

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ

Державний заклад

**«Південноукраїнський національний педагогічний
університет імені К. Д. Ушинського»**

На правах рукопису

КОНДРЯ МАРІАННА СЕРГІЇВНА

УДК 531.3-047.58:621.039.51(043.5)

**МУЛЬТИМАСШТАБНЕ МОДЕЛЮВАННЯ КІНЕТИКИ ТОЧКОВИХ
ДЕФЕКТІВ В РЕАКТОРНИХ МЕТАЛАХ**

01.04.07 – фізика твердого тіла

Дисертація на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

Науковий керівник

Гохман Олександр Рафаїлович
доктор фізико-математичних наук,
професор

Одеса 2020

ЗМІСТ

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ ТА СКОРОЧЕНЬ.....	3
ВСТУП.....	4
РОЗДІЛ I. Дослідження методом кластерної динаміки структури та властивостей реакторних сплавів.....	12
1.1. Метод кластерної динаміки для сплавів заліза, які опромінені електронами.....	14
1.2. Метод кластерної динаміки для сплавів заліза, які опромінені нейтронами або іонами.....	24
1.3. Вибір коду для проведення моделювання методом кластерної динаміки.....	46
Висновки до розділу 1.....	50
РОЗДІЛ II. Моделювання методом кластерної динаміки ефекту флаксу.....	51
2.1. Загальні відомості щодо ефекту флаксу для корпусів атомних реакторів.....	51
2.2. Вплив флаксу на мікроструктуру та механічні властивості матеріала зварного шва корпусу реактора високого тиску атомних станцій.....	54
2.3. Моделювання ефекту флаксу методом кластерної динаміки.....	63
2.4. Пояснення даних щодо ефекту флаксу у сплавах заліза за допомогою результатів моделювання методом кластерної динаміки	72
Висновки до розділу 2.....	78
РОЗДІЛ III. Моделювання методом кластерної динаміки впливу зміни температури на мікроструктуру та механічні властивості реакторних сталей.....	79
3.1. Загальні відомості про функціонування атомних станцій у штатному режимі.....	79
3.2. Моделювання методом кластерної динаміки впливу зміни температури на кластери точкових дефектів у реакторних сталях.....	81

3.3. Врахування зміни температури реактора при калібрування моделі у моделі кластерної динаміки.....	91
3.4. Оцінка зміни механічної стабільності реакторних сталей під нейтронним опроміненням, ініційованною зміною температури.....	94
Висновки до розділу 3.....	99
РОЗДІЛ IV. Моделювання методом кластерної динаміки зміни мікроструктури опроміненого вольфраму у процесі ізохронного відпалу.....	101
4.1. Загальні відомості про поведінку вольфраму в експлуатаційних умовах термоядерного реактора.....	102
4.2. Інтерпретація етапів відновлення вольфраму.....	102
4.3. Вивчення міграції поодиноких міжвузельних атомів у вольфрамі.....	106
4.4. Моделювання методом кластерної динаміки процесів відновлення вольфраму після його опромінення електронами.....	110
4.4.1. Модель, яка передбачає 3D міграцію міжвузельного атому.....	110
4.4.2. Модель, яка передбачає 1D міграцію міжвузельного атому.....	120
Висновки до розділу 4.....	127
ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ВИСНОВКИ.....	128
СПИСОК ВИКОРИСТОВАНИХ ДЖЕРЕЛ.....	130

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ ТА СКОРОЧЕНЬ

КД – кластерна динаміка

HVEM – високовольтний електронний мікроскоп (high voltage electron microscope)

SIA – міжвузельний атом (self-interstitial atom)

SIAC – кластери міжвузельних атомів (self-interstitial atoms clusters)

VC – вакансійні кластери (vacancy clusters)

РКА – первинно вибитий атом (primary knocked on atom)

SANS – малокутове розсіювання нейтронів (small-angle neutron scattering)

PAS – позитронно-анігіляційна спектроскопія (positron annihilation spectroscopy)

TEM – просвічуюча електронна мікроскопія (transmission electron microscopy)

LSODE – Livermore Solver for Ordinary Differential Equations, Лівермор вирішувач для звичайних диференціальних рівнянь)

ЯЕУ – ядерна енергетична установка

ОКМС – об'єктно-кінетичне моделювання методом Монте-Карло

dpa – відносна кількість зміщень атомів при опромінюванні (displacement per atom)

ВСТУП

Актуальність. Для складних багатокомпонентних фізичних систем найбільш доцільним вважається мультимасштабний підхід. Дослідження фізичних механізмів процесів, що мають місце у конструкційних реакторних матеріалів під опроміненням, доцільно виконувати у рамках саме мультимасштабного підходу. Для корпусів реакторів високого тиску атомних станцій необхідно послідовно розглядати:

- (1) каскадну стадію опромінення, яка триває 10^{-15} - 10^{-12} секунд в об'ємі розміром до 10 нм;
- (2) дифузійну стадію еволюції кластерів та преципітатів, які або виникають на каскадній стадії, або утворюються після неї і проходять стадію нуклеації, детерміністського зростання та стадію зрілості (Оствальда) протягом усього часу експлуатації атомних реакторів по всьому об'єму корпусу;
- (3) стадію взаємодії дислокацій з наноперешкодами (кластерами та преципітатами), які спричинені опроміненням.

Результатом останньої стадії є змінення механічних властивостей корпусу реактора, що може призводити до таких негативних наслідків як нейтронна крихкість, яку необхідно враховувати при експлуатації реакторів протягом їх нормативного терміну (40 років) та особливо при спробі збільшити їх термін експлуатації до 60 років.

Процеси на каскадній стадії досліджуються методами молекулярної динаміки, методом Монте Карло та методом *ab-initio*, що дозволяє отримати дані про розподіл кластерів наприкінці каскадної стадії (на початку дифузійної стадії). Використання вказаних методів для дослідження дифузійної стадії є недоцільним, тому що потребує часу комп'ютерного моделювання, який неможливо забезпечити при існуючому рівні розвитку комп'ютерної техніки. Метод кластерної динаміки (КД), який зародився у 20-30 роках минулого століття, є найбільш доречним методом

комп'ютерного моделювання дифузійної стадії еволюції кластерів та преципітатів у реакторних матеріалах. Поширення практики його використання гальмується наступними факторами:

1. Система звичайних диференціальних рівнянь, які описують кінетику кластерів та преципітатів в опроміненому матеріалі, є жорсткою системою звичайних диференціальних рівнянь. Інтегрування такої системи традиційними чисельними методами типу Рунге-Кутта може призводити до чисельної нестабільності рішення і внаслідок цього, до невірних фізичних результатів.

2. Існує проблеми вибору експериментальних методів для визначення таких вхідних параметрів методу кластерної динаміки як енергія формування, енергія міграції, коефіцієнт дифузії дефектів та інших характеристик дефектної структури для моделювання кінетики процесів у реакторних матеріалах під опроміненням.

Саме розгляданню зазначених питань присвячено перший розділ дисертації, у якому аналізується приклади застосування кластерної динаміки до дослідження конструкційних реакторних матеріалів і обоснується вибір методу інтегрування майстер-рівняння для комерційно α -заліза та його сплавів, а також наведені рекомендації щодо використання даних того чи іншого експериментального методу досліджень (методу малокутового розсіювання рентгенівських променів або нейтронів, методу позитронно-аннігіляційної спектроскопії, методу просвічуючої електронної мікроскопії та методу атомного зондування) для здійснення процедури підгонки параметрів моделі кластерної динаміки.

Наступні розділи дисертації присвячені використанню методу кластерної динаміки для дослідження актуальних проблем фізики твердого тіла стосовно реакторного матеріалознавства. Так, у другому розділі розглядається проблема врахування впливу зміни швидкості опромінення (флаксу) при моделюванні довготривалих процесів (до 40-60

років) у діючих реакторах атомних станцій за даними відносно короткотривалих експериментів (від часу до року), які проводяться у науково-дослідницьких атомних реакторах на зразках-свідках, що розташовуються у заданих місцях реактору, а також при іонному опроміненні, коли малий флакс та великий час опромінення у діючому промисловому реакторі змінюються на великий флакс та короткий час опромінення, при умові той самій дозі опромінення (флюенса). У третьому розділі дисертації розглядається проблема врахування зміни температури на еволюцію кластерів та відповідну зміну механічних властивостей корпусу реактора. Також у цьому розділі зроблена спроба врахування дії опромінення на процес пластичної деформації та руйнування реакторних матеріалів під навантаженням. У четвертому розділі дисертації розглядаються вплив вуглеця на кінетику кластерів точкових дефектів, а також досліджується питання про розмірність руху міжвузлів у вольфрамі, який опромінюється.

Зв'язок роботи з науковими програмами: Дисертація є частиною досліджень, що виконуються за темами:

- Мультимасштабне моделювання процесу пластичної деформації текстурованих полікристалів (Державний реєстраційний номер №0114U000002),
- Мультимасштабне моделювання процесів термомеханічної обробки та опромінювання актуальних металів і сплавів (Державний реєстраційний номер №0114U000002),

які проводяться на кафедрі фізики Державного закладу «Південноукраїнського національного педагогічного університету ім. К. Д. Ушинського».

Мета і задачі дослідження. Метою роботи є встановлення фізичних механізмів процесів, які відбуваються у конструкційних реакторних матеріалах при опромінюванні, на прикладі α -заліза та вольфраму.

Для досягнення мети дослідження були сформульовані і розглянути наступні задачі:

1. Аналіз фізичних принципів кластерної динаміки та вибір методу інтегрування системи жорстких звичайних диференціальних рівнянь, які описують формування і кінетику дефектів у конструкційних реакторних матеріалах при опромінюванні.
2. Моделювання методом кластерної динаміки впливу зміни потужності опромінення (флаксу) на формування і кінетику вакансійних кластерів та кластерів міжвузлей у реакторних матеріалах при умові незмінної дози опромінення (флюенсу).
3. Дослідження методом кластерної динаміки впливу зміни температури на дефектну структуру та еволюцію механічних властивостей конструкційних реакторних матеріалів під навантаженням.
4. Дослідження методом кластерної динаміки впливу вуглецю на кінетику кластерів точкових дефектів та з'ясування розмірності міграції міжвузельних атомів у вольфрамі, який опромінюється.

Об'єктом дослідження є актуальні матеріали сучасного радіаційного матеріалознавства.

Предметом дослідження є кінетика точкових дефектів у α -залізі та вольфрамі під опроміненням.

Для рішення зазначених задач використані наступні методи: комп'ютерне моделювання дефектної структури конструкційних матеріалів радіаційного матеріалознавства, модифікований метод кластерної динаміки, метод визначення зміни межі текучості металів, індукованої опроміненням, метод оцінки впливу нейтронного опромінення на еволюцію пор у залізі за підходом Б. З. Марголіна до проблеми міжзеренного руйнування.

Наукова новизна одержаних результатів полягає у тому, що:

1. Модифіковано комп'ютерний код, який дозволяє проводити моделювання кінетики поодиноких вакансій та міжвузлей, вакансійних кластерів та

кластерів міжвузлей з урахуванням різниці їх характерних часів у конструкційних реакторних матеріалах під електронним, іонним та нейтронним опромінюваннями.

2. Знайдено три режими залежності від флаксу середнього розміру і чисельної щільності вакансійних кластерів та кластерів міжвузлей у α -залізі, які позначені двома критичними значеннями флаксу $6,9 \times 10^{-9}$ дпа/с і $1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с для обох флюенсів: 0,026 дпа та 0,19 дпа. При першому і третьому згаданих режимах спостерігаються близькі значення середнього розміру кластерів міжвузлей, D_{SIAC} , що дозволяє використовувати дані отримані на науково-дослідницькому реакторі або при іонному опроміненні для прогнозування значення D_{SIAC} в промисловому ядерному реакторі при умові одного і того ж флюенсу.
3. Визначено, що залежність індукованого опроміненням зміцнення від флаксу для α -заліза має два режими з критичним значенням $1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с ($1,10 \times 10^{14}$ н/м²/с). Досягнуто відповідність даних моделювання до експериментально знайденого збільшення межі текучості заліза при флюенсах нейтронного опромінення 0,026 і 0,19 дпа.
4. Показано можливість використання результату кластерної динаміки щодо збільшення межі текучості, індукованого опроміненням, до оцінки зміни механічної стабільності конструкційних реакторних матеріалів у рамках фізико-механічної моделі міжзеренного руйнування, яке спричинено еволюцією пор, за підходом Б. З. Марголіна.
5. Зроблено висновок щодо 1D розмірності дифузії міжвузельних атомів у вольфрамі, який опромінено електронами, із порівняння експериментальних даних про ізохронний відпал вольфраму з результатами моделювання методом кластерної динаміки кінетики кластерів точкових для моделей з 1D дифузією та 3D дифузією міжвузельних атомів.

Науково-практичне значення одержаних результатів:

1. Модифікований метод кластерної динаміки може бути застосований для дослідження кінетики точкових дефектів та їх кластерів у чистих металах при їх електронному, іонному та нейтронному опроміненні, а також для визначення відповідного внеску до зміни механічних властивостей сплавів зазначених металів.
2. Результати щодо впливу флакса на кінетику вакансійних кластерів та кластерів міжвузлей можуть бути використані при прогнозуванні кінетики процесів у реакторних матеріалів протягом штатного та поширеного часу їх експлуатації (до 40-60 років) на основі даних короткотривалого іонного опромінення та опромінення нейтронами у науково-дослідницьких атомних реакторах.
3. Результати моделювання методом кластерної динаміки щодо зміни механічних властивостей опромінених реакторних матеріалів внаслідок зміни температури можуть бути використані для оцінки зміни механічних властивостей корпусу реактора, що спричєна зміною температури теплоносія.
4. Результати моделювання методом кластерної динаміки кінетики точкових дефектів у вольфрамі щодо впливу вуглеця та розмірності міграції міжвузельних атомів можуть бути враховані при дослідженні зміни механічних властивостей вольфраму та його сплавів під опромінюванням.

Обґрунтованість і достовірність наукових результатів підтверджується надійністю коду, який реалізує метод кластерної динаміки для інтегрування систем жорстких звичайних диференціальних рівнянь, що було доведено його тестуванням на задачі Робертсона, порівнянням результатів його застосуваннями з результатами комп'ютерного кода D02EJF, який входить до бібліотеки програм Numerical Analytical Group (NAG); порівнянням результатів моделювання з експериментальними

даними; відповідністю загальноприйнятим уявленням фізики радіаційних металів.

Особистий внесок здобувача полягає в тому що:

1. Модифіковано код LSODE, який реалізує інтегрування системи жорстких звичайних диференціальних рівнянь кластерної динаміки з урахуванням мобільності кластерів вакансій та кластерів міжвузельних атомів.
2. Знайдені значення матеріальних параметрів моделі кластерної динаміки для α -заліза та вольфраму з порівняння результатів моделювання з даними експериментальних досліджень.
3. Проведено моделювання впливу флаксу на кінетику кластерів точкових дефектів в чистому α -залізі, що опромінюється нейтронами.
4. Проведено розрахунок еволюції відносної площі пор у α -залізі, що опромінюється нейтронами.

Апробація результатів дисертації. Основні результати досліджень, які викладені в дисертаційній роботі, доповідались й обговорювались на наукових конференціях:

- The ninth International conference on Material Technologies and MMT-2016. Ariel University, Ariel, July 25 – August 03, 2016.
- International conference on Differential equations, Mathematical physics and application, Cherkasy, Ukraine, October 17-19, 2017.
- International Conference of Students and Young Scientists on Theoretical and Experimental Physics, HEUREKA Lviv, Ukraine, May 16-18, 2017.
- I Всеукраїнська науково-практична конференція здобувачів вищої освіти і молодих вчених «Фізичні процеси в енергетиці, екології та будівництві, Одеса», 17-18 квітня 2018.
- II Всеукраїнська науково-практична конференція здобувачів вищої освіти і молодих вчених фізичні процеси в енергетиці, екології та будівництві, Одеса, Україна, 11-12 квітня, 2019.

- International Conference of Students and Young Researchers in Theoretical and Experimental Physics “HEUREKA-2019, Lviv, Ukraine, May 14-16, 2019.

Публікації. Усього за темою дисертації опубліковано 15 друкованих праць, у тому числі – 1 стаття в зарубіжному періодичному виданні, яке індексується базою даних Scopus та 6 статей періодичних видань, рекомендованих МОН України для публікації матеріалів дисертацій на здобуття вчених ступенів по фізико-математичним наукам, з яких 2 статті індексуються базою даних Scopus. Решта публікацій – тези та матеріали республіканських та міжнародних науково-технічних конференцій.

Структура та обсяг дисертації. Дисертаційна робота складається зі вступу, чотирьох розділів, висновків та списку використаних джерел, що містить 215 найменувань, 15 таблиць та 59 рисунків. Повний обсяг роботи становить 151 сторінку друкованого тексту.

РОЗДІЛ 1

ДОСЛІДЖЕННЯ МЕТОДОМ КЛАСТЕРНОЇ ДИНАМІКИ СТРУКТУРИ ТА ВЛАСТИВОСТЕЙ РЕАКТОРНИХ СПЛАВІВ

У даному розділі аналізується фізичні принципи методу кластерної динаміки (КД), наводяться приклади щодо застосування КД до α -заліза і його сплавів, обґрунтовується засіб реалізації КД у представленій дисертації. Особлива увага приділяється визначенню параметрів КД моделей з експерименту.

Метод кластерної динаміки був запропонований у 30-х роках минулого століття Бокером [1] при дослідженні фазових перетворень води (випаровування та конденсації). Майстер-рівняння КД для замкнутої системи кластерів, у якій мобільними є тільки мономери, було записано у вигляді:

$$\frac{dC_n}{dt} = \beta_{n-1}C_{n-1} + \alpha_{n+1}C_{n+1} - (\beta_n + \alpha_n)C_n$$

Тут C_n – концентрація кластерів, які містять n мономерів; α_n (β_n) – коефіцієнт емісії (приєднання) мономеру з (до) кластеру розміром n (розміром кластеру тут і надалі буде вважатися як розмір кластеру в одиницях довжини, так і кількість його мономерів n) в одиницю часу. Перший та другий члени у правій частині цього майстер-рівняння відповідають збільшенню кількості кластерів розміром n в одиницю часу за рахунок приєднання мономеру до кластера розміром $(n-1)$, та емісії мономеру з кластеру розміру $(n+1)$, відповідно, а третій член – зменшенню кількості кластерів розміром n в одиницю часу за рахунок приєднання та емісії мономерів з кластеру розміром n . Особливості будь-якої фізичної системи у методі КД задаються коефіцієнтами приєднання та емісії, а також додатково – функціями зовнішніх джерел та стоків мономерів у випадку незамкнутої системи кластерів. Якщо розміром кластерів не можна нехтувати порівняно з

відстанню між ними, то метод КД має бути модифікован за підходом [2] для врахування так званого фрустраційного ефекту.

З 1997 року метод КД плідно використовується у задачах моделювання процесів формування та еволюції дефектної структури в металах та сплавах під дією опромінювання електронами, іонами та нейтронами [3], де кластери точкових дефектів та преципітати мають малі розміри порівняно з середньою відстанню між ними. Щоб збільшити термін служби атомної електростанції важливо передбачити можливість переходу матеріалу корпусу реактора у крихкій стан. Для цього використовуються емпіричні формули, які одержані для зразків, опромінених в науково-дослідницьких реакторах. Однак, здається важливим підтвердити результати цих формул для прогнозування життєвого ресурсу реакторів, вивчаючи фізичні явища, що лежать в основі механізму нейтронної крихкості. У випадку корпусних реакторних сталей з низьким вмістом міді, кластери точкових дефектів є важливим елементом дефектної структури. Ось чому актуальною задачею фізичного матеріалознавства є моделювання зародження і еволюції кластерів точкових дефектів у вказаних реакторних матеріалах.

Найкращий спосіб зробити це – провести моделювання процесів у корпусі атомного реактора з початку до кінця його експлуатації. Але, незважаючи на високі можливості сучасних комп'ютерів, моделювання методом молекулярної динаміки або методом Монте-Карло є неможливим для дослідження поведінки реактора за весь час його експлуатації, особливо враховуючи необхідний розмір репрезентативного об'єму. Дотепер, моделювання методом кластерної динаміки, заснованого на майстер – рівнянні кінетики кластерів, залишається єдиною реальною можливістю дослідження зазначеної задачі. КД потребує знання наборів параметрів, характерних для матеріалу. Ці параметри можуть бути отримані шляхом атомного моделювання або експериментально. Актуальними задачами

використання методу кластерної динаміки для дослідження реакторних матеріалів дотепер залишаються наступні:

1. Визначення таких параметрів моделі як енергії формування та міграції структурних дефектів, питомої поверхневої енергії на границі між кластером та матрицею.
2. Вибір засобу розрахунку коефіцієнтів приєднання та емісії поодиноких мономерів та їх груп з кластеру.
3. Знаходження кількості дефектів та їх розподіл за розміром на каскадній стадії опромінення.
4. Розробка ефективного методу інтегрування майстер-рівняння кластерної динаміки.

1.1. Метод кластерної динаміки для сплавів заліза, які опромінені електронами

КД у випадку електронного опромінення передбачає наступні кроки:

1. Моделювання кластеризації міжвузельних атомів та вакансій з використанням моделі середнього поля.
2. Вивчення нуклеації та росту міжвузельних петель в модельних сплавах при опроміненні у високовольтному електронному мікроскопі (High voltage electron microscope, HVEM) в умовах опромінення, де кластери точкових дефектів спостерігаються за допомогою ТЕМ.
3. Знаходження набору параметрів моделі, що дають прийнятну підгонку до експериментальних результатів, отриманих на кроці 2.
4. Обчислення розподілу кластерів в умовах електронного опромінення з низькою дозою, що відповідає тому, яке отримано з використанням прискорювача Ван-де-Граафа, і тестування, якщо кластери є невеликими, щоб бути видимими (або мають занадто низьку чисельну щільність) [4].

Майстер-рівняння КД для кластерів точкових дефектів записується у вигляді:

$$\frac{dC_j}{dt} = G_j + \sum_k w(k, j)C_k - \sum_k w(j, k)C_j - L_j \quad (1)$$

де C_j – чисельна щільність кластерів типу j (j – кількість мономерів у кластері); $w(k, j)$ і $w(j, k)$ є швидкість створення та емісії кластера j -розміру шляхом поглинання або емісії кластерів розміру k , які містять вакансії або міжвузельні атоми; G_j – швидкість генерації пар Френкеля; L_j – швидкість абсорбції кластерів на нерухомих поглиначах таких як дислокації, границі зерен або поверхні матеріалу.

Якщо припустити, що тільки міжвузельні атоми та вакансії є мобільними, то рівняння (1) для $n > 2$ можна переписати у наступному вигляді:

$$\begin{aligned} \frac{dC_{ni}}{dt} &= \beta_{(n-1)i}^i C_{1i} C_{(n-1)i} + \left(\beta_{(n+1)i}^v C_{1v} + \alpha_{(n+1)i}^i \right) C_{(n+1)i} \\ &\quad - \left(\alpha_{ni}^i + \beta_{ni}^v C_{1v} + \beta_{ni}^i C_{1i} \right) C_{ni} \\ \frac{dC_{nv}}{dt} &= \beta_{(n-1)v}^v C_{1v} C_{(n-1)v} + \left(\beta_{(n+1)v}^i C_{1i} + \alpha_{(n+1)v}^v \right) C_{(n+1)v} \\ &\quad - \left(\alpha_{nv}^v + \beta_{nv}^i C_{1i} + \beta_{nv}^v C_{1v} \right) C_{nv} \end{aligned} \quad (2)$$

де $C_{n\theta}$ – концентрація (кількість на одиницю об'єму) кластерів, що містить n точкових дефектів (розміру n) типу θ ($\theta = i$ для міжвузельних атомів та v для вакансій), $\beta_{n\theta}^{\theta'}$ $C_{1\theta'}$ – швидкість захоплення точкового дефекту типу θ' кластером типу θ і розміром n , $\alpha_{n\theta}^{\theta'}$ – швидкість емісії точкового дефекту типу θ' кластером типу θ і розміром n .

У рівнянні (2) враховано, що кластер типу θ може випромінювати лише точковий дефект того ж типу. У випадку одного і двох міжвузельних атомів та однієї і двох вакансій рівняння КД наступні:

$$\begin{aligned} \frac{dC_{1i}}{dt} = & G_{1i} - k_{iv} C_{1i} C_{1v} - K_{1i} C_{1i} - 4\beta_{1i}^i C_{1i} C_{1i} + 4\alpha_{2i}^i C_{2i} \\ & + \beta_{2i}^v C_{1v} C_{2i} - C_{1i} \sum_{n=2} \beta_{ni}^i C_{ni} + \sum_{n=3} \alpha_{ni}^i C_{ni} \\ & - C_{1i} \sum_{n=2} \beta_{nv}^i C_{nv} \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{2i}}{dt} = & 2\beta_{1i}^i C_{1i}^2 - 2\alpha_{2i}^i C_{2i} - \beta_{2i}^i C_{1i} C_{2i} + \alpha_{3i}^i C_{3i} - \beta_{2i}^v C_{1v} C_{2i} \\ & + \beta_{3i}^v C_{1v} C_{3i} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{1v}}{dt} = & G_{1v} - R_{iv} C_{1i} C_{1v} - K_{1v} (C_{1v} - C_v^e) - 4\beta_{1v}^v C_{1v} C_{1v} + 4\alpha_{2v}^v C_{2v} \\ & + \beta_{2v}^i C_{1i} C_{2v} - C_{1v} \sum_{n=2} \beta_{nv}^v C_{nv} + \sum_{n=3} \alpha_{nv}^v C_{nv} \\ & - C_{1v} \sum_{n=2} \beta_{ni}^v C_{ni} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{2v}}{dt} = & 2\beta_{1v}^v C_{1v}^2 - 2\alpha_{2v}^v C_{2v} - \beta_{2v}^v C_{1v} C_{2v} + \alpha_{3v}^v C_{3v} - \beta_{2v}^i C_{1i} C_{2v} \\ & + \beta_{3v}^i C_{1i} C_{3v} \end{aligned}$$

де k_{iv} – швидкість рекомбінації пар Френкеля, K_{1i} (K_{1v}) – швидкість поглинання міжвузлів (вакансій) на фіксованих поглиначах таких як поверхні або дислокації.

