

ІНСТИТУТ
ФІЗИКИ
КОНДЕНСОВАНИХ
СИСТЕМ

ICMP-02-23U

М.В.Токарчук, І.В.Пилюк, М.П.Козловський,
М.А.Кориневський, О.О.Притула

РАДІАЦІЙНЕ ДЕФЕКТОУТВОРЕННЯ ТА ВАКАНСІЙНЕ
РОЗПУХАННЯ ЛАВОПОДІБНИХ ПАЛИВОВМІСНИХ
МАТЕРІАЛІВ

ЛЬВІВ

УДК: 538.95-405:539.12.04; 548:539.12.04; 548:571; 548.4; 939.219.3;
538.931-405
PACS: 61.80.-x, 61.72.Ji, 66.30.-h

Радіаційне дефектоутворення та вакансійне розпухання лавоподібних паливовмісних матеріалів

М.В. Токарчук, І.В. Пилюк, М.П. Козловський, М.А. Кориневський,
О.О. Притула

Анотація. Подано деякі відомості про дефектоутворення під дією випромінювання в твердотільних матеріалах, в тому числі в лавоподібних паливовмісних матеріалах (ЛПВМ). Спрощено розглянуто поведінку дефектів (їх рухливість та анігіляцію). Вказано на деякі відомі результати по вивченню дифузійних властивостей цікавих для атомної енергетики багатоконпонентних систем. Розглянуто спрощений варіант задачі про ріст пор в ЛПВМ за рахунок поглинання вакансій. Використовуючи ряд наближень, чисельно оцінено часову динаміку зміни радіуса сферичних пор в ЛПВМ. Прогноз зроблено на найближчі 20 років. Звернуто увагу на фактори, які могли б внести певні коректури в результат обчислень початкового рівня.

The radiation defect formation and the vacancy swelling of the lava-like fuel-containing materials

M.V. Tokarchuk, I.V. Pylyuk, M.P. Kozlovskii, N.A. Korynevskii,
O.O. Prytula

Abstract. Some information about the irradiation-produced defect formation in solid materials including the lava-like fuel-containing materials (LFCM) is represented. The behaviour of defects (their mobility and annihilation) is considered. Some known results of investigations of the diffusion properties of the multicomponent systems, which are interesting for the nuclear engineering, are noted. The simplified version of the task about the void growth in the LFCM due to the vacancy absorption is considered. Using the series of approximations, the time-dependent dynamics of the spherical void radius change in LFCM is estimated numerically. The forecast for nearest twenty years is performed. The factors, which could make certain corrections to the results of calculations for the initial level, are given.

© Інститут фізики конденсованих систем 2002
Institute for Condensed Matter Physics 2002

Вступ

Існуюча радіаційна дія на ЛПВМ за рахунок внутрішнього самоопромінення впливає на прогноз їх стану в конкретних умовах об'єкту "Укриття". З самоопроміненням ЛПВМ α -частинками і важкими ядрами віддачі зв'язана наявність в них певного рівня радіаційного дефектоутворення (приблизно $5 \cdot 10^{-4}$ зміщень на атом), причому 90% всіх стійких радіаційних дефектів забезпечується важкими ядрами віддачі [1]. Така кількість радіаційних пошкоджень, хоча і помітно впливає на ряд механічних характеристик ЛПВМ, не може служити самостійною причиною їх видимого руйнування, але опосередковано стимулює руйнівну дію інших факторів, які присутні в об'єкті "Укриття" [1,2]. Тому дослідження механізмів формування дефектів в ЛПВМ під дією випромінювання, поведінки дефектів та їхнього впливу на стан і властивості ЛПВМ є актуальною проблемою. Загальнонауковий інтерес до вказаної проблеми посилюється і відсутністю на даний час ґрунтовних теоретичних та практичних розробок щодо радіаційного дефектоутворення в ЛПВМ. Розуміння фізичних механізмів руйнування ЛПВМ є необхідним для створення науково обґрунтованого прогнозу їх стану та вироблення рекомендацій по його стабілізації.

Вкажемо на деякі основні аспекти, які є наслідками самоопромінення ЛПВМ. Також коротко і спрощено розглянемо деякі механізми формування дефектів під дією випромінювання, рухливість та анігіляцію дефектів.

1. Дія випромінювання на твердотільні матеріали. Самоопромінення ЛПВМ та дефектоутворення в них

При дії ядерного випромінювання на тверде тіло виникає ряд ефектів, залежних як від виду та енергії випромінювання, так і від характеру та властивостей матеріалу, що опромінюється.

Взаємодія випромінювання з речовиною являє собою складне явище. Кожний із видів випромінювання (α -, β -, γ -випромінювання, нейтрони і т.п.) має певні визначальні особливості, але кожний тип матеріалу внаслідок взаємодії з ними буде реагувати специфічним чином. Один і той же вид випромінювання може викликати ефекти різного роду. Процес ускладнюється ще і тим, що радіаційна дія лише в рідких випадках зводиться до зіткнення налітаючої частинки або кванта з атомом мішені. Частіше це зіткнення є лише початком

ланцюга подальших актів, первинною стадією, яка викликає різноманітні вторинні явища, не рідко більш сильні і визначаючі в кінцевому рахунку характер дії даного випромінювання на матеріал.

Із усіх видів радіаційних ефектів можна виділити три великі групи [3]:

- 1) ефекти взаємодії випромінювання з ядрами елементів;
- 2) електронні ефекти (іонізація та збудження), викликані взаємодією випромінювання з електронними оболонками атомів;
- 3) ефекти зміщення, при яких відбувається зміна нормальних положень атомів (або іонів) у вузлах ґратки.

Поглинання нейтронів ядрами матеріалів (передуючим йому процесом є радіоактивний захват) вносить в основний матеріал домішки (пошкоджені ядра), які можуть впливати на його властивості. В ЛПВМ основними джерелами α -активності та нейтронів спонтанного поділу є ізотопи $^{238-240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{242}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm (див., наприклад, [4]). Взаємодія випромінених α -частинок з атомами В, О, Na, Mg, Al, Li, С, Ве, що знаходяться в ЛПВМ, супроводжується реакцією (α, γ) і додатково генерує потік нейтронів.

Електромагнітні випромінювання, обумовлені взаємодією з речовиною (фотоелектричний ефект, ефект Комптона, утворення пар), можуть приводити до додаткових іонізацій або зміщень атомів з нормально займаючих ними позицій в ґратці.

Опромінення суттєво діє на корозію металів у водних середовищах внаслідок електролітичного розщеплення води, при якому утворюються іони або вільні радикали високої хімічної активності. Випромінювання також впливає на транспорт в твердих речовинах, фазові переходи, швидкість реакцій. Зміна структури кристалічної ґратки матеріалів та утворення дефектів під дією опромінення приводить до зміни механічних і теплових властивостей. Іноді сильно міняються електричні, магнітні та оптичні властивості.

Цікавим є випадок зміни електричного опору металічного урану, опроміненого нейтронами [5], що може бути показано за допомогою відношення між кількістю розщеплених атомів і загальним числом атомів (ступінь "згоряння"). Після виникнення швидкої зміни опору опромінення приводить до появи зони насичення. Найпростіша модель, яка може пояснити цей ефект насичення, ґрунтується на припущенні, що опромінення викликає появу одних дефектів і в той же час знищує інші. Таким чином, у певний момент кількість дефектів, що утворюються, стає рівною кількості знищених дефектів. Модель враховує утворення піків зміщення внаслідок опромінення і, зокрема, дозволяє вивести деякі специфічні параметри процесу. На-

приклад, обчислення показують, що об'єм одного піку зміщення в урані рівний $2.1 \cdot 10^{-22} \text{ м}^3$.

