      | 144 |
| Влияние флюенса и типа бомбардирующих частиц<br>на степень радиационного упрочнения ..... | 145 |
| Влияние энергии бомбардирующих частиц на степень<br>упрочнения металлов .....             | 147 |
| Влияние температуры облучения на степень упрочнения<br>металлов .....                     | 148 |
| Низкотемпературное радиационное охрупчивание .....                                        | 150 |
| Высокотемпературное радиационное охрупчивание .....                                       | 151 |
| Механизмы ВТРО .....                                                                      | 151 |
| Зависимость ВТРО от условий облучения .....                                               | 153 |
| Способы уменьшения ВТРО .....                                                             | 155 |
| 3.12. Радиационная ползучесть .....                                                       | 156 |

|                                                                                                       |     |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| 3.13. Электролизация .....                                                                            | 161 |
| 3.14. Трансмутация .....                                                                              | 163 |
| Приложение. Значения некоторых величин,<br>характеризующих радиационные эффекты в твердых телах ..... | 169 |
| Литература .....                                                                                      | 183 |

Учебное издание

**Углов Владимир Васильевич**

**РАДИАЦИОННЫЕ ПРОЦЕССЫ И ЯВЛЕНИЯ  
В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ**

Учебное пособие

Редактор *Е.В. Малышева*

Художественный редактор *Т.В. Шабунько*

Технический редактор *А.Н. Бабенкова*

Корректор *Т.К. Хваль*

Компьютерная верстка *А.Н. Бабенковой*

Подписано в печать 12.08.2016. Формат 84×108/32. Бумага офсетная.

Гарнитура «NewtonС». Офсетная печать. Усл. печ. л. 10,08.

Уч.-изд. л. 10,7. Тираж 300 экз. Заказ 2009.

Республиканское унитарное предприятие «Издательство “Вышэйшая школа”».

Свидетельство о государственной регистрации издателя, изготовителя,  
распространителя печатных изданий № 1/3 от 08.07.2013.

Пр. Победителей, 11, 220048, Минск.

e-mail: [market@vshph.com](mailto:market@vshph.com) <http://vshph.com>

Открытое акционерное общество «Типография “Победа”».

Свидетельство о государственной регистрации издателя, изготовителя,  
распространителя печатных изданий № 2/38 от 29.01.2014.

Ул. Тавлая, 11, 222310, Молодечно.