

ДОСЛІДЖЕННЯ ЕВОЛЮЦІЇ ДЕФЕКТНОЇ СТРУКТУРИ ТА МЕХАНІЧНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ В ОПРОМІНЮВАНИХ КРИСТАЛІЧНИХ СИСТЕМАХ

Наукова робота
представлена на здобуття премії Президента України для молодих учених

Наукового співробітника, кандидата фізико-математичних наук:
Щокотової Ольги Михайлівни

Наукового співробітника, кандидата фізико-математичних наук:
Баштової Анни Іванівни

Мета роботи — розвинення послідовного опису мікроструктурних перетворень, процесів кластеризації дефектів, утворення дислокаційних петель, пор, проходження фазового розшарування при перерозподілі точкових і лінійних дефектів за сталої дії опромінення та при механічному навантаженні.

Основні завдання дослідження:

- установити характер впливу пружних деформацій в околі дефектів на процеси формування вакансійних кластерів та росту густини дислокаційних петель в режимах опромінення в реакторі та на прискорювачах;
- дослідити динаміку пружної деформації та напружень на етапах формування кластерів точкових дефектів, вплив зсувної та циклічної деформацій, а також вплив опромінення на напружено-деформований стан чистого α -цирконію.
- з'ясувати особливості перебігу процесів структуроутворення вакансій за наявності флюктуацій швидкості пошкоджень;
- установити вплив деформаційних нестійкостей на процеси стохастичного пороутворення за різної інтенсивності стоків точкових дефектів;
- виявити умови проходження процесів відбору структур при кластеризації вакансій, зміни морфології кластерів у приповерхневих шарах опромінюваних тонких плівок за наявності флюктуацій швидкості набору дози;
- з'ясувати умови структуризації вакансій в опромінюваних бінарних сплавах (зокрема в $Zr - Nb$), що зазнають фазового розшарування при опроміненні та механічному навантаженні.
- дослідити вплив опромінення на зміну механічних властивостей досліджуваних $Zr - Nb$ сплавів.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

ВСТУП

Розділ 1: МОДЕЛЮВАННЯ НАПРУЖЕНО-ДЕФОРМОВАНОГО СТАНУ ЗЕРЕН ПРИ ЇХ КОНТАКТНІЙ ВЗАЄМОДІЇ У СТРУКТУРНО-НЕОДНОРІДНИХ МАТЕРІАЛАХ.

Розділ 2: ФОРМУВАННЯ НАНОРОЗМІРНИХ СТРУКТУР ТОЧКОВИХ ДЕФЕКТІВ ПІД ДІЄЮ ОПРОМІНЕННЯ.

Розділ 3: КІНЕТИЧНА МОДЕЛЬ ЕВОЛЮЦІЇ АНСАМБЛЮ ДЕФЕКТІВ У ЧИСТОМУ ЦИРКОНІЇ, ОПРОМІНЮВАНОМУ ПОТОКАМИ НЕЙТРОНІВ.

Розділ 4: СТРУКТУРОУТВОРЕННЯ ТА ПРОЦЕСИ ВІДБОРУ В ОПРОМІНЮВАНИХ ТОНКИХ ПЛІВКАХ.

Розділ 5: ОСОБЛИВОСТІ ФОРМУВАННЯ ТА РОСТУ ПОР У СТОХАСТИЧНІЙ СИСТЕМІ ДЕФЕКТІВ.

Розділ 6: МОДЕЛЮВАННЯ ДЕФЕКТОУТВОРЕННЯ У БІНАРНИХ ТВЕРДИХ РОЗЧИНАХ ПРИ ЇХ РОЗШАРУВАННІ ЗА РАДІАЦІЙНОГО ОПРОМІНЕННЯ ТА ПРИ МЕХАНІЧНОМУ НАВАНТАЖЕННІ.

