

ІНСТИТУТ
ФІЗИКИ
КОНДЕНСОВАНИХ
СИСТЕМ

ICMP-02-22U

М.В.Токарчук, В.В.Ігнатюк, Й.А.Гуменюк

ВПЛИВ ІОНІЗУЮЧОГО ОПРОМІНЕННЯ НА ЯВИЩА
ПЕРЕНОСУ В ЛПВМ: ВРАХУВАННЯ МЕХАНІЗМІВ
РАДІАЦІЙНО-ІНДУКОВАНОЇ ТЕРМОАКТИВАЦІЇ

УДК: 536.413, 5393, 539.213

PACS: 61.72.-y, 61.72.Q, 61.80.-x, 66.30.Lw

Вплив іонізуючого випромінювання на явища переносу в ЛПВМ: врахування механізмів радіаційно-індукованої термоактивації

М.В.Токарчук, В.В.Ігнатюк, Й.А.Гуменюк

Анотація. Розглядається природа в'язкої текучості стекол в контексті валентно-конфігураційної теорії. На прикладах моделей випадково упорядкованих сфер та локально регулярних кластерів аналізується перебіг процесів дефектоутворення в стеклах ЛПВМ. Проведено дослідження температури розм'ягшення ЛПВМ внаслідок терморадіаційної активації в'язкої текучості лав на початкових етапах аварії на 4-му блоці ЧАЕС.

The influence of irradiation on transport processes in lava-like fuel-containing masses: mechanism of radiation induced thermoactivation

M.V.Tokarchuk, V.V.Ignatyuk, J.A.Humenyuk

Abstract. One has considered the nature of viscous fluidity of the glasses in the context of valence-configuration theory. The processes of defect creation in the lava-like fuel-containing masses are analyzed on the basis of the models of random packed spheres and locally regular clusters. Investigation of the softening temperature of lavas due to thermo-radiation activation of viscous fluidity at the beginning of the disaster on the Unit 4-th of Chornobyl Nuclear Power Plant is carried out.

1. Вступ

У зв'язку з розвитком ядерної енергетики виникла необхідність вивчення властивостей речовини в умовах агресивного середовища (високі поля радіації, температури, значні механічні напруження). З одного боку це дає можливість створювати матеріали, які б забезпечували надійну роботу приладів в усьому діапазоні згаданих факторів, з іншого – появляється можливість прогнозування поведінки конструкційних матеріалів в аномальних умовах, які є в об'єкті “Укриття” (ОУ) Чорнобильської АЕС. Слід зауважити, що дослідження властивостей ЛПВМ в умовах, що склались на момент аварії, а також в післяаварійний період має як прикладний, так і теоретичний аспект. В першому випадку на основі тих чи інших модельних уявлень можна оцінити, наприклад, швидкість та інтенсивність розтікання гарячих лав в перші дні після аварії, що в поєднанні з моделюванням цього процесу в фізико-механічних умовах ОУ (певне розміщення конструкцій, комунікацій, поля температури та радіації) дасть змогу передбачити знаходження ЛПВМ певних приміщеннях ОУ, а також оцінити їх теперішній стан і дати прогноз щодо ступеня зруйнованості. Стосовно другого аспекту необхідно сказати, що накопичення експериментальних даних, в свою чергу, дасть можливість краще зрозуміти фізику терморадіаційного руйнування склоподібних ЛПВМ. Звідси ж виникає цілий ряд цікавих задач, пов'язаних з вивченням структури таких екзотичних об'єктів, як коричнева та поліхромна лави ОУ на основі уявлень про терморадіаційне дефектоутворення. Відомо [1,2], що навіть на 10-15 день після аварії пониження температури розм'ягшення склоподібних ЛПВМ за рахунок вищезгаданого ефекту терморадіаційної в'язкості становило понад 60^0 С, тобто текучість лав при інших рівних температурних умовах більш ніж на порядок перевищувала значення, які реєструє експеримент на даний час. Саме ця обставина стала тим додатковим фактором, що обумовив поширення ЛПВМ в ОУ на значні відстані від місця їх формування. Крім того, добре спостережувані потоки лави з труб пароскидних клапанів вказують на достатньо високу температуру при аварії, в той час, як стан відповідних металоконструкцій дозволяє говорити про порівняльно невисоку температуру потоків ЛПВМ. Очевидно, що більш детальні теоретико-розрахункові оцінки ефекту терморадіаційної в'язкості в ЛПВМ можуть дати вихідні дані для уточнення міцностних характеристик конструкційних матеріалів в ОУ.