Еволюцію розміру кластерів з часом отримують шляхом чисельного розв'язання системи диференціальних рівнянь $N_i + N_v$, де N_i та N_v – максимальні розміри кластерів міжвузлів (self-interstitial atoms clusters, SIAC) і вакансійних кластерів (vacancy clusters, VC), відповідно. Згідно результатам комп'ютерного моделювання більше 99% точкових дефектів створюються ізольовано при електронному опроміненні [4, 5].

Швидкість рекомбінації точкових дефектів дається формулою:

$$k_{iv} = \frac{4\pi r_{iv} (D_i + D_v)}{\Omega_{Fe}} \quad (4)$$

де D_θ – коефіцієнт дифузії точкового дефекту типу θ ($\theta = i, v$), Ω_{Fe} – атомний об'єм заліза.

Більш складні моделі явно розглядають взаємодію потоку точкових дефектів з дислокацією, але їх складно прийняти до розгляду. Зазвичай ця

взаємодія враховується ефективно шляхом вибору величини радіуса захоплення, який залежить від природи точкового дефекту:

$$K_{\theta}^d C_{1\theta} = \rho_d Z_{\theta}^d D_{\theta} C_{\theta} \quad (5)$$

де ρ_d – чисельна щільність дислокацій, Z_{θ}^d – ефективність захоплення, яка теоретично повинна залежити від швидкості захоплення точкового дефекту всіма поглиначами даного типу. Якщо ігнорувати множинне занурення через інші поглиначі, за винятком дислокації, то маємо згідно до роботи [6]:

$$Z_{\theta}^d = \frac{2\pi}{\ln(1/r_{\theta}^d \sqrt{\pi\rho})} \quad (6)$$

Оскільки ρ_d є аргументом логарифма, то на практиці розглядається, що Z_{θ}^d є константою, незалежною від значення ρ , але залежною від радіуса захоплення дислокації r_{θ}^d . Зазвичай Z_{θ}^d дорівнює одиниці, $Z_{\theta}^d = (1 + \varepsilon)Z_{\theta}^d$ з ε близько 0,2.

Коефіцієнти швидкості приєднання для кластеризації міжвузлей були предметом великої кількості досліджень. Найпростіші моделі не враховують взаємодію потоків; більш складні з них приймають його до уваги [7,9], а в деяких випадках розглядаються спеціальні ефекти, такі як поляризованість точкових дефектів [9], нелінійна пружність [10] та її анізотропія [11].

Найпростіший підхід вважає, що швидкість захоплення точкових дефектів дислокаційної петлі радіусом r_n дорівнює швидкості захоплення точкових дефектів прямолінійної дислокації, довжина якої така ж, як периметр дислокаційних петель [12]:

$$\beta_{n\theta}^{\theta'} C_{\theta'} = 2\pi r_n Z_{n\theta}^{\theta'} D_{\theta'} C_{\theta'} \quad (7)$$

$$r_n = \left(\frac{nV_{at}}{\pi b} \right)^{1/2} \quad (8)$$

для $Z_{n\theta}^{\theta'} = Z_{\theta'}^d$, отже незалежно від r_n та θ , V_{at} атомний об'єм і b вектор Бюргерса.

Для порівняння різних виразів коефіцієнта швидкості приєднання для кластерів також доцільно ввести еквівалентний сферичний радіус захоплення петлі $r_{n\theta}^{\theta'}$, визначений:

$$\beta_{n\theta}^{\theta'} C_{\theta'} = 4\pi r_{n\theta}^{\theta'} D_{\theta'} C_{\theta'} \quad (9)$$

Кращий підхід полягає у врахуванні тороїдальної форми кругової дислокаційної петлі. Маємо[13]:

$$\beta_{n\theta}^{\theta'} C_{\theta'} = 2\pi r_n Z_{n\theta}^{\theta'} D_{\theta'} C_{\theta'} \quad (10)$$

значення $Z_{n\theta}^{\theta'}$ залежить від радіуса петлі (геометричний ефект):

$$Z_{n\theta}^{\theta'} = \frac{2\pi}{\ln(8r_n / r_p)} \quad (11)$$

де r_p - радіус дислокаційної трубки.

Більш поширеним є використання наступного виразу:

$$Z_{n\theta}^{\theta'} = Z_{\theta'}^d + \left[\left(\frac{b}{8\pi a} \right)^{1/2} z_{\theta'} - Z_{\theta'}^d \right] / n^{\gamma_{\theta'}/2} \quad (12)$$

У разі міжвузельних атомів, вважається, що $Z_{n\theta}^i / Z_{n\theta}^v$ є константою, що дорівнює Z_i^d / Z_v^d , що дає $z_i = 42$, $\gamma_i = 0,7$. Варто зазначити, що (12) дає $Z_{ni}^{\theta'} = Z_{nv}^{\theta'}$. На рис. 1.1 (а) та (б) показано, що $Z_{n\theta}^{\theta'}$ в порівнянні з r_n для вакансій та міжвузельних атомів, заданих в (7), (11) та (14) з $Z_v^d = 1$, $Z_i^d = 1,2$.

Швидкість емісії точкового дефекту з кластера, $\alpha_{n\theta}^{\theta'}$, розраховується у відповідності до принципу деталізованого балансу:

$$\alpha_{n\theta}^{\theta'} = 2\pi r_{n-1} Z_{(n-1)\theta}^{\theta'} D_{\theta'} \exp(-E_{n\theta}^B / kT) \quad (13)$$

Тут $E_{n\theta}^B = E_{\theta}^f - (E_{n\theta}^f - E_{(n-1)\theta}^f)$, де E_{θ}^f - енергія зв'язку точкового дефекту типу θ з кластером $n\theta$ та $E_{n\theta}^f$ - енергія утворення точкового дефекту типу θ і кластера $n\theta$ відповідно, k_B - стала Больцмана, T - температура за Кельвіном.

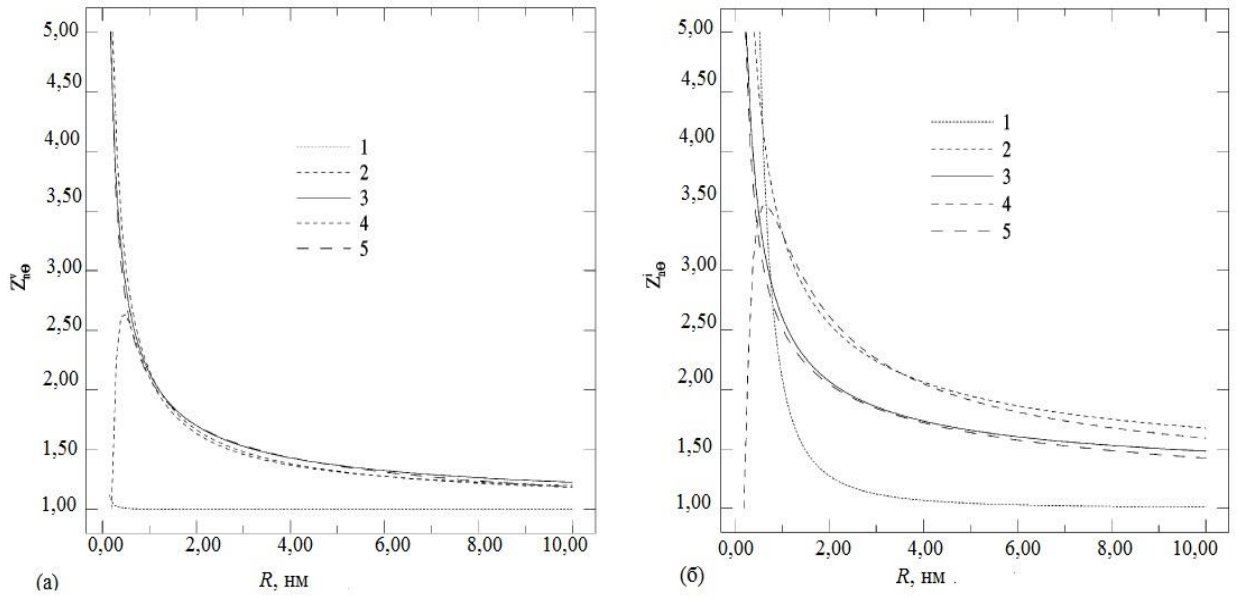


Рис. 1.1. Залежність коефіцієнта ефективності захоплення дислокаційних петель з радіусом для вакансій (а) і для міжвузельних атомів (б). Крива 1 отримана у [9]; крива 2 задана шляхом (12) при $Z_v^d = 1$, $z_v = 42$, $\gamma_v = 0,8$ для вакансій та при $Z_i^d = 1,2$, $z_i = 56$, $\gamma_i = 0,65$ для міжвузельних атомів; крива 3 дається формулою (12) при $z_v = 35$, $\gamma_v = 0,7$ та при $z_i = 42$, $\gamma_i = 0,7$ для міжвузельних атомів; крива 4 наведена у [7], а крива 5 у [12].

Шляхом моделювання методом молекулярної динаміки [14] було показано, що для α -заліза:

$$E_{n\theta}^B = E_\theta^f + \frac{E_{2\theta}^B - E_\theta^f}{2^\sigma - 1} [n^\sigma - (n-1)^\sigma] \quad (14)$$

При цьому $\sigma = 2/3$.

На рис. 1.2 видно, що для великих n , рівняння (14) досить добре узгоджується з виразом, наведеним пружною теорією дислокацій [15]:

$$E_{elas}^B = E^f - \frac{\mu b^4}{4\pi(1-\nu)r} \ln\left(\frac{32r}{b}\right) \quad (15)$$

де $\alpha_{xi}^v = 2\pi r_{x-1} Z_{(n-1)}^v D_v \exp(-E_{xv-i}^B / kT)$ та $E_{xv-1}^B = E_v^f + \frac{E_i^f - E_{2i}^B}{2^{2/3} - 1} [x^{2/3} - (x-1)^{2/3}]$.

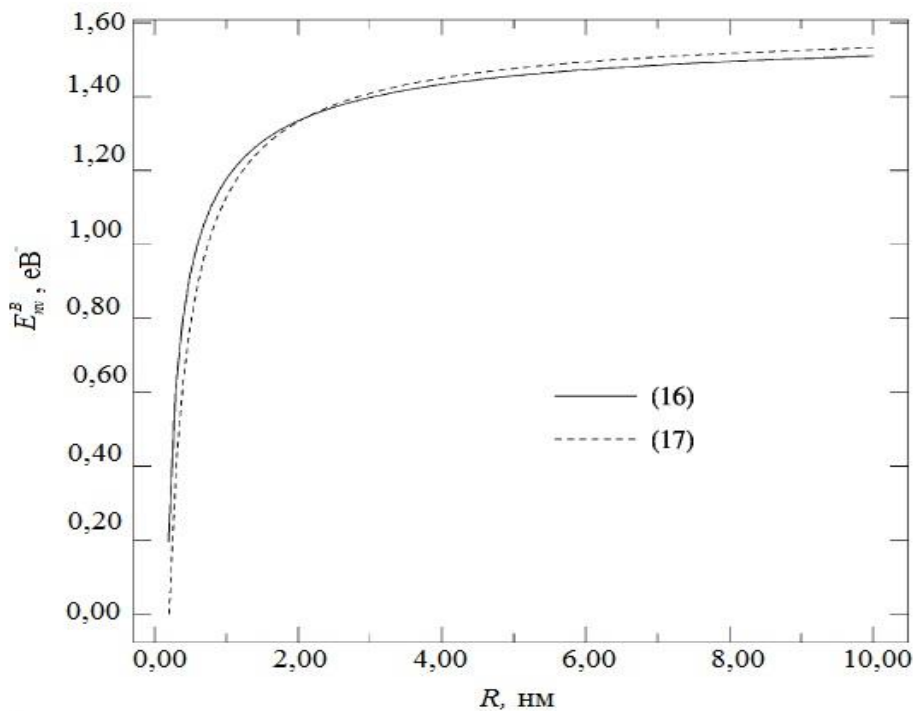


Рис. 1.2. Залежність енергії зв'язку вакансії від розміру вакансійної петлі обчисленою за формулами (14) та (15).

Для врахування ефекту мультипоглиначів, у [16] були використанні вирази, що надані в [17].

Насправді мікроструктура дуже часто така, що може використовуватися найпростіший вираз. Визначимо потужність захвату точкових дефектів $\theta = i, v$ мультипоглиначами та S_{θ}^{sk} . Як правило, для поглиначів S_k точкових дефектів типу $\theta = i, v$:

$$K_{\theta}^{sk} C_{\theta} = S_{\theta}^{sk} D_{\theta} C_{\theta} \quad (16)$$

S_{θ}^{sc} – це сума всіх потужностей мультипоглиначів, але якщо границя зерен (або поверхонь), λ , середній розмір зерна d (або L товщина тонкої фольги), та мікроструктура швидко становляться такими, що значення $(S_{\theta}^{sk})^{1/2} \lambda$ є дуже великим, то тоді S_{θ}^{sk} дається формулою:

$$S_{\theta}^{sk} = (S_{\theta}^{sc})^{1/2} H \quad (17)$$

Тут $H = 6/d$ для зерна та $H = 1/L$ для тонкої фольги.

Багато параметрів, що стосуються α -заліза, досліджено експериментально або методом атомного моделювання. Таким чином, діапазон, в межах якого вони можуть змінюватися, обмежений. Внаслідок фазового переходу та відповідної зміни від феромагнітного до парамагнітного стану заліза, важко отримати достовірні експериментальні значення для формування та міграції вакансій. До цього часу залишається проблема щодо значення енергії міграції вакансій, E_v^m , (від 1,3 еВ у [18] до 0,6 еВ у [19]), так і енергії формування вакансії, E_v^f , дана між 1,6 і 2,0 еВ у [19]. Атомістичне моделювання, з іншого боку, дає великий діапазон значень для E_v^m від 0,11 до 1,45 еВ залежно від міжатомного потенціалу і $1,4 < E_v^f < 2,1$ еВ. Що стосується енергії міграції міжвузельних атомів, E_i^m , то експериментальні вимірювання дають $0,25 < E_i^m < 0,3$ еВ [19], а атомістичні розрахунки – нижчі значення між 0,15 і 0,30 еВ [14,20,21]. Експериментальних значень E_i^f не встановлено. Тому при дослідженнях [14,19–23] використовується широкий інтервал $3 < E_i^f < 7$ еВ.

Параметри E_{2v}^B та E_{2i}^B , що входять до (14), знаходяться з результатами моделювання методом молекулярної динаміки [14]: $E_{2v}^B = 0,23$ еВ та $E_{2i}^B = 0,71$ еВ.

Вхідні параметри для проведення моделювання методом кластерної динаміки кінетики міжвузельних петель наведені у таблиці 1.1 [16].

На рис. 1.3 наведена типова еволюція розподілу міжвузельних петель, яка розрахована методом кластерної динаміки для температурі 181 °С і обраного набору параметрів.

Таблиця 1.1

Вхідні параметри для проведення моделювання методом кластерної динаміки

Позначення фізичних величин	Значення	Позначення фізичних величин	Значення
G	$1,5 \times 10^{-4}$ дпа/с	Z_i^d	1,2
T	$175 < T < 400$ °C	$z_{i\theta}^v$	35
L	0,3 $\mu\text{м}$	$z_{i\theta}^i$	42
E_v^m	1,3 еВ	γ_θ^v	0,7
E_v^f	1,6 еВ	γ_θ^i	0,7
D_{v0}	10^{-4} м ² /с	E_{2v}^B	0,2 еВ
E_i^m	0,3 еВ	E_{2i}^B	0,8 еВ
E_i^f	4,3 еВ	N_i	20
D_{i0}	4×10^{-8} м ² /с	N_{iC}	180
r_{iv}	0,65 нм	N_v	300
ρ	см/см ³	N_{vC}	0
Z_v^d	1,0	C_{xi}	1,05

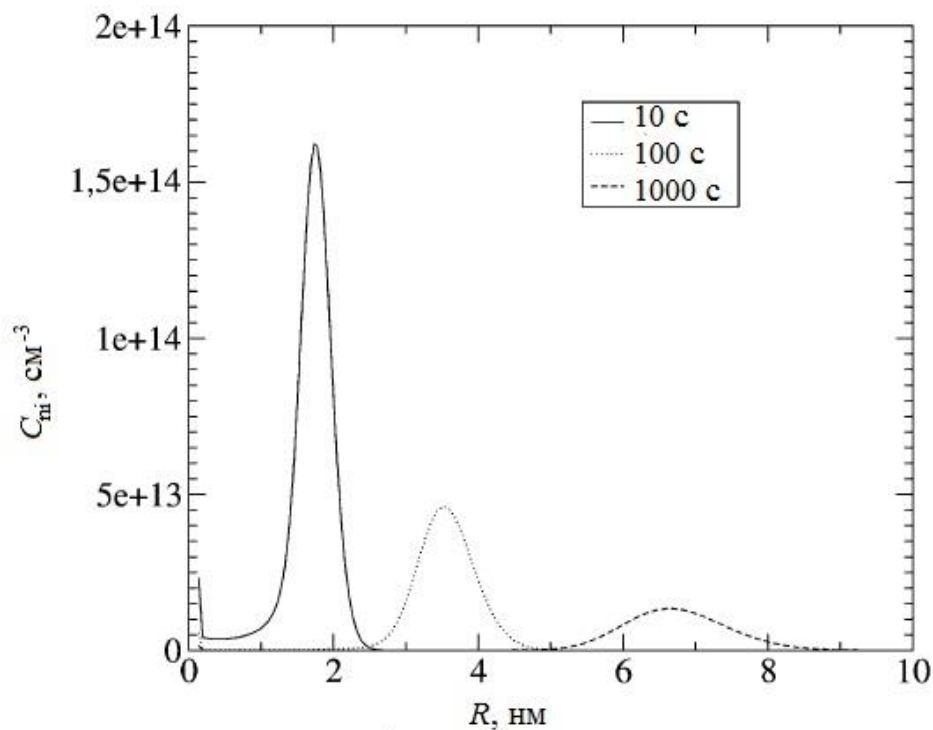


Рис. 1.3. Типова еволюція розподілу міжвузельних петель при низькій температурі (181 °C) для обраного набору параметрів.

Будемо вважати, що основні рівняння (2) і (3) залишаються коректними для сплаву FeCu. Параметри, що описують рухливість точкових дефектів і стабільність кластерів, тепер повинні розглядатися як ефективні параметри. Це може бути виправдане для рухливості точкових дефектів, якщо температура не є занадто низькою, оскільки в цьому випадку виконується локальна рівновага (наприклад, між поодинокими точковими дефектами, вільними атомами розчинених речовин і парами розчинних дефектів у випадку малоцентрованого сплаву) [24]. Експериментальні значення N_{li}^{st} можуть відповідати тим самим параметрам, що й для нелегованого α -заліза, за винятком значення E_{2i}^B , яке повинно задовольняти умові $E_{2i}^B \geq 1,2 \text{ eV}$ (рис. 1.4.). При цьому наявність атомів міді стабілізує невеликі кластери міжвузельних атомів.

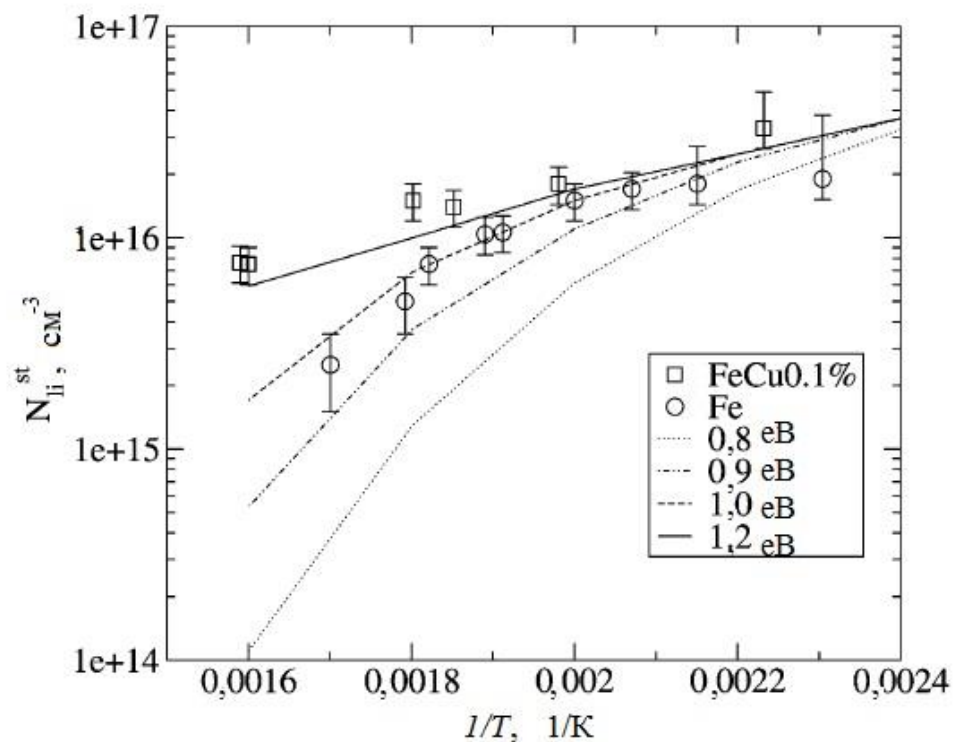


Рис. 1.4. Порівняння $\ln N_{li}^{st}$, що розраховане з еталонним набором параметрів та різними значеннями E_{2i}^B , з експериментальними результатами, отриманими для α -заліза та сплаву FeCu.

У порівнянні з набором параметрів для заліза, E_{2i}^B має бути меншим, щоб отримати швидке зменшення кривої при високій температурі, а D_i - також значно менше, щоб отримати високі значення N_{li}^{st} при низькій температурі. З рис. 1.5 видно, що експериментальні точки можуть бути відтворені при $E_i^m = 1,0$ еВ, $D_{i0} = 4 \times 10^{-3}$, $D_{v0} = 10^{-2}$ та $E_{2i}^B = 0,2$ еВ; при цьому, інші параметри використовуються такі ж як для α - заліза.

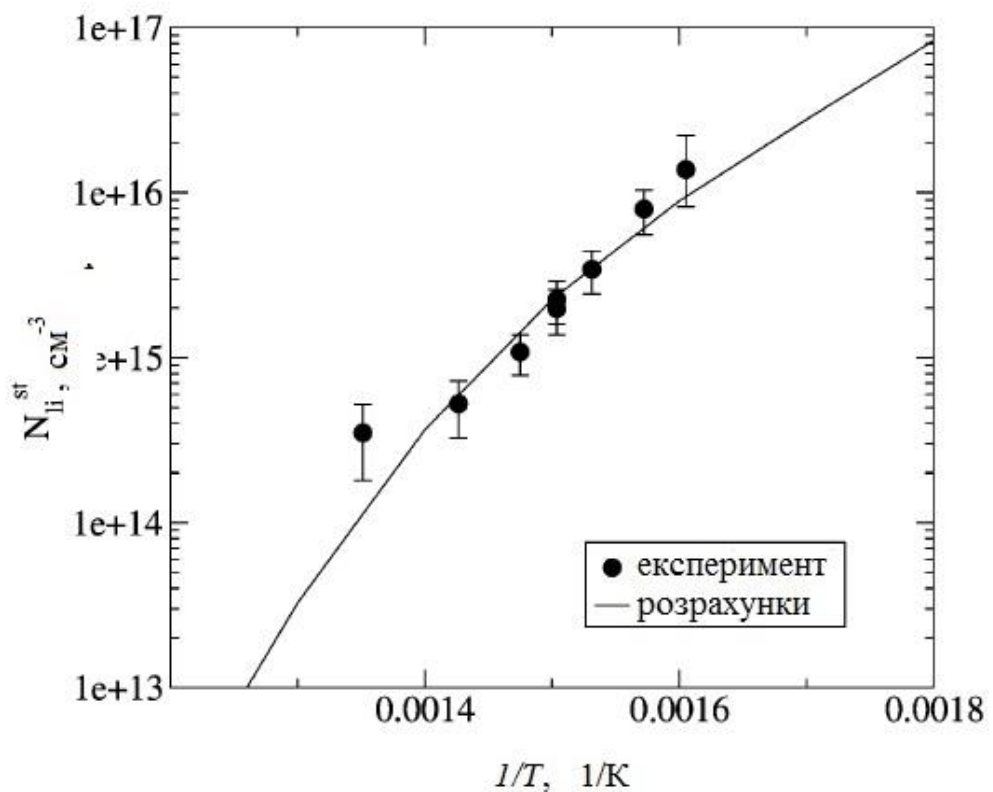


Рис. 1.5. Порівняння розрахункових значень $\ln N_{li}^{st}$ з T з експериментальними результатами, що отримані для сплава FeCu.