ОСНОВНІ ВИСНОВКИ

Формування нанорозмірних структур точкових дефектів під дією опромінення

Двопараметрична модель динаміки точкових дефектів

$$\begin{aligned}\partial_t c_i &= K(1 - \varepsilon_i) - D_i S_i c_i - \alpha_r c_i c_v, \\ \partial_t c_v &= K(1 - \varepsilon_v) - D_v S_v (c_v - c_{0v}) - \alpha_r c_i c_v.\end{aligned}\quad (1)$$

$c_{0v} = e^{-E_v^f/T}$ — рівноважна концентрація вакансій;;

$D_{\{v,i\}} = D_{v,i}^0 e^{-E_{v,i}^m/T}$ — коефіцієнти дифузії;

$S_{\{v,i\}} = Z_{\{v,i\}N} \rho_N + Z_{\{v,i\}V} \rho_v + Z_{\{v,i\}I} \rho_i$ — інтенсивності стоків,

$\alpha_r = 4\pi r_0 (D_i + D_v)/\Omega$ — коефіцієнт рекомбінації.

Дифузійний потік:

$$J = -L_d^2 \nabla \left[1 - \frac{\nabla U}{T} \right] c_v. \quad (2)$$

Умова самоузгодження:

$$U = - \int \tilde{u}(r, r') c_v(r') dr', \quad \frac{1}{T} \int dr' \tilde{u}(r - r') c_v(r') \simeq \varepsilon(c_v + r_0^2 \nabla^2 c_v), \quad \varepsilon \equiv Z E_0^e / T, \quad r_0 \simeq \Omega^{1/3}. \quad (3)$$

Знерозмірення: $\rho'_{v,i} \equiv \rho_{v,i}/\rho_N$, $t' \equiv t \lambda_v$, $\lambda_v \equiv D_v Z_{vN} \rho_N$, $x_{i,v} = \gamma c_{i,v}$, $\gamma \equiv \alpha/\lambda_v$, $P \equiv \gamma K/\lambda_v$

$\mu \equiv (1 + \rho'_v + \rho'_i)$, $Z_{iN}/Z_{vN} = 1 + B$

Параметр малості: $D_v/D_i \equiv \delta \ll 1$

Вплив зовнішніх флюктуацій швидкості пошкоджень

Вплив шуму $P \rightarrow P(t) = P + \zeta(r, t)$, $\langle \zeta \rangle = 0$, $\langle \zeta(r, t) \zeta(r', t') \rangle = 2\sigma^2 \delta(r - r', t - t')$:

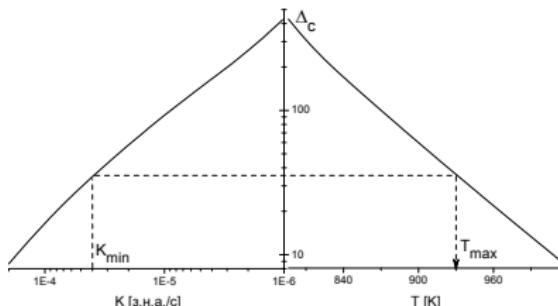
$$\partial_t x = R_x(x) - \nabla \cdot J + g_x(x) \zeta(r, t),$$

$$R_x(x) = P(1 - \varepsilon_v) - \mu(x - x_0) - \frac{P\varepsilon(1 - \varepsilon_i)x}{A\mu + \varepsilon x} + Ge^{\frac{\varepsilon x}{1+x^2}} \quad (4)$$

$$g_x^2(x) = (1 - \varepsilon_v)^2 + \left(\frac{\varepsilon(1 - \varepsilon_i)x}{A(1 + \rho_v + \rho_i) + \varepsilon x} \right)^2.$$

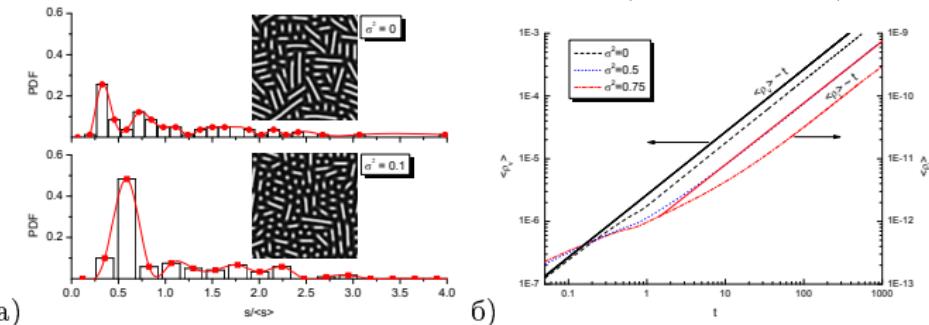
Використовуючи наближення середнього поля ($\Delta x \rightarrow (x - \eta)$, $(\nabla x)^2 \rightarrow (x - \eta)^2$)

$$\eta = \int_0^\infty x \mathcal{P}_s(x; \eta) dx; \quad \eta \equiv \langle x \rangle, \Delta \equiv (\eta - x_0)/x_0; \quad \Delta = \Delta(K, T) \quad (5)$$