Зрозуміло, що в'язкість не є єдиним фактором, який би повністю

дозволяв описувати поведінку ЛПВМ в умовах ОУ. Поряд з нею терморадіаційна активація впливає на такі термодинамічні характеристики, як теплопровідність, коефіцієнт температурного розширення, температуру кристалізації, а також на ряд динамічних (кінетичних) величин: теплопровідність, коефіцієнти дифузії тощо. Саме в комплексі усіх цих характеристик можливе адекватне моделювання динаміки ЛПВМ. Найбільш пристально увага саме до в'язких характеристик ЛПВМ пояснюється певною простотою в побудові теоретичних моделей її поведінки а також безумовною важливістю вивчення саме цього коефіцієнта переносу для прогнозування поширення ЛПВМ в приміщеннях ОУ.

В наступних розділах ми зупинемось більш детально на природі в'язкої текучості склоподібних ЛПВМ в рамках валентно-конфігураційної теорії; далі буде розглянуто основні моменти радіаційного дефектоутворення в аморфних матеріалах, яскравим прикладом яких служать склоподібні ЛПВМ; насамкінець, на основі модельних уявлень про терморадіаційну активацію дефектоутворень буде отримано вираз для температури склування ЛПВМ.

2. Природа в'язкої текучості стекел в контексті валентно-конфігураційної теорії

Відомо, що такі неупорядковані структури як стекла в широкому діапазоні температур можуть описуватись в рамках теорії Френкеля [3,4]. Остання стверджує, що ймовірність перескоку частинки розплаву скла W_T в сусіднє положення, зумовлене локальним впорядкуванням сусідніх атомів, має обернену експоненційну залежність від температури:

$$W_T = \exp\left(-\frac{U_a}{k_B T}\right), \quad (1)$$

де величина U_a має назву енергії активації. Для стекел ЛПВМ ОУ ця величина є досить значною, порядку 10^2 ккал/моль. Саме велике значення U_a відрізняє розплави стекел від рідин, в яких висота бар'єру U_a значно нижча, проте і спостережувальні температури T є невисокими.

Постулюючи, що добуток дебаївської частоти коливних збуджень матриці скла Ω_D на час знаходження частинки в положенні локальної рівноваги є значно більшим за одиницю ($\Omega_D \tau \gg 1$), а також виходячи з того, що саме τ є обернено пропорційним ймовірності перескоку

W_T , запишемо вираз для в'язкості $\eta(T)$ (остання пропорційна часу локалізації τ):

$$\eta(T) = \eta_0 \exp\left(\frac{U_a(T)}{k_B T}\right). \quad (2)$$

В рівнянні (2) ми спеціально виділили температурну залежність енергії активації $U_a(T)$, оскільки остання має різну поведінку нижче температури склування T_g (при $T < T_g$ скло має структуру замороженого безладу), та в діапазоні $T > T_g$ (зауважимо також, що температура склування нижча від температури плавлення $T_{пл}$; при $T > T_g$ скло являє собою метастабільну структуру). Саме стрибок енергії активації в поєднанні з багатокомпонентністю ЛПВМ обумовлює злам в температурній залежності $\eta(T)$ коричневої лави [2] в околі температури склування $T_g = 1040K$.

В роботі [5] було зроблено припущення, що ефективно переключення валентних зв'язків, яке вимагає вище T_g постійної енергії U_a^0 , можливе лише при додатковому конфігураційному розупорядкуванні структури в околі місця переключення, котре, в свою чергу, вимагає енергії $U_{ak}(T)$. Оціночно, область переключення валентних зв'язків містить ~ 100 атомів.