Опромінення діелектриків неодмінно приводить до збільшення електричної провідності. Це визначається тим, що при незначно підвищених температурах провідність має іонний тип і їй сприяє наявність дефектів у ґратці. Таке явище можна спостерігати, наприклад, для лужно-галоїдних кристалічних сполук, опромінених нейтронами [6].

Окремим випадком випромінювання є самоопромінення радіоактивних матеріалів. Досить добре вивчено самоопромінення плутонію власним α -випромінюванням з енергією 5 MeV [7]. Ядро ізотопу ^{235}U (утворюється при α -розпаді ^{239}Pu) з енергією 87 кеВ викликає пік зміщення, аналогічний утвореному продуктами поділу. Відзначимо, що ядра віддачі Pu, Cm, Am, які утворюються при α -розпаді в ЛПВМ, володіють такою ж за величиною початковою енергією (приблизно 85 кеВ) [1]. Під дією самоопромінення електричний опір металічного плутонію у часі змінюється, а кількість дефектів, що утворюються в одиницю часу, залишається постійною [8]. Зміна опору в одиницю часу в фазі α при 4.5 К при малих потоках α -частинок рівна $6.3 \cdot 10^{-5} \text{ Ом}\cdot\text{см}/\text{год}$ і має тенденцію до насичення.

Під дією самоопромінення структура ЛПВМ постійно змінюється. Кількісний розрахунок степеня радіаційних пошкоджень ЛПВМ, зумовлених двома основними фізичними механізмами (за рахунок α -частинок та тяжких ядер віддачі α -випромінювачів), виконаний в [1]. Вклад ядер віддачі в дефектоутворення є визначальним. Практично вся енергія ядер віддачі витрачається на утворення атомних зміщень. Однак ефект радіаційної дії на ЛПВМ не обмежується тільки грубою перебудовою атомної структури. Значна частина початкової енергії α -частинок витрачається на електронні збудження, які можуть приводити до помітних змін хімічних, фізичних та структурних властивостей матеріалу. Наслідком електронних збуджень може бути розрив хімічних зв'язків, зміна валентних станів ґратки, явні зміни електронної густини станів. За результатами робіт [9, 10] можна зробити висновок, що більша частина α -частинок від α -розпаду ізотопів $^{238-240}\text{Pu}$, ^{241}Am , $^{242,244}\text{Cm}$ буде реалізовуватись у реакціях на легких хімічних елементах ЛПВМ.

З хімічної точки зору ЛПВМ близькі до силікатного скла (SiO_2 , MgO , Al_2O_3 , CaO). Вони є гетерогенними твердими розчинами, які представляють собою силікатну склоподібну матрицю з різного типу включеннями [11]. Постійне підживлення ЛПВМ енергією внаслідок внутрішнього α -, β -, γ -самоопромінення може бути важливим фак-

тором підтримки метастабільного стану склоподібних ЛПВМ [4]. В процесі самоопромінення аморфна система самоорганізується через структурні зміни, утворення і зникнення дефектів. Такий динамічний баланс може уповільнити глобальне руйнування ЛПВМ. З точки зору нерівноважної термодинаміки такі процеси характеризуються обміном енергії та переходом в один із енергетично вигідних станів із досить великими часами релаксації. Надлишок енергії може вивільнятися через рух пор (доступна пористість від 2% до 10% [12]), пилоутворення та розтріскування поверхні.

ЛПВМ є сильно пористими матеріалами [12], в мікро- та ультрапори яких проникають молекули води. Поверхня пор у ЛПВМ під дією молекул води руйнується. Як відмічено в [4], значна кількість води в порах піддається постійному радіолізу внаслідок α -, β -, γ -самоопромінення ЛПВМ. У таких процесах певна кількість іонів водню H^+ рекомбінує з електронами в атоми водню H , які мають значну міграційну здатність у пористих середовищах. З утворенням та ростом пор пов'язана проблема вакансійного розпухання ЛПВМ. Останнє є основним механізмом розпухання металів під опроміненням [13]. Швидкість росту пор пропорційна концентрації вакансій та міжвузлових атомів і тому лінійна по інтенсивності опромінення K_0 в області високих температур, коли головну роль відіграє поглинання точкових дефектів стоками (наприклад, дислокаціями) і пропорційна $\sqrt{K_0}$ в області низьких температур, коли головну роль відіграє взаємна рекомбінація вакансій та міжвузлових атомів. Необхідно відмітити, що утворення пор при опроміненні супроводжується фізично цікавим явищем – утворенням просторово впорядкованої суперструктури – так званої ґратки пор [14–16]. В області параметрів (температур, доз та інтенсивностей опромінення), в якій виникають ґратки пор, вакансійне розпухання є подавленим.

У радіаційно ушкодженому SiO_2 , крім відносно великих дефектів (пор), що включають, принаймні, декілька атомів (такі дефекти створюються, скоріше за все, за сценарієм прямого ударного механізму при русі α -частинок або ядер віддачі), істотними є двочастинкові дефекти типу дефектів Френкеля (утворення вакансії і зміщення атома у міжвузлове положення). До таких дефектів відносять, насамперед, E' -центри (трикоординований кремній з одним обірваним ковалентним зв'язком) і немостикові кисні (зв'язані лише одним ковалентним зв'язком) [17]. Утворюються також міжвузлові молекули кисню, пероксидні містки, кисневі вакансії, тощо. Перелічені вище дефекти можуть створюватись як по прямому ударному механізму при α -розпаді, так і іншими, підпороговими механізмами (через

електронні збудження) при β - і γ -розпадах. Типовими ефектами при цьому є виникнення і розпад автолокалізованих екситонів чи біекситонів, внаслідок яких виникає, наприклад, E' -центр, а атом кисню зміщується відповідно у міжвузлове положення [18–20]. На основі вищесказаного можна стверджувати, що для радіаційно ушкодженої склоподібної суміші характерною є наявність великої кількості обірваних зв'язків та атомів у міжвузлових положеннях. Слід також відзначити, що у склоподібних системах рухливість окремих атомів є значно вищою, ніж у відповідних кристалах.

В результаті специфічного процесу взаємодії дефекти можуть скупчуватись, мігрувати і збільшуватись у розмірах, поступово приводячи до неоднорідності (на мікроскопічному рівні) хімічних зв'язків між атомами. Зусилля будуть концентруватись тоді поступово на деякі зони в матеріалі, визначаючи спочатку активацію деяких площин ковзання атомів, потім утворення мікротріщин і, накінець, появу внутрішніх тріщин і їх розповсюдження. Етап деформацій непружного характеру (постійний) може проявлятися в явищах текучості (в'язкої текучості) при невеликих тисках або в явищах пластичної деформації при тисках, які перевищують межі пружної деформації.

Вкажемо на деякі механізми формування дефектів під дією випромінювання в кристалічних ґраткових структурах, які можуть бути корисними при розгляді радіаційного дефектоутворення в ЛПВМ. Характерною особливістю цих механізмів є виникнення теплових клинів (імпульсів локальної температури), теорію яких застосовано в [4] для ЛПВМ.