1.2. Метод кластерної динаміки для сплавів заліза, які опромінені нейтронами або іонами

Нейтрони і важкі іони створюють каскади зміщення, що генеруються високоенергетичними атомами первинної віддачі з енергією до декількох десятків, або навіть сотень кеВ. Відповідна сумарна доза в одиницях дра задається формулою [25]:

$$dpa = \phi t \langle \sigma_{dpa} \rangle = \phi t \int \phi_s(E) \sigma_s(E, T_c) N_c(T_c) dE \quad (18)$$

Тут $\langle \sigma_{dpa} \rangle$ – спектрально-усереднений переріз dpa , $\phi_s(E)$ – нормований спектр потоку нейтронів, E_d – енергія зсуву, а $\sigma_s(E, T_c)$ – перетин для нейтронів з енергією E для отримання первинних відвалів з енергією T_c . Дози для іонного опромінення часто обчислюють також як функцію глибини вздовж шляху вхідних іонів, оскільки дози суттєво змінюються в межах діапазону проникнення іонів. Дослідження в [26] було виконано на α -залізі. Тонкі фольги опромінювали у прискорювачі Ван де Граафа ARTHUR SRMP/CEA при трьох температурах (200, 300 і 400 °C) іонами криптона з енергією 1,5 MeV. При цій енергії прогнозована середня довжина пробігу іонів становила близько 350 нм. Оскільки товщина області, де проводилася спостереження методом TEM, становила близько 100 нм, проводилася імплантація малої кількості іонів. Більшість з них пройшли через фольгу та утворили пошкодження, які виявились досить однорідними (рис. 1.6.). З метою узгодження з попереднім калібруванням моделі [16, 27], проведеної за допомогою електронного опромінення 1 MeV, для отримання такої ж швидкості пошкодження був обраний іонний потік $1,1 \times 10^{11}$ іонів cm^{-2}/s , розрахований в рамках спрощеного методу NRT (Norgett, Robinson, Torrens) [25] за допомогою коду Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM) [28]. При цих умовах швидкість імплантації є дуже низькою ($1,7 \times 10^{-7}$ іонів/с). Дози опромінення були вибрані таким чином, щоб отримати пошкодження, які можуть бути досліджені методом TEM – мінімальний розмір кластерів точкових дефектів, які спостерігають методом TEM, становить 2 нм. Опромінення здійснювалось при 200 °C до 1,2 dpaNRT, 300 °C до 0,48 dpaNRT та 400 °C до 0,2 та 0,5 dpaNRT.

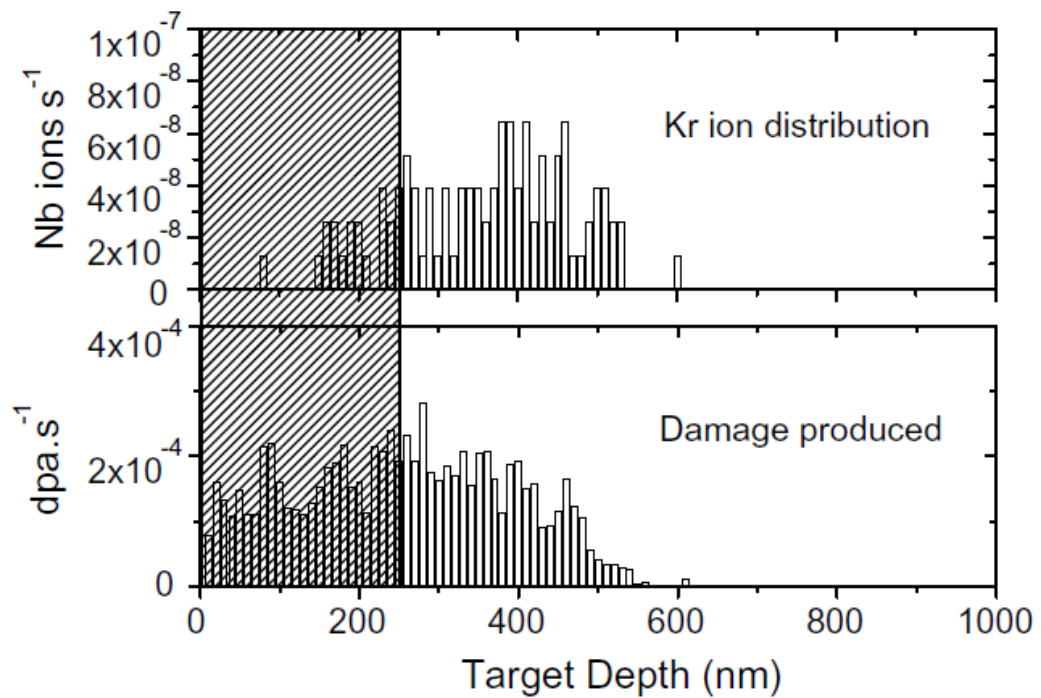


Рис. 1.6. Пошкодження, які спричинені опроміненням іонами *Kr* з енергією 1,5 MeV в залізній мішені відповідно до розрахунку SRIM; при цьому у [28] був обраний енергетичний поріг 40 eV зміщення атомів заліза; кількість імплантованих іонів в секунду та потужність дози для кожній товщині розраховували, використовуючи іонний потік $1,1 \times 10^{11}$ іонів $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$.

Завдяки спостереженням TEM на електронному мікроскопі Philips CM20 були визначено чисельну щільність, розподіл за розміром та тип дислокаційних петель у зразках, що були опромінені.

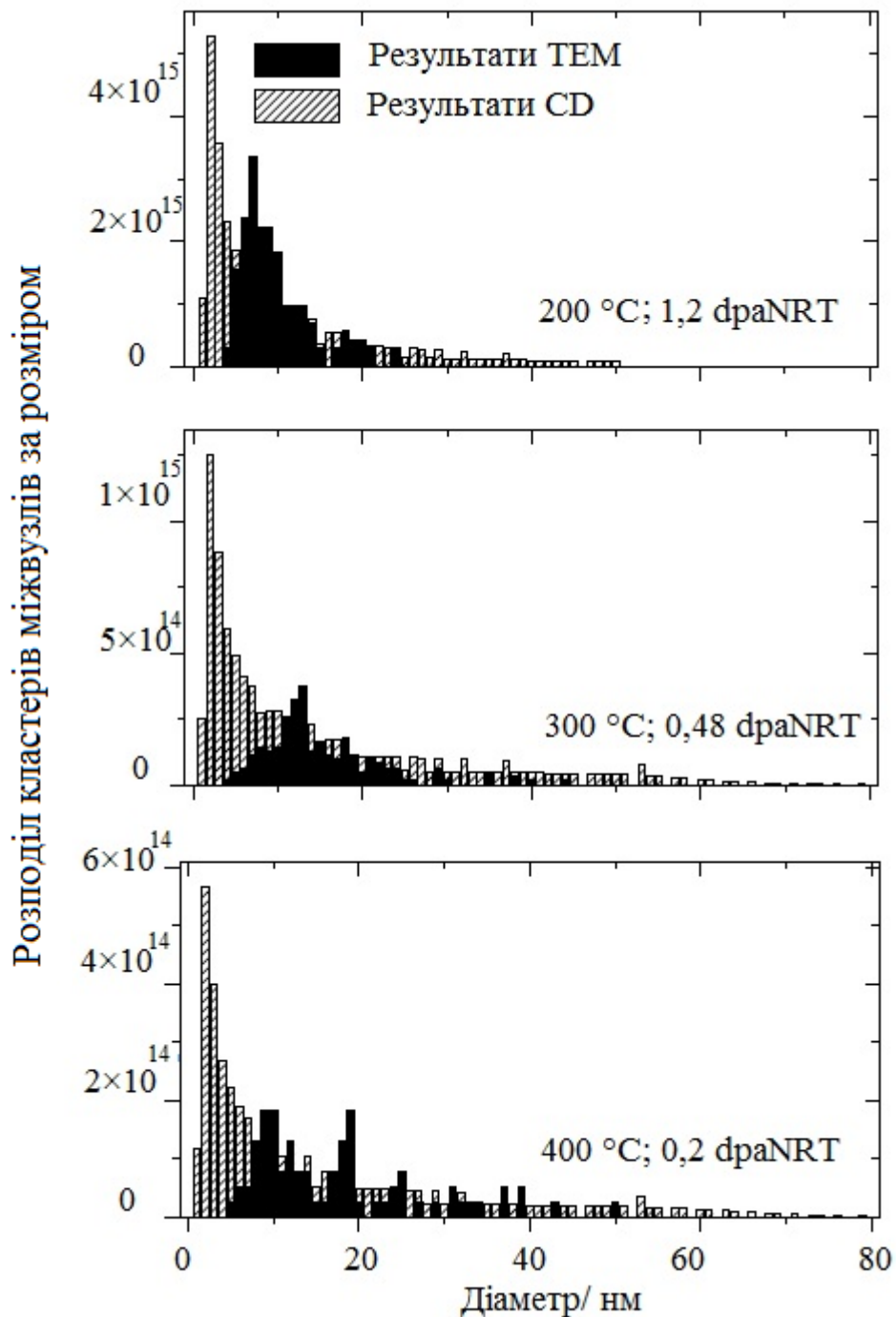


Рис. 1.7. Порівняння між розподілом видимих петель, що визначаються TEM, і обчислених методом кластерної динаміки.

При проведенні процедури калібрування моделі КД у [16] використовувалось припущення про те, що тільки поодинокі вакансії та міжвузельні атоми є мобільними, а енергетичні параметри були визначені з порівняння результатів кластерної динаміки з експериментами. В моделі [26]

були внесено зміни для урахування як мобільності кластерів, так і їх присутності зразу після каскадної стадії. Енергетичні параметри (таблиця 1.2) підбирались з використанням даних експерименту та результатів розрахунків *ab initio*, проведених в [29-31] для α -заліза. Були використані дані щодо розподілу міжвузельних петель за розміром та їх чисельної щільності у зразках після іонного опромінення при температурі 400 °C і дози 0,2 дpaNRT. Передбачалось, що потужність поглинання точкових дефектів границями зерен незначна у порівнянні з їх поглинанням поверхнею зразка. Використовувалися параметри α -заліза, яке не містить вуглець. Однак у [26] під час опромінення могла відбуватися імплантація вуглеця в іонному прискорювачі, що раніше спостерігалось на томографічних голках при атомному зондуванні [32].

Таблиця 1.2

Параметри α -заліза, що використовувались в [26] для моделювання методом кластерної динаміки.

Параметри	Значення параметрів
Пре-фактор: D_{0i} ; D_{0v}	$8,2 \times 10^{-3} \text{ см}^2/\text{с}$
E^m : I, I ₂ , I ₃ , I _{n>3}	0,34; 0,42; 0,43 eB, ∞
E^m : V, V ₂ , V ₃ , V ₄ , V _{n>4}	0,67; 0,62; 0,35; 0,48 eB, ∞
E^f : I, V	3,64; 2,2 eB
E^B : I-I, I ₂ -I, I ₃ -I	0,83; 0,92; 1,64 eB
E^B : V-V, V ₂ -I, V ₃ -I, V ₄ -V	0,3; 0,37; 0,62, 0,73 eB
Z_I^d, Z_V^d	1,1; 1
Товщина плівки TEM	120 нм
Розмір зерен	200 $\mu\text{м}$
Радіус рекомбінації	0,65 нм
Щільність дислокації	10^8 см^{-2}

D_{\min} (петля або порожнина)	2 нм
η	0,3

Слід зазначити, що у попередніх розрахунках *ab-initio* [29-31] вже враховано взаємодію вакансій з домішками, саме, з атомами вуглецю або азоту [33]. Вакансії можуть бути захоплені атомами вуглецю та створити вакансійно-вуглецеві комплекси у α -залізі у досліджуваному в [26] діапазоні температур. Припущення про відсутність мобільності зазначених комплексів приводить до зниження ефективної мобільності вакансій у залізі, що містить вуглець, в порівнянні з чистим залізом. Слід зазначити, що такі комплекси експериментально спостерігалися в α -залізі різної чистоти після експериментів HVEM [34]. Для того щоб брати до уваги наявність вуглецю, ефективний коефіцієнт дифузії вакансій підбирали із порівняння результатів кластерної динаміки з даними експерименту TEM. Вважаючи, що пре-фактор коефіцієнта дифузії вакансій дорівнює $8,2 \times 10^{-3}$ см²/с, в роботі [26] знайдено ефективну енергію міграції вакансії рівній 0,83 еВ, що практично збігається з даними [35]: $0,83 \pm 0,08$ еВ.

Крім того, для визначення G_j в [26] вводиться набір додаткових параметрів (f_n^θ). Кожен з них визначається як $f_n^\theta = G_n^\theta n V / G$, де θ – позначає міжвузельний атом або вакансію, G_n^θ – чисельна щільність кластерів, які містять n точкових дефектів типу θ , G – швидкість генерації дефектів, який дорівнює $G = \eta G_{NRT}$; де G_{NRT} – швидкість генерації дефектів, яка розрахована в рамках підходу NRT [25], η – частка кластерів точкових дефектів, що залишилися після взаємної рекомбінації SIA – вакансія, розрахованої за методом молекулярної динаміки [36] у порівнянні з підходом NRT.

На першому етапі були проведені розрахунки методом кластерної динаміки у припущенні, що на каскадній стадії створювалися тільки ізольовані

пари Френкеля. У цьому випадку f_1^i та f_1^v дорівнюють одиниці. Отримана чисельна щільність кластерів точкових дефектів дорівнює $1,2 \times 10^9 \text{ см}^{-3}$, що є на кілька порядків нижче експериментального значення $(2 \pm 0,5) \times 10^{15} \text{ см}^{-3}$ (табл. 1.3). У роботі [26] було використано результати дослідження каскадної стадії методом молекулярної динаміки (рис. 1.8).

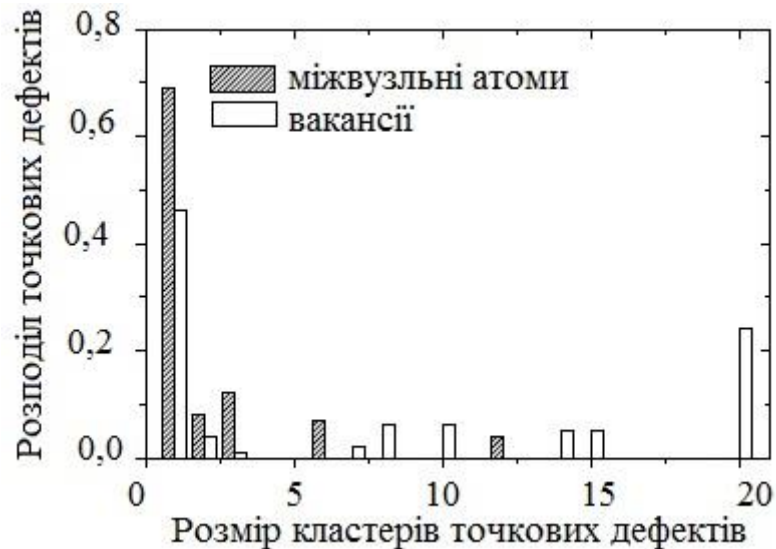


Рис. 1.8. Розподіл точкових дефектів, ізольованих і формуючих кластерів, що використовуються для імітації найбільш вірогідного каскаду.

Оскільки результати моделювання дуже чутливі до температури, в роботі [26] метод кластерної динаміки застосовано до двох температур: 200 °С і 300 °С. Знайдено, що згода з експериментом є задовільною (рис. 1.7). Частка кластерів малих точкових дефектів, отриманих моделюванням, не була чітко видна у ТЕМ досліджень, можливо через незначний шар оксиду на поверхні зразків.

Таблиця 1.3

Параметри, що використовуються для моделювання кластерної динаміки α -заліза.

$T, ^\circ\text{C}$	Доза		ΔL чисельна щільність дислокаційних петель	Середній розмір, D
	(іон/см ²)	(dpaNRT)	(см ⁻³)	(нм)
200	$8,7 \cdot 10^{14}$	1,2	$>10^{16}$	10 ± 4
300	$3,5 \cdot 10^{14}$	0,48	$3 \pm 1 \cdot 10^{15}$	15 ± 7
400	$1,4 \cdot 10^{14}$	0,20	$2 \pm 0,5 \cdot 10^{15}$	18 ± 9

Таблиця 1.4

Оцінка коефіцієнтів f_4^I, f_8^V та ефективної енергії міграції вакансій для опромінення іонами кріптона та нейтронами.

	Іон Kr	$f_4^I = 1,10^{-4}, f_8^V = 0,05$
	Нейтрон	$f_4^I = 3,10^{-4}, f_8^V = 0,5$
E_{eff}^m (V)	Іон Kr та нейтрон	0,83 eV

Для нейтронного опромінення використовували результати ТЕМ експерименту, проведеного в рамках європейського проекту PERFECT [37], який виконувався протягом 2004 - 2008 років, на тому ж матеріалі, що використовувався для наведеного вище калібрування. На відміну від іонного опромінення, нейтронне опромінення було проведено на об'ємному матеріалі. У цьому випадку потужність поглинання точкових дефектів поверхнею є незначною у порівнянні з потужністю їх поглинання границею зерен. Зразки опромінювали при потоці $9,5 \times 10^{13} n_E > 1 \text{ MeV cm}^{-2}/\text{с}$, що відповідає швидкості пошкодження $1,3 \times 10^{-7} \text{ dpaNRT}/\text{с}$ і дозах від 0,025 до 0,2 dpaNRT при температурі 300 °C. Підгонка параметрів проводилася з

порівняння результатів кластерної динаміки з розподілом міжвузельних дислокаційних петель, який наведено на рис. 1.9.

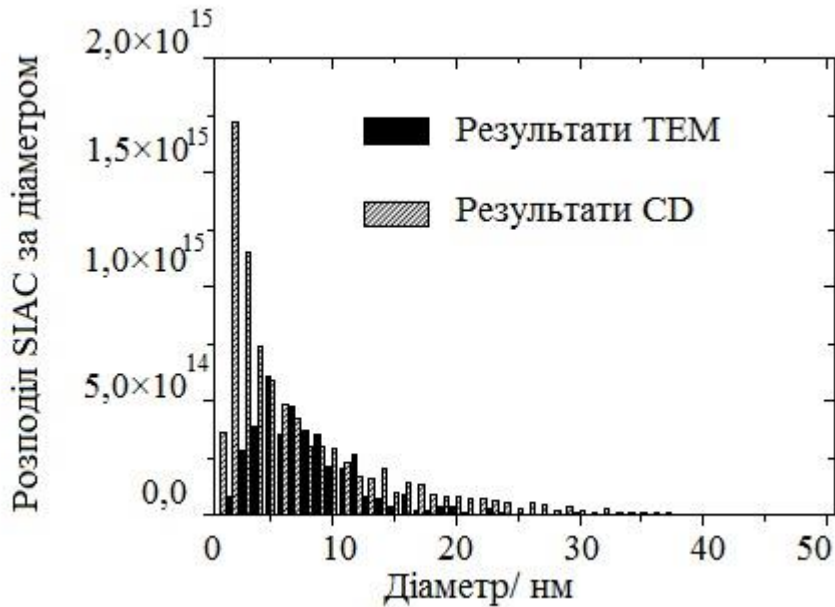


Рис. 1.9. Корегування моделі КД з результатів TEM, отримані для α -заліза після його нейтронного опромінення до 0,2 дпаNRT [37].

Зазначені параметри представлені у таблиці 1.4, з якої слідує, що 80% вакансій утворюють кластери. Крім того, відмітимо, що частка точкових дефектів які утворюють кластери на каскадній стадії вище у випадку нейтронного опромінення у порівнянні з опромінюванням іонами Кг. Каскади стають більш ефективними, що означає, що середня енергія первинно вибитих атомів РКА (primary knocked on atom, РКА) зміщується у сторону вищих енергій, як це показано на рис. 1.10.

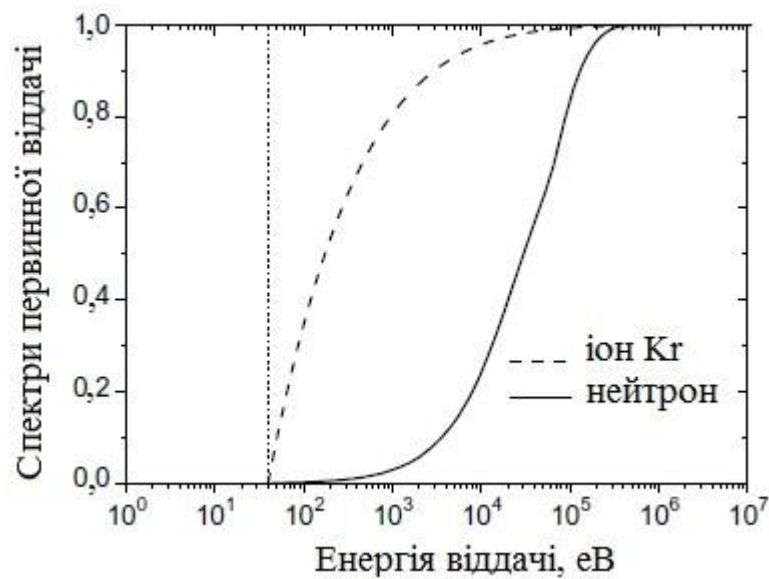


Рис. 1.10. Нормалізовані спектри первинної віддачі, що генеруються іонами Kr 1,5 MeV, та спектром нейтронів, що розглядається в даному дослідженні. Вони були розраховані за допомогою програмного забезпечення DART [38].

Для того щоб перевірити правильність калібрування, в роботі [26] використовували результати експериментального дослідження [39], в якому зразки заліза опромінювалися при температурі 70 °C нейтронами при зростанні дози від 1×10^{-4} до 0,72 $\mu\text{раNRT}$ і при флаксі 6×10^{-7} $\mu\text{раNRT}/\text{с}$. Кластери точкових дефектів, що утворилися під час опромінення, досліджувались методами PAS і TEM.

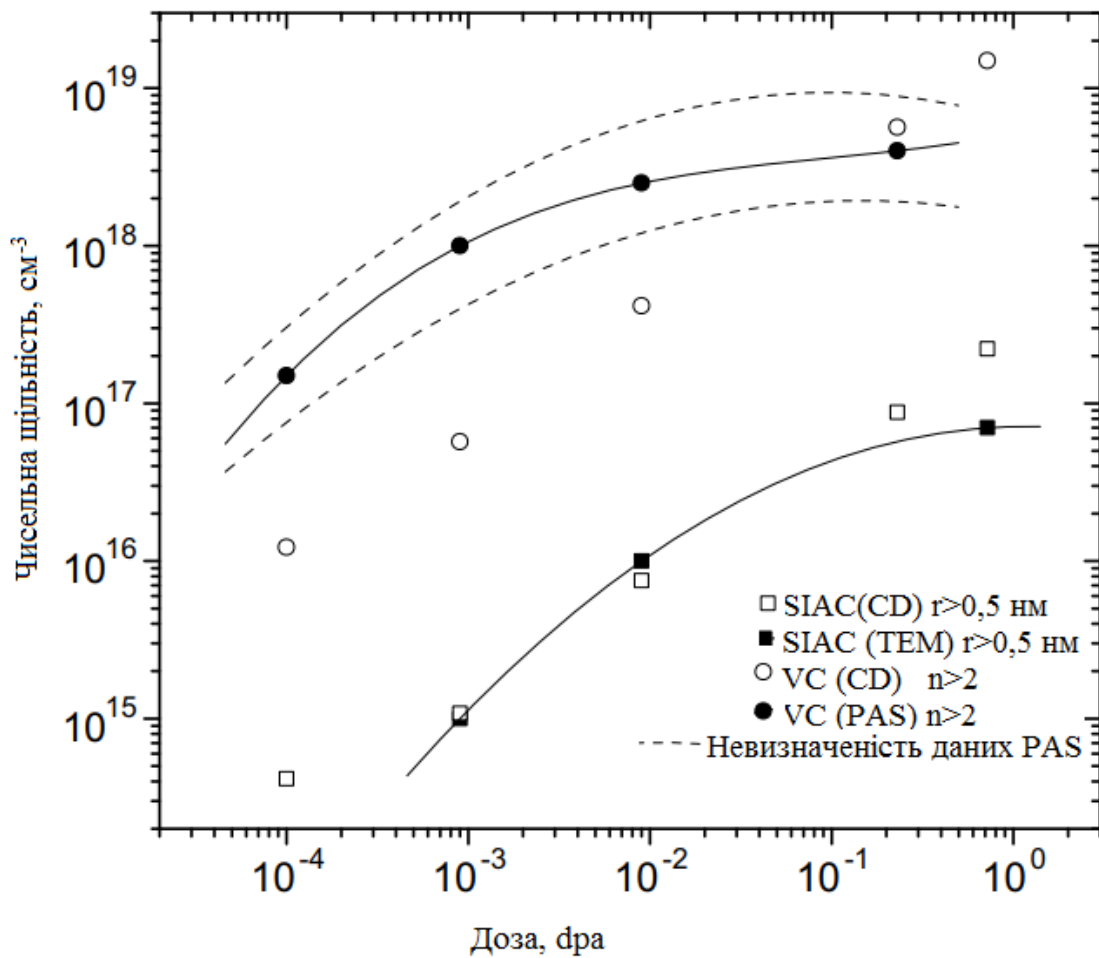


Рис. 1.11. Порівняння між чисельною щільністю кластерів міжвузлів та вакансій, розрахованими з каліброваною моделлю [26], та експериментальними результатами, отриманими у [39].