Вартує виділити два випадки, що відрізняються послідовністю розподілу енергії активації. В першому з них вся енергія $U_a(T) = U_a^0 + U_{ak}(T)$ концентрується в області з Z атомів (структурних груп). Відбувається конфігураційна перебудова структури, а переключення зв'язків іде всередині цієї області. Переключення полегшене тим, що при атомних зміщеннях суттєво міняються їх координати і потенційний бар'єр зменшується до певного мінімального рівня U_a^0 . В другому випадку попереднього конфігураційного розрихлення не відбувається. Зміщення атома в пружному середовищі збуджує стани електронів хімічних зв'язків оточення і, ймовірно, приводить до пружної деформації в оточенні атома. Ця деформація пов'язана зі зміною ентропії. Внаслідок відсутності попереднього розрихлення структури скла координати атомів міняються незначно, і, відповідно, пониження енергії активації немає.

В загальному випадку для енергії активації можна записати наступне рівняння:

$$U_a(T) = U_a^0 + U_{ak}(T) = U_a^0 + Z \Delta G_k(T - T_1), \quad (3)$$

$\Delta G_k(T - T_1)$ - абсолютне значення конфігураційної складової енергії в інтервалі температур $T - T_1$ на один моль структурних ланок зразка; T_1 - температура, при котрій міра розупорядкування така сама,

як потрібна для перемикання валентних зв'язків, при чому $T_1 > T_{пл}$. По мірі зростання температури значення ΔG_k зменшується. Як правило, зміна конфігураційної енергії прив'язана до експериментально спостережуваного стрибка теплоємності [6].

Нехай система при постійному тиску знаходиться в стані метастабільної рівноваги. Її теплоємність визначається конфігураційною складовою $C_{pk}(T)$ та фонною складовою $C_{пф}(T)$. Стану при $T = T_g$ відповідає рівноважне значення узагальненого внутрішнього параметра порядку ξ_{T_g} . При $T > T_g$ значення $\xi(T)$ також є рівноважним.

Припустимо, що система переведена в новий стан при $T = T_i < T_g$, а параметр порядку залишився на рівні $\xi_{T_g} = \xi(T_g)$. Додаткової релаксації теплоємності, пов'язаної з появою нової метастабільної структури (з новим значенням параметра ξ) немає, і теплоємність залишається на рівні фонної складової $C_{пф}(T_i)$, тобто $C_{pk}(T) = 0$ при $T < T_g$.

Аналогічним чином можна ввести поняття конфігураційної складової ентропії $S_k(T)$. Було показано [6], що в області метастабільних станів $\Delta G_k(T - T_1)$ зв'язана з приростом конфігураційної ентропії $\Delta S_k = S_k(T_1) - S_k(T)$ посередком співвідношення:

$$\Delta G_k^I(T - T_1) = \int_T^{T_1} [S_k(T_1) - S_k(T')] dT' = \int_T^{T_1} dT' \int_{T'}^{T_1} \frac{C_{pk}(T'')}{T''} dT'', \quad (4)$$

(індекс I ми прив'язали до першого випадку активації, про що йшлося на попередній сторінці). В області нерівноважного замороженого безладу ($T < T_g$, другий різновид активації) зміна $\Delta G_k^{II}(T - T_1)$ становить

$$\Delta G_k^{II}(T - T_1) = \int_T^{T_1} S_k(T') dT' = \int_T^{T_1} dT \int_{T_g}^T \frac{C_{pk}(T')}{T'} dT'. \quad (5)$$

З останніх трьох співвідношень видно, що при температурі склування T_g різко міняється вклад в енергію активації, обумовлений U_a^0 та $U_{ak}(T)$. Нижче T_g U_{IIa}^0 велика, $U_{ak}(T)$ - дуже мала; вище температури склування U_{Ia}^0 - мала, а $U_{ak}(T)$ - велика і падає з ростом температури.