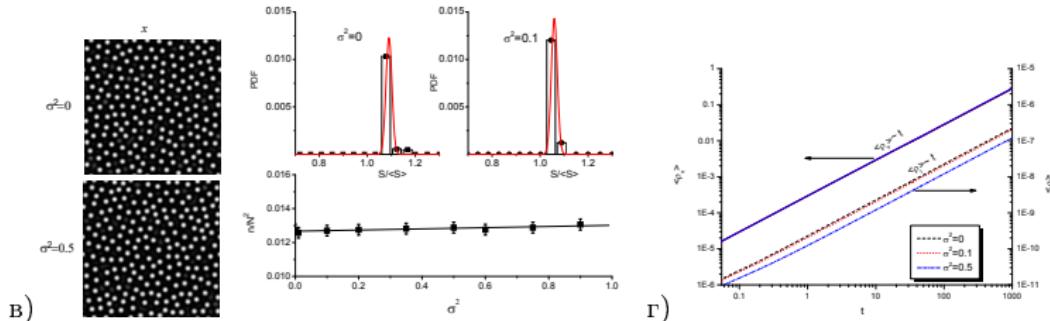


Структуроутворення дефектів в опромінюваних системах

Моделювання опромінення в реакторних умовах ($K = 10^{-6}$ з.н.а./с, $T = 773\text{K}$)



Моделювання опромінення на прискорювачах ($K = 10^{-3}$ з.н.а./с, $T = 973\text{K}$)



Ріст розміру пор у стохастичній системі дефектів

Динамічна модель еволюції концентрацій дефектів та радіусу пори має вигляд:

$$\begin{aligned}\partial_t c_v &= K - D_v(S_v + S^R)c_v - \alpha_r c_i c_v - \nabla \cdot J_v, \\ \partial_t c_i &= K - D_i(S_i + S^R)c_i - \alpha_r c_i c_v - \nabla \cdot J_i, \\ \partial_t R &= \frac{1}{R} [D_v(c_v - (c_v(R) - c_v^e(\infty)) - D_i c_i)].\end{aligned}\quad (6)$$

У адіабатичному наближенні ($\partial_t c_v = 0$, $\partial_t c_i = 0$) стохастична динаміка радіусу пори описується рівнянням Ланжевена

$$\tilde{\nu} \partial_t R = \frac{1}{R} \left(\frac{\beta}{1 + \theta R} - (e^{R_s/R} - 1) \right) + g(R)\zeta(t), \quad (7)$$

де $\kappa \equiv S_v/S_i < 1$, $\theta \equiv 4\pi\Omega^{1/3} N/S_v$,

$\beta \propto P(1 - \kappa)$ — перенормована швидкість пошкоджень зі стохастичними властивостями $P \rightarrow P(t) = P + \zeta(t)$; $g(R) = (R(1 + \theta R))^{-1}$.

Вплив флюктуацій швидкості пошкоджень на критичний радіус пор

1. Дислокації є домінуючими стоками точкових дефектів ($\theta = 0$).

Критичний радіус пор за детерміністичних умов:

$$R_c = R_s / \ln(2 + \beta). \quad (8)$$

Радіус пори росте за законом Ліфшиця-Алена-Кана:

$$R(t) \propto [\beta(t - t_0)]^{1/2}, \Delta V/V \propto (Pt)^{3/2}. \quad (9)$$

2. Пори є домінуючими стоками точкових дефектів ($\theta \neq 0$).

Критичний радіус пор у стохастичному випадку:

$$R_c = \frac{R_s}{2(1 + \beta)} \cdot \left[1 + \sqrt{1 + \sigma^2 \frac{4\beta}{R_s^2} (1 + \beta)} \right]. \quad (10)$$

Маємо динаміку росту пори Ліфшиця-Сльозова-Вагнера:

$$R(t) \propto (\theta^{-1} \beta(t - t_0))^{1/3}, \Delta V/V \propto Pt \quad (11)$$

Аналіз універсальності росту поріз зовнішнім шумом

Використовуємо наближення $R_c^{-1} \simeq R_s^{-1}(1 + \beta)$.