Результати, які наведені на рис. 1.11, показують, що навіть при 70 °C розрахунки кластерної динаміки відносно добре узгоджуються з експериментальними результатами, враховуючи експериментальні невизначеності та наближення, що використані в моделі. Приклади розрахованих розподілів VC і SIAC після каскадної стадії представлені в [40-42]. Вони близькі один до одного, за винятком декількох деталей, пов'язаних з положеннями піків розподілу VC та SIAC. До цього часу відсутні експериментальні параметри для перевірки цієї залежності від розміру [40-45]. З іншого боку, довгострокова поведінка VC та SIAC може залежати від

різниці у розмірі критичного кластера, n_{cr} та положення піку вихідного терміна. Якщо значення n_{cr} перевищує це положення піку, то VC та SIAC знаходяться на стадії нуклеації після каскадної стадії і можливе їх зникнення. У протилежному випадку очікується детерміністській зріст VC та SIAC. Метою роботи [46] було врахування варіації вихідного терміну в моделюванні КД нейтронного опромінення чистого заліза з метою відтворення експериментальних даних [47]. Результати КД використовувалися для пошуку відповідності між даними методів малокутового розсіювання нейтронів (small-angle neutron scattering, SANS) та PAS [48]. Комерційно чисте α -залізо (<30 артм вуглеця, середній розмір зерна 250 мкм, чисельна щільність дислокацій $7 \times 10^{13} \text{ м}^{-2}$) було опромінено нейтронами в установці Callisto (IPS2) в бельгійському реакторі BR2 (місто Мол, Бельгія). Опромінення з флаксом $\approx 9 \times 10^{17} \text{ н/м}^2\text{с}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) ($139 \times 10^{-9} \text{ дпа/с}$) проводилось при температурі 300 °С. Флюенс нейтронів був у діапазоні від $1,7 \times 10^{23}$ до $1,3 \times 10^{24} \text{ н/м}^2$ ($E > 1 \text{ MeV}$), який відповідає діапазону експозиції нейтронів від 0,026 до 0,19 дпа. Дослідження методом TEM, виявили наявність SIAC розміром від 2 до 31 нм. Середній діаметр та загальна чисельна щільність дислокаційних петель становлять близько 5 нм і $0,85 \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$, 7 нм і $1,3 \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$, і 10 нм і $4 \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$ для 0,051, 0,1 і 0,19 дпа, відповідно. Метод TEM не виявив вакансійних пор при вказаних умовах опромінення. Однак, застосування методу SANS довело присутність вакансійних кластерів розміром ≈ 2 нм, чисельна щільності та об'ємна частка яких складають $4 \times 10^{22} \text{ м}^{-3}$ та 0,014%, відповідно. Зі співвідношення загальної експериментальної інтенсивності SANS до її частки, зумовленою ядерною взаємодією нейтронів з ядрами заліза, було визначено так зване A-співвідношення $\approx 1,4$, що відповідає передбачуваній вакансійній природі розсіювачів у чистому залізі. Експериментальний час життя позитронів в експериментах PAS відповідають VC з трьома, сім'ю і десятьма вакансіями для доз опромінення 0,026, 0,10 і 0,19 дпа, відповідно.

Значення критичного розміру n_{cr} знайдено з умови максимальної зміни енергії Гіббса, $G_{v(i)}(n)$ при формуванні VC (SIAC), що містять n число мономерів:

$$\Delta G_v(n) = -n\Delta\mu_v + 4\pi R_{nv}^2 \gamma \quad (19)$$

$$\Delta G_i(n) = -n\Delta\mu_i + 2\pi R_{ni}^2 E_{eff} \quad (20)$$

Тут $G_{v(i)}(n)$ записується як у [49] для сферичних і плоских кластерів, відповідно, $\Delta\mu_{v(i)}$ – різниця хімічного потенціалу мономера в VC (SIAC) та відповідному мономери в матриці залізу, $R_{nv(i)}$ – радіус VC (SIAC) який містить n мономерів, γ – питома поверхнева енергія VC, E_{eff} – енергія дислокації на одиницю довжини.

Значення γ та E_{eff} можна знайти з рівняння (21) [48] і рівняння (22) [15], відповідно:

$$\gamma = \frac{3\sqrt[3]{2}}{8\pi R_{lv}^2} (E_{fv} - E_{b2v}) \quad (21)$$

$$E_{eff} = \alpha\mu b^2 \quad (22)$$

Тут E_{fv} – енергія утворення вакансій, E_{b2v} – енергія зв'язку дівакансій, μ – модуль зсуву, α знаходиться в діапазоні 0,5-1,5.

Рівняння (23) виводиться з еквівалентності рівняння принципу детального балансу за допомогою різниці в енергії Гіббса кластера розміру $(n-1)$ і кластеру розміру n , з одного боку і рівняння принципу детального балансу через енергію зв'язку кластера розміру n , $E_{bnv(i)}$, і концентрацію поодиноких мономерів, $C_{lv(i)}$, з іншого боку:

$$\Delta G_{v(i)n-1} - \Delta G_{nv(i)} = E_{bnv(i)} + k_B T \ln C_{lv(i)} \quad (23)$$

З рівнянь (19), (20) і (23) отримані рівняння (24) і (25):

$$\Delta\mu_v + 4\pi(R_{(n-1)v}^2 - R_{nv}^2)\gamma = E_{bnv} + k_B T \ln C_{lv} \quad (24)$$

$$\Delta\mu_i + 2\pi(R_{(n-1)i}^2 - R_{ni}^2)E_{eff} = E_{bnv} + k_B T \ln C_{li} \quad (25)$$

Критичний розмір VC, n_{cr_v} і SIAC, n_{cr_i} , знаходиться з умови максимальної зміни енергії Гіббса, $\Delta G_{v(i)(n)}$, рівняння (19) і (20) з рівнянь (21-25) визначено:

$$n_{cr_v} = 2 \left(\frac{E_{fv} - E_{b2v}}{E_{b2v} + 3(E_{fv} - E_{b2v})[(1 - 2^{-2/3}) + k_B T \ln C_{1v}]} \right)^3 \quad (26)$$

$$n_{cr_i} = \left(\frac{1}{(E_{b2i} + k_B T \ln C_{1i}) / \pi R_{li} E_{eff} + 2(\sqrt{2} - 1)} \right)^2 \quad (27)$$

Нейтронне опромінення призводить до значної зміни $C_{1v(i)}$. Отже, критичний розмір $n_{cr_v(i)}$ також змінюється відповідно до рівнянь (26) і (27). Тому вплив результатів каскадної стадії на тривалу поведінку кластерів точкових дефектів може змінюватися з часом опромінення. Рівняння (26) і (27) були використані для аналізу результатів моделювання КД дослідження [46].

Майстер-рівняння КД записується у вигляді наступної жорсткої системи диференціальних рівнянь [48,49] для випадку нейтронного опромінення:

$$\begin{aligned} \frac{dC_{1v(i)}}{dt} = & \eta G_{dpa} (1 - f_{vcl(icl)}) - \frac{4\pi r_{rec} (D_v + D_i) C_{1v} C_{1i}}{\Omega_{Fe}} - \rho_d Z_{v(i)} \left(1 + \frac{6(\rho Z_{v(i)})^{-0.5}}{d} \right) D_{v(i)} (C_{1v(i)} - C_{1v(i)}^e) \\ & - 4\beta_{1v(i)}^{v(i)} C_{1v(i)} + 4\alpha_{2v(i)}^{v(i)} C_{2v(i)} - \sum_{n=2} \beta_{nv(i)}^{v(i)} C_{nv(i)} + \sum_{n=3} \alpha_{nv(i)}^{v(i)} C_{nv(i)} + \beta_{2v(i)}^{i(v)} C_{2v(i)} - \sum_{n=2} \beta_{ni(v)}^{v(i)} C_{ni(v)} \end{aligned} \quad (28)$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{2v(i)}}{dt} = & G_{2v(i)} + 2\beta_{1v(i)}^{v(i)} C_{1v(i)} - 2\alpha_{2v(i)}^{v(i)} C_{2v(i)} - \beta_{2v(i)}^{v(i)} C_{2v(i)} \\ & + \alpha_{3v(i)}^{v(i)} C_{3v(i)} - \beta_{2v(i)}^{i(v)} C_{2v(i)} + \beta_{3v(i)}^{i(v)} C_{3v(i)} \end{aligned} \quad (29)$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_{nv(i)}}{dt} = & G_{nv(i)} + \beta_{(n-1)v(i)}^{v(i)} C_{(n-1)v(i)} + (\beta_{(n+1)v(i)}^{i(v)} + \alpha_{(n+1)v(i)}^{v(i)}) C_{(n+1)v(i)} \\ & - (\beta_{nv(i)}^{v(i)} + \beta_{nv(i)}^{i(v)} + \alpha_{nv(i)}^{v(i)}) C_{nv(i)} \quad \text{for } n > 2, \end{aligned} \quad (30)$$

де η – коефіцієнт ефективності, тобто відношення кількості мономерів точкових дефектів в кінці каскадної стадії до загальної кількості цих дефектів, створених на початку цієї стадії, f_{vcl} (f_{icl}) – відношення кількості поодиноких вакансій (міжвузельних атомів), які утворюють VC (SIAC), до

загальної кількості вакансій (міжвузельних атомів) наприкінці каскадного етапу, ρ_d – чисельна щільність дислокації, d – середній розмір зерен, $C_{lv(i)}^e$ – рівноважна термічна концентрація вакансій (міжвузельних атомів), $D_{v(i)}$ – обчислюється за формулою (31):

$$D_{v(i)} = D_{v(i)0} \exp\left(-\frac{E_{mv(i)}}{k_B T}\right), \quad (31)$$

де $\beta_{ni}^{v(i)}$ – коефіцієнт приєднання точкових дефектів плоскими кластерами міжвузельних атомів з радіусом r_{ni} , який визначається за формулою (32):

$$\beta_{ni}^{v(i)} = \frac{2\pi r_{ni} D_{v(i)} C_{lv(i)} Z_n^{v(i)}}{\Omega_{Fe}} \quad (32)$$

де $Z_n^{v(i)}$ – поправочний коефіцієнт, який визначає захоплення вакансій (міжвузельних атомів) кластера міжвузлів, визначається за формулою (12), $\beta_{nv}^{v(i)}$ – коефіцієнт приєднання точкових дефектів сферичним кластером вакансій з радіусом R_{nv} , обчислений згідно до наближенням дифузійного режиму за формулою (33):

$$\beta_{nv}^{v(i)} = \frac{4\pi R_{nv} D_{v(i)} C_{lv(i)}}{\Omega_{Fe}} \quad (33)$$

$\alpha_{nv(i)}^{v(i)}$ – коефіцієнт емісії однієї вакансії (міжвузельного атому) з кластера вакансій (міжвузельних атомів), обчислений згідно до принципу детальної рівноваги через змінення вільної енергії $\Delta G_v(n)$ для вакансій та енергію зв'язку кластера міжвузельних атомів E_{bni} :

$$\alpha_{nv}^v = \beta_{(n-1)v}^v \cdot \exp\left(\frac{\Delta G_v(n) - \Delta G_v(n-1)}{k_B T}\right) \quad (34)$$

$$\alpha_{ni}^i = \frac{\beta_{(n-1)i}^i}{C_{li}} \cdot \exp\left(-\frac{E_{bni}}{k_B T}\right) \quad (35)$$

де E_{bni} вичисляється з [3,14] за формулою (14); E_{fi} – енергія формування вакансії (міжвузельного атому), E_{b2i} – енергія зв'язку димера вакансій (міжвузельних атомів).

Розв'язувач LSODA був використаний у [46] для безпосередньої інтеграції майстер-рівняння для дослідження системи точкових дефектів, що містить поодинокі вакансії, сферичні VC розміром від 2 до 2000 вакансій, поодинокі SIA і планарні SIAC з розміром від 2 до 4000 SIA.

Параметри матеріалу та $G_{nv(i)}$ варіювалися для того, щоб досягти максимальної відповідності результатів моделювання до експериментальних даних TEM, SANS і PAS [47], враховуючи експериментальні обмеженості цих методів для феромагнітного заліза.

Таблиця 1.5

Матеріальні параметри для чистого заліза

Енергія формування вакансії, E_{fv}	1,60 еВ	[3]
Енергія зв'язку кластеру з двох вакансій, E_{b2v}	0,20 еВ	[3]
Енергія міграції вакансії, E_{mv}	1,30 еВ	[3]
Пре-фактор коефіцієнта дифузії поодиноких вакансій, D_{v0}	$0,1 \times 10^{-3} \text{ м}^2/\text{с}$	[3]
Енергія формування міжвузельного атому, E_{fi}	4,3 еВ	[3]
Енергія зв'язку кластеру з двох міжвузельних атомів, E_{b2i}	0,80 еВ	[3]
Енергія міграції міжвузельного атому, E_{mi}	0,30 еВ	[3]
Пре-фактор коефіцієнта дифузії міжвузельного атому, D_{i0}	$4,0 \times 10^{-8} \text{ м}^2/\text{с}$	[3]
Радіус рекомбінації, r_{rec}	0,65 нм	[3]
Коефіцієнт захвату вакансії дислокаційною сіткою, z_v	1,0	[3]
Коефіцієнт захвату міжвузельного атому дислокаційною сіткою, z_i	1,2	[3]
Вектор Бюргерса, b	0,2 нм	[3]
Чисельна щільність дислокації, ρ_d	$0,7 \times 10^{14} \text{ м}^{-2}$	[47]
Середній розмір зерна, d	$2,5 \times 10^{-4} \text{ м}^2$	[47]

Таблиця 1.6

Розподіл VC і SIAC за кількістю n мономерів в кінці каскадної стадії відповідно до (4) із врахуванням різниці між значеннями $G_{дра}$ в (4) і в [46].

N	VC $10^{-9} G_{n,v}$ dpa/s	SAIC $10^{-9} G_{n,i}$ dpa/s
1	34,3	32
2	0,048	3,5
3	0,048	0,13
4	0,046	0,086
5	0,046	0,049
6	0	0,035
7	4,2	0,026
8	3,3	0
>9	0	0

По-перше, параметри матеріалу чистого заліза брались з результатів моделювання *ab-initio* [3] та експерименту [47] (таблиця 1.5). $G_{n,v}$ (1) використовується такі самі як у (6), враховуючи різницю між значеннями $G_{дра}$ у [42] і в дослідженні [46] (таблиця 1.6). Коефіцієнт ефективності, η , приймається рівним 0,3 згідно з [50].

Багаточисленні варіації параметрів матеріалу не дозволили досягнути задовільного узгодження розрахованих параметрів SIAC з експериментально знайденим розміром, якщо використовуються дані щодо G_j з таблиці 1.6. Використання вихідних членів, $G_{n,v}$ і $G_{n,i}$, представлених рівняннями (36) і (37), виявилось більш успішним:

$$G_{2,v} = G_{6,v} = \frac{\eta f_{vcl} G_{дра}}{8}, \quad G_{n,v} = 0 \quad (n \neq 2, 6) \quad (36)$$

$$G_{2,i} = G_{4,i} = \frac{\eta f_{icl} G_{дра}}{6}, \quad G_{n,i} = 0 \quad (n \neq 2, 4) \quad (37)$$

Для фіксованих $G_{nv(i)}$ а рівняннями (36) і (37) було досліджено вплив зміни вхідних параметрів для моделювання методом КД. Було встановлено у [46], що:

1. Збільшення пре-фактора коефіцієнта дифузії D_{i0} , а також формування енергії E_{if} призводить до різкого збільшення $2R_i$ та зменшення N_i ;
2. Зменшення пре-фактора коефіцієнта дифузії D_{v0} забезпечує зменшення значення об'ємної частки вакансійних кластерів C_v ;
3. Зменшення параметра f_{vcl} призводить до збільшення $2R_i$ та N_i ;
4. Збільшення параметра f_{icl} призводить до повільного зменшення $2R_i$ і збільшення N_i ;
5. Вплив зміни γ (E_{b2v}) на розподіл VC, а також SIAC є немонотонним;
6. Зміна радіуса рекомбінації, а також чисельної щільності дислокацій має слабкий вплив на результати метода КД. Останнє свідчить про значну роль VC і SIAC як поглиначів вакансій і міжвузельних атомів у порівнянні з процесами рекомбінації та захвату точкових дефектів сіткою дислокацій.

Крім того, проводились варіації виразів $G_{nv(i)}$ у рівняннях (36) і (37). Було встановлено, що зазначені зміни не суттєво впливають на наведені вище результати моделювання КД. Відтворення експериментальної еволюції VC та SIAC при опроміненні нейтронами чистого заліза [47] досягається при $G_{n,v}$ та $G_{n,i}$ за рівняннями (36) і (37); параметри матеріалу E_{fv} , D_{i0} , E_{mv} (E_{mi}), E_{b2i} , r_{rec} , $z_{v(i)}$, ρ_d , b , та d , взятих з таблиці 1.5, та $\eta = 0,3$ [15], $D_{v0} = 2,10 \times 10^8 \text{ m}^2/\text{s}$, $E_{fi} = 3,05 \text{ eV}$, $E_{b2v} = 0,608 \text{ eV}$ ($\gamma = 1,2 \text{ Дж/м}^2$), $f_{vcl} = 0,07$, $f_{icl} = 0,2$.

Відповідні результати представлені на рис. 1.12-1.15. Нерегулярна поведінка розподілу VC для радіусу кластера близько 0,27 нм на рис. 1.12 відповідає ефекту піків розподілу $G_{n,v}$ (рівняння (36)).

Розподіл статистичних частот SIAC за діаметром F_i (D_n) (D_n є діаметр SIAC розміру n) визначається з розподілу чисельної щільності, $C_{i(n)}$, відповідно до рівняння (38):

$$F_i(D_n) = C_i(n) \cdot \frac{d(n)}{d(D_n)} = \frac{2\sqrt{n}}{D_1} C_i(n) \quad (38)$$

де D_1 – розмір SIA.

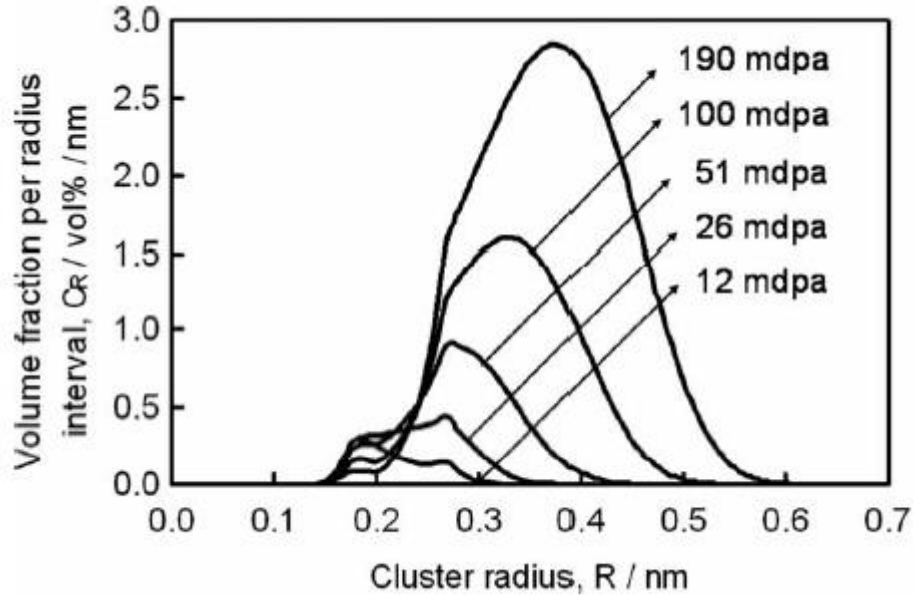


Рис. 1.12. Розподіл розмірів ВС, отриманих розрахунками КД для чистого заліза, опроміненого нейтронним випромінюванням на режимі [46].

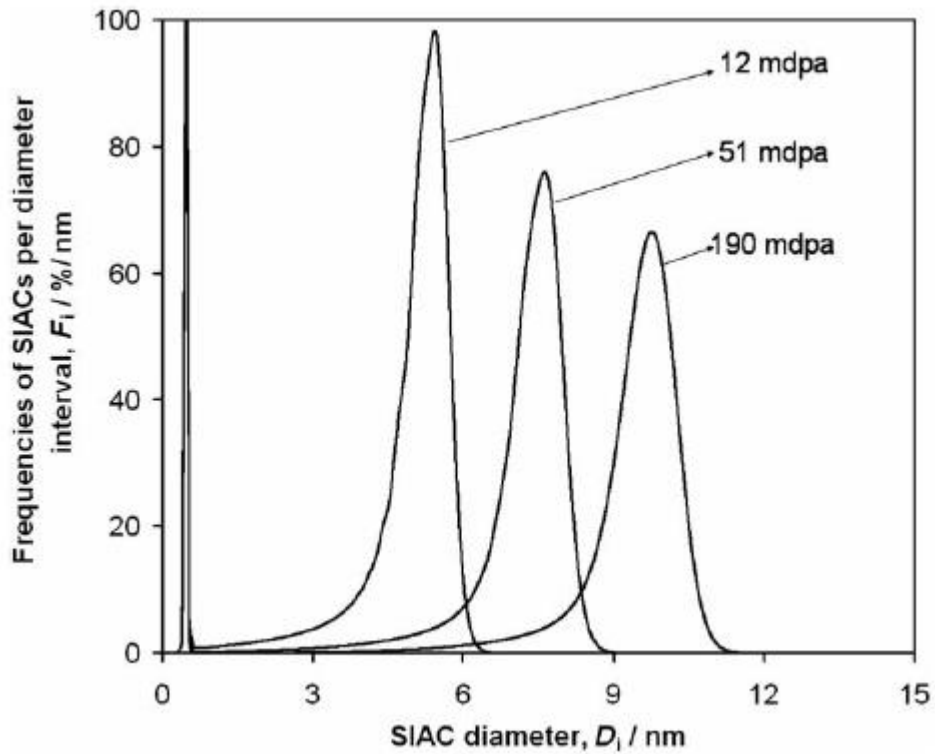


Рис. 1.13. Частоти SIAC, отримані методом КД для чистого заліза, опроміненого нейтронним випромінюванням на режимі [47].

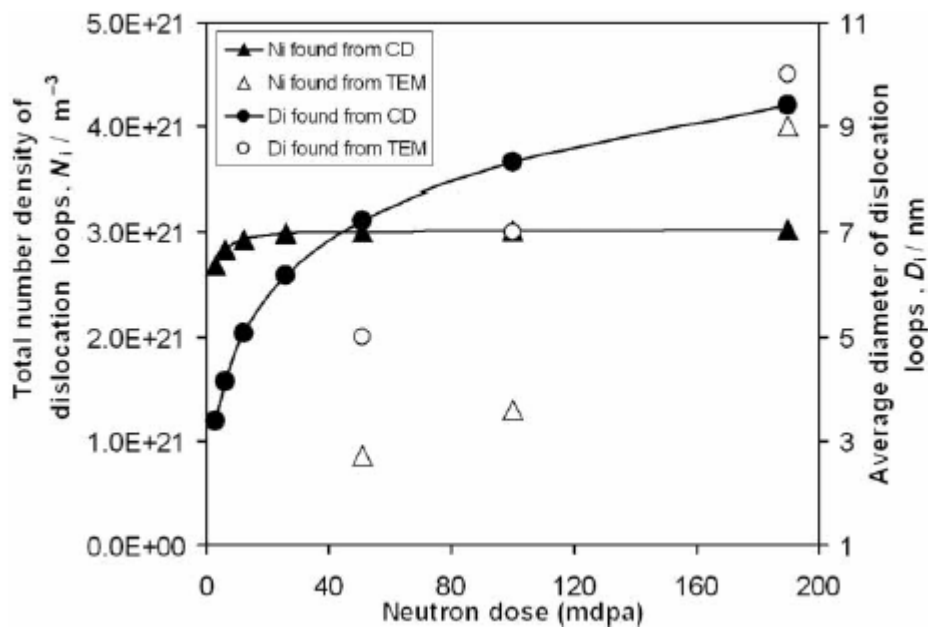


Рис. 1.14. Залежність чисельної щільності (N_i) та середнього діаметру (D) SIAC від дози для чистого заліза, опроміненого нейтронами за режимом [47].

Розраховані статистичні частоти мають додатковий пік для малих дислокаційних петель при розмірі менше 2 нм (рис. 1.13). Даний пік не може бути виявлений з дослідження TEM [47] через експериментальне обмеження TEM у випадку феромагнітного заліза. Залежність розраховуваного діаметру SIAC від дози опромінювання приблизно відтворює її експериментальну поведінку в [47]. Як експериментальна, так і розрахункова чисельна щільності дислокаційних петель N_i , в опроміненому α -залізі виявляють нелінійну залежність від дози нейтронів (рис. 1.14). Значення N_i збільшується різко при низьких рівнях нейтронної експозиції до 0,025 dra. Це поведінка є типовою для нуклеаційної стадії еволюції кластерів. При збільшенні експозиції нейтронів N_i проявляє поведінку типу насичення, що є характерним для детерміністської стадії еволюції кластерів. Такий ж самий ефект насичення N_i було знайдено методом кінетичного моделювання Монте-Карло [51] для

чистого заліза, опроміненого нейтронами за умови врахування присутності VC [46, 51]. Залежність доз розрахункових концентрацій поодиноких точкових дефектів та відповідний критичний розмір VC (SIAC) за рівняннями (26) і (27) для $\alpha=1$ у рівнянні (22) представлена на рис. 1.15 [46].