Корисно також оцінити похідні вільної енергії активації за тиском. Оскільки $\left(\frac{\partial U_a}{\partial p}\right)_T = \Delta V_a$ - активаційний об'єм і $\left(\frac{\partial \Delta S}{\partial p}\right)_T =$

$\left(\frac{\partial \Delta V}{\partial T}\right)_p$, з рівнянь (3)-(5) отримаємо:

$$\left(\frac{\partial U_a}{\partial p}\right)_T = \frac{\partial U_a^0}{\partial p} + \frac{\partial}{\partial p} \int_T^{T_1} [S_k(T_1) - S_k(T')] dT' = \Delta V_I^0 + \Delta V_k^{\text{крит}}(T - T_1) - \Delta V_k(T) \quad (6)$$

для флуктуацій I типу та

$$\left(\frac{\partial U_a}{\partial p}\right)_T = \frac{\partial U_a^0}{\partial p} + \frac{\partial}{\partial p} \int_T^{T_1} S_k(T') dT' = \Delta V_{II}^0 + \Delta V_k(T) \quad (7)$$

для флуктуацій II типу.

В (6)-(7) ΔV_I^0 та ΔV_{II}^0 - активізаційні прирости об'єму, що відповідають безентропійній в'язкості ($\Delta S = 0$); в рівнянні (6) $\Delta V_k^{\text{крит}}(T - T_1) - \Delta V_k(T)$ - флуктуаційний приріст конфігураційної складової об'єму від середньостатистичного рівня до певного критичного, мінімально необхідного значення. Таким чином, при флуктуаціях $\Delta G_k^I(T > T_g)$, коли переключаються валентні зв'язки, початково досягається певне критичне розрихлення структури, що потребує додаткового критичного об'єму $\Delta V_k^{\text{крит}}(T - T_1)$, а при флуктуаціях $\Delta G_k^{II}(T < T_g)$ такого розрихлення немає. Можна допустити, що при $T < T_g$ первинною стадією активації є відхилення атома від рівноваги, при цьому середовище залишається пружним. Сприятлива (для переключення валентних зв'язків) зміна форми потенційної кривої при малій зміні об'єму проявляється в незначній мірі, що веде до відносно великих значень U_{IIa}^0 . При $T > T_g$, очевидно, певне критичне розрихлення відбувається до того, перш ніж міняються зв'язки, і внаслідок незначних змін об'єму U_{IIa}^0 мала.

Таким чином, вдається пояснити відхилення поведінки в'язкості від відомого закону Арреніуса [2] з точки зору міри стабілізації структури скла. Принагідно зауважимо, що ми ще раз повернемося до поняття активізаційного збільшення об'єму в четвертому розділі, коли будемо оцінювати терморадіаційну в'язкість стеклокристалічних ЛПВМ в рамках моделі випадково упакованих сфер [7] та моделі вільного об'єму [7,8].

3. Природа радіаційного дефектоутворення в аморфному середовищі

Як вже неодноразово зазначалось, склоподібні ЛПВМ, що утворились внаслідок аварії на четвертому блоці ЧАЕС, мають досить складну хімічну та композиційну структуру [1]. Експериментальні дані дозволяють стверджувати, що матриці вивчених типів ЛПВМ не мають кристалічної структури, а являють собою аморфне скло або склокристалічний матеріал з притаманним йому включенням кристалічної фази (ситалове скло) [2]. Хоча в останні роки досягнуто значних успіхів у вивченні радіаційно стимульованого дефектоутворення в таких аморфних середовищах [7,8], загальноприйнятої картини фізики радіаційно активованих процесів переносу в стеклах немає.

Як правило, для вивчення динаміки дефектоутворення доводиться вибирати певну ідеалізовану модель. Однією з таких найчастіше вживаних моделей є випадково упаковані сфери (ВУС) [9]. Особливо ефективною ця модель є при дослідженні стеклокристалічних, в яких їх складові значно відрізняються за розмірами. Іншою моделлю, яка використовується при вивченні більш впорядкованих структур, є локально регулярні кластери (ЛРК). І хоча фізика радіаційного дефектоутворення в обидвох випадках є різною, спільною рисою є двохетапний механізм релаксації внутрішніх пошкоджень.

На першому етапі, який триває ~ 10 ps, відбувається радіаційно активоване "вибивання" певного атома з подальшим непружним зміщенням. Після цього настає другий (кінетичний) етап структурної релаксації утворених дефектів.

