



ІНСТИТУТ
ФІЗИКИ
КОНДЕНСОВАНИХ
СИСТЕМ

ICMP-04-13U

І.М. Мриглод, В.В. Ігнатюк

ДО ТЕОРІЇ ФОРМУВАННЯ МІКРОТРИЩИН В ТВЕРДИХ
ТІЛАХ ПІД ВПЛИВОМ РАДІАЦІЙНОГО ОПРОМІНЕННЯ

УДК: 538.91, 538.971, 539.213, 539.219

PACS: 46.30.Nz, 61.72.Qq, 61.80.-x, 82.60.Nh

До теорії формування мікротріщин в твердих тілах під впливом радіаційного опромінення

І.М. Мриглод, В.В. Ігнатюк

Анотація. На основі модифікованої теорії Гріффітса проведено опис зародження та росту мікротріщин в твердих тілах. У випадку мікротріщин з взаємодіючими краями з використанням підходу Френкеля отримано критичне значення напруження, після якого настає швидке руйнування матеріалу. Проведено оцінки часу до руйнування матриць лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ) при утворенні мікротріщин внаслідок радіаційного дефектоутворення та термоактиваційних процесів всередині ЛПВМ.

On the theory of microcracks formation in solids under irradiation

I.M. Mryglod, V.V. Ignatyuk

Abstract. On the basis of Griffith modified theory we carried out a description of the microcracks nucleation and growth in solids. Using Frenkel approach we obtained a value of critical strength for the microcracks with interacting edges, exceeding of which leads to fast destroying of a material. We performed numerical estimations of the time to destruction for matrixes of lava-like fuel-containing materials due to microcracks formation under irradiation and thermal activated processes influence.

1. Вступ

В даній роботі ми проведемо аналіз деяких моделей, які можна застосовувати для опису радіаційного дефектоутворення в ЛПВМ, що виникли при локалізації аварії на 4-му блоці ЧАЕС і тепер знаходяться всередині об'єкту “Укриття” (ОУ). Такі дослідження є надзвичайно актуальними з точки зору міроприємств, що мають передувати роботам по перетворенню ОУ в екологічно безпечний об'єкт [1], оскільки допомагають вирішити питання про міцнісні характеристики конструкційних матеріалів ОУ. Ми будемо вести мову про зародження та розвиток мікротріщин (МТ) всередині аморфних (або частково закриталізованих) областей ЛПВМ, оскільки динаміка інших макродефектів (порожнин, кластерів вакансій) є дуже подібною до еволюції МТ.

З експериментальних спостережень відомо [2], що формування тріщин як в пластичних, так і в крихких матеріалах відбувається за подібним сценарієм – зародження, росту та коалесценції пустот субмікронного розміру. Відмінність полягає лише в різній довжині новоутворених зародків тріщин: в тілах типу кераміки вони становлять ~ 10 нм, що на три порядки менше, ніж в металах і сплавах. Можна з впевненістю стверджувати, що зародження таких нанопустот відбувається в областях пониженої концентрації, прикладом яких можуть бути розвпорядковані області всередині латентних треків [3]. В процесі опромінення в розвпорядкованих областях будуть виникати локальні зміни об'єму, причому оточуючий матеріал буде перешкоджати таким об'ємним змінам, що спричинятиме виникнення помітних механічних напружень в матрицях ЛПВМ. Таким чином, радіаційно пошкоджені області всередині ЛПВМ стають акумуляторами внутрішніх напружень, що поширюються попереду вже сформованої МТ певної початкової довжини l_{min} , і ведуть до швидкого збільшення розмірів останньої при наближенні l до певної критичної межі. І хоча негайного руйнування ЛПВМ не відбудеться внаслідок малого розміру розвпорядкованих областей і подальшої релаксації напружень внаслідок послаблення внутріатомних зв'язків, можливий механізм “сповільненої” деградації матеріалу, який пов'язаний з термоактивацією внутрішніх напружень [4–6] та гетерогенною структурою ЛПВМ [7].

Експериментальні вимірювання [2] швидкості поширення МТ дають значення від $v = 10^{-11} \div 10^{-9}$ м/с (при навантаженнях, які значно менші, ніж межа міцності керамік) до $v = 10^{-6}$ м/с (для підкритичних значень напружень), причому в частково закриталізованих

матеріалах спостерігається стрибкоподібне поширення МТ, а флуктуації швидкості при малих навантаженнях порівняльні з v та можуть досягати величини 10^{-10} м/с. При досягненні МТ певного критичного розміру l_c подальше поширення дефекту відбуватиметься з швидкістю звуку, що приведе до майже миттєвого руйнування твердого тіла, коли магістральна тріщина стає співмірною з лінійними розмірами системи.