2. Дефекти перегріву та дефекти переміщення

Зейц і Кохлер [21] припустили існування механізму розупорядкування кристалічної ґратки під дією випромінювання, який приводить до утворення дефектів перегріву. Останні з'являються тоді, коли летюча частинка вдаряє в атом ґратки і передає йому деяку кількість енергії – менше, ніж необхідно для виведення його із стану рівноваги. В результаті виникають коливання – атом, який отримав удар, передає прийнятну енергію сусіднім атомам, які в свою чергу можуть бути приведені в стан сильних коливань. В такому випадку в невеликій області ґратки навколо цього атома виникає на дуже короткий час (10^{-13} – 10^{-11} с) підвищення температури більш ніж на 1000 К. Після нагрівання і особливо різкого плавлення матеріалу в місцях атомів, що коливаються, відбувається швидке охолодження і наступ-

не затвердіння речовини.

В деякій точці, розміщеній на відстані r від термічного піку, через деякий час t після його виникнення температура задовільняє рівняння

$$T(\vec{r}, t) = T_0 + \frac{Q}{(4\pi)^{3/2}c\rho(Dt)^{3/2}} \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt}\right), \quad (1)$$

де Q – енергія, передана атому, який зазнав удару, c – питома теплоємність матеріалу, ρ – густина, D – коефіцієнт термічної дифузії.

Атоми, розміщені у вузлах ґратки, можуть виконувати крім коливних рухів і “стрибки” із зайнятих в ній положень під дією деяких внутрішніх і зовнішніх впливів, що описуються енергією активації E . Припустимо, що атоми матеріалу під дією ефекту перегріву можуть виконувати “стрибки” в міжвузловий простір або взаємно замінювати один одного в ґратці з деякою частотою, що визначається співвідношенням

$$\nu = \nu_0 \exp(-E/k_B T). \quad (2)$$

Тут ν_0 – ефективна частота, яка включає і ентропійні фактори, E – енергія активації процесу, T – локальна температура.

Нехай матеріал містить n_0 атомів на одиницю об'єму. Ефект перегріву викличе в ньому n “стрибків”, які можуть бути обчислені інтегруванням співвідношення (2) по просторових і часових змінних з підстановкою температури T із виразу (1). Додаткове число “стрибків” Δn можна отримати відніманням із n числа “стрибків”, які відбуваються в матеріалі у випадку відсутності ефекту перегріву при температурі T_0 :

$$\Delta n = n_0 \nu_0 \int_0^\infty 4\pi r^2 dr \int_0^\infty \{ \exp[-E/k_B T(\vec{r}, t)] - \exp[-E/k_B T_0] \} dt. \quad (3)$$

При N_0 ефектів перегріву на см^3 в секунду збільшення частоти “стрибка” рівне $N_0 \Delta n$ [“стрибок”/($\text{см}^3 \cdot \text{с}$)].

Зейц і Кохлер [21] розглянули більш простий випадок обчислення (3), коли $T_0=0$. В результаті одержується наступний вираз для додаткового числа “стрибків”:

$$\Delta n = 0.016 (\nu_0 r_s^2 / D) (Q/E)^{5/3}, \quad (4)$$

де $r_s = (3/4\pi n_0)^{1/3}$.

Наслідком дефектів перегріву можна вважати процеси розупорядкування, тобто порушення порядку в початково впорядкованих сполуках, стимуляцію локальної дифузії, зміну фази та інші процеси, активовані локальним короткочасним нагрівом.

Брикман [21] запропонував гіпотезу, згідно якої механізм формування дефектів під дією опромінення для легких елементів полягає в утворенні пар вакансія-міжвузловий атом, в той час як у випадку тяжких елементів розупорядкування зумовлено дефектами переміщення. Для пояснення появи дефектів переміщення припускають, що по траєкторії іонізованої частинки відбувається локальне нагрівання речовини. Внаслідок цього нагрівання частина атомів речовини випаровується і конденсується в інших областях, займаючи позицію в міжвузловому просторі або заміщуючи атоми, які знаходяться у вузлах ґратки. Дефекти переміщення обумовлюють переміщення числа атомів, приблизно рівного 10^4 , і локальне нагрівання приблизно на 10^4 К.

Після нагрівання і розплаву настає затвердіння речовини, в ґратці виникає розупорядкування, а по ходу дефекту переміщення виникають петлі дислокацій.

Вищевказані зауваження про можливість локального плавлення матеріалу і наступного його затвердіння можна перенести і на ЛПВМ. Міркування про те, що температура “ґратки” ЛПВМ локально може зрости, а потім зменшуватись відповідно до їх низького значення теплопровідності (тобто під дією самоопромінення утворюється імпульс локальної температури або так званий тепловий клин) лежать в основі моделі теплових клинів для ЛПВМ [4]. Вираз (1) для локальної температури у сферичному клині було використано авторами [4] при отриманні графіків просторово-часової залежності температури сферичного теплового клину для чорної та коричневої керамік ЛПВМ. Модель теплових клинів якісно описує можливість локального плавлення речовини ЛПВМ під час гальмування α -частинок та ядер віддачі. Навколо проплавлених областей утворюються поля механічних деформацій і в області теплового клину відбувається формування нової кристалічної структури, що супроводжується витісненням із цих областей вакансій та пор.

Автори роботи [1] відмічають, що специфіка характеру радіаційного пошкодження ЛПВМ ядрами віддачі полягає у виникненні розупорядкованих областей (РО), створених піками зміщень. РО в поєднанні з існуючим навколо них полем мікронапружень є джерелом зародження мікротріщин, подальший ріст яких забезпечується шляхом взаємодії з водою та інших впливів хімічного, термічного та

механічного характеру.

3. Рухливість та анігіляція дефектів

Дефекти, які виникають під впливом опромінення, характеризуються значною мінливістю і можуть взаємодіяти один з одним, маючи здатність навіть взаємно знищуватись. Під час опромінення встановлюється динамічна рівновага між виникненням та зникненням дефектів. В цьому процесі температура відіграє дуже важливу роль. Для “замороження” індукованих дефектів опромінення необхідно вести при дуже низьких температурах.

Процес анігіляції дефектів називається “відновленням” і має дві компоненти – відновлення, активоване термічно і повернення, активоване опроміненням [22, 23]. При вимірюванні деяких властивостей опроміненого і неопроміненого матеріалу констатуються зміни характерних величин. Властивості опроміненого матеріалу, підігрітого до певної температури і після цього дослідженого при температурі навколишнього середовища, будуть відрізнятись від властивостей матеріалу, не підданого термічній обробці, таким же чином, як і в результаті термічно активованого повернення. Результати різних термічних аналізів опроміненої проби (наприклад, графіту [24]) свідчать про додатковий ріст температури опроміненої проби, що вказує на енергію, яка звільняється в результаті знищення внутрішніх дефектів. Такий ефект не виникає при наступній термічній обробці проби.

Дефекти, викликані опроміненням, можуть бути знищені тривалим бомбардуванням різного типу частинками, якому матеріал піддається під час опромінення (активований компонент опромінення).

Виділення дефектів, викликаних в матеріалі опроміненням, може проводитись дифузією їх через матеріал до тих пір, поки зустрічаються пастки, в яких вони фіксуються; анігіляцією вакансій і міжвузлових атомів, рекомбінацією або поглинанням їх на поверхні зерен або дислокацій; фіксацією вакансій або міжвузлових атомів на домішках заміщення внаслідок локального напруження ґратки і т.п. [21, 22].

В якості прикладу коротко проаналізуємо “відновлення” матеріалу в результаті дифузії дефектів в ґратці. Розподіл конкретного дефекту в кристалі може бути охарактеризований його концентрацією $c(\vec{r}, t)$. Дифузія дефектів в однорідному середовищі як результат дії градієнту концентрації описується рівнянням дифузії

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D\nabla^2 c. \quad (5)$$

Коефіцієнт дифузії D пропорційний частоті, з якою дефект “стрибає” на суміжну позицію:

$$D = \gamma a^2 \nu_s, \quad (6)$$

де a - константа ґратки, γ - кількісний фактор, залежний від геометрії ґратки і оточення дефекту. Частота “стрибка” ν_s виражається рівнянням типу Арреніуса ($\nu_s = \nu_0 \exp(-E_m/k_B T)$, E_m - енергія активації переміщення дефекту, ν_0 - ефективна частота ($\sim 10^{13} \text{с}^{-1}$)).