У моделі ВУС стійкі френкелівські пари [3,4] не утворюються, оскільки вакансії та заміщення не мають стабільної структури. Згадані дефекти мають назву точкових і є стійкими в полікластерних моделях [7]. Щодо ВУС, то єдиними стійкими дефектами є дефекти типу "збіднена зона" (т.зв. n-типу) та "локальне збільшення густини" (p-тип). Відтак, на відміну від кристалічних твердих тіл, структура ВУС не має чітко вираженої порогової енергії атомного зміщення; непружна структурна перебудова частинок скла є результатом флуктуаційного збільшення об'єму за рахунок накопичення енергії деформації. В наступному розділі ми також розглянемо термоактивований ріст флуктуаційних об'ємів.

Зауважимо, що в структурах ВУС можуть формуватись цілі каскади атомів зміщення, якщо первинний атом має достатньо велику енергію. Кількість атомів зміщення всередині каскаду може бути

значною, але малоімовірне утворення “зони збіднення” в оточенні дефектів включення, оскільки формування направлених дефекто-творних потоків є неможливим у випадково впорядкованій структурі.

На кінетичній стадії еволюції можна прийняти дифузійну картину міграції р- та п-дефектів. Позначивши $\tilde{n}(r, t) = n(r, t) - \bar{n}$ флуктуацію локальної густини навколо рівноважного значення \bar{n} , запишемо

$$\frac{\partial \tilde{n}(r, t)}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial r} D \frac{\partial}{\partial r} \tilde{n}(r, t) = g(r, t). \quad (8)$$

Функція $g(r, t)$ описує утворення флуктуацій густини під дією радіації; її максимум досягається на відстанях порядку кількох міжатомних. Крім того, $g(r, t)$ пропорційна до частоти утворення первинних атомів деформації, іншими словами – до активності розпаду.

Коефіцієнт дифузії D можна визначити в рамках моделі вільного об'єму (ВО) [8,10]:

$$D = \frac{\nu a^2}{6} \exp\left(-\frac{V_f^*}{V_f}\right), \quad (9)$$

тут a – міжатомна відстань, ν – частота осциляцій атомів, V_f – вільний об'єм в матриці скла, V_f^* – об'єм дефектоутворення. Модифікувавши D заміною $V_f \rightarrow V_f(r, t) = n^{-1}(r, t) - V_f^*/N$, отримаємо нелокальний коефіцієнт дифузії згідно рівняння (9). Зрозуміло, що коли V_f стає від'ємним ($n^{-1}(r, t) < V_f^*/N$), то дифузія в даній області неможлива.

Загальним підсумком вищесказаного є те, що радіація може формувати флуктуації густини в стеклах з ВУС структурою. Вона змінює коефіцієнти переносу (дифузійність, в'язкість), але в загальному такі стекла є стійкими по відношенню до випромінювання. Задаючи певний просторово-часовий розподіл $g(r, t)$ (нагадаємо, що функція $g(r, t)$ пропорційна до активності випромінювання), можна розв'язати рівняння дифузії (8). Відтак, скориставшись рівнянням (9) та співвідношенням Ейнштейна

$$D = \frac{k_B T}{6\pi\eta r_0} \quad (10)$$

для зв'язку між коефіцієнтом дифузії D та в'язкістю, можна отримати оцінку для η . Зрозуміло, що на даному етапі стану ЛПВМ модель Стокса для в'язкої дифузії є незастосовною, проте на первинних

етапах, коли лави були в гарячому розплаві, співвідношення (8)-(10) повинні давати хороші результати.

Що стосується структур типу ЛРК, то модельні кінетичні рівняння

$$\frac{\partial C_{i,v}}{\partial t} - D_{i,v} \frac{\partial^2}{\partial r^2} C_{i,v} = K - g_{iv} C_i C_v \quad (11)$$

описуватимуть зміну концентрацій вакансій (C_v) або включень (C_i) шляхом дифузії вакансій D_v та включень D_i , швидкості утворення дефектів K (пропорційна до інтенсивності випромінювання), а також рекомбінації з швидкістю g_{iv} між вакансіями та включеннями. Для більш детального аналізу (11) слід задати енергії активації точкових дефектів всередині координаційного багатогранника моделі ЛРК (аналога координаційної сфери в рідинах), а також граничні умови, які в моделі локально регулярного кластера грають роль “пастки-поглиначка” для точкових дефектів. На даному етапі ми обмежимося експлуатацією ВУС структури, тому подальший аналіз кінетики дефекто-утворень в ЛРК проводити не будемо.