В наступних розділах ми зупинемось на аналізі формування МТ всередині фрагментів ЛПВМ, беручи за основу деякі феноменологічні моделі дефектоутворення в твердих тілах. Ми залишаємо поза увагою кінетичні аспекти формування МТ [8], які хоча і дозволяють повністю враховувати структуру, геометрію та взаємодію МТ, проте є ефективними лише для чисельного моделювання динаміки МТ. Спочатку ми проаналізуємо феноменологічну модель Гріффітса, яка в розділі 3 буде модифікована з врахуванням вкладу поверхневої дифузії та реконструкції поверхні. В розділі 4 ми будемо використовувати феноменологічну модель Френкеля, яка дозволяє ефективно враховувати взаємодію між краями МТ в її вершинній зоні. На основі базових рівнянь, запропонованих в розділах 3 та 4, буде проведена оцінка часу до руйнування матеріалів ЛПВМ, а також критичного значення внутрішніх напружень для фрагментів ЛПВМ певної геометрії. В останньому розділі ми перерахуємо ряд факторів, які ведуть як до заліковування МТ, так і до збільшення швидкості їх росту.

2. Процес формування мікротріщин: I. Феноменологічна модель Гріффітса

В рамках мезоскопічного підходу до опису дефектів основним механізмом формування МТ вважається термоактивація флуктуацій внутрішніх напружень. Згідно гіпотезі Гріффітса [9] для моделі двомірної МТ, що виникає в напрямку, перпендикулярному до прикладеного розтягуючого зусилля, можна записати наступний вираз для вільної енергії на одиницю довжини тріщини:

$$F(\sigma, l) = \gamma l - \frac{l^2 \sigma^2}{2E}, \quad (1)$$

де перший член відповідає енергії, яку потрібно затратити для створення МТ довжини l , а другий описує зміни енергії в пружному середовищі при виникненні МТ. Решта величин в рівнянні (1) мають

наступний зміст: E - модуль Юнга, σ - внутрішнє напруження в околі МТ, γ - енергія, яку необхідно затратити для збільшення площі поверхні МТ на одиницю; з достатньою точністю її можна апроксимувати виразом $\gamma = Ea$, де a означає міжатомну відстань. Максимум енергії (1) визначає критичний розмір МТ $l_c = \frac{\gamma E}{\sigma^2} = a \frac{E^2}{\sigma^2}$, при досягненні якого починається швидке руйнування матеріалу (тріщина досягає макроскопічних масштабів). З іншого боку, зменшення початкових розмірів згідно (1) веде до зменшення $F(\sigma, l)$, тому зникнення початкових дефектів також є енергетично вигідним. Під терміном “початкові дефекти” будемо вважати наявність в матриці ЛПВМ певної кількості МТ з характерними розмірами $l_{min} \ll l_c$. У випадку однородної системи масштаб l_{min} в основному визначатиметься кінетичними процесами (в першу чергу – дифузією вакансій) по механізму, подібному до описаного в роботі [10]. При такому підході l_{min} можна ототожнити зі стаціонарним розв’язком кінетичного рівняння, що описує динаміку дефектоутворення. В загальному випадку таке кінетичне рівняння матиме достатньо складну структуру і його розв’язок залежатиме від потужності випромінювання, концентрації вакансій та коефіцієнта дифузії точкових дефектів. Другим суттєвим фактором, який впливає на розміри l_{min} зародкових МТ, є наявність внутрішніх напружень як результату локальних деформацій матеріалу ЛПВМ, що виникають при формуванні розвпорядкованих областей [3], а також в області латентних треків [11]. При цьому, з одного боку, міняється концентрація та геометрія МТ (що, в свою чергу, може вести до зміни l_{min}), з іншого – ефективні пружні характеристики матеріалу [12]. Можна стверджувати, що дифузійні процеси при умові постійної геренації вакансій майже не впливають на зміну l_{min} , якщо взаємодією МТ можна знехтувати, а їх концентрація незначна.

Другий фактор впливає на еволюцію МТ двояким чином: і) збільшуючи концентрацію МТ; ii) міняючи матеріальні константи ЛПВМ. Розрахунок динаміки концентрації МТ є досить складною задачею. Що ж стосується розрахунку зміни ефективних пружних характеристик середовища в залежності від постійної концентрації пор та МТ, а також зовнішніх напружень, то такий шлях є досить перспективним [12]. Надалі ми будемо використовувати результати, отримані в даній роботі.