Проблема “відновлення” (“виздоровлення”) матеріалу зводиться до дифузії дефектів одного типу в напрямі до внутрішніх пасток. Останні зв’язані з порушенням або недосконалістю кристалічної ґратки, границями зерен, скупченнями точкових дефектів, пустотами і т.п. Такі пастки можна уявити собі оточеними уявними закритими поверхнями, на яких концентрація дефектів завжди рівна нулю. Це класична проблема в теорії дифузії і її розв’язання добре відоме [25].

Уявимо собі, що область R обмежена різними поглинаючими поверхнями S , на яких $c = 0$. Для цієї області довільної форми завжди може бути знайдена сукупність функцій $\varphi_i(\vec{r})$, і тоді

$$\nabla^2 \varphi_i(\vec{r}) + \lambda_i \varphi_i(\vec{r}) = 0, \quad (7)$$

а $\varphi_i = 0$ на поверхнях S . Власні значення λ_i рівняння (7) залежать від розміру та форми досліджуваної області. Може бути знайдений повний набір власних ортогональних функцій $\varphi_i(\vec{r})$, так що

$$\int_R \varphi_i(\vec{r}) \varphi_j(\vec{r}) d\vec{r} = \delta_{ij}, \quad (8)$$

де $\delta_{ij} = 1$, якщо $i=j$, і $\delta_{ij} = 0$, якщо $i \neq j$.

Загальний розв’язок рівняння (5) можна записати у вигляді лінійної комбінації:

$$c(\vec{r}, t) = \sum_{i=0}^{\infty} \alpha_i \varphi_i(\vec{r}) \exp(-\lambda_i D t). \quad (9)$$

Тут

$$\alpha_i = \int_R \varphi_i(\vec{r}) c(\vec{r}, 0) d\vec{r}. \quad (10)$$

Концентрація в будь-якій точці \vec{r} , а отже, і загальна кількість речовини, що покидає область R , експоненційно зменшується з часом. Процес характеризується фактором D . Після досить тривалих періодів часу еволюція процесу визначається власним найменшим значенням λ_0 , а величинами інших членів, які відповідають іншим власним

значенням, можна знехтувати. Таким чином, вираз (9) може бути записаний у вигляді

$$c(\vec{r}, t) \approx \alpha_0 \varphi_0(\vec{r}) \exp(-\lambda_0 D t). \quad (11)$$

У багатьох експериментальних ситуаціях співвідношенням (11) можна скористатись для будь-якого інтервалу часу. Ця залежність від часу подібна до тієї, яка описує кінетику хімічних реакцій, де число молекул (тут дефектів) n , що не включились в хімічну реакцію, змінюється в часі за наступним законом:

$$dn/dt = -K n. \quad (12)$$

Тут K - не залежна від n константа швидкості. Із рівняння (12) бачимо, що $n \sim \exp(-K t)$. Порівнянням із (11) отримуємо

$$K = \lambda_0 D. \quad (13)$$

Якщо кристал з лінійним розміром L не містить внутрішніх пасток, а тільки зовнішні (зовнішня поверхня), λ_0 буде мати порядок $1/L^2$. В цьому випадку константа асимптотичної дезінтеграції буде рівною

$$K = \pi^2 D / L^2. \quad (14)$$

В цих же умовах для сфери радіусом R одержуємо

$$K \approx \pi D / R^2, \quad (15)$$

а для паралелепіпеда з розмірами $A \times B \times C$

$$K \approx \pi^2 (1/A^2 + 1/B^2 + 1/C^2) D. \quad (16)$$

Таким чином, якщо один із розмірів менший за інші, тоді його вплив на K буде переважаючим.

Для кристалу із внутрішніми пастками, наприклад, сферичної форми радіусом r_1 , що утворюються в результаті зіткнень пустот радіусом r_0 ($r_1 \gg r_0$), справедливий наступний вираз:

$$K \approx (3r_0/r_1^3) D = 4\pi r_0 N_0 D, \quad (17)$$

де N_0 - число пасток на одиницю об’єму, $N_0 = (4\pi r_1^3/3)^{-1}$.

Інший тип пасток для накопичення точкових дефектів в результаті дифузії являє собою дислокації. Якщо припустити, що дислокації

мають циліндричну форму з радіусом r_0 , нескінченну довжину, розміщені в циліндрах з радіусом r_1 і мають густину N_0 ліній дислокацій на одиницю поверхні кристалу, тоді

$$K = 2\pi N_0 D / \ln(r_1/r_0). \quad (18)$$

Дифузія дефектів у напрямі до дислокацій при середніх температурах сильно залежить від поля механічних напружень, створюваних дислокаціями, і співвідношення (18) стає в цьому випадку неадекватним.

Ми спрощено розглянули дифузію дефектів в напрямі до пасток. Опромінення збільшує концентрацію дефектів в твердих речовинах, що веде до зростання швидкості дифузії (явище радіаційно-стимульованої дифузії (РСД)). РСД є наслідком того, що коефіцієнти дифузії атомів пропорційні концентраціям точкових дефектів (див., наприклад, [13]). Отже, внаслідок опромінення спостерігаються процеси активізації дифузії атомів і в ЛПВМ поряд із дифузією дефектів взаємопов'язано необхідно враховувати і атомну дифузію, зокрема, атомів урану, плутонію, заліза, цезію, стронцію та ін. Приведена в [4] система рівнянь переносу повністю описує дифузію атомів, вакансій, міжвузлових атомів внаслідок α -, β -, γ -самоопромінення в ЛПВМ.

Основи теорії дифузії та сегрегації в сплавах при опроміненні викладені в [13]. Відомості про дифузію в ядерному паливі та конструктивних матеріалах атомної техніки приводяться в [26]. Цікавим і маловивченим є дослідження дифузійних властивостей багатокомпонентних систем. Так як в ЛПВМ можуть зустрічатись різні типи складних сполук, то доцільно буде ознайомитись із деякими відомими даними щодо досліджень дифузії в таких цікавих для атомної енергетики багатокомпонентних системах як Zr-Nb-Mo, U-Zr-Nb, U-Nb-Mo, U-Zr-C.

4. Дифузія в багатокомпонентних системах

Основні питання феноменологічної теорії дифузії в багатокомпонентних системах узагальнені в [27]. Огляд теоретичних та експериментальних досліджень по багатокомпонентній дифузії представлений в [28].