Концентрація поодиноких вакансій, C_{1v} , зростає до 5×10^{-13} атомів⁻¹ при збільшенні дози нейтронного опромінення до 3×10^{-11} дпа, змінюється дуже слабо при опромінюванні від 3×10^{-11} до 10^{-7} дпа, а надалі зменшується до 5×10^{-16} атомів⁻¹ при дози опромінення 0,19 дпа. Відповідна залежність критичного розміру VC, $n_{cr,v}$, від дози опромінення є немонотонною. Концентрація поодиноких міжвузельних атомів, C_{1i} , зростає до 4×10^{-14} атомів⁻¹ при збільшенні дози опромінення до 3×10^{-11} дпа, а потім не змінюється. Відповідні критичні розміри SIAC (n_{cr}) становлять близько трьох для дози опромінення менше ніж 3×10^{-17} дпа і близько двох – для подальшого збільшення дози опромінення.

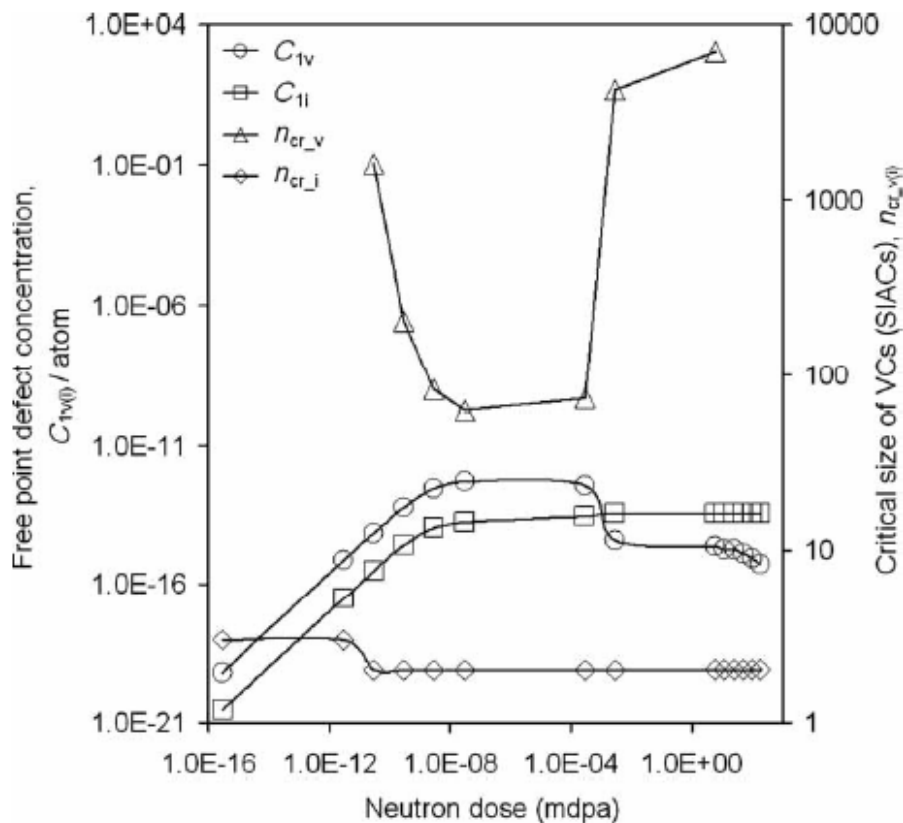


Рис. 1.15. Залежність концентрації поодиноких точкових дефектів, $C_{1v(i)}$ і критичного розміру VC (SIAC), $n_{cr_{v(i)}}$, від дози для чистого заліза, опроміненого нейтронами за режимом [47].

Для перевірки коректності припущення про дифузійно-контрольований режим руху поодиноких вакансій між кластерами згідно рівнянню (32) був проведений додатковий комп'ютерний експеримент. В ньому коефіцієнти приєднання, $\beta_{nv}^{v(i)}$, визначаються згідно підходу [9], де ефективність захоплення вакансій або міжвузельних атомів VC обчислюється для набору значень пружних деформацій VC у залізній матриці. Встановлено, що значення D_{v0} , які знайдені для типової відносної пружної деформації близько 0,001 для VC становлять приблизно $2,14 \times 10^{-8} \text{ м}^2/\text{с}$, тобто близькі до результату попереднього моделювання. Крім того, у [46] були проведені додаткові розрахунки методом КД для того, щоб перевірити значення показника ступеню n в формулі (37), яка визначає залежність енергії зв'язку SIAC від його розміру. У (37) n підноситься до степеню 2/3 відповідно до [3, 14]. Проте, вже в [3] звертається увага на те, що в рівнянні для енергії зв'язку SIAC скоріш всього має бути n піднесена до степеню 1/2, оскільки SIAC є планарним об'єктом. Це припущення також узгоджується з рівнянням (2). При моделюванні методом КД з $n^{1/2}$ в рівнянні (37) експериментальна довгострокова поведінка VC та SIAC відтворюється для тих же параметрів матеріалу, що й у попередньому моделюванні методом КД за виключенням значення пре-фактора D_{i0} , який збільшується з $4,0 \times 10^{-8} \text{ м}^2/\text{с}$ до $6 \times 10^{-4} \text{ м}^2/\text{с}$, тобто на кілька порядків перевищує значення D_{i0} в [3] (таблиця 1.5).

Відомо, що асимптотична поведінка функції розподілу розміру кластера за часом не залежить від неї в момент початку стадії зрілості Оствальда [52]. Цей етап для SIAC і VC у опроміненому α -залізі не спостерігається у [46], тому що як експериментально так і розрахункова

чисельна щільність не зменшується при опромінюванні. Отже, час еволюції кластерів у матеріалі, що цікавить, у [46] є недостатньо великим для втрати пам'яті системи після каскадної стадії. Це підтверджується залежністю результатів КД від варіації результатів каскадної стадії щодо розподілу кластерів точкових дефектів, $G_{n,v}$.

Обидва $G_{n,v}$ згідно з [42] і $G_{n,v}$ відповідно до рівняння (1.36) мають додатковий пік для $n > 1$. Існує невелика різниця в положенні цього піку ($n_{\max}=7$ в [42] і $n_{\max}=6$ в дослідженні [46]), але значна різниця в його відносній інтенсивності. Спостерігається більш виражена різниця між G_n , за формулою [42] та за формулою (1.37). На відміну від [42], у дослідженні [46] існує додатковий пік джерела $G_{n,i}$ при $n_{i\max}=4$. Відзначимо, що додатковий слабкий пік спектру SIAC ($n_{\max}=6$) після каскаду спостерігається в [41]. Розрахована немонотонна залежність від дози концентрації поодиноких вакансій (рис. 1.15) узгоджується з результатами [42]. Встановлено, що критичний розмір SIAC дорівнює двом або трьом SIA в залежності від дози опромінення. Додатковий пік G_n ($n_{\max}=4$ в рівнянні (1.37)) забезпечує наявність SIAC, виявленого TEM, в чистому залізі, опроміненому нейтронами [47]. Немонотонну залежність розміру G_n , наведеного в дослідженні [46], також спостерігається для випадку іонного та нейтронного опромінення в [26], де коригування проводилося для розподілу SIAC за розміром.

1.3. Вибір коду для проведення моделювання методом КД.

Дослідження [53] присвячено вибору коду для проведення моделювання методом КД. У головній програмі КД в [53] організується обчислення усіх членів жорстких звичайних диференціальних рівнянь, які складають майстер-рівняння КД, а інтегрування системи зазначених рівнянь проводиться за допомогою підпрограми, у якості якої зазвичай є комп'ютерний код D02EJF, який інтегрує жорстку систему звичайних

диференціальних рівнянь першого порядку з відповідними початковими умовами, використовуючи змінний крок, що реалізує алгоритм зворотної диференціації. Код D02EJF входить до бібліотеки наукових комп'ютерних програм з Фортрану – Numerical Analytical Group (NAG). Науково-дослідницький центр Дрезден-Розендорф (Німеччина), де виконувались розрахунки методом КД на початку 2000 років [54] має кошовну ліцензію на використання бібліотеки NAG [55]. Для виконання досліджень методом КД у дисертації було використано безкоштовний комп'ютерний код LSODE (Livermore Solver for Ordinary Differential Equations, Лівермор вирішувач для звичайних диференціальних рівнянь), який був створений у 80-х роках ХХ століття для розв'язання спеціалізованих задач кінетики багатокомпонентних систем у лабораторії Лівермор (США). Можливість заміни комп'ютерного коду D02EJF на код LSODE було продемонстровано на прикладі інтегрування відомої задачі Робертсона [56], де розглядається система жорстких диференціальних рівнянь для типової моделі хімічної кінетики системи з різними характерними часами реакцій:

$$\begin{aligned} y_1' &= -0.04 y_1 + 10^4 y_2 y_3 \\ y_2' &= 0.04 y_1 - 10^4 y_2 y_3 - 3 \cdot 10^7 y_2^2 \\ y_3' &= 3 \cdot 10^7 y_2^2 \end{aligned} \quad (1.39)$$

з початковими умовами: $y_1(0) = 1$; $y_2(0) = 1$; $y_3(0) = 1$.

У дослідженні [53] одержано задовільне узгодження інтегрування системи (1.39) обома кодами (таблиця 1.7 та таблиця 1.8).

Таблиця 1.7

Результати інтегрування системи (1.39) кодом D02EJF NAG [55].

	$y_1(t)$	$y_2(t)$	$y_3(t)$
at t = 4.0000e-01	y = 9.851712e-01	3.386380e-05	1.479493e-02
at t = 4.0000e+00	y = 9.055333e-01	2.240655e-05	9.444430e-02
at t = 4.0000e+01	y = 7.158403e-01	9.186334e-06	2.841505e-01
at t = 4.0000e+02	y = 4.505250e-01	3.222964e-06	5.494717e-01
at t = 4.0000e+03	y = 1.831975e-01	8.941774e-07	8.168016e-01
at t = 4.0000e+04	y = 3.898730e-02	1.621940e-07	9.610125e-01
at t = 4.0000e+05	y = 4.936363e-03	1.984221e-08	9.950636e-01
at t = 4.0000e+06	y = 5.161831e-04	2.065786e-09	9.994838e-01
at t = 4.0000e+07	y = 5.179817e-05	2.072032e-10	9.999482e-01
at t = 4.0000e+08	y = 5.283401e-06	2.113371e-11	9.999947e-01
at t = 4.0000e+09	y = 4.659031e-07	1.863613e-12	9.999995e-01
at t = 4.0000e+10	y = 1.404280e-08	5.617126e-14	1.000000e+00

Таблиця 1.8

Результати інтегрування системи (43) кодом LSODE [57].

	$y_1(t)$	$y_2(t)$	$y_3(t)$
at t = 4.0000e-01	y = 0.985172e+00	0.338640e-04	0.147937e-01
at t = 4.0000e+00	y = 0.905519e+00	0.224048e-04	0.944590e-01
at t = 4.0000e+01	y = 0.715826e+00	0.918549e-05	0.284165e+00
at t = 4.0000e+02	y = 0.450518e+00	0.322289e-05	0.549479e+00
at t = 4.0000e+03	y = 0.183201e+00	0.894231e-05	0.816798e+00
at t = 4.0000e+04	y = 0.389852e-01	0.162185e-06	0.961015e+00
at t = 4.0000e+05	y = 0.493951e-02	0.198549e-07	0.985060e+00
at t = 4.0000e+06	y = 0.517801e-03	0.207266e-08	0.999482e+00
at t = 4.0000e+07	y = 0.525034e-04	0.210025e-09	0.999947e+00
at t = 4.0000e+08	y = 0.581277e-05	0.232512e-10	0.999994e+00
at t = 4.0000e+09	y = 0.471199e-06	0.188479e-11	0.100000e+01
at t = 4.0000e+10	y = -0.279994e-08	-0.111976e-11	0.100000e+01

Код D02EJF NAG [55] має деяку перевагу у швидкодії перед кодом LSODE [57], яка не є суттєвою для моделювання методом КД у нашому дисертаційному дослідженні.

Отже, результатом порівняльного аналізу кодів [55] та [57] був одержан висновок у [53] про можливість використання безкоштовного коду LSODE для дослідження задач кінетики систем, які описуються системою жорстких звичайних диференціальних рівнянь.

Висновки до розділу 1

1. Експериментальне визначення параметрів моделі кластерної динаміки при дослідженні еволюції кластерів точкових дефектів (VC, SIAC) у сплавах на основі заліза доцільно провести з порівняння результатів моделювання з даними методом позитронної анігіляції для кластерів радіусом до 0,5 нм, з даними малокутового розсіювання нейтронів для кластерів радіусом від 0,5 до 1,5 нм та з даними просвічуваної електронної мікроскопії для кластерів радіусом більше 1,5 нм.
2. Кластери точкових дефектів (VC, SIAC) у процесі своєї еволюції під опроміненням не досягають стадії Оствальда і тому може бути поставлена задача щодо визначення розподілу кластерів точкових дефектів за розміром на каскадній стадії у реакторних сплавах заліза з експериментальних даних, отриманих від опромінених зразків на стадії детерміністського зростання.
3. Комп'ютерний код LSODE, який є в вільному доступі, може бути використаним при інтегруванні майстер-рівняння кластерної динаміки.

РОЗДІЛ 2

МОДЕЛЮВАННЯ МЕТОДОМ КЛАСТЕРНОЇ ДИНАМІКИ ЕФЕКТУ ФЛАКСУ

Другий розділ присвячено дослідженню проблеми, яка виникла на самому початку радіаційного матеріалознавства та є актуальною дотепер: вплив опромінення на структуру та властивості матеріала залежить тільки від дози (флюенсу опромінення, ψ) або і від потужності опромінення (флаксу, ϕ)? Зазначена проблема має не тільки теоретичне, але і прикладне значення у зв'язку з тим, що багаточисленні дослідження стабільного функціонування у часі як фізичних приладів (наприклад, напівпровідникових сенсорів у космічному просторі), так і технічних конструкцій (корпусів атомних станцій та оболонків тепловиділяючих елементів у атомному реакторі), дають багатострокові прогнози на основі короточасних випробувань, коли для досягнень відповідного флюенсу флакс збільшується у тисячі та мільйон разів. Нами проаналізовано відомі експериментальні та теоретичні підходи до розв'язання проблем флаксу, а також наведені результати дослідження з цього приводу методом КД для α -заліза.

2.1. Загальні відомості щодо ефекту флаксу для корпусів атомних реакторів

Загально прийнято називати систематичну різницю кінетики радіаційної крихкості сталей реакторах RPV, які відрізняються лише потоком швидких нейтронів в одиниці часу, як «флакс ефект». З сімдесятих років ефект флаксу розглядався і обговорювався багато разів [58–79]. Тим не менш, проблема впливу флаксу на радіаційну крихкість сталевих RPV залишається дискусійною. Основною причиною цього є складність реалізації

прямого експерименту щодо ефекту флаксу. Цей ефект може бути прихований, наприклад, впливом інших факторів (флюенсу і спектру швидких нейтронів, хімічного складу і структуру сталі). У дослідженні прямого ефекту флаксу необхідно здійснити тривале опромінення при низькому флаксі для досягнення значення флюенсу, що дозволить впевнено узгоджувати дані для високих і низьких флаксів опромінення. Ефекти флаксу включені в одне з найбільш комплексних досліджень методом SANS у [80], але їм менше приділялась увага ніж ефекту флюенса.

Зразки-свідки сталей, опромінені в капсулах, що розташовані на внутрішній стінці корпусу реактора, періодично перевіряються для моніторингу окрихчення. Однак, оскільки відповідний флакс в промислових реакторах низький, багато експериментів були проведені з використанням високоприскореного опромінення нейтронів у тестових реакторах [81,82] для встановлення кореляцій, які передбачають крихкість при високому флюенсі [81,82]. Для дослідження кінетики преципітатів у реакторних сталях проводяться експерименти, у яких значно прискорювалась швидкість опромінення для широкого діапазону матеріалів [83-85]. Канали спостереження насправді ближче до центра реактора, ніж сама стінка корпусу реактора. Таким чином, потік швидких нейтронів у цих каналах вище, ніж на корпусі реактора під тиском. Ось чому необхідно знати відповідний коефіцієнт, який вище за одиницю, для прогнозування поведінки конструкційних реакторних матеріалів під опроміненням. Так, у [16] зразки опромінювались при більш високому флаксі ніж корпус реактора. Це означає, що необхідний флюенс накопичувався заздалегідь і можна очікувати передбачення майбутньої поведінки матеріалу корпусу. Але, підтвердження процедури прогнозування вимагає, серед іншого, обґрунтованих знань про ефект флаксу. Складне питання про можливість перенесення даних з високим флаксом до малих флаксів є одним з вирішальним для застосування таких

підходів моделювання, як наприклад, багатомасштабне мультифізичне моделювання [86-93].

Фактично, різні величини флаксу повинні компенсуватися оберненими часами опромінення, щоб зберегти постійну величину флюенсу. Це означає, що опромінення з низьким флаксом вимагає тривалого часу витримки, в деяких випадках більше 20 років, щоб акумулювати необхідну дозу флюенса. Крім того, різні значення флаксу зазвичай взаємопов'язані з відмінностями як спектру нейтронів, так і температур опромінення, а також варіаціями хімічного складу матеріалів, що опромінюються [86, 87]. В роботі [92] досліджували матеріал зварювального шва корпусу реактора, що піддається впливу флаксів, які відрізняються в 35 разів, тоді як флюенс і температура опромінення були практично однакові. Час опромінення матеріалу при низькому флаксі становив 11,6 років. Залежність мікроструктури та механічних властивостей реакторних сталей та пов'язаних з ними модельних сплавів від флаксу залишається невирішеною проблемою [82, 93, 94]. На основі спрощеної кінетичної теорії в [82] було визначено та описано ряд ефектів, що сприяють залежності від флаксу. Додаткові деталі були досліджені за допомогою моделювання кінетичним методом Монте-Карло (kinetic Monte Carlo, MC) [95, 96]. З моделювання методом MC було встановлено, що термічно індуковані стрибки вакансій припускають збільшення частки загальної кількості стрибків на одиницю часу експозиції, коли флакс зменшується. Це говорить про те, що прискорене окрихчення при низьких флаксах може бути частково викликане ефектами термічного старіння. Підвищений флакс може або збільшувати, або зменшувати, або не впливати на крихкість залежно від комбінації значень температури опромінення, флаксу, флюенсу та вмісту сплаву міді і нікелю [97–99]. Емпіричні багатопараметричні кореляційні підходи були застосовані для того, щоб відокремити ефект флаксу від таких комбінованих впливів на окрихчування або затвердіння при опроміненні [82, 100-102]. У багатьох

дослідженнях виявлено незначну або відсутність флаксової залежності крихкості або твердіння. Це може означати або відсутність ефекту, або те, що досліджений діапазон флаксів був занадто малий.

2.2. Вплив флаксу на мікроструктуру та механічні властивості матеріала зварного шва корпусу реактора високого тиску атомних станцій

В роботі [92] SANS було застосовано для дослідження розподілу розмірів кластерів, індукованих опроміненням, у матеріалі зварного шва RPV з відносно високим рівнем домішок міді (0,22 мас.%). У той час як матеріал піддавався нейтронному опроміненню при двох різних рівнях флаксу нейтронів, у обох випадках було накопичено таке ж значення флюенсу нейтронів, щоб виявити ефект флаксу. Результати для аналогічного зварювального матеріалу з низьким вмістом міді були включені, щоб перевірити припущення про її домінуючу роль.

Таблиця 2. 1

Хімічний склад досліджуваних матеріалів (мас.%).

	C	Si	P	S	V	Cr	Mn	Ni	Cu	Mo
Зварювання 1	0,08	0,15	0,015	0,017	0,001	0,74	1,10	1,11	0,22	0,60
Зварювання 2	0,07	0,15	0,017	0,010	0,011	0,10	1,06	1,00	0,03	0,62

Таблиця 2.2

Умови опромінення (значення флюенсу і флаксу для енергії нейтронів, $E > 1$ MeV).

	Код	Флюенс (см^{-2})	Флакс ($\text{см}^{-2} \text{с}^{-1}$)	Час	Температура ($^{\circ}\text{C}$)
Зварювання 1	I-1	$2,2 \times 10^{19}$	$2,1 \times 10^{12}$	122 днів	285
Зварювання 2	I-2	$2,2 \times 10^{19}$	$6,0 \times 10^{10}$	11,6 років	288

Таблиця 2.3

Індуковані опроміненням зміни межі текучості, $\Delta\sigma_y$ і температури в'язко - крихкого переходу, ΔT_{41} . Похибки вимірювання становлять близько 10%.

	Код	$\Delta\sigma_y$ (МПа)	ΔT_{41} (К)
Зварювання 1	I-1	211	119
Зварювання 2	I-2	196	111

Досліджувалася матеріал NiCrMo1 UP (модифікований)/LW320, LW340 (німецька специфікація) сталей реакторів першого покоління, що містить рівень домішки Cu 0,22 мас.%, який позначено кодом 1. Для порівняння, в дослідженні включені результати для сталей четвертого покоління матеріал NiMo1/OR41 TT UP, що містить 0,03 мас.% міді (код 2). Хімічний склад обох сталей наведені в таблиці 2.1, умови опромінення підсумовані в таблиці 2.2, а зміни механічних властивостей, що викликані опроміненням, зібрані в таблиці 2.3. Вимірювання методом SANS проводили на приладі V4 Hahn-Meitner-Institut Berlin [103]. Зразки поміщали в магнітне поле 1,2 Т перпендикулярно падаючому пучку нейтронів. Діаметр променя становив 7,5 мм, а довжина хвилі нейтронів – 0,6 нм. Були обрані дві відстані детектора 1,1 і 4 м, що забезпечило діапазон векторів розсіювання Q , від 0,2 до 3,0 нм^{-1} .

Когерентні поперечні перерізи магнітного і ядерного розсіювання, $d\Sigma/d\Omega$, отримані для зварного шва 1 і відновлені розподіли кластерів за розміром, зображені на рис. 2.1 і 2.2, відповідно. Перерізи розсіювання для низьких і високих флаксів виявили характерні відмінності, що проявляються в різних розподілах за розміром. Магнітні і ядерні внески мали однакову поведінку, тобто магнітні і ядерні інтенсивності малокутового розсіювання викликаються одними і тими ж об'єктами.

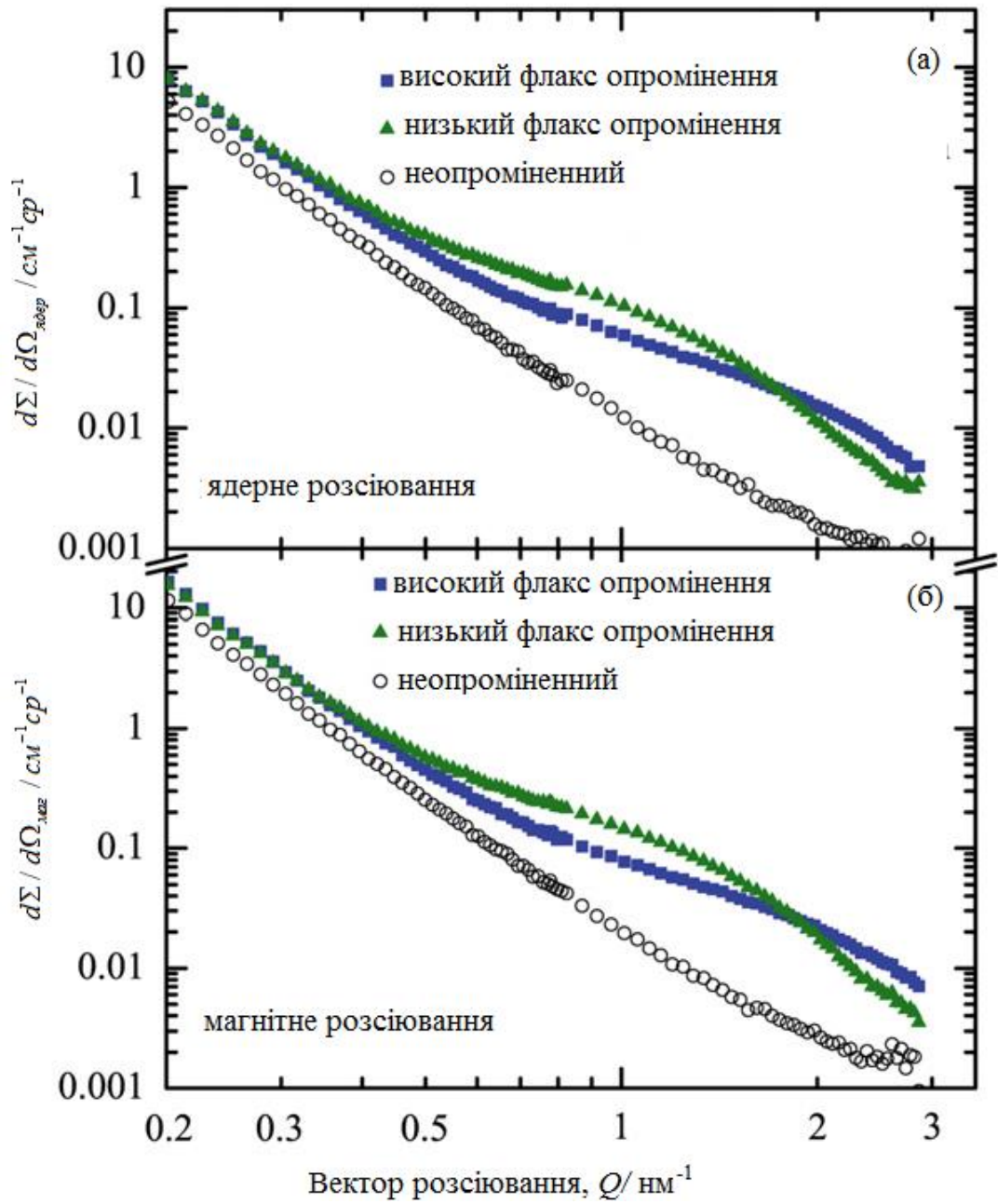


Рис. 2.1. Поперечні перерізи когерентного ядерного (а) та магнітного (б) розсіювання, що отримані для зварного з'єднання 1 (0,22 мас.% Cu).