3. Процес формування мікротріщин: II. Модифікована модель Гріффітса

В роботі [4] результати теорії Гріффітса були модифіковані суттєвим чином шляхом врахування поверхневих дифузійних процесів і реконструкції поверхні МТ. Динаміка росту/заліковування МТ описується на основі рівняння Ланжевена

$$\frac{dl}{dt} = -B \frac{\partial F(\sigma, l)}{\partial l} + n(t), \quad (2)$$

де $n(t)$ – вклад термоактиваційних флуктуацій в швидкість зміни l , який за своєю природою є білим шумом з відповідними кореляторами $\langle n(t) \rangle = 0$, $\langle n(t)n(t') \rangle = 2Bk_B T \delta(t - t')$, а B означає феноменологічну мобільність (обернений коефіцієнт тертя при дифузії точкових дефектів).

Було показано [4], що стохастичне рівняння (2) може описувати як ріст, так і заліковування МТ. Заліковування ($dl/dt < 0$) відбувається на часових проміжках $\Delta t(l)$, які є достатньо малими в порівнянні з характерними дифузійними часами системи t_D ; на часових проміжках $t \gg \Delta t(l)$ переважає направлена дифузія і середня швидкість росту МТ є додатньою, а розмір МТ лежить в діапазоні $l_{min} < l < l_c$. Тут в доповнення до критичної довжини МТ $l_c = aE^2/\sigma^2$, яка фігурує в теорії Гріффітса, вводиться новий масштаб довжин $l_{min} = aE/\sigma$. Вважається, що розмір l_{min} має така МТ, в якій максимальна відстань між краями (максимальне розкриття) дорівнює міжатомній відстані a . З даного означення випливає, що l_{min} дійсно має зміст мінімальної довжини МТ; крім того, при малих деформаціях $\varepsilon = \sigma/E \ll 1$ її розмір значно перевищує міжатомну відстань. МТ довжини $l < l_{min}$ подібні до відпалених дефектів в твердому тілі і будуть заліковуватись внаслідок поверхневої дифузії. При $l > l_{min}$ МТ будуть направлено рости, поки не досягнуть критичного розміру l_c , що визначається з максимуму (1), після чого відбудеться майже миттєве руйнування матеріалу.

На відміну від теорії Гріффітса, в якій допускається самовільне заліковування МТ, в роботах [4,5] враховувалась поверхнева реконструкція, що веде до сповільнення заліковування МТ, і, як наслідок, - до зменшення характерних часів її існування. В даних роботах, в яких еволюція МТ описувалась в рамках моделі “зародження-ріст”, показано, що характерний час нуклеації

$$\tau_{nucl} \sim \exp[\gamma l_{min}^2 / k_B T]$$

трьохмірної МТ має такий самий порядок, що і час росту τ_{growth} . Таким чином, усі перераховані раніше фактори приводять до значного зменшення часу існування МТ в порівнянні з передбаченням теорії Гріффітса

$$\tau \sim \exp[\gamma l_c^2 / k_B T],$$

нагадаємо, що при незначних деформаціях $l_c / l_{min} = E / \sigma \gg 1$.

Для часу τ розвитку МТ зроблено наступну оцінку:

$$\tau = \tau_0 \exp[(E/\sigma)^{d-1} T_m / T] = \tau_0 \exp[\gamma l_{min}^{d-1} / k_B T], \quad (3)$$

де T_m означає характерну температуру, близьку до температури аморфізації матеріалу ЛПВМ, а d – просторову розмірність МТ. Вираз (3), як було показано в роботі [5], добре надається і для опису еволюції мікропорожнин (кластерів вакансій). Саме за таким механізмом (зародження, розвитку та коалесценції мікропор), як показують результати експериментальних досліджень [2], відбувається розповсюдження МТ.

Передекспоненційний множник в (3) можна оцінити, використовуючи вираз, отриманий в рамках цього ж термоактиваційного формалізму [6]:

$$\tau_0 = \frac{4}{L} \sqrt{\frac{k_B T}{aE} \frac{l_c}{l_{min}} \frac{l_{min}}{v_0}}, \quad (4)$$

де v_0 означає початкову швидкість поширення МТ, а L – середню відстань, на якій релаксують термоактивовані внутрішні напруження. Зауважимо, що внаслідок наближень, які робились при отриманні (4), величина передекспоненційного множника τ_0 буде завищеною. Крім того, при отриманні рівнянь (3)-(4) не бралась до уваги неоднорідність матеріалу ЛПВМ. В роботі [7] було показано, що врахування випадкових сил та напружень через усереднення за функцією розподілу “замороженого” безладу веде до значного підвищення (в кілька разів) ефективної температури середовища T_{eff} (або, що є тотожним, - до зниження енергії активації $k_B T_a = \gamma l_{min}^2$ дефектоутворення).