Зовнішні флюктуації:

$$\beta \rightarrow \beta(\tau) = \beta + \xi(\tau), \quad \langle \xi \rangle = 0, \quad \langle \xi(\tau)\xi(\tau') \rangle = 2\beta\Sigma\delta(\tau - \tau').$$

Динамічне рівняння ефективного радіусу пори $u = R/\langle R \rangle$:

$$\frac{du}{d\tau} = v(u) + g(u)\xi(\tau), \quad v(u) \equiv (1 + \beta)u^{-1} - u^{-2} - \chi u, \quad g(u) = u^{-1}. \quad (12)$$

В автомодельному режимі ($1/\Sigma \ll 1$) для густини ймовірності маємо

$$P(u, \tau) = e^{-\lambda\tau}\phi(u). \quad (13)$$

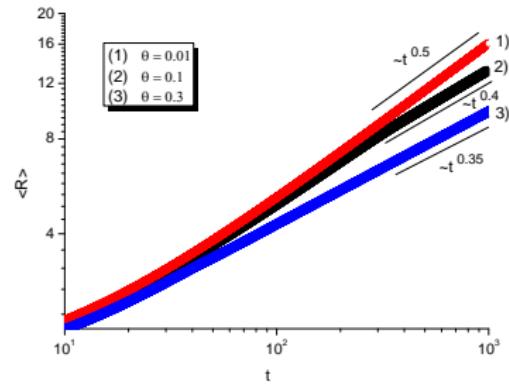
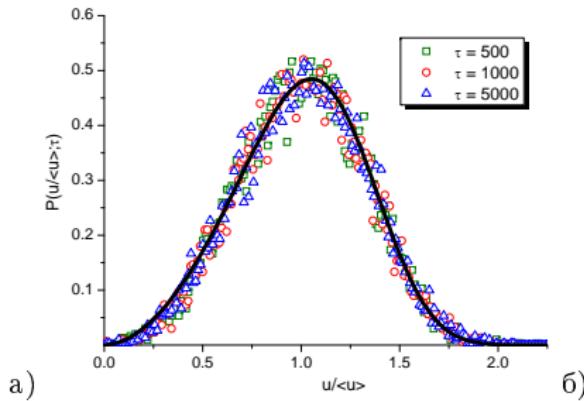
Скейлінги для середнього радіусу пори $\langle R(t) \rangle \propto t^H$, де $H = 1/3$;

Для кількості пор $N(t) \propto t^{H(1+\gamma)}$, де $|\gamma| = 1 + 3\lambda/\chi$, $1 < |\gamma| < 4$, $0 < \lambda < \chi$, $\chi = 4(1 + \beta)^3/27$;

Повного об'єму пор $q(t) \propto t^{(4+\gamma)/3}$.

Показник росту пересичення вакансій $\Delta(t) + q(t) = Qt^\alpha$ є таким $0 \leq \alpha < 1$.

Моделювання процесу росту пор в розподіленій системі



Розпад опроміненого бінарного розчину за вакансійним механізмом

c_A, c_B — концентрації атомів сорту A та B; $c_A + c_B = 1$ — закон збереження;
Густина вільної енергії f задається відповідно до теорії регулярного твердого розчину
Брега-Вільямса:

$$f = Z w_0 c_A c_B / 2 + T(c_A \ln c_A + c_B \ln c_B). \quad (14)$$

У рамках моделі Даркена ($D_A^* \neq D_B^*$) для дифузійних потоків маємо:

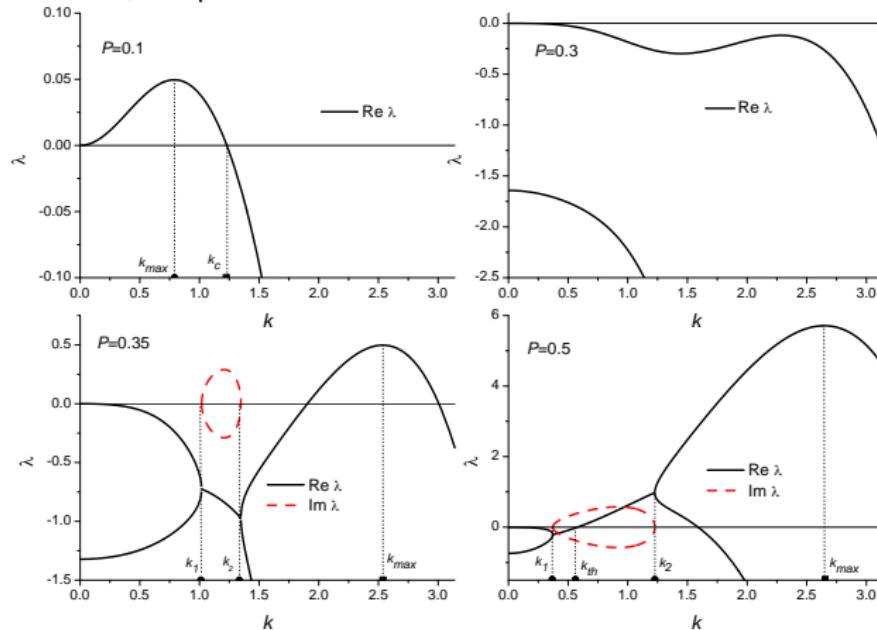
$$\begin{aligned} J_B &= \frac{c_A c_B (c_A D_B^* + c_B D_A^*)}{T} \nabla \tilde{\mu} + \frac{c_A c_B (D_B^* - D_A^*)}{c_v} \nabla c_v, \\ j_v &= \frac{c_A c_B (D_B^* - D_A^*)}{T} \nabla \tilde{\mu} - \mathcal{D}_v \nabla c_v, \\ \mathcal{D}_v &\equiv \frac{c_A D_A^* + c_B D_B^*}{c_v}. \end{aligned} \quad (15)$$

Еволюція повної системи задається системою рівнянь:

$$\begin{aligned} \partial_t c_i^A &= K c_A - \mathcal{D}_i \rho_N c_i^A - \alpha_r (c_v - c_v^0) c_i^A - \nabla \cdot J_i^A, \\ \partial_t c_i^B &= K c_B - \mathcal{D}_i \rho_N c_i^B - \alpha_r (c_v - c_v^0) c_i^B - \nabla \cdot J_i^B, \\ \partial_t c_v &= K - \mathcal{D}_v \rho_N (c_v - c_v^0) - \alpha_r (c_v - c_v^0) (c_i^A + c_i^B) - \nabla \cdot J_v, \\ \partial_t c_B &= -\nabla \cdot J_B. \end{aligned} \quad (16)$$

Лінійний аналіз процесів відбору структур

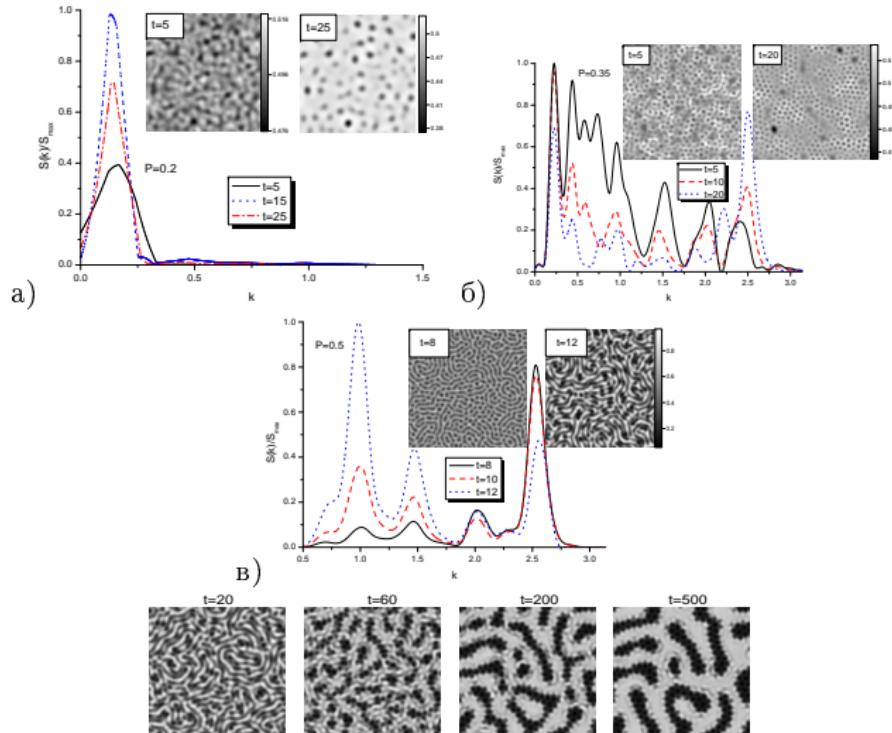
Стійкість однорідного стаціонарного стану (c_0, x_v^{st}) при малих відхиленнях
 $\delta c = c_0 + e^{\lambda(k)t+ikr}, \delta x_v = x_v^{st} + e^{\lambda(k)t+ikr}$.