Аналіз процесів взаємної дифузії в реальних умовах ґрунтується на рівняннях типу

$$J_i = - \sum_{k=1}^{n-1} \tilde{D}_{ik} \nabla c_k. \quad (19)$$

Тут J_i - дифузійні потоки в n -компонентній системі, \tilde{D}_{ik} - коефіцієнти взаємної дифузії в цій системі, а c_k - концентрація в молях на одиницю об'єму незалежних компонентів. Таким чином, процес дифузії описується системою із $(n-1)$ рівнянь

$$dc_i/dt = \nabla \left(\sum_{j=1}^{n-1} \tilde{D}_{ij} \nabla c_j \right). \quad (20)$$

Коефіцієнти, що входять в цю систему, зв'язані між собою в частинному випадку трикомпонентної системи співвідношеннями [29]:

$$\begin{aligned} \tilde{D}_{11} &= (1 - c_1)D_{11} - c_1(D_{21} + D_{31}), \\ \tilde{D}_{12} &= (1 - c_1)D_{12} - c_1(D_{22} + D_{32}), \\ \tilde{D}_{21} &= (1 - c_2)D_{21} - c_2(D_{11} + D_{31}), \\ \tilde{D}_{22} &= (1 - c_2)D_{22} - c_2(D_{12} + D_{32}). \end{aligned} \quad (21)$$

Із цих співвідношень випливає, що для повного опису процесу взаємної дифузії в трикомпонентній системі необхідно визначити експериментально шість парціальних коефіцієнтів: D_{11} , D_{12} , D_{21} , D_{22} , D_{31} та D_{32} . Феноменологічний опис процесів при багатокомпонентній дифузії також вимагає визначення парціальних коефіцієнтів дифузії з допомогою активних ізотопів.

Дифузія компонентів в області існування твердих розчинів системи Zr-Nb-Mo досліджувалась з допомогою радіоактивних нуклідів ^{95}Zr , ^{95}Nb і ^{99}Mo [30]. Для цієї області твердих розчинів вказаної системи на основі результатів дослідження обмежуючих бінарних систем були побудовані концентраційні залежності енергій активації і коефіцієнтів дифузії компонентів при 1500°C . Аналіз цих залежностей показує, що по мірі легування цирконію ніобієм і молібденом дифузійні рухливості зменшуються, а енергії активації дифузії компонентів зростають, причому немає суттєвої різниці в ефекті впливу легування ніобієм або молібденом.

Із отриманих даних по дослідженню дифузії ^{235}U , ^{95}Nb та ^{95}Zr в системі U-Zr-Nb [26, 31] видно, що спільне легування урану цирконієм і ніобієм приводить до досить суттєвого пониження рівня дифузійної рухливості і підвищення енергій активації дифузії компонентів. В області складів 60-70 ат. % легуючих добавок спостерігаються екстремальні значення (максимальні енергії активації і мінімальні коефіцієнти дифузії). Побудовані ізолінії коефіцієнтів і параметрів дифузії компонентів в системі U-Zr-Nb дозволяють більш наглядно уявити процес впливу легування.

Аналогічні графічні побудови виконані для області твердих розчинів системи U-Nb-Mo (див. [26]), в якій ніобій і молібден приблизно однаково впливають на коефіцієнти і параметри дифузії.

На основі співвідношень, які пов'язують коефіцієнти взаємної дифузії багатокомпонентної системи з коефіцієнтами самодифузії окремих компонентів (одержуються з допомогою радіоактивних нуклідів) та термодинамічними множниками (визначаються з допомогою значень термодинамічних активностей компонентів), розраховано також коефіцієнти взаємної дифузії у вже вищевказаній потрібній системі U-Zr-Nb. Їхні концентраційні залежності приведені в [26].

Отримані графічні результати для температурних залежностей коефіцієнтів дифузії компонентів у сплавах системи U-Zr-C [26] показують, що в процесі легування карбиду урану карбідом цирконію рівень дифузійної рухливості атомів урану, цирконію і вуглецю знижується. Концентраційні залежності енергії активації дифузії компонентів вказують на їх монотонне зростання в твердому розчині від UC до ZrC.

Слід відзначити, що коефіцієнти дифузії D_i^* окремих компонентів системи U-Zr-C та знайдені термодинамічні множники m_{ij} для цієї системи були використані для розрахунку коефіцієнтів взаємної дифузії \tilde{D}_{ij} в ній. Для зв'язку коефіцієнтів взаємної дифузії з коефіцієнтами дифузії активних атомів компонентів системи використувувались взяті із [32] наближені співвідношення

$$\begin{aligned}\tilde{D}_{11} &= \tilde{D}_{22} = N_2 D_1^* m_{11} + N_1 D_2^* m_{22}, \\ \tilde{D}_{13} &= -\tilde{D}_{23} = (N_1 N_2 / N_3) (D_1^* m_{13} - D_2^* m_{23}), \\ \tilde{D}_{33} &= D_3^* m_{33} - (N_1 D_1^* m_{13} + N_2 D_2^* m_{23}), \\ \tilde{D}_{31} &= (N_3 / N_1) D_3^* m_{31} - N_3 (D_1^* m_{11} - D_2^* m_{22}),\end{aligned}\quad (22)$$

де N_i - відношення числа атомів сорту i в локальному об'ємі до числа вузлів ґратки в цьому об'ємі. Коефіцієнти \tilde{D}_{11} , \tilde{D}_{33} і \tilde{D}_{31} є монотонними функціями складу, які різко спадають по мірі легування монокарбиду урану монокарбідами цирконію [26]. Концентраційна залежність коефіцієнта \tilde{D}_{13} має вигляд параболи, що в основному визначається множником $N_1 N_2 / N_3$.

Тепер, після приведених вище деяких відомостей про дефектоутворення під дією опромінення та дифузії дефектів в твердих тілах, перейдемо до конкретної задачі про ріст пор в ЛПВМ.

5. Спрощений варіант задачі про ріст пор

Достатньо вичерпним вступом в фізику взаємодії різних видів випромінювання з твердим тілом шляхом атомних зіткнень і подальшого утворення структурних дефектів є книга [33]. Радіаційне внутрішнє опромінення і вплив навколишнього середовища приводять до руйнування ЛПВМ як на поверхні, так і зі середини. Явище спонтанного вильоту субмікронних часток речовини з поверхні ЛПВМ вперше експериментальним шляхом досліджено в [34].

В результаті скрупчення великої кількості дефектів в ЛПВМ починають утворюватися пори. При подальшому їх рості спостерігається розпухання матеріалу. Розпухання сприяють гази, що утворюються в об'ємі ЛПВМ, зокрема, гелій і водень [4].

Принципова сторона механізму вакансійного розпухання на даний час в основному вияснена [13]. Пояснення цього явища полягає в тому, що значна частина пар вакансія - міжвузловий атом, які народжуються в процесі опромінення, не встигає взаємно рекомбінувати і поглинається на різного роду стоках, роль яких можуть відігравати всі протяжні дефекти кристалічної структури (дислокації, границі зерен і т.п.). При цьому поглинання міжвузлових атомів дислокаціями проходить інтенсивніше, ніж поглинання вакансій. Це приводить до утворення надлишку вакансій в матеріалі. Надлишкові вакансії об'єднуються в пори і при тому збільшується об'єм зразка на величину, що приблизно рівна величині сумарного об'єму пор. Це пояснюється тим, що об'єм, який припадає на одну вакансію у великій порі, майже не відрізняється від об'єму, що припадає на один атом в елементарній комірці. Цей висновок підтверджується співпадінням результатів вимірювання збільшення об'єму тіла на основі денсометрії і прямого підрахунку об'єму пор по їх розподілу за розмірами. Інтенсивність такого розпухання суттєвим чином залежить від температури.

Для опису еволюції точкових дефектів в речовині необхідно записати макроскопічні рівняння. В цих рівняннях слід врахувати взаємну рекомбінацію вакансій і міжвузлових атомів, в результаті якої зникають обидва точкові дефекти, а також поглинання дефектів стоками, що знищує ці дефекти окремо один від одного.