Проведемо оцінки часу розвитку МТ на основі (3)-(4). Перш за все, для оцінки передекспоненційного множника τ_0 покладемо початкову швидкість поширення МТ $v_0 = 10^{-9}$ м/с, що добре узгоджується з експериментальними даними [2], а для величини L візьмемо оцінку $L \sim 10l_c$. Будемо вважати ефективну температуру середовища T_{eff} втричі вищою, ніж температура T всередині ОУ, що зв'язано як з локальним розігрівом матеріалу ЛПВМ в навколотрековій області, так і з сильною неоднорідністю матриць ЛПВМ, про що йшлося раніше. Для поверхневої енергії МТ візьмемо значення

$\gamma = 0.5$ Дж/м², що узгоджується з даними експериментів для силікатних стекл. Врахуємо також той факт, що ЛПВМ є непорядкованими матеріалами з пористою структурою, і врахуємо результати роботи [12], де показано, що ефективні значення пружних констант матеріалу ЛПВМ залежать від розподілу пор та внутрішніх напружень σ . Взявши для оцінки значення напружень $\sigma = 80$ МПа (які становлять 1/4 від критичних напружень, отриманих нещодавно в експериментах зі статичного руйнування ЛПВМ), екстраполюючи результати залежності $E_{eff}(\sigma)$ в бік достатньо великих деформацій $\varepsilon = \sigma / E_{eff}(\sigma) \sim 0.1$ (що дає значення ефективного модуля Юнга $E_{eff}(\sigma)$ порядку 1 ГПа), ми отримуємо оцінку часу до руйнування $\tau \sim 10 \div 50$ років.

Зауважимо, що отриманий результат є наближеним і на нього можуть впливати наступні фактори:

1. динаміка генерації та еволюції нових дефектів внаслідок самоопромінення ЛПВМ;
2. неоднорідність напружень на границі МТ;
3. просторова геометрія та розподіл МТ;
4. ефективна взаємодія між окремими МТ, від якої істотно залежить швидкість поширення МТ;
5. взаємодія між окремими участками однієї МТ.

Вплив останнього з перелічених чинників буде розглянуто в наступному розділі.

4. Процес формування мікротріщин: III. Модель Френкеля для МТ з взаємодіючими краями

Врахування взаємодії (притягання) між краями МТ в її вершинній частині (tip zone, [4]) було проведено в роботі Френкеля [13]. Для пластини прямокутного перерізу $b \times c$ отримано наступний вираз для енергії одиниці довжини МТ:

$$U(\sigma, l) = -\frac{c^2 \sigma^2 l^3}{1.5 b^3 E} + 2\gamma l + \frac{c^2 \sigma^2 a}{El}. \quad (5)$$

Останній доданок у виразі (5) появився внаслідок врахування взаємодії між краями МТ і суттєвим чином модифікує енергетичний

профіль $U(\sigma, l)$. При напруженнях

$$\sigma < \sigma_{cr} = E \left(\frac{1}{2} \frac{ab^3}{c^4} \right)^{1/4} \quad (6)$$

функція (5) має два екстремуми: l_{min} , який відповідає мінімальній довжині МТ, та l_{max} , який відповідає масштабу, після проходження якого починається швидке руйнування матеріалу.

При збільшенні σ знижується потенційний бар'єр, який потрібно подолати для росту МТ, і при $\sigma = \sigma_{cr}$ будь-яка новоутворена МТ росте миттєво. Зауважимо, що теорія Френкеля на відміну від теорії Гріффітса [9] та її модифікацій [4–6] не постулює існування зародкових МТ: при малих l функція (5) є швидко спадною (фактично, $U(\sigma, l)$ має скінчене значення при $l = 0$), що означає швидкий розвиток тріщини до масштабу l_{min} . Однак, на відміну від модифікованої теорії Гріффітса [4], для даного випадку неможливо отримати аналітичний вираз для часу росту МТ τ_{growth} , хоча можна оцінити висоту енергетичного бар'єру між $U(\sigma, l_{min})$ та $U(\sigma, l_{max})$ при фіксованих значеннях напруження $\sigma < \sigma_{cr}$. Ми оцінимо величину критичного напруження σ_{cr} для пластини завтовшки $b = 1$ см, ширини $c = 1$ см, взявши за основу значення $E_{eff} = 1$ ГПа. Використовуючи вираз (6), отримуємо $\sigma_{cr} = 10$ МПа, що значно менше від величини, отриманої на основі теорії Гріффітса.