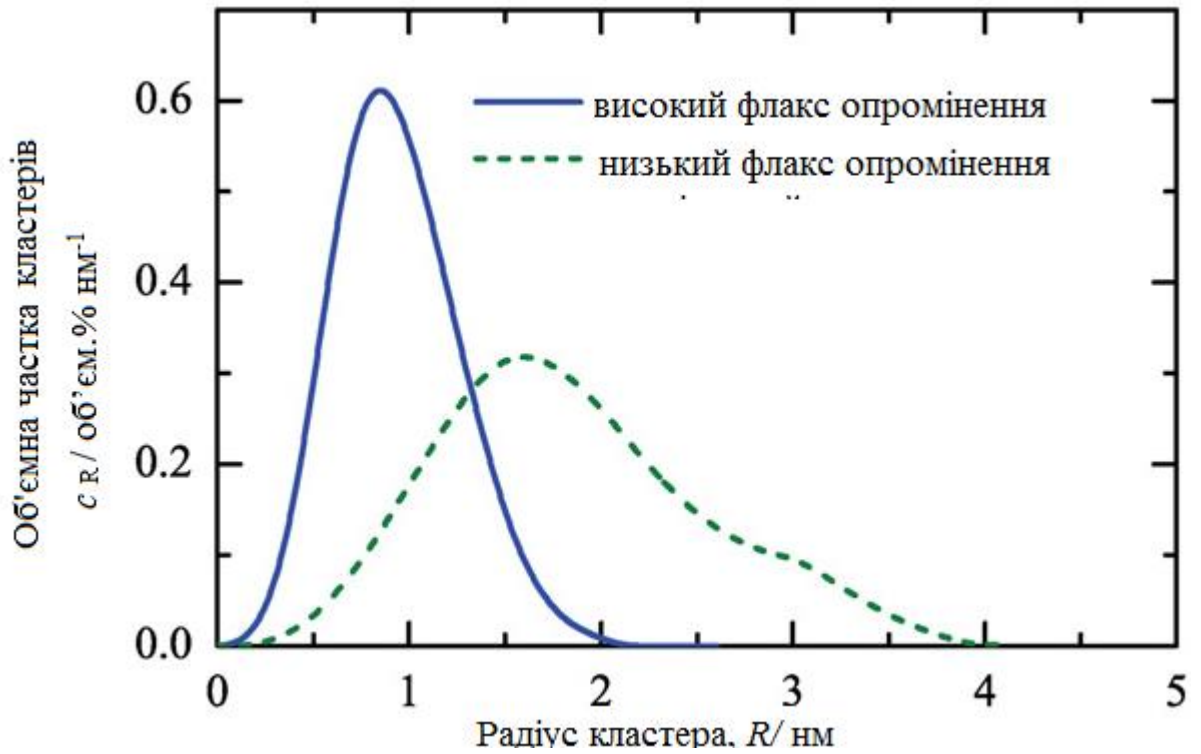


Рис. 2.2. Розподіл розмірів індукованих опроміненням кластерів, реконструйований для режиму зварювання 1.

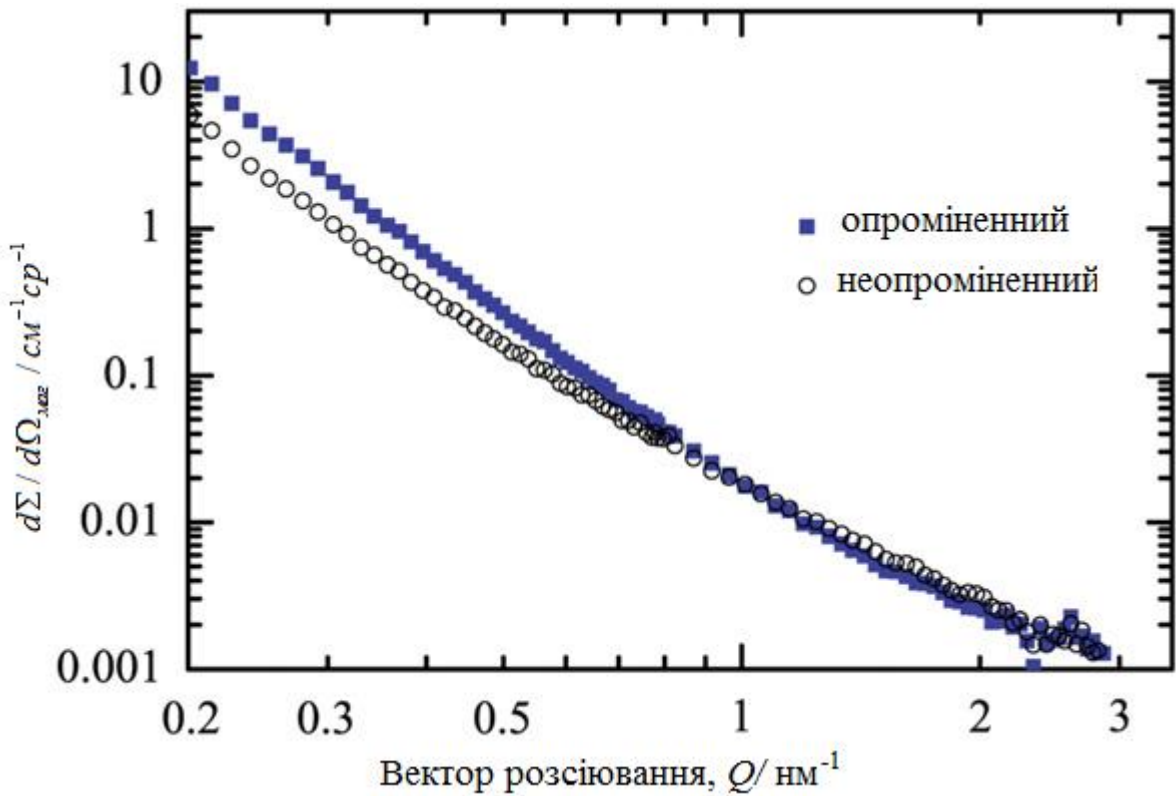


Рис. 2.3. Поперечний переріз когерентного магнітного розсіювання, отриманий для зварного шва 2 (0,03 мас.% Cu).

Отриманий когерентний поперечний переріз магнітного розсіювання для зварного шва 2 з низьким вмістом міді представлено на рис. 2.3. Загальна об'ємна частка індукованих опроміненням розсіювачів (якщо такі є) становила менше 0,005%.

Результати вимірювань SANS наведені в таблиці 2.4. Збільшення значення радіуса піку розподілу за розміром розсіювачів у зварному шві приблизно у 2 рази є найбільш помітним ефектом зменшення флаксу в 35 разів при постійному флюенсі. Загальна об'ємна частка розсіювачів слабо залежить від флаксу. Збільшення розміру при постійній об'ємній фракції вимагає зменшення чисельної щільності, як показано в таблиці 2.4. Більш докладний опис розподілу розмірів можна отримати з рис. 2.2. Максимальний розмір розсіювачів, виявлений за допомогою SANS, збільшується з 2 нм для високого флаксу до 4 нм для низького флаксу. Розподіл за розміром, отриманий для низького флаксу, складається з двох компонентів, що перекриваються.

Таблиця 2.4

Параметри кластерів, індукованих опроміненням, виявлених SANS.

	Код матеріалу	Пік радіуса (нм)	Об'ємна частка (%)	Чисельна щільність (см ⁻³)	<i>A-ratio</i>
Зварювання 1	I-1	0,85	0,51±0,02	17×10 ¹⁷	2,3±0,1
Зварювання 2	I-2	1,6	0,53±0,02	5×10 ¹⁷	2,5±0,1

Підсилена опроміненням дифузія міді за рахунок вакансій, може бути відповідальною за спостережуваний ефект флаксу. Щоб перевірити це ствердження в [92] застосовували спрощений теоретичний підхід.

Швидкості зміни концентрації вакансій, C_v , та концентрації міжвузельних атомів C_i , були описані рівняннями (2.1) і (2.2) [104].

$$\frac{dC_v}{dt} = G_v - \frac{4\pi r(D_v + D_i)C_v C_i}{\Omega_a} - K_v C_v \quad (2.1)$$

$$\frac{dC_i}{dt} = G_i - \frac{4\pi r(D_v + D_i)C_v C_i}{\Omega_a} - K_i C_i \quad (2.2)$$

У випадку стаціонарного стану ліві частини (2.1) і (2.2) зникають, а сталу концентрацію вакансій, C_{vss} , як функцію від флакса, можна записати наступним чином [93]:

$$C_{vss} = 2,4C_{vss,t} \left(\sqrt{1 + \frac{\varphi}{\varphi_t}} - 1 \right) \quad (2.3)$$

φ – величина діючого флаксу, φ_t – величина флаксу при переході між двома режимами залежності флаксу. $C_{vss,t}$ – стаціонарна концентрація вакансій при флаксу, $\varphi = \varphi_t$; вираз в дужках асимптотично пропорційний φ для $\varphi < \varphi_t$ і $\varphi^{1/2}$ для $\varphi > \varphi_t$. φ_t задається [82]:

$$\varphi_t = \frac{\Omega_a D_v S_v^2}{16\pi r \xi \sigma_{dra}} \quad (2.4)$$

σ_{dra} – поперечний переріз зміщення за атомом (dra), а ξ – частка вакансій і SIA, створених при опроміненні один dra. Теорія еволюції кластерів міді [5, 105] показує, що зростання кластерів регулюється безрозмірним параметром $D_{Cu}^* t / a^2$, де t – час опромінення, $D_{Cu}^* t$ – дифузійний коефіцієнт з індукованим опроміненням збільшення коефіцієнта дифузії міді у залізі. Скористаємося наближенням [86]:

$$D_{Cu}^* = D_{Cu} \frac{C_{vss}}{C_{veq}} \quad (2.5)$$

Тут D_{Cu} та C_{veq} – коефіцієнт дифузії міді та концентрація вакансій у тепловій рівновазі, відповідно. Отже, зростання кластера при заданому

значенні флюенсу є монотонно знижуючою функцією флаксу, і його поведінка регулюється параметром кінетики, k , згідно з:

$$k = D_{Cu}^* t / \psi \sim \begin{cases} const & \varphi \ll \varphi_t \\ 1/\sqrt{\varphi} & \varphi \gg \varphi_t \end{cases} \quad (2.6)$$

Оцінку перехідного флаксу $\varphi_t = 7 \times 10^{11} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, знайдено використовуючи: $S_t = 10^{14} \text{ м}^{-2}$ (порядок величини густини дислокацій), $D_v(285 \text{ }^\circ\text{C}) = 10^{-16} \text{ м}^2 \text{ с}^{-1}$, $r = 0.574 \text{ нм}$, $\xi = 0.4$ і $\sigma_{дра} = 1,5 \times 10^{-25} \text{ м}^2$ [82]. Параметр кінетики, k , нормалізований з незалежним від флаксу межею k_0 , при малих флаксах нанесений на рис. 2.4 як функція нормованого флаксу φ/φ_t . В [92] очікують, що умова нижчого флюсу для зварного шва 1 (умова I-2 в таблиці 2.2) буде знаходитися в незалежному від флаксу режимі зростання кластера, а умова більш високого флаксу (умова I-1 в таблиці 2.2) буде зовні і демонструватиме помітно повільніше зростання кластера. Це те, що спостерігали в відповідно до таблиці 2.4 [92]. Очікувалось, що для менших флаксів (режим 1-2, таблиця 2.2) має спостерігатися повільний ріст кластерів. Однак, оскільки тільки менше 50% об'ємної частки кластера займають атоми міді, наведена вище оцінка не підходить для кількісного передбачення виміряного розміру кластера.

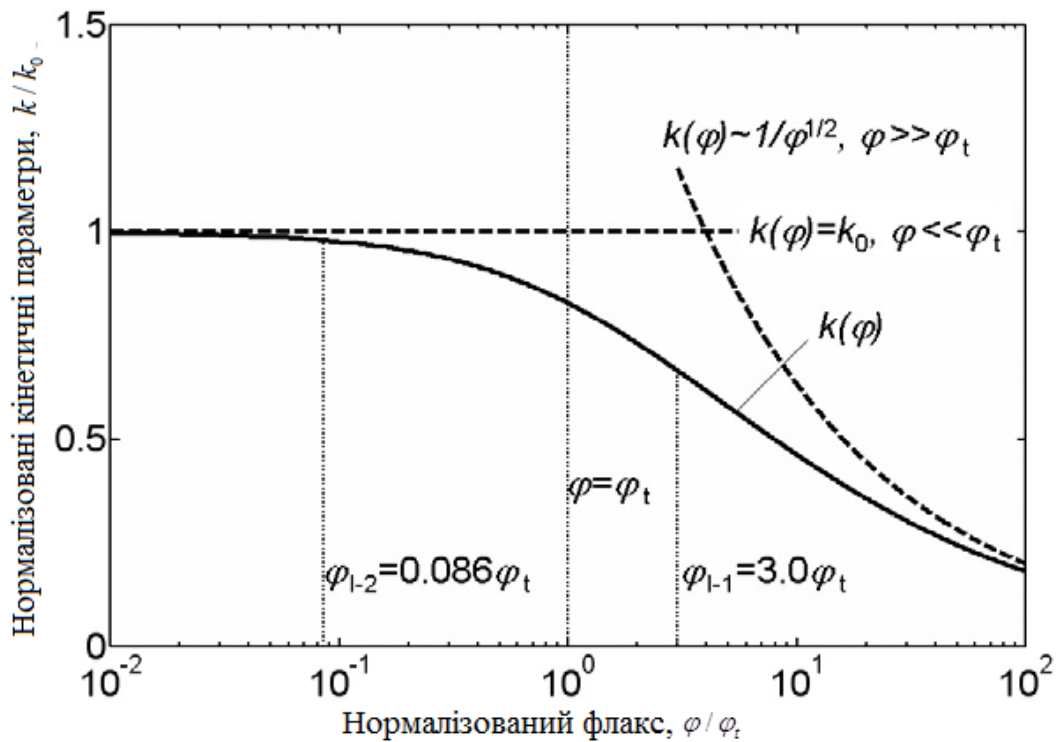


Рис. 2.4. Параметр нормалізованої кінетики, k/k_0 , який регулює зростання кластера, як функцію нормованого фляксу, φ/φ_t . Суцільна лінія: кінетична теорія (2.3) – (2.6), пунктирні лінії: асимптотична поведінка згідно (2.6), пунктирні лінії: експериментальні флякси згідно таблиці 2.2, виражені через кратні значення φ_t згідно (2.4).

Таблиця 2.5

Умови опромінення, результати SANS та температурний зсув крихко-пластичного переходу для еталонної сталі реактора RPV сталі RPV, що містить 0,15 мас.% Cu (температура опромінення 255 °C, флюенс та значення фляксу для енергії нейтронів $E > 1$ MeV).

Флюенс (см^{-2})	Флякс ($\text{см}^{-2} \text{с}^{-1}$)	Пік радіуса (нм)	Об'ємна частка (%)	A-ratio	ΔT_{41} (K)
$7,0 \times 10^{18}$	$1,0 \times 10^{11}$	1,01	$0,21 \pm 0,01$	$2,1 \pm 0,2$	125
$5,4 \times 10^{19}$	$2,1 \times 10^{12}$	1,0	$0,34 \pm 0,01$	$2,4 \pm 0,2$	178
$9,6 \times 10^{19}$	$3,7 \times 10^{12}$	1,0	$0,50 \pm 0,02$	$2,6 \pm 0,2$	221

Для того, щоб показати специфіку спостережуваного росту кластерів, було порівняно результат з результатами для реакторної сталі, що містить 0,15% Cu (таблиця 2.5) [106-108] і піддається опроміненню нейтронів при змінних флюенсі та флаксу. Виражене збільшення об'ємної частки кластерів явно є ефектом збільшення флюенсу нейтронів. Проте, ця сталь не виявляє будь-яких виявлених відмінностей у розмірі кластера, хоча в експерименті були досліджені широкі варіації як флюенсу, так і флаксу. Можливим поясненням є значно нижча температура опромінення (255 °C проти 285 °C). Відмінності у хімічному складі також можуть зіграти свою роль. Порівняння також вказує на важливість розділення ефектів флюенсу та флаксу.

2.3. Моделювання ефекту флаксу методом КД.

Високий флакс збільшує зміцнення у сталі з низьким вмістом міді шляхом стабілізації точкових дефектів у матриці. Ефект флаксу зникає для такої сталі, якщо він дорівнює $0,5 \times 10^{16}$ н/м²/с при 290°C [82, 87]. Вплив на крихкість оцінюється як незалежний від флаксу при малих флаксах, але він зростає лінійно при дуже високих флаксах у дослідженні [87]. Авторами [82] досліджено для реакторної сталі з низьким вмістом міді встановлено, що вплив двох флаксах $0,04$ і $0,22 \times 10^{16}$ н/м²/с при флюенсі 3×10^{23} н/м² і температурі опромінення 300 °C є по суті однаковим. Дуже невелика зміна як чисельної щільності, N_{kl} , так і середнього розміру, R_{kl} , кластерів, індукованих опроміненням, від $(9 \pm 2) \times 10^{24}$ м⁻³ до $(10 \pm 3) \times 10^{24}$ м⁻³ і від $(1,04 \pm 0,09)$ нм до $(1,01 \pm 0,07)$ нм, відповідно, через збільшення флаксу було знайдено методом SANS в [82]. Згідно до [92], низькі флакси збільшують зростання кластерів, тоді як дослідження методом ТЕМ на сталі зварювального шва WM 0,18-4,1 вказують на протилежне [109].

У [87, 92, 110] застосована спрощена кінетична теорія, яка не враховує формування VC та SIAC. Стаціонарне значення вакансії $C_{v,ss}$ було знайдено в [92]:

$$C_{v,ss} = (\sqrt{2} + 1)C_t \left(\sqrt{1 + \frac{\varphi}{\varphi_t}} - 1 \right) \quad (2.7)$$

де φ – фактичний флакс, φ_t – флакс, що відповідає переходу з незалежного від флаксу режиму при більш низьких флаксах до режиму сповільнюючого росту кластера, C_t – стаціонарна концентрація вакансій при перехідному флаксі.

Значення критичної величини φ_t при переході між двома режимами в [89] і [92] дорівнює $0,3 \times 10^{16}$ н/м²/с та $0,7 \times 10^{16}$ н/м²/с, відповідно. Метою нашого дослідження є вивчення впливу флаксу більш детально, ніж у [103, 111, 112], де розглядаються тільки вакансії та атоми міжвузлів, застосовуючи моделювання методом КД для вивчення формування та еволюції вакансійних кластерів та кластерів міжвузлів, а також дослідження впливу температури.

У нашому дослідженні [113] майстер-рівняння КД та параметри матеріалу чистого заліза (таблиця 2.6) для моделювання КД взяті з [87], де експериментальні результати ТЕМ [114], SANS [114, 115] та PAS, [116, 117] були застосовані для калібрування моделі КД.

Таблиця 2. 6

Матеріальні параметри α -заліза

Енергія формування вакансії, E_{fv}	1.60 eV	[16,46]
Енергія зв'язку кластеру з двох вакансій, E_{b2v}	0.608 eV	[46]
Енергія міграції вакансії, E_{mv}	1.30 eV	[16,46]
Пре-фактор коефіцієнту дифузії поодиноких вакансій, D_{vo}	2.0×10^{-8} м ² /с	[16,46]
Енергія формування міжвузельного атому, E_{fi}	3.05 eV	[46]

Енергія зв'язку кластеру з двох міжвузельних атомів, E_{b2i}	0.8 eВ	[16,46]
Енергія міграції міжвузельного атому, E_{mi}	0.30 eВ	[16,46]
Пре-фактор міжвузельного атому, D_{io}	$4.0 \times 10^{-8} \text{ м}^2/\text{с}$	[16,46]
Радіус рекомбінації r_{rec}	0.65 нм	[16,46]
Коефіцієнт захвату вакансії дислокаційною сіткою, z_v	1.0	[16,46]
Коефіцієнт захвату міжвузельного атому дислокаційною сіткою,	1.2	[16,46]
Вектор Бюргерса, b	0.2 нм	[16,46]
Чисельна щільність дислокації, ρ_d	$0.7 \times 10^{14} \text{ м}^{-2}$	[46]
Середній розмір зерна, d	$2.5 \times 10^{-4} \text{ м}$	[46]
Параметр решітки заліза, a	0.2866 нм	[16,46]

Середній радіус і чисельну щільність VC (R_{vc}) і (N_{vc}), а також середній діаметр і чисельну щільність SIAC (D_{SIAC}) та (N_{SIAC}) (рис. 2.5-2.7) визначали за функціями розподілу розмірів VC та SIAC в моделюванні методом КД [113].

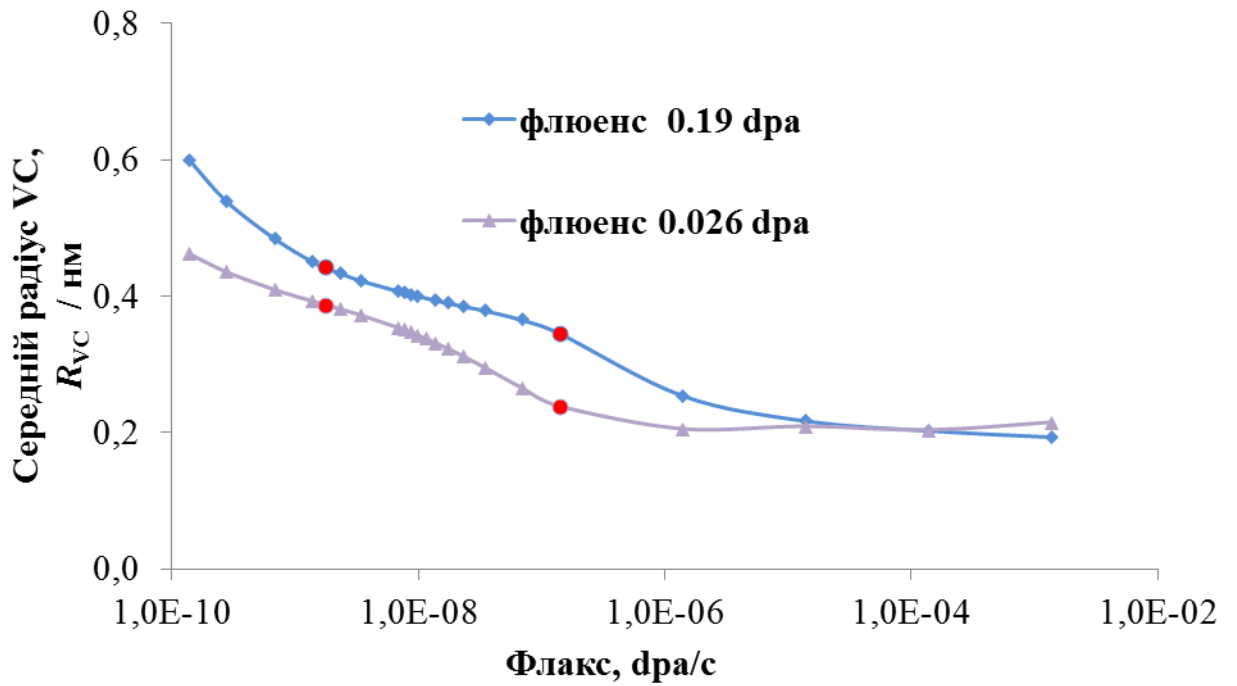


Рис. 2.5. Залежність середнього радіусу VC (R_{VC}) від флаксу для двох значень флюенсу (червоні точки позначають критичні флаксу).