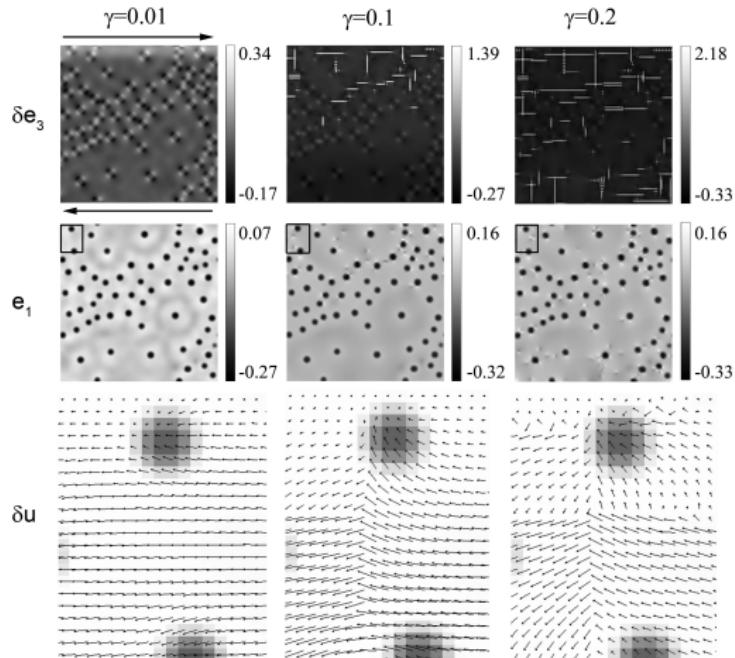
Аналіз процесів відбору структур на малих часових інтервалах

Двоточкова кореляційна функція: $\langle \delta c(r, t) \delta c(r', t) \rangle$.

Структурний фактор: $S(k, t) = \int \langle \delta c(0, t) \delta c(r, t) \rangle e^{ikr} dr$.

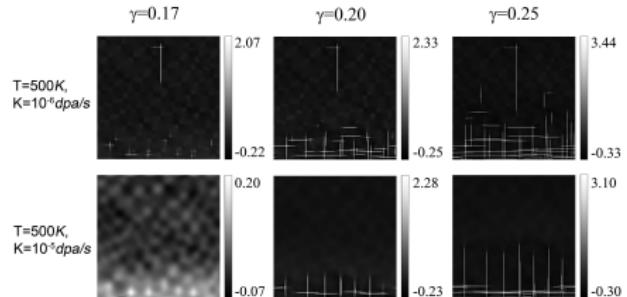


Дослідження пластичної деформації бінарного сплаву Zr-Nb

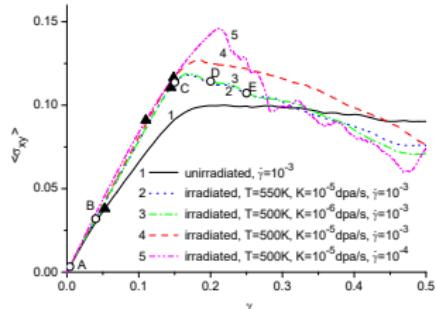


Еволюція відхилення зсувної деформації, деформації розтягу та пружних зміщень для неопроміненого сплаву Zr-10%Nb при зсувній деформації