Таким чином, переважно виходять із рівнянь для швидкостей реакцій появи і зникнення дефектів. Нехай K_0 - число дефектів, що утворюються за одиницю часу на один атом опроміненої речовини. Тоді концентрації міжвузлових атомів C_i і вакансій C_v задовольня-

тимуть наступні рівняння [4, 13]:

$$\begin{aligned}\frac{\partial C_i}{\partial t} &= K_0 - K_1(C_i C_v - C_i^e C_v^e) - K_{2i}(C_i - C_i^e), \\ \frac{\partial C_v}{\partial t} &= K_0 - K_1(C_i C_v - C_i^e C_v^e) - K_{2v}(C_v - C_v^e),\end{aligned}\quad (23)$$

де K_1 і K_2 – коефіцієнти, що характеризують відповідно швидкість взаємної рекомбінації точкових дефектів і швидкість їх захоплення стоками (порами, дислокаціями та ін.). $C_{i,v}^e$ – термодинамічно рівноважні концентрації відповідних дефектів. Ввівши ймовірність захоплення дефекту $P_{i,v}$ і частоту перескоку $\nu_{i,v}$, коефіцієнти K_2 можна представити у вигляді

$$K_{2i} = P_i \nu_i, \quad K_{2v} = P_v \nu_v. \quad (24)$$

Дані рівняння (23) є загальними для випадку однорідного розподілу дефектів у речовині. Для неоднорідних розподілів слід ввести залежні від просторових градієнтів дифузійні потоки точкових дефектів.

Наші розрахунки становитимуть початковий (нульовий) етап обчислень з певними грубими наближеннями. Прийматимемо до уваги лише швидкість зміни концентрації вакансій, бо саме вони є “сировиною” для розпухання пор. Запишемо ймовірність захоплення вакансії порою. У випадку нехтування напруженнями на поверхні пори така ймовірність визначатиметься співвідношенням [13]

$$P_v = \frac{3D_v r_0}{\nu_v R^3}, \quad (25)$$

де D_v – коефіцієнт дифузії вакансій, що пропорційний частоті перескоків, r_0 – радіус пори, R – радіус області впливу (або живлення) пори. В свою чергу величину радіуса області впливу визначають на основі концентрації пор n_ν в речовині [13, 35]:

$$R = \left(\frac{3}{4\pi n_\nu} \right)^{\frac{1}{3}}. \quad (26)$$

Розглянемо останню з формул (23) (випадок лише вакансій). Нехтуючи взаємною рекомбінацією точкових дефектів, для концентрації вакансій одержуємо наступне рівняння:

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = K_0 - K_{2v}(C_v - C_v^e). \quad (27)$$

Вираз для коефіцієнта K_{2v} містить залежний від часу радіус пори r_0 :

$$K_{2v} = \frac{3D_v r_0}{R^3}. \quad (28)$$

Зміна розміру пор з часом описується рівнянням [13]

$$\frac{dr_0}{dt} = \frac{1}{r_0} [D_v(C_v - C_v^e) - D_i C_i], \quad (29)$$

де D_i – коефіцієнт дифузії міжвузлових атомів. Останній доданок в правій частині (29) при розрахунках опускатимемо (розглядаємо лише вакансії).

Таким чином, ми отримуємо вихідну систему рівнянь

$$\begin{cases} \frac{d(C_v - C_v^e)}{dt} = K_0 - \frac{3D_v}{R^3} r_0 (C_v - C_v^e), \\ \frac{dr_0}{dt} = \frac{1}{r_0} D_v (C_v - C_v^e). \end{cases} \quad (30)$$

Зробимо спробу знайти радіус r_0 , який задовільнятиме цю систему. Зведемо нашу задачу до безрозмірного вигляду. Поклавши

$$t = c\tau, \quad r_0 = ax(\tau), \quad C_v - C_v^e = by(\tau), \quad (31)$$

приходимо до системи рівнянь

$$\begin{cases} \frac{dy}{d\tau} = \frac{c}{b} K_0 - ac \frac{3D_v}{R^3} xy, \\ \frac{dx}{d\tau} = \frac{bc}{a^2} D_v \frac{y}{x}, \end{cases} \quad (32)$$

в якій будемо вимагати, щоб всі коефіцієнти були одиницями:

$$\frac{c}{b} K_0 = 1, \quad ac \frac{3D_v}{R^3} = 1, \quad \frac{bc}{a^2} D_v = 1. \quad (33)$$

На основі (33) можемо одержати наступні вирази для a , b та c :

$$\begin{aligned} a &= \frac{1}{\sqrt{3}} \left[\frac{K_0 R^6}{D_v} \right]^{1/4}, & b &= \frac{1}{\sqrt{3}} \left[\frac{K_0 R^2}{D_v} \right]^{3/4}, \\ c &= \frac{1}{\sqrt{3}} \left[\frac{R^6}{K_0 D_v^3} \right]^{1/4}. \end{aligned} \quad (34)$$

Наша система рівнянь (32) тепер набуде вигляду

$$\begin{cases} \frac{dy}{d\tau} = 1 - xy, \\ \frac{dx}{d\tau} = \frac{y}{x}. \end{cases} \quad (35)$$

Знайдемо інтеграл системи (35). Помноживши обидві частини другого рівняння системи (35) на x^2 та додавши його до першого рівняння, отримуємо

$$\frac{d}{d\tau}(y + \frac{1}{3}x^3) = 1. \quad (36)$$

Таким чином, $y + x^3/3 - \tau = const$. Завжди можна вибрати початок відліку часу так, щоб $const = 0$. Отже, інтеграл матиме вигляд

$$y + \frac{1}{3}x^3 = \tau. \quad (37)$$

Підставляючи в друге рівняння системи (35) вираз для y із (37), приходимо до диференційного рівняння

$$\frac{dx}{d\tau} = \frac{\tau}{x} - \frac{1}{3}x^2, \quad (38)$$

яке і буде об'єктом наших подальших досліджень.

Зробимо деякі оцінки.

1. Нехай $\tau \neq 0$ і $x \ll 1$. Тоді другим членом в рівнянні (38) можна знехтувати і ми одержуємо розв'язок

$$x = \sqrt{\tau^2 - \tau_0^2} \approx \sqrt{2\tau_0(\tau - \tau_0)}, \quad (39)$$

який приймає при $\tau = \tau_0$ значення $x = 0$.

2. Розглянемо асимптотичну поведінку при $\tau \gg 1$. Припустимо, що x описується степенною залежністю

$$x = u\tau^\alpha. \quad (40)$$

Підставляючи (40) в (38), знаходимо

$$u\alpha\tau^{\alpha-1} = \frac{1}{u}\tau^{1-\alpha} - \frac{1}{3}u^2\tau^{2\alpha}. \quad (41)$$

Покладаючи $1 - \alpha = 2\alpha$ та $1/u = u^2/3$, отримуємо $\alpha = 1/3$, $u = 3^{1/3}$, а, отже,

$$x = (3\tau)^{1/3}. \quad (42)$$

При такому виборі α , u та x права частина (41) перетворюється в нуль, а для лівої частини маємо

$$\frac{1}{3}\sqrt[3]{3}\tau^{1/3-1} = (3\tau)^{-2/3} \xrightarrow{\tau \gg 1} 0. \quad (43)$$

Таким чином, (42) є наближеним розв'язком рівняння (38) при $\tau \gg 1$. Попарно перебираючи інші комбінації рівностей показників степенів при τ в (41), можна переконатись, що інших розв'язків немає.

Слід відмітити, що з (37) та (39) випливає, що при $x = 0$ виконується умова $y_0 = \tau_0$. Це означає, що вибір конкретної кривої $x(\tau)$ відповідає вибору y_0 , тобто вибору $C_{v_0} - C_v^e$ в початковий момент часу t_0 .