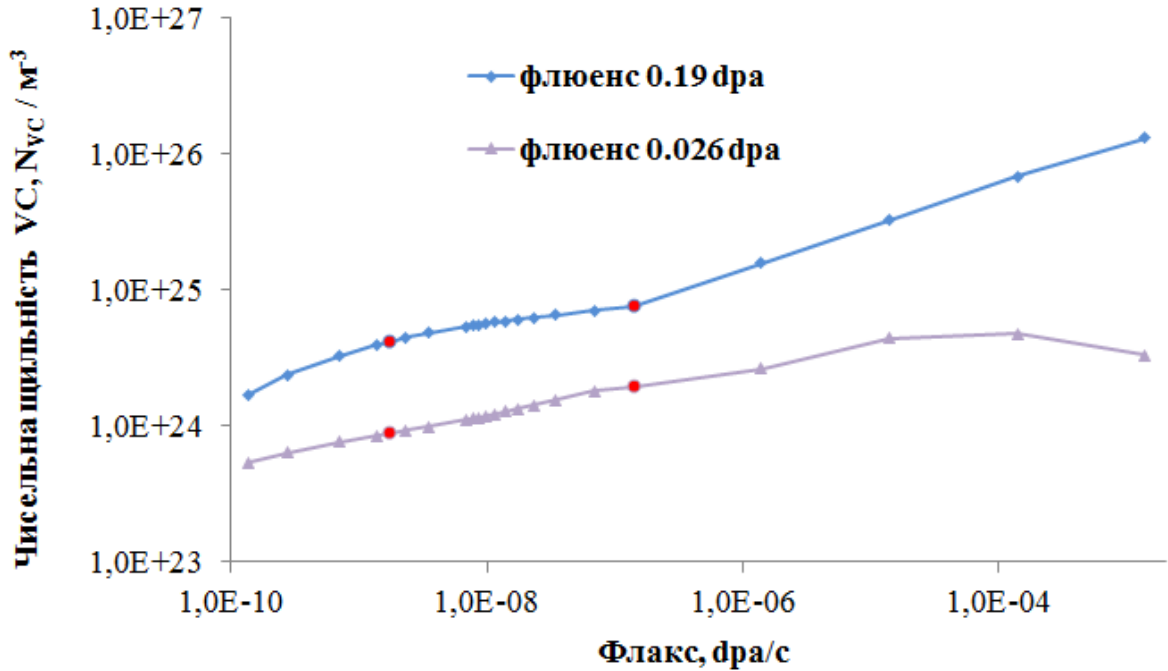


Рис. 2.6. Залежність чисельної щільності VC (N_{VC}) від флаксу для двох значень флюенсу (червоні точки позначають критичні флаксу).

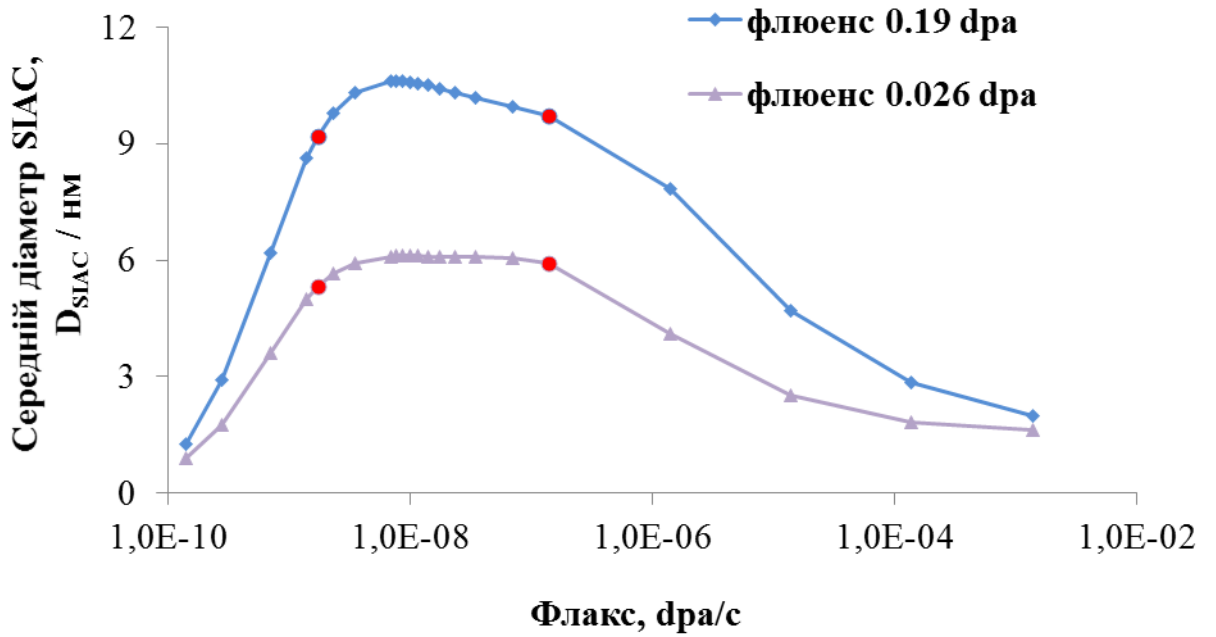


Рис. 2.7. Залежність середнього діаметра SIAC (D_{SIAC}) від фляксу для двох значень флюенсу (червоні точки відзначають критичні фляксу).

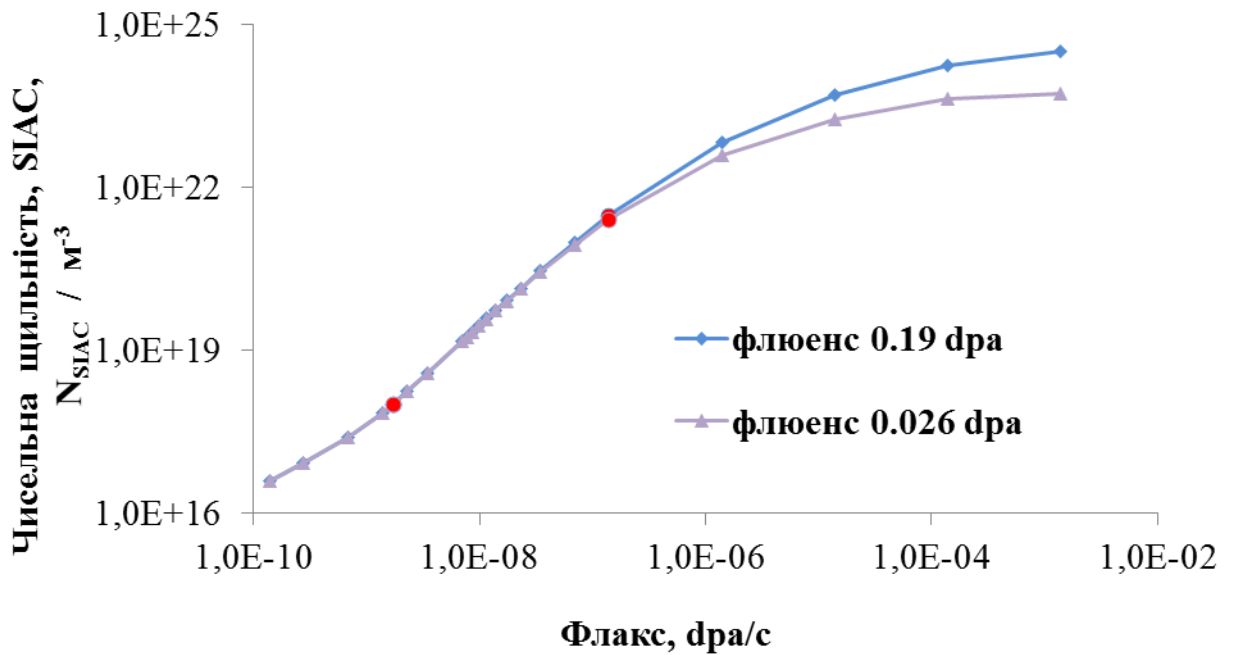


Рис. 2.8. Залежність чисельної щільності SIAC (N_{SIAC}) від фляксу для двох значень флюенсу (червоні точки відзначають критичні фляксу).

В діапазоні ($1,39 \times 10^{-10}$; $1,39 \times 10^{-3}$) дпа/с (9×10^{14} ; 9×10^{21}) н/м²/с для флюенсу 0,19 дпа ($1,3 \times 10^{20}$ н/м², $E > 1 \text{ MeV}$) і при температурі опромінення 300 °С було виявлено збільшення N_{SIAC} і зменшення R_{VC} внаслідок збільшення флаксу, аналогічного [87, 92, 94, 111, 112, 118]. На відміну від [87, 92, 94, 111, 112, 118], де був знайдений лише один критичний параметр флаксу φ_t , у нашому дослідженні знайдено дві критичні значення флаксів $\varphi_{t1} = 6,95 \times 10^{-9}$ дпа/с та $\varphi_{t2} = 1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с (червоні кола рис. 2.5 – 2.7) [113]. Вони відповідають трьом різним режимам: перший режим, де спостерігаються увігнуті частини R_{VC} і майже лінійні ділянки залежностей потоку N_{VC} і N_{SIAC} ; другий проміжний режим, де залежність потоку слабка; і третій режим, де залежність від флаксу N_{VC} близька до лінійної, і спостерігаються опуклі частини потоку залежностей N_{SIAC} (рис. 2.5, 2.6, 2.8) [113]. Залежність D_{SIAC} від флаксу виявилася немонотонною. Вона також складається з трьох режимів з тими ж критичними значеннями флаксів $\varphi_{t1} = 6,95 \times 10^{-9}$ дпа/с і $\varphi_{t2} = 1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с (рис. 2.7). Більш того, при першому і третьому режимах спостерігаються близькі значення D_{SIAC} . Це вказує на доцільність розробки майбутніх експериментів для того, щоб виміряти D_{SIAC} при низькому потоці ($\sim 10^{-9}$ дпа/с) і при високому флаксі ($\sim 10^{-3}$ дпа/с), щоб перевірити знайдений результат моделювання.

Згідно з [119], в нашому дослідженні оцінюється індуковане опроміненням зміцнення $(N_{\text{VC}} \times R_{\text{VC}})^{0,5}$ і $(N_{\text{SIAC}} \times D_{\text{SIAC}})^{0,5}$ для VC і SIAC відповідно. Як для популяцій VC, так і для SIAC залежність зміцнення не має трьох режимів, а характеризується двома режимами з критичним значенням $\varphi_{t2} = 1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с ($1,1 \times 10^{14}$ н/м²/с) (рис. 2.9, 2.10) [113].

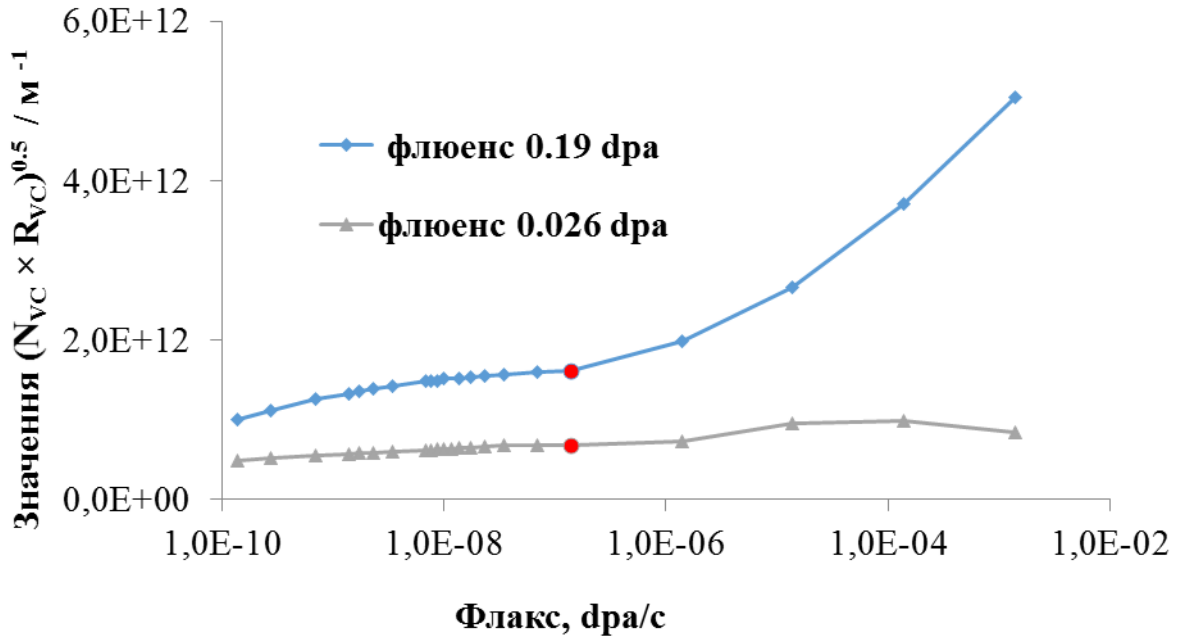


Рис. 2.9. Залежність значення $(N_{vc} \times R_{vc})^{0.5}$ який визначає індуковане опроміненням зміцнення внаслідок утворення VC для двох значень флюенсу (червоні точки відзначають критичний флюкс).

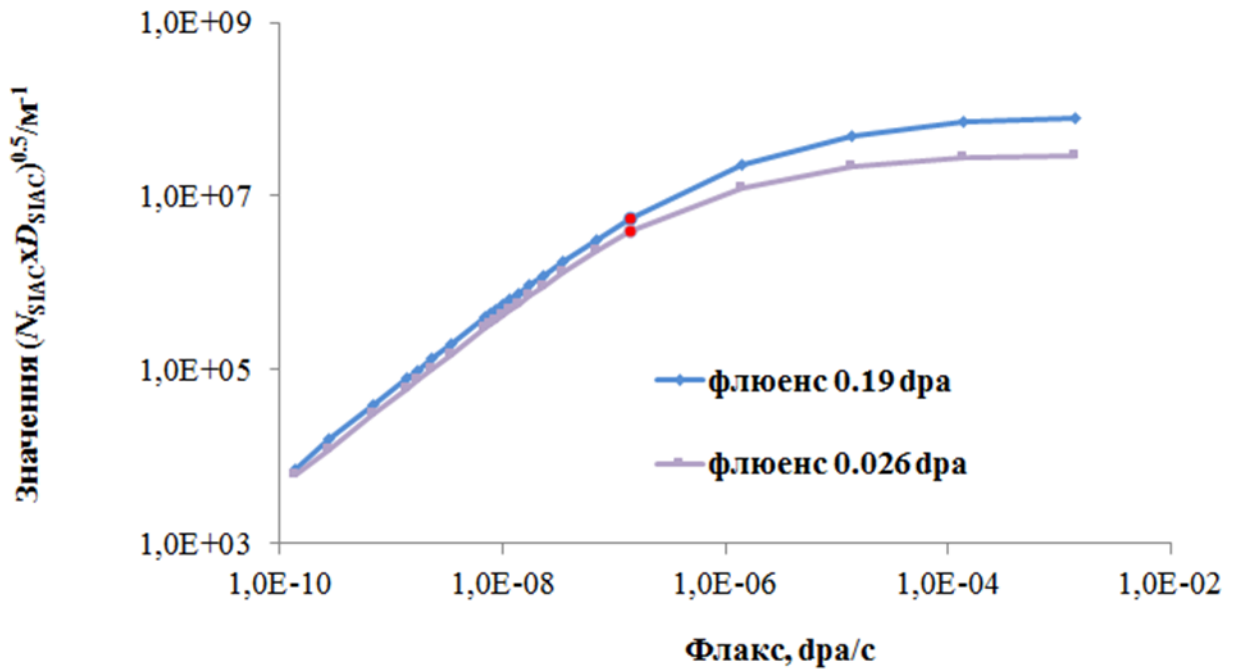


Рис. 2.10. Залежність від флаксу величини $(N_{\text{SIAC}} \times D_{\text{SIAC}})^{0.5}$, що визначає індуковане опроміненням утворення за рахунок формування SIAC для двох значень флюенсу (червоні точки позначають критичний флак).

Це значення менше, ніж критичне значення флаксу 7×10^{15} н/м²/с, знайдене в [99, 101] для зварювальних реакторних сталей. Останнє може бути пояснено впливом хімічного складу на залежність зміцнення матеріалів реактора від флаксу. Подібно до [87, 92, 94, 111, 112, 118] виявлено слабку залежність загартування для малих флаксів (перший режим) і збільшення загартування VC для високих флаксів (другий режим). Навпаки, для SIAC спостерігається сильне збільшення при першому режимі і слабке підвищення твердіння при другому режимі для залежності зміцнення від затвердіння. Також знову спостерігаються два режими ефекту флаксу для концентрації поодиноких вакансій (C_{1v}) та поодиноких міжвузельних атомів (C_{1i}) з критичним значенням $\varphi_{t2} = 1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с (рис. 2.11, 2.12) [113].

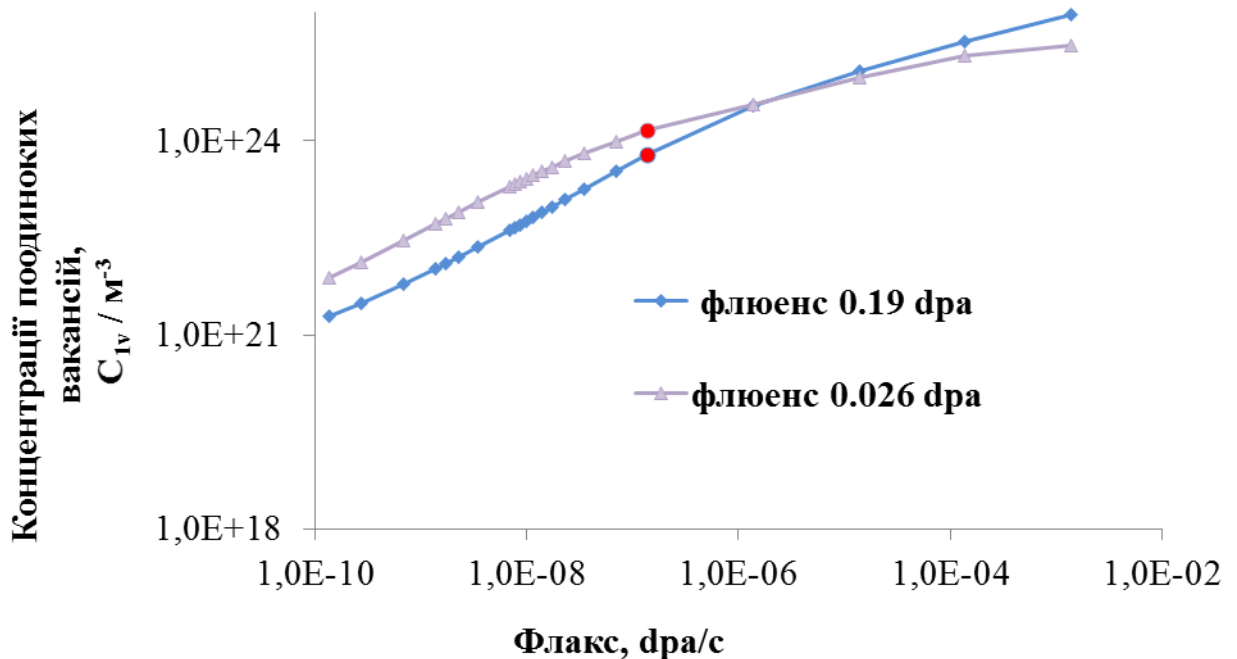


Рис. 2.11. Залежність концентрації поодиноких вакансій (C_{1i}) від флаксу для двох значень флюенсу (червоні точки позначають критичний флак).

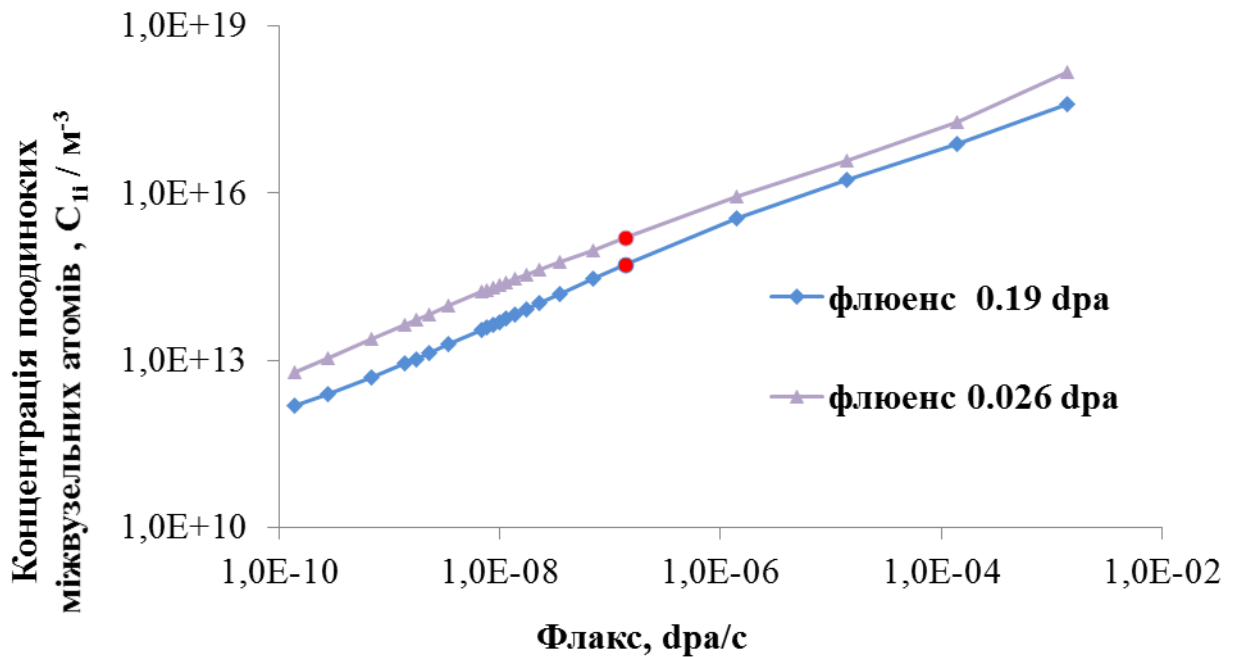


Рис. 2.12. Залежність концентрації поодиноких міжвузельних атомів (C_{1i}) від фляксу для двох значень флюенсу (червоні точки позначають критичний флякс).

Ідентичні критичні значення залежності розміру і чисельної щільності VC і SIAC від фляксу можна пояснити взаємозв'язком між положенням піку розподілу кластерів після каскадної стадії та критичних розмірів (n_{cr}) VC і SIAC, знайдених у [47]: якщо n_{cr} перевищує пік положення вказаний пік, то можливе зникнення кластерів після каскадної стадії; навпаки, кластери можуть рости.

Додатково вивчено вплив флюенса на залежності від фляксу для VC та SIAC. Для цього знову залежність фляксу розглядається в діапазоні ($1,39 \times 10^{-10}$; $1,39 \times 10^{-3}$) дра/с (9×10^{14} ; 9×10^{21}) н/м² /с для флюенсу 0,026 дра ($1,7 \times 10^{19}$ н/м², $E > 1$ MeV) для температури 300 °С. Знайдено збільшення C_{v1} та C_{i1} через зменшення флюенсу (рис. 2.9, 2.10), за винятком області високих фляксів. Відповідно, спостерігалося зменшення R_{VC} , N_{VC} , D_{SIAC} та індукованого опромінення уповільнення через зменшення флюенсу (рис. 2.5, 2.6, 2.10).

Встановлено, що критичні значення залежностей флаксу ($6,95 \times 10^{-9}$ дпа/с та $1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с) однакові для флюенсів 0,026 та 0,19 дпа.

Розглянемо відповідність результатів, представлених на рис. 2.10 експерименту [120], де було виявлено індуковане опроміненням підвищення межі текучості $\Delta\sigma = 90$ МПа і 127 МПа для досліджуваних зразків α -заліза при нейтронному опроміненні з флаксом $1,39 \times 10^{-7}$ дпа/с (9×10^{17} н/м²/с), $E > 1$ МеВ) і флюенсів 0,026 і 0,19 дпа, відповідно. Обидва вплива на $\Delta\sigma$ для VC та SIAC ($\Delta\sigma_x$ та $\Delta\sigma_y$) можна розрахувати за моделлю [121]:

$$\Delta\sigma_{(x,y)} = \alpha_{(x,y)} M \mu b \sqrt{N_{(x,y)} d_{(x,y)}} \quad (2.11)$$

де M – фактор Тейлора, $M = 3,06$; $\mu = 84$ ГПа; α_x – міцність перешкоді від VC, $\alpha_x \approx 0$, оскільки малий розмір VC [8]: 0,24 і 0,35 нм для флаксу $1,39 \times 10^{-7}$ дпа/с і флюенсів 0,026 і 0,19 дпа (рис. 2.5); α_y – міцність перешкоді від SIAC, $\alpha_y = 0,3$ в [122].

Згадані вище експериментальні значення $\Delta\sigma_y$ знаходяться близько до величин $\Delta\sigma_y$, розрахованих за рівнянням (2.11): 74,1 МПа і 101,2 МПа для флюенсу 0,026 і 0,19 дпа, відповідно.

2.4. Пояснення даних щодо ефекту флаксу для сплавів заліза за допомогою результатів моделювання методом КД

У [122, 123] встановлено, що індуковане опромінення підвищення межі текучості $\Delta\sigma$ сталей та модельних сплавів на основі заліза може бути представлена як лінійна комбінація вкладів від декільких елементів мікроструктури опроміненого матеріалу: VC, SIAC, преципітатів та збагачених фосфором границі зерен. Також у [122] показано, що найбільший вплив на індуковане опроміненням збільшення $\Delta\sigma$ мають SIAC, які формуються та еволюціонують завдяки опроміненню. Згідно до [113], при

збільшенні флаксу у діапазоні $(1,39 \times 10^{-10}; 1,39 \times 10^{-3})$ дпа/с $(9 \times 10^{14}; 9 \times 10^{21})$ н/м²/с для флюенсів 0,026 дпа $(1,7 \times 10^{19}$ н/м², $E > 1$ MeV) та 0,19 дпа $(1,3 \times 10^{20}$ н/м², $E > 1$ MeV) і при температурі опромінення 300 °С для режиму збільшення $(N_{\text{SIAC}} \times D_{\text{SIAC}})^{0.5}$, яке визнає збільшення $\Delta\sigma$. Протягом першого режиму (рівень флаксу нижче критичного $\varphi_t = 1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с $(1,1 \times 10^{14}$ н/м²/с) $\Delta\sigma$ швидко зростає, а протягом другого режиму зростає більш повільно. Незначне збільшення $\Delta\sigma$ з 196 до 211 МПа (таблиця 2.3) при зміні рівню флакса від $6,0 \times 10^{14}$ н/м²/с до $2,1 \times 10^{16}$ н/м²/с у [93] може бути пояснено тим, що вказані флакси відповідають другому режиму залежності $\Delta\sigma$ від флаксу (рис. 2.10). Теж саме пояснення може бути надано до даних [82, 94], де спостерігалась залежність механічних властивостей для флаксів $\varphi_1 = 4 \times 10^{14}$ н/м²/с та $\varphi_2 = 22 \times 10^{14}$ н/м²/с. Висновок [92] про те що низькі флакси збільшують зростання кластерів також відповідають рис. 2.5.