4. Терморадіаційна активація в'язкої текучості стекол

Розглянемо випадок, коли на склоподібну матрицю одночасно діють висока температура та випромінювання. Будемо вважати, що склотвірні частинки є взаємодіючими сферами однакового радіусу і відрізняються лише об'ємом мікропустот v_h , які вони займають. Відтак, їх можна розбити на групи n_i , в кожній з котрих об'єм мікропустот становить v_i . Тоді для розподілу частинок за вільними об'ємами можна записати:

$$dn = 1/v_f \exp\left(-\gamma \frac{v}{v_f}\right) dv, \quad (12)$$

де $v_f = V_f/N$ – середній вільний об'єм на одну частинку; $v \geq v_0$ – об'єм, необхідний для переходу кінетичної частинки в метастабільний стан, а v_0 – мінімальний вільний об'єм для переходу; γ – фактор перекриття вільних об'ємів ($0.5 \leq \gamma \leq 1$) [8], який залежить від дисперсності скляної матриці і близький до одиниці у випадку щільної упаковки частинок.

Доля частинок з об'ємом більшим за критичний v_0 становить

$$W_v = \int_{v_0}^{\infty} dn = \exp\left(-\gamma \frac{v_0}{v_f}\right). \quad (13)$$

При підвищенні температури в склі зростає інтенсивність теплових коливань атомів, що веде до росту флуктуаційного об'єму. В моделі ВО його пов'язують безпосередньо з фононною функцією розподілу на енергії утворення флуктуаційних мікропустот E_h :

$$\frac{v_f}{v_0} = \frac{1}{\exp(E_h/k_B T) - 1}. \quad (14)$$

При високих температурах та помірних тисках рухливість частинок визначається механізмом Френкеля: ймовірністю перескоку кінетичної частинки в створену мікропустоту, див. рівняння (1). Отже, сумарна ймовірність термоактивації

$$W_{TA} = W_v W_T = \exp\{-\gamma [\exp(E_h/k_B T) - 1]\} \exp\left(-\frac{U_a}{k_B T}\right). \quad (15)$$

При радіаційному опроміненні частинка перестрибує в готову мікропустоту не внаслідок френкелівської термоактивації, а шляхом радіаційного дефектоутворення (функція $g(r, t)$ в правій частині рівняння (8)). Вважаючи, що підпорогова енергія дефектоутворення зумовлена безвипромінювальним розпадом електронних збуджень (внаслідок пружних деформацій), запишемо вираз для ймовірності надання частинці скла енергії, достатньої для її перескоку:

$$W_E = P_{ex} \alpha E, \quad (16)$$

де P_{ex} - ймовірність автолокалізації електронних збуджень, α - ймовірність утворення дефектоспівної конфігурації, E - інтенсивність випромінювання (в розпадах/сек). Таким чином, ймовірність радіаційного дефектоутворення запишеться у вигляді співвідношення, подібного до (15):

$$W_{TP} = W_v W_E = W_E \exp\{-\gamma [\exp(E_h/k_B T) - 1]\}. \quad (17)$$

Коли на скло одночасно діють поля випромінювання та висока температура, сумарна ймовірність терморадіаційного переходу становить

$$W_{TP} = W_{TA} + W_E = \exp\{-\gamma [\exp(E_h/k_B T) - 1]\}$$

$$\times \left[\exp\left(-\frac{U_a}{k_B T}\right) + W_E \right] \quad (18)$$

Беручи до уваги те, що в'язкість обернено пропорційна ймовірності переходу, отримуємо з точністю до передекспоненційного множника:

$$\eta_{TP} = \frac{\eta_0}{W_{TA} + W_P} = \eta_0 \frac{\exp[\gamma (\exp(E_h/k_B T) - 1)]}{\exp(-U_a/k_B T) + W_E}. \quad (19)$$