Тепер запишемо наші оцінки в розмірних величинах. Для малих $x(\tau)$ на основі (39) маємо

$$\begin{aligned} r_0 &\approx \frac{a}{c} [2t_0(t - t_0)]^{1/2} \approx [2K_0t_0D_v(t - t_0)]^{1/2} \approx \\ &\approx [2D_v(C_{v_0} - C_v^e)(t - t_0)]^{1/2}. \end{aligned} \quad (44)$$

Для великих t (та $x(t)$) на основі (42) одержуємо

$$r_0 \approx ac^{-1/3}(3t)^{1/3} \approx R(K_0t)^{1/3} \approx \left(3\frac{K_0t}{4\pi n_v}\right)^{1/3}. \quad (45)$$

Зауважимо, що утворення пор відбувається в два етапи: зародження (виникнення пор з розміром, більшим за критичний) і ріст вже зароджених пор. Ці процеси можуть проходити одночасно. Перехід від зародження пор до їх росту здійснюється в момент часу, який відповідає виходу загального числа пор на свій стаціонарний рівень, тобто встановлюється стаціонарна або близька до неї концентрація пор n_v (див. [13]). Це можливо, якщо критичні розміри зародка пори досягнуть порядку середнього розміру пор, що ростуть. В подальшому нові пори перестануть виникати і надлишок вакансій буде поглинатись вже наявними порами. При аналізі переходу від зародження до росту пор слід використовувати вираз (44). В даній роботі розвинута методика розрахунку для пор з розмірами значно більшими за критичний. Тоді справедливим є вираз (45). Зародження і перехід від нього до росту пор представляє собою окрему задачу, яка тут не розглядається.

Основою наших обчислень буде співвідношення (45). Обговоримо значення величин, які використовуватимуться при цьому. ЛПВМ в цілому володіють властивостями, характерними для молекулярних сит (див., наприклад, [1, 12]). Це підтверджується експериментом для коричневих ЛПВМ з 10%-им вмістом палива, де приблизно 3% їх об'єму виявились доступними для молекул води (розмір молекули 0.26 нм), але недоступними для молекул метанолу (0.35

нм) і більших молекул. Тому ріст пор досліджувався нами, починаючи з радіуса пори $r_0=0.15$ нм. Якщо прийняти, що середня кількість змишень за секунду $A_v \approx 3 \cdot 10^{11}$ змишень/с·см³ (при середній α -активності 10^8 розпадів/с·см³) [36], а середня густина атомів ЛПВМ $6 \cdot 10^{22}$ атомів/см³ [1, 36], то отримуємо $K_0=5 \cdot 10^{-12}$ змишень/атом·с. Використовуючи вказане існуюче на даний час значення r_0 , відповідне йому значення t (в с), рівне 15.5 рокам (2001 рік), а також вищеприведене значення K_0 , можна із (45) знайти густину пор $n_v \approx 1.7288 \cdot 10^{26}$ м⁻³, яка узгоджується із оцінкою $n_v \approx 10^{27}$ м⁻³, одержаною на основі зазначеної в [1, 4, 12] величини доступної пористості ЛПВМ. Маючи значення n_v і виходячи із (45), спрогнозуємо графік часової залежності $r_0(t)$ на майбутні роки (див. рис. 1).

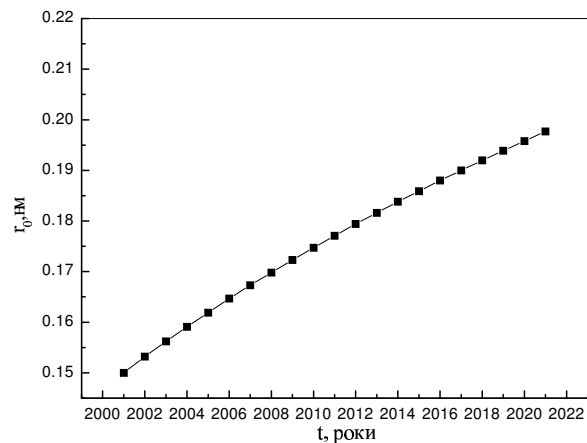


Рис. 1. Часова еволюція розміру пор в ЛПВМ.

6. Висновки

Вказано на ефекти радіаційної дії на твердотільні матеріали, зокрема на наслідки внутрішнього самоопромінення ЛПВМ. Зміна структури матеріалів та утворення дефектів під дією опромінення приводить до зміни фізичних властивостей цих матеріалів. Зібрано деякі відомості про дефектоутворення в ЛПВМ під дією їхнього самоопромінення, специфіку характеру радіаційного пошкодження ЛПВМ. Коротко описано процеси утворення під дією випромінювання дефектів перегріву та переміщення. Невід'ємною рисою цих процесів

є виникнення імпульсів локальної температури або так званих теплових клинів. Модель теплових клинів для ЛПВМ забезпечує якісний опис перебігу процесів в них під час гальмування α -частинок та ядер віддачі. Коротко і спрощено розглянуто рухливість та анігіляцію дефектів, зокрема проблему “відновлення” (“виздоровлення”) матеріалу, що зводиться до дифузії дефектів в напрямі до пасток. Проведено аналогію з часовою кінетикою хімічних реакцій. Подані деякі відомі результати дослідження дифузійних властивостей цікавих для атомної енергетики багатокомпонентних систем Zr-Nb-Mo, U-Zr-Nb, U-Nb-Mo, U-Zr-C.

Спрощено розв'язано задачу про ріст пор в ЛПВМ за рахунок поглинання вакансій. Дані обчислення можуть служити початковим (нульовим) наближенням розв'язку цієї задачі. Оцінено зміну розміру пор в ЛПВМ з часом. За нашими грубими підрахунками до 2021 р. радіус пори в порівнянні з 2001 р. (через 20 років) міг би збільшитись в 1.32 рази. Слід відзначити, що під час даних оціночних обчислень використовувались певні наближення (вважалось, що в матеріалі існують стоки тільки одного типу – пори, які розміщені рівномірно і володіють однаковою інтенсивністю поглинання) та не враховувались в процесі пороутворення деякі фактори (наприклад, наявність газів та води в порах). Зокрема, водень та гелій (останній утворюється в ЛПВМ в результаті α -розпаду) сприяють пороутворенню. Проникаючи в мікро- та ультрапори ЛПВМ молекули води приводять до руйнування поверхні пор. Не брались до уваги також рекомбінація дефектів, захоплення порами міжвузлових атомів, пружні натяги, що створюються порами. Не вивчався вплив на вакансійне розпухання “домішкових” атомів, яких в ЛПВМ значна кількість, якщо останніми вважати атоми кремнію та кисню. Підкреслимо, що для врахування неоднорідних розподілів структурних дефектів необхідно ввести у розгляд ще залежні від просторових градієнтів дифузійні потоки точкових дефектів. Було б також цікаво пов'язати наші обчислення з каскадною функцією та іншими характеристиками атомних зіткнень. Врахування кожного із вищеперелічених зауважень внесе певні коректури в результат розрахунку.

Література

1. Радиационные повреждения в лавообразных топливосодержащих материалах объекта “Укрытие” / Барьяхтар В.Г., Гончар В.В., Жидков А.В., Ключников А.А. – Чернобыль, 1998. – 18 с. – (Препр. / НАН Украины. МНТЦ “Укрытие”; 98-12).