Таким чином, врахування геометрії зразка, а також взаємодії між краями МТ веде до зменшення критичних значень σ , при яких настає миттєве руйнування матеріалу ЛПВМ.

5. Висновки

До факторів, які сприяють заліковуванню дефектів, слід віднести те, що внаслідок локального збудження ґратки, зв'язаного, зокрема, з іонізаційними процесами всередині треків, послаблюються міжатомні зв'язки та полегшується релаксація внутрішніх напружень. Водночас, існує ряд причин, які пришвидшують утворення та ріст МТ. Серед них:

- утворення субмікронних гранул та треків при перекристалізації речовини ЛПВМ веде до збільшення міцності матеріалу [14] та виникненню додаткових внутрішніх напружень;
- термодинамічна нестійкість ЛПВМ, що виникає внаслідок зміни фазового складу при радіаційному дефектоутворенні;

- неоднорідність структури ЛПВМ приводить до виникнення далекосяжного скорельованого безладу, який понижає енергію активації дефектів;
- проникнення води в ЛПВМ (розірваний кожен десятий силікатний цикл [15]) приводить до підвищеної дифузії речовини всередині МТ.

Для оцінки характерних розмірів та динаміки розвитку МТ потрібна інформація про структурну будову та механічні властивості ЛПВМ.

Література

1. Ключников О.О. Современное состояние объекта “Укрытие“ и реализация международного проекта его преобразования в экологически безопасную систему (SIP). // Проблемы Чернобиля, 2002, вип. 11, с. 6-11.
2. Marlière C., Prades S., Célerié F., Bonamy D., Guillot C., Bouchaud E. Crack fronts and damage in glass at the nanometer scale. // J. Phys.: Condens. Matter, 2003, vol. 15, p. 2377.
3. 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, vol. 5, No. 3(31), pp. 449-471.
4. Golubović L., Feng Sh. Rate of microcrack nucleation. // Phys. Rev. A., 1991, vol. 43, p. 5223-5227.
5. Golubović L., Peredra A. Mechanism of time-delayed fractures. // Phys Rev. E., 1995, vol. 51, p. 2799-2804.
6. Santucci S., Vanel L., Guarino A., Scorretti R and Ciliberto S. Thermal activation of rupture and slow crack growth in a model of homogeneous brittle materials. // Europhysics Letters, 2003, vol. 62, No. 3, p. 320-324.
7. Politi A., Ciliberto S., Scorretti R. Failure time in the fiber-bundle model with thermal noise and disorder. // Phys. Rev E., 2002, vol. 66, p. 026107.
8. Van P., Papenfuss C., Muschik W. Griffith cracks in the mesoscopic microcrack theory. // arXiv: cond-mat/0211207 v5, 22 December 2003.
9. Griffith A.A. // Phil. Trans. Roy. Soc. London A, 1920, vol. 221, p. 163.

10. Дубинко В.И., Туркин А.А., Тур А.В., Яновский В.В. Диффузионное взаимодействие выделений новой фазы на произвольных расстояниях. // ФММ, 1989, т. 68, вып. 1, стр.21-28.
11. Комаров Ф.Ф. Дефектообразование и трекобразование в твердых телах при облучении ионами сверхвысоких энергий. // Успехи физических наук, 2003, том 173, №12, стр. 1287-1318.
12. Мрыглод И.М., Фищук И.И., Зинец О.С., Павлович В.Н., Сугаков В.И., Моина А.Ф., Токарчук М.В., Омелян И.П. Разработка расчетно-аналитической модели поведения ТСМ (WBS A03 00000). // Отчет о научно-исследовательской работе, МНТЦ "Укрытие" НАН Украины, 161 стр.
13. Френкель Я.И. Теория обратимых и необратимых трещин в твердых телах.// ЖЭТФ, 1952, т. 22, вып. 11, стр.1857-1866.
14. Fujita H. and Fujuta N. Heterogeneous deformation and mechanical strength of materials // Radiat. Eff. in Sol., 2002, vol. 157, p. 85-100.
15. Soullard J., Alamo A. // Radiat. Eff., 1978, vol. 38, p.133.

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/>)

Ігор Миронович Мриглод
Василь Васильович Ігнатюк

ДО ТЕОРІЇ ФОРМУВАННЯ МІКРОТРИЩИН В ТВЕРДИХ ТІЛАХ ПІД
ВПЛИВОМ РАДІАЦІЙНОГО ОПРОМІНЕННЯ

Роботу отримано 7 вересня 2004 р.

Затверджено до друку Вченою радою ІФКС НАН України

Рекомендовано до друку семінаром відділу теорії нерівноважних процесів

Виготовлено при ІФКС НАН України

© Усі права застережені