З рівняння (19) видно, що при збільшенні поля випромінювання в'язкість системи при фіксованій температурі T^* буде меншою, ніж при відсутності радіації. З останнього рівняння можна визначити пониження температури склування T_g , постулюючи $\eta_{TP}(T_g - \Delta T) = \eta_{TA}(T_g)$. При умові високої енергії активації U_a (а для реальних стекл $U_a \sim 10^2$ ккал/моль) $W_E \gg \exp[-U_a/k_B(T_g - \Delta T)]$; відтак з використанням співвідношень (15), (18)-(19) отримуємо:

$$\Delta T = T_g - \frac{E_h}{k_B A}, \quad A = \ln \left\{ \frac{1}{\gamma} \left(\frac{U_a}{k_B T_g} + \ln W_E \right) + \exp\left(\frac{E_h}{k_B T_g}\right) \right\}. \quad (20)$$

Беручи в якості вхідних даних енергію активації $U_a = 5$ eV, енергію утворення мікропустоти $E_h = 0.43$ eV, температуру склування $T_g = 1150^\circ\text{C}$, що відповідає результатам експериментальних досліджень [2], ми обчислили температуру розм'ягшення ΔT в залежності від інтенсивності випромінювання при різних значеннях параметрів P_{ex} , α рівняння (16) та при різних значеннях коефіцієнта перекриття об'ємів γ . Результати розрахунку представлені на Рис.1 та 2. Як уже зазначалось [2], при теперішніх полях радіації та температурах зсув ΔT є дуже незначним ($\sim 1^\circ\text{C}$), але на ранніх стадіях розвитку аварії він міг досягати 60°C (див Рис.1), що добре пояснює затікання розплавів ЛПВМ в нижні приміщення ОУ. Також зрозуміло, що температура розм'ягшення буде тим вища, чим менша щільність упаковки частинок в ЛПВМ (менше значення γ), що добре видно з даних Рис.2.

Зауважимо, що в процесі опису терморадіаційної активації коефіцієнтів переносу можливе врахування інших механізмів релаксації дефектоутворень. Зокрема, вважаючи, що на часах порядку оберненої дебайвської частоти Ω_D^{-1} усі коливні моди ще не зрелаксували, ми можемо ввести поняття динамічної в'язкості $\eta(\omega)$. В літературі (див. зокрема [11]) можна знайти вирази для $\eta(\omega)$, проте в реальному експерименті з ЛПВМ визначення узагальненої в'язкості навряд чи є

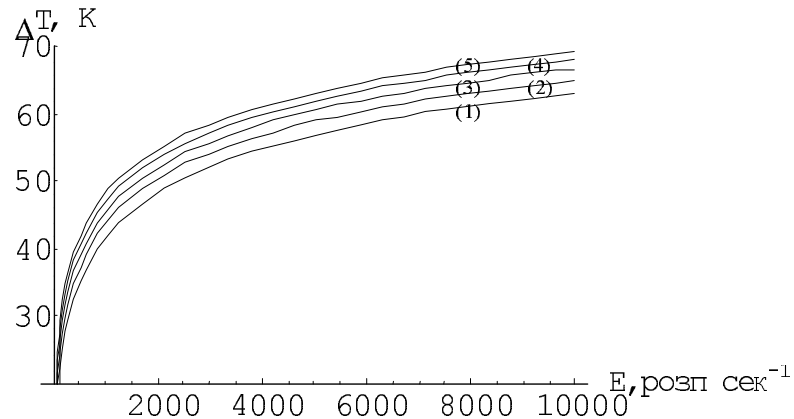


Рис. 1. Залежність температури розм'ягшення ΔT від інтенсивності іонізуючого випромінювання при $P_{ex}\alpha$, що дорівнюють $10^{-19} \times$: 1 (крива 1), 1.25 (2), 1.5 (3), 1.75 (4) та 2 (5)