Зміна механічних властивостей бінарного сплаву Zr-Nb при опроміненні

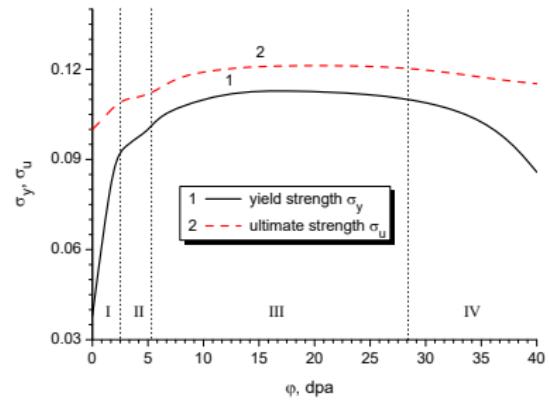
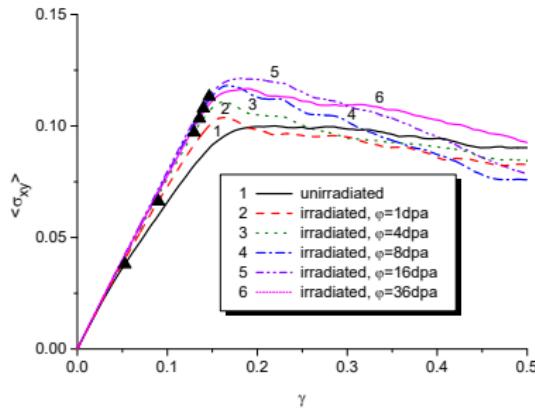


Знімки відхилення зсувної деформації для опромінених зразків сплаву Zr-10%Nb



Деформаційні криві

Вплив дози опромінення на деформаційні криві



ВИСНОВКИ

1. Проведено узагальнення динамічного підходу еволюції точкових дефектів та їх стоків із урахуванням процесів генерування дефектів полями деформації та взаємодією дефектів за наявності флюктуацій швидкості радіаційних пошкоджень. Установлено, що виникнення локальних деформаційних нестійкостей в обмеженому інтервалі температур та швидкості генерації дефектів приводить до формування бістабільних станів та утворення вакансійних комплексів у вигляді кластерів та пор з характерними розмірами від 6 до 30 нм.
2. Установлено, що флюктуації швидкості пошкоджень прискорюють процеси структуроутворення, при зниженні температури та підвищенні швидкості пошкоджень відбувається зміна морфології вакансійних структур, флюктуації швидкості набору дози пригнічують ріст густин петель при опроміненні за реакторних умов.
3. Виявлено, що флюктуації швидкості набору дози збільшують критичний радіус пори внаслідок ефективного зростання температури системи дефектів. У випадку домінуючого внеску дислокацій розмір пори еволюціонує відповідно до динаміки Ліфшиця-Аллена-Кана; у випадку, коли пори є основними стоками, ріст розміру пори описується за сценарієм Ліфшиця-Сльозова-Вагнера.
4. Установлено, що внаслідок взаємозв'язку між локальними змінами концентрації точкових дефектів та температурою у приповерхневих шарах опромінюваних іонами металевих тонких плівок проходять процеси відбору структур з утворенням вакансійних кластерів. Флюктуації швидкості радіаційних пошкоджень приводять до зменшення критичних значень швидкості генерування дефектів та температури мішені.
5. Із застосуванням швидкісної теорії розроблено кінетичну модель еволюції дефектної структури чистого цирконію, що враховує динаміку стоків. Показано, що зростання енергії нейтронів в інтервалі $0.5 \div 2 \text{ MeV}$ при $500 \div 800 \text{ K}$ приводить до збільшення концентрації вакансій на декілька порядків при незначному збільшенні швидкості пошкоджень (від $5 \times 10^{-7} \div 3.2 \times 10^{-6} \text{ dpa/s}$). Встановлено, що внаслідок генерації великої кількості нерівноважних дефектів та процесів взаємодії та нелінійних ефектів вакансії збираються у кластери при перевищенні критичного значення концентрацією вакансій внаслідок взаємодії з пружними полями кристалу.
6. Вивчено вплив утворених вакансійних комплексів на пружні поля деформацій у кристалі. Показано, що найнижчі значення пружних деформацій локалізовані у місцях формування вакансійних кластерів, а найвищі – навколо них. Цей факт свідчить про те, що вакансійні кластери намагаються стягнути решітку навколо себе, тобто сусідні атоми зміщуються у напрямку до вакансійного кластеру.