У [124] відмічено, що спостерігається суттєва різниця в кривих крихкості при низьких і високих флаксах опромінювання для флюенса до 20×10^{19} см⁻² і тенденція до співпадання при більш високому флюенсі нейтронів (рис. 2.13 – 2.18). У дослідженні [112] максимальний флюенс досягав $1,3 \times 10^{16}$ см⁻² і була встановлена певна дивергенція в кривій крихкості при низьких і високих флаксах опромінювання (рис. 2.10). Тому можна зробити висновок про те, що наші результати моделювання методом КД [124] при малих флаксах, а що великих флюенсів потребують подальших досліджень методом КД також як і для знайденного у [110] відсутності залежності від флаксу крихкість реакторних сплавів після відпалу при температурі 460 - 480 °С.

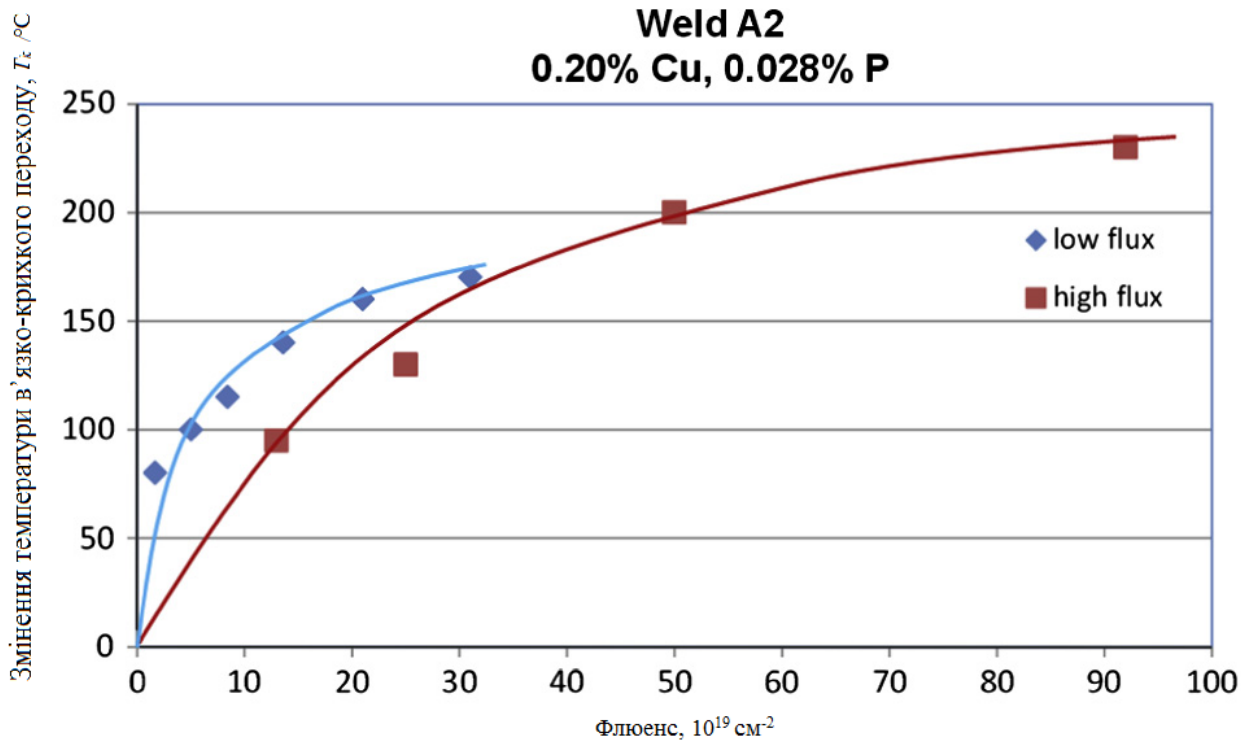


Рис. 2.13. Криві крижкості опромінення реакторної сталі Weld A2 при опромінення для низьких і високих флюенсах.

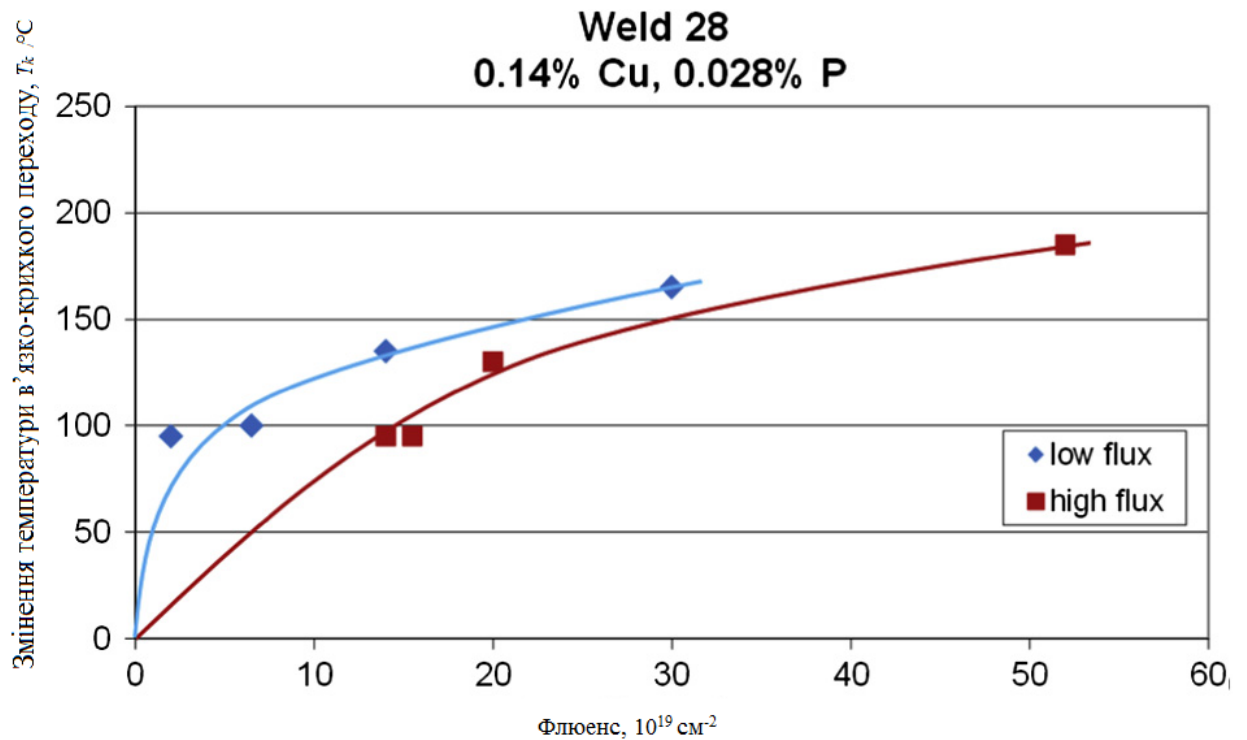


Рис. 2.14. Криві крижкості опромінення реакторної сталі Weld 28 при опромінення для низьких і високих флюенсах.

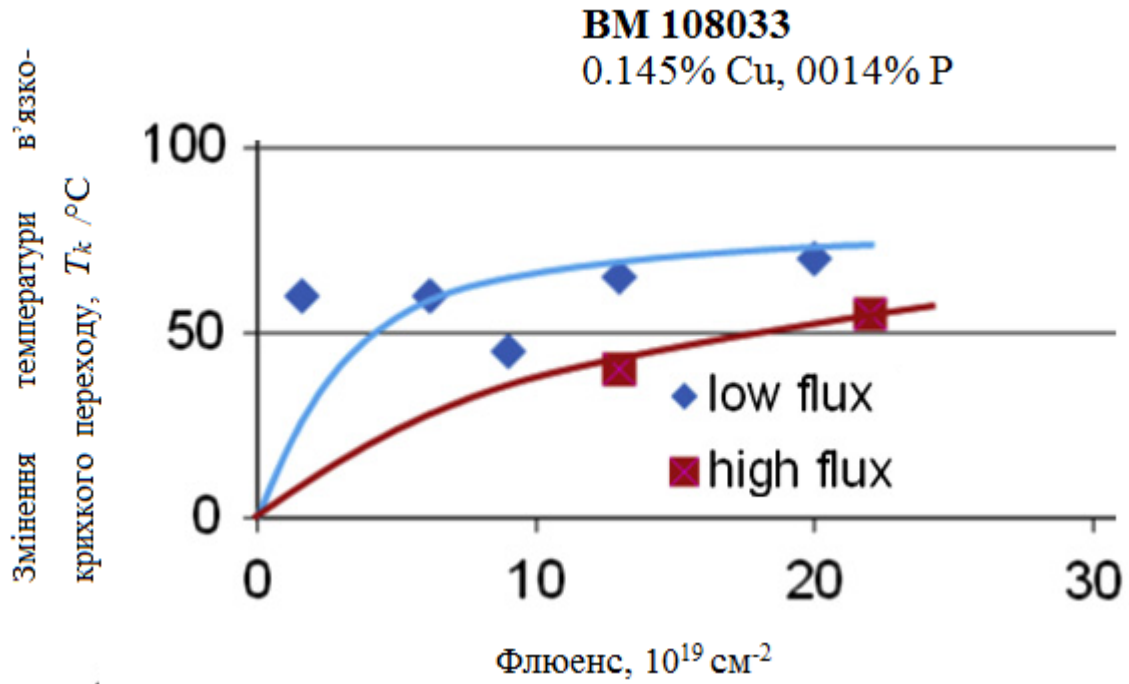


Рис. 2.15. Криві крижкості опромінення реакторної сталі BM 108033 при опромінення для низьких і високих флюенсах.

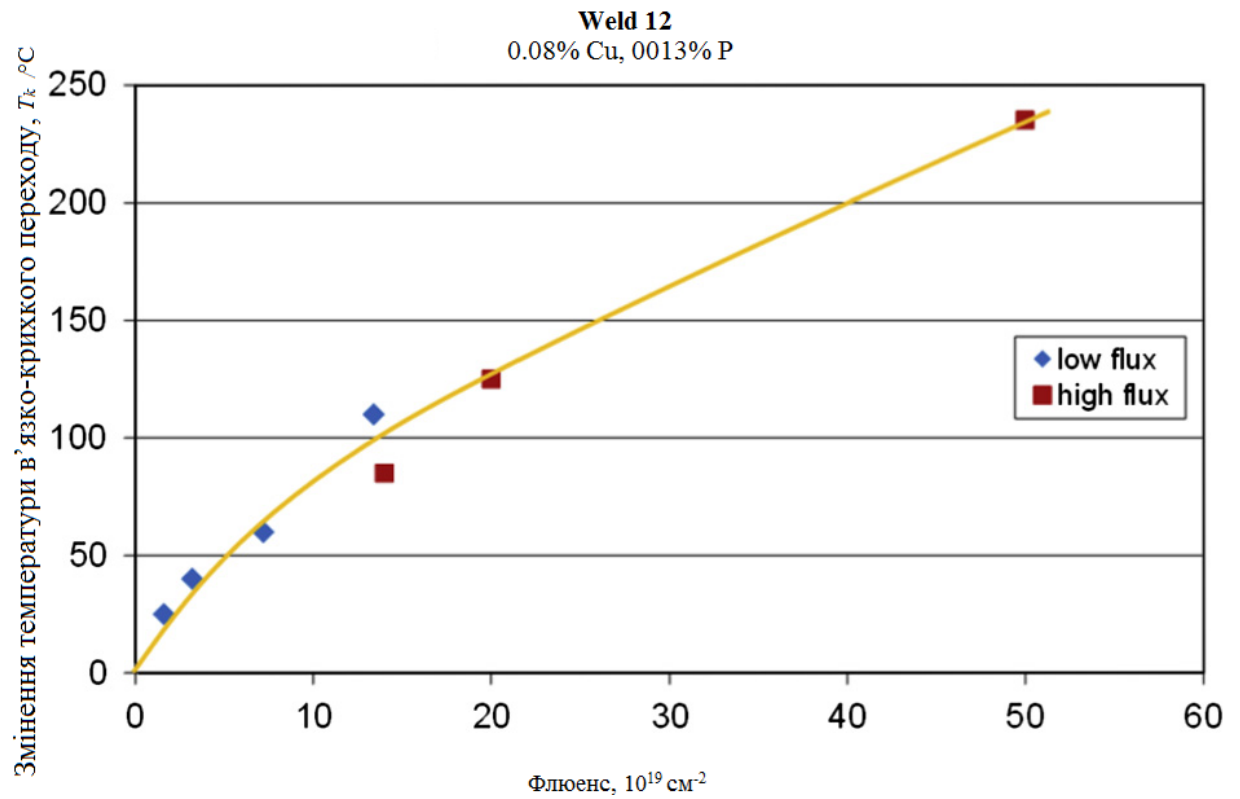


Рис. 2.16. Криві крижкості опромінення реакторної сталі Weld 12 при опромінення для низьких і високих флюенсах.

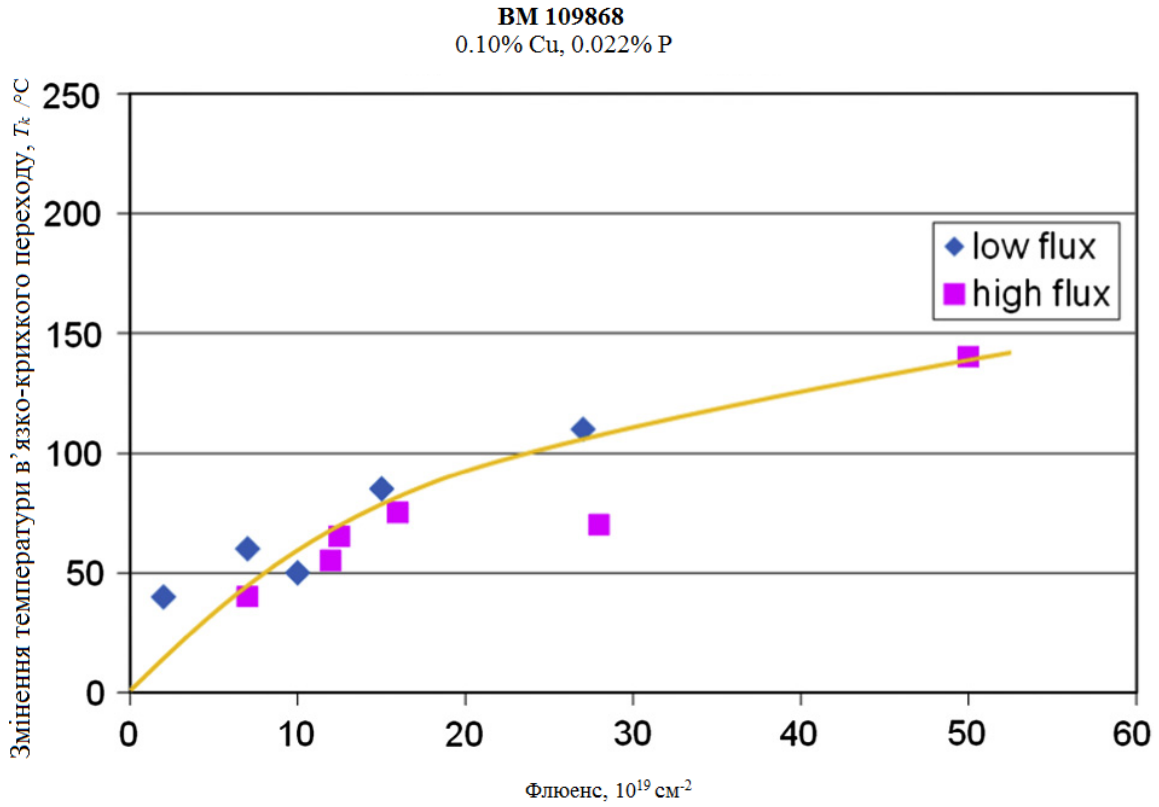


Рис. 2.17. Криві крихкості опромінення реакторної сталі BM 109868 при опромінення для низьких і високих флюенсах.

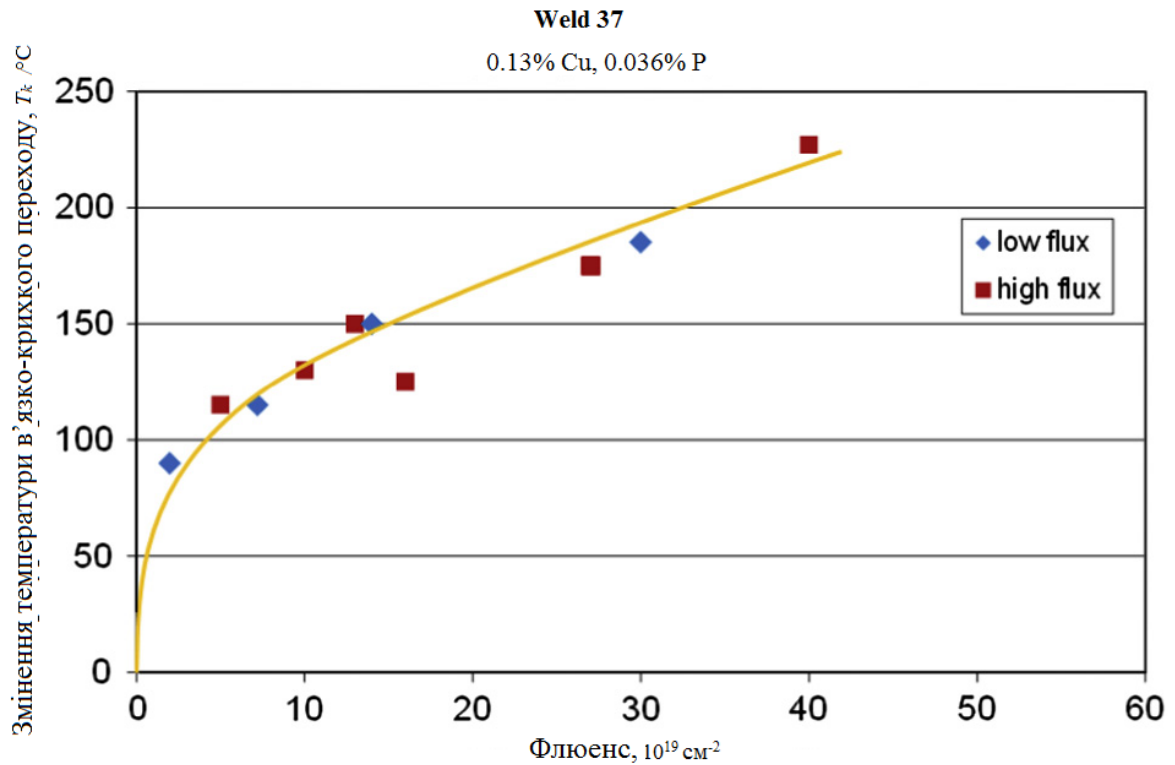


Рис. 2.18. Криві крихкості опромінення реакторної сталі Weld 37 при опромінення для низьких і високих флюенсах.

Висновки до розділу 2

1. Залежність від флаксу середнього розміру і чисельної щільності VC та SIAC у α -залізі, яке опромінено нейтронами, має три режими, які позначені двома критичними значеннями флаксу $6,9 \times 10^{-9}$ дпа/с і $1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с для обох флюенсів: 0,026 дпа та 0,19 дпа.

(а) При першому і третьому згаданих режимах спостерігаються близькі значення D_{SIAC} . Це вказує на доцільність проведення наступних експериментів з метою перевірки знайденої відповідності між даними D_{SIAC} , отриманими при опроміненні з високим флаксом (опромінення нейтронами у науково-дослідному реакторі або у випадку іонного опромінення) і при опроміненні з низьким флаксом в комерційному ядерному реакторі за умовою одного і того ж флюенсу.

(б) Залежність індукованого опроміненням зміцнення від флаксу має два режими з критичним значенням $1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с ($1,10 \times 10^{14}$ н/м²/с). Це значення менше критичного значення потоку, знайденого в [82, 92]. Останнє можна пояснити впливом хімічного складу на залежність зміцнення сталевих реакторів від флаксу. Досягнуто відповідність даних на рис. 2.10 при значеннях флаксу $1,39 \times 10^{-7}$ дпа/с до експериментального збільшення межі текучості [120] для флюенсу 0,026 і 0,19 дпа.

(в) Ідентичні критичні значення залежностей потоку величини і чисельної щільності VC та SIAC можна пояснити взаємозв'язком між положенням піку розподілу точкових кластерів після каскадної стадії і критичними розмірами VC і SIAC, які наведені в [46].

2. Результати моделювання залежності від флаксу мікроструктури заліза [113] узгоджується з експериментальними та теоретичними результатами досліджень матеріалу зварного шва у [86, 92, 94].

РОЗДІЛ 3

МОДЕЛЮВАННЯ МЕТОДОМ КЛАСТЕРНОЇ ДИНАМІКИ ВПЛИВУ ЗМІНИ ТЕМПЕРАТУРИ НА МІКРОСТРУКТУРУ ТА МЕХАНІЧНІ ВЛАСТИВОСТІ РЕАКТОРНИХ СТАЛЕЙ

Третій розділ присвячено дослідженню методом кластерної динаміки впливу зміни температури на структуру та механічні властивості корпусів атомного реактору. При цьому з початку наводиться дані про функціонування атомних станцій у штатному режимі, а потім – можливі аварійній ситуації, при яких змінюється температура. Надалі розраховуються відповідні зміни чисельної щільності та середнього розміру кластерів точкових дефектів (VC та SIAC) і оцінюються наслідки зміни температури для механічної стабільності реакторних сталей.

3.1 Загальні відомості про функціонування атомних станцій у штатному режимі [125]

В [125] наведено, що залежно від типу реактора на АЕС можуть бути 1, 2 або 3 контури роботи теплоносія. Відповідно розрізняють одноконтурні, двоконтурні і трьохконтурні ядерні енергетичні установки (ЯЕУ). Якщо контури теплоносія і робочого тіла збігаються, то таку ЯЕУ називають одноконтурною. В реакторі відбувається пароутворення. Надалі пар направляється на турбіну, де, розширюючись, виробляє роботу, яка перетворюється в генераторі в електроенергію. Після конденсації всього пара в конденсаторі конденсат насосом подається знову в реактор. Таким

чином, контур робочого тіла є одночасно контуром теплоносія, а іноді і сповільнювачем, і виявляється замкнутим. Реактор може працювати як з природною, так і з примусовою циркуляцією теплоносія по додатковому внутрішньому контуру реактора, на якому встановлений відповідний насос. В одноконтурних схемах все обладнання працює в радіаційно-активних умовах, що ускладнює його експлуатацію. Перевага таких схем – простота і економічність в порівнянні з двоконтурними ЯЕУ. Розглянемо технологічні схеми двоконтурного блоку на прикладі Рівненської АЕС. Енергоблоки Рівненської АЕС – двоконтурні ЯЕУ є реакторами корпусного типу на теплових нейтронах зі сповільнювачем і теплоносієм «вода під тиском», з турбінами на насиченому парі [125]. Перший контур є радіоактивним. До нього входить водо-водяний енергетичний реактор ВВЕР-1000 тепловою потужністю 3000 МВт і чотири циркуляційних петлі, за якими через активну зону за допомогою головних циркуляційних насосів прокачується теплоносій – вода під тиском 16 МПа. Температура води на вході в реактор приблизно дорівнює 289 °С, а на виході – 322 °С. Нагріта в реакторі вода прямує по чотирьом трубопроводах в парогенератори. Тиск і рівень теплоносія першого контуру підтримуються за допомогою парового компенсатора тиску. Другий контур – нерадіоактивний. Він складається з випарної і водоживильної установок, блокової знесольовальної установки (БОУ) і турбоагрегату електричною потужністю 1000 МВт. Теплоносій першого контуру охолоджується в парогенераторах, віддаючи при цьому тепло воді другого контуру. Насичена пара, вироблений в парогенераторах, з тиском 6,4 МПа і температурою 280 °С подається в збірний паропровід і направляється до турбоустановці, що приводить в обертання електрогенератор. Витрата пара від 4 парогенераторів на турбіну – приблизно 6000 т/ч. У другій контур також входять конденсатні насоси першого і другого ступенів, підігрівачі високого і низького тиску, девератор та турбоживильні насоси [126]. Трьохконтурну схему застосовують на АЕС з реакторами на швидких нейтронах з натрієвим

типу теплоносієм. Щоб виключити контакт радіоактивного натрію з водою, споруджують третій контур з нерадіоактивним натрієм. У нашому дослідженні буде проаналізовано до яких наслідків щодо зміни мікроструктури та механічної стабільності корпусу реакторів можуть привести зміни температури теплоносія.

3.2. Моделювання методом КД впливу зміни температури на