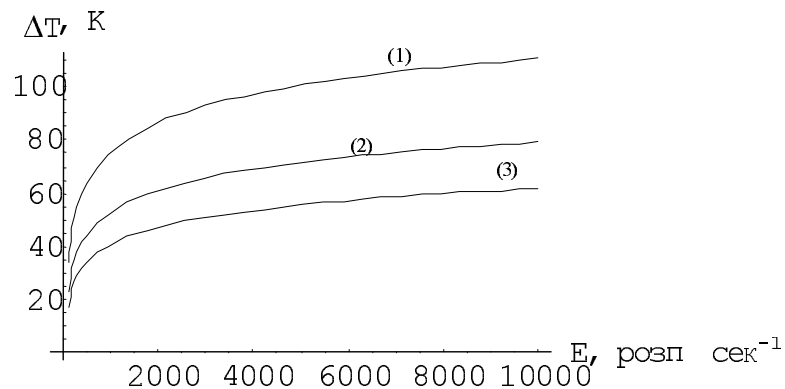


Рис. 2. Залежність температури розм'ягшення ΔT від інтенсивності іонізуючого випромінювання при γ , що дорівнюють: 0.5 (крива 1), 0.75 (2) та 1 (3)

можливим. Залишається лише помітити, що спостережувана статична в'язкість $\eta(0)$ відрізняється від динамічної $\eta(\omega)$ лише множителем порядку одиниці, якщо ми ведемо мову про не дуже високі температури.

Література

1. Пазухін Е.М. Лавоподібні паливовміщуючі маси 4-го блоку Чорнобильської АЕС: фізико-хімічні властивості, сценарій утворення, вплив на навколишнє середовище. (Автореферат дисертації д-ра техн. наук) // МНТЦ "Укриття" НАН України. –Чернобиль, 1999. –36 стор.
2. Вивчення механізмів і динаміки руйнування паливовмісних матеріалів об'єкту "Укриття" під дією зовнішніх факторів. (Звіт про науково-дослідницьку роботу.) // МНТЦ "Укриття" НАН України. –Чернобиль, 2000.
3. Френкель Я.И. Кинетическая теория жидкостей. –М.-Л.: изд. АН СССР, 1945.
4. Фельц А. Аморфные и стеклообразные неорганические твердые тела.- М.: Мир, 1986.
5. Немилов С.В. Валентно-конфигурационная теория вязкого течения переохлажденных стеклообразующих жидкостей и ее экспериментальное обоснование. // Физ. хим. стекла, 1978, т.4, №2, стр. 129-148.
6. Немилов С.В. Природа вязкого течения стекол с замороженной структурой и некоторые следствия валентно-конфигурационной теории текучести. // Физ. хим. стекла, 1978, т.4, №6, стр.662-674.
7. Bakai A.S. Structure and radiation damage of metallic glasses. // Успехи физики металлов, 2002, т.3, №1, стр. 87-106.
8. Нуритдинов И., Машарипов К.Ю. Изменение вязкости стеклообразующих материалов, облученных при высокой температуре. // Атомная энергия, 1999, т.87, вып. 2, стр. 161-164.
9. Bernal J. // Proc. Roy. Soc. A, 1964, vol.280, p.299.
10. Spaepen F. // Acta Metal., 1976, vol. 25, p.407.
11. Андреев А.Ф., Косевич Ю.А. Кинетические явления в полуквантовых жидкостях. // ЖЭТФ, 1979, т.77, вып. 6(12), стр. 2518-2523.

Препринти Інституту фізики конденсованих систем НАН України розповсюджуються серед наукових та інформаційних установ. Вони також доступні по електронній комп'ютерній мережі на WWW-сервері інституту за адресою <http://www.icmp.lviv.ua/>

The preprints of the Institute for Condensed Matter Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine are distributed to scientific and informational institutions. They also are available by computer network from Institute's WWW server (<http://www.icmp.lviv.ua/>)

Михайло Васильович Токарчук
Василь Васильович Ігнатюк
Йосип Андрійович Гуменюк

Вплив іонізуючого випромінювання на явища переносу в
ЛПВМ: врахування механізмів радіаційно-індукованої
термоактивації

Роботу отримано 12 грудня 2002 р.

Затверджено до друку Вченою радою ІФКС НАН України

Рекомендовано до друку семінаром ІФКС

Виготовлено при ІФКС НАН України

© Усі права застережені