7. При дослідженні динаміки пороутворення виявлено, що флюктуації швидкості набору дози збільшують критичний радіус пори внаслідок ефективного зростання температури системи дефектів. У випадку домінуючого внеску дислокацій розмір пори еволюціонує відповідно до динаміки Ліфшиця-Аллена-Кана з показником росту $1/2$; у випадку, коли пори є основними стоками, ріст розміру пори описується за сценарієм Ліфшиця-Сльозова-Вагнера з динамічним показником $1/3$.
8. Установлено, що внаслідок взаємозв'язку між локальними змінами концентрації точкових дефектів та температурою у приповерхневих шарах опромінюваних іонами металевих тонких плівок проходять процеси відбору структур з утворенням вакансійних кластерів. Флюктуації швидкості радіаційних пошкоджень приводять до зменшення критичних значень швидкості генерування дефектів та температури мішенні, за яких можливе проходження відбору структур.
9. При дослідженні процесів поділу фаз в опромінюваних бінарних сплавах з несумірними коефіцієнтами самодифузії в рамках узагальненої моделі Кана-Хіллярда, яка враховує формування структурного безладу, виявлено, що зі збільшенням швидкості дефектоутворення процеси спінодального розпаду замінюються процесами формування просторових вакансійних структур. З'ясовано, що формування кластерів вакансій за цим механізмом супроводжується відбором структур.
10. Узагальнено термодинамічний підхід, заснований на методі CALPHAD для опису дифузійних процесів у бінарному сплаві Zr-Nb у рівноважних та нерівноважних умовах, з урахуванням взаємодії точкових дефектів з атомами і взаємодії дефект-дефект через пружний континуум. Показано, що у такому сплаві ніобій випадає у вторинну фазу з розміром близько 7 нм; рівноважні вакансії сегрегуються переважно поблизу меж поділу фаз.
11. Показано, що формування ліній проковзування, утворюваних парою крайових дислокацій з протилежними векторами Бюргерса, та дислокацій у опроміненому зразку сплаву при збільшенні швидкості набору дози відбувається при вищих значеннях прикладеної деформації, що підтверджує підвищення опірності матеріалу пластичній деформації. Встановлено, що межі текучості та міцності збільшуються зі швидкістю набору дози та зменшуються із підвищенням температури. Показано, що опромінення призводить до зміщення сплаву Zr-Nb та підвищення стійкості до пластичної деформації.
12. Розглядаючи вплив дислокацій невідповідності на процеси фазового розшарування бінарного сплаву Zr-Nb, ми виявили, що розмір включень β -Ніобію зменшується зі швидкістю набору дози при фіксованій температурі. Ядра дислокаций локалізуються на границях поділу фаз. Було встановлено, що збільшення дози опромінення призводить до зростання густини дислокаций невідповідності, що сприяє утворенню великої кількості малих доменів β -фази Ніобію.

Основні публікації

В наукову працю входять 40 публікацій, зокрема 15 статей у періодичних наукових журналах, з яких 10 – у виданнях, що індексуються наукометричною базою даних Scopus, та 25 тез доповідей. Загальний h-індекс: 7.

1. Д.О.Харченко, В.О.Харченко, А.І.Баштова, Укр.фіз.журн. – 2013.– Т.58.– В.10.– С.994-1009.
2. V.O.Kharchenko, D.O.Kharchenko, A.I.Bashtova, Rad.Eff. & Def.Sol.– 2014.– V.169.– N 5.– P.418-436.
- 3.D.O.Kharchenko, V.O.Kharchenko, A.I.Bashtova, Eur.Phys.J.B.–2016.– V.89.– P.123
4. Д.О.Харченко, В.О.Харченко, А.І.Баштова, Укр.фіз.журн.– 2016.– Т.61.– В.3.– С.276-288.
5. D.O. Kharchenko, V.O. Kharchenko, A.I. Bashtova, et al, Physica A.–2016.–V.463.–P.152-162.
6. В. О. Харченко, І. О. Лисенко, О. М. Щокотова, А. І. Баштова, та ін., Успехи физ. мет.–2017.–Т.4.–С.294-400.
8. D.O. Kharchenko, O. M. Shchokotova, I.O. Lysenko, V.O. Kharchenko, Rad.Eff. & Def.Sol. – 2015. – V. 170, I. 7-8. -- P. 584–600.
9. D.O. Kharchenko, V.O. Kharchenko, O. M. Shchokotova, X. Wu, B. Wen, L. Wu, W. Zhang, Rad.Eff. & Def.Sol. — 2018. — V.173, I. 7-8. -- P. 527–554.