2. Герасько В.Н., Ключников А.А., Корнеев А.А., Купный В.И., Носовский А.В., Щербин В.Н. Объект “Укрытие”. История, состояние и перспективы. – Киев: Интерграфик, 1997. – 224 с.
3. Бреховских С.М., Викторова Ю.Н., Ланда Л.М. Радиационные эффекты в стеклах. – М.: Энергоиздат, 1982. – 184 с.
4. Моделювання процесів вакансійного розпухання, міграції водню і гелію в ЛПВМ. Теплові клини в ЛПВМ / Юхновський І.Р., Глушак П.А., Захар’яш О.С., Токарчук М.В. – Львів, 2001. – 17 с. – (Препр. / НАН України. ІФКС ; ICMP-01-15U).
5. Quere Y. // J. Nuclear Materials. – 1963. – **9**. – P. 290.
6. Будилин Б.В., Воробьев А.А. Действие излучения на ионные структуры. – М.: Госатомиздат, 1964.
7. Leteurtre J., Quere Y. Irradiation Effects in Fissible Materials. – Amsterdam: North-Holland Publ. Co., 1972.
8. Olsen C.E., Elliot R.O., Sandenaw T.A. // In: Proc. Symp. Venezia, J. Phys. Chem. Solids. – 1962. – **23**. – P. 1225; Griffiw C.S., Mendelsohn K., Motimer M.J. // Brgogenics. – 1968. – **8**. – P. 110.
9. Вуколов В.А., Чукреев Ф.Е. О точности расчета выходов нейтронов для химических соединений актиноидов // Атом. Энерг. – 1987. – **62**, вып. 4. – С. 232-236.
10. Разработка методики и оценки вклада (α, γ)-реакций в интенсивность нейтронов, генерируемых в ЛТСМ в помещении 304/3 объекта “Укрытие”: (Техническая справка) / НПП “Камертон”. – Минск, 1995.
11. Пазухин Э.М. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: топография, физико-химические свойства, сценарий образования // Радиохимия. – 1994. – **36**, вып. 2. – С. 97-142.
12. Доступная пористость и молекулярно-ситовые свойства лавообразных топливосодержащих материалов объекта “Укрытие”: (Отчет) / МНТЦ “Укрытие” НАН Украины. – Арх. № 3723. – Чернобыль, 1998.
13. Ахизер И.А., Давыдов Л.Н. Введение в теоретическую радиационную физику металлов и сплавов. – Киев: Наукова думка, 1985. – 144 с.
14. Stoneham A.M. The void lattice and other regular arrays of defects // In: The Physics of Irradiation Produced Voids / Ed. Nelson R.S., Consultant Symp., Harwell, Sept. 1974. – Harwell: UKAEA, 1975. – P. 319-329 (AERE Report; R7934).
15. Stoneham A.M. The origin and stability of defect structure: the void lattice and similar phenomena // In: Fundamental Aspects of Radia-

- tion Damage in Metals, Proc. Intern. Conf., Oct. 6-10, 1975, Gatlinburg, Tenn., USA, s. a. V. 2. – P. 1221-1235 (CONF-751006-P2).
16. Krishan K. Void ordering in metals during irradiation // Phil. Mag. A. – 1982. – **45**, № 3. – P. 401-417.
17. Силинь А.Р., Трухин А.Н. Точечные дефекты и элементарные возбуждения в кристаллическом и стеклообразном SiO₂. – Рига: Зинатне, 1985. – 244 с.
18. Hosono H., Kawazoe H., Matsunami N. Experimental evidence for Frenkel defect formation in amorphous SiO₂ by electronic excitation // Phys. Rev. Lett. – 1998. – **80**, № 2. – P. 317-320.
19. Matsunami N., Hosono H. Bi-self-trapped-exiton model for Frenkel defect formation in amorphous SiO₂ by proton irradiation // Phys. Rev. B. – 1999. – **60**, № 15. – P. 10616-10619.
20. Imai H., Arai K., Isoya J., Hosono H., Abe J., Imagawa H. Generation of E' centers and oxygen hole centers in synthetic silica glasses by gamma irradiation // Phys. Rev. B. – 1993. – **48**, № 5. – P. 3116-3123.
21. Seitz F., Koehler J.S. Displacement of Atoms during Radiation // Solid State Physics. – 1956. – **11**. – P. 307; Brinkman J.A. // Am. J. of Physics. – 1956. – **24**. – P. 246.
22. Stoneham A.M. Theory of Defects in Solids. – Oxford Univ. Press. – 1975.
23. Тиканов Б.А., Давыдов Е.Ф. Радиационная стойкость тепловыделяющих элементов ядерных реакторов. – М.: Атомиздат, 1977.
24. Dienes G.S., Vineyard G.H. Radiation Effects in Solids. – New York: Interscience Publ., 1957.
25. Carslow H.S., Jaeger J.C. Conduction of Heat in Solids. – Oxford: Clarendon Press. – 1959.
26. Федоров Г.Б., Смирнов Е.А. Диффузия в реакторных материалах. – М.: Атомиздат, 1978. – 160 с.
27. Kirkaldy J.S. Isothermal diffusion in multicomponent systems // In: Adv. Mater. Res. V. 4. – New York, 1970. – P. 55-100.
28. Федоров Г.Б., Смирнов Е.А. Диффузия в металлах и сплавах // В кн.: Металловедение и термическая обработка. Т. 8 (“Итоги науки и техники”, ВИНТИ АН СССР). – М., 1974. – С. 5-63.
29. Боровский И.Б., Гуров К.П., Марчукова И.Д., Угасте Ю.Э. Процессы взаимной диффузии в сплавах. – М.: Наука, 1973.
30. Федоров Г.Б., Смирнов Е.А., Новиков С.М. Влияние легирования циркония ниобием и молибденом на диффузионную подвижность ниобия и циркония // В кн.: Металлургия и металловедение чистых металлов. Вып. VIII. – М.: Атомиздат, 1969. – С. 41-

47.

31. Федоров Г.Б., Смирнов Е.А., Гусев В.Н. Диффузионные свойства сплавов системы уран – цирконий – ниобий // Атомная энергия. – 1969. – **27**, вып. 2. – С. 149-150.
32. Гуров К.П., Андриевский Р.А. К теории диффузии атомов внедрения в сплавах. I. Общий формализм // Физ. металлов и металловедение. – 1970. – **29**, вып. 5. – С. 757-763.
33. Лейман К. Взаимодействие излучения с твердым телом и образование элементарных дефектов. – М.: Атомиздат, 1979. – 296 с.
34. Baryakhtar V., Gonchar V., Zhidkov A., Zhydkov V. Radiation damages and self-sputtering of high-radioactive dielectrics: spontaneous emission of submicronic dust particles // Condens. Matter Phys. – 2002. – **5**, № 3(31). – P. 449-471.
35. Урсу И. Физика и технология ядерных материалов. – М.: Энергоатомиздат, 1988. – 480 с.
36. Комп'ютерне та теоретичне моделювання фізичних та хімічних процесів у системі “фрагменти активної зони – ЛПВМ – вода” об'єкту “Укриття”: висновки, прогнози та рекомендації: (Заключний звіт, договір № 01/2001) / ІФКС НАН України. – Львів, 2002.

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
Ігор Васильович Пилюк
Михайло Павлович Козловський
Микола Антонович Кориневський
Орест Олегович Притула

РАДІАЦІЙНЕ ДЕФЕКТОУТВОРЕННЯ ТА ВАКАНСІЙНЕ РОЗПУХАННЯ
ЛАВОПОДІБНИХ ПАЛИВОВІСНИХ МАТЕРІАЛІВ

Роботу отримано 18 грудня 2002 р.

Затверджено до друку Вченою радою ІФКС НАН України

Рекомендовано до друку семінаром Інституту з проблем
Чорнобильської тематики

Виготовлено при ІФКС НАН України

© Усі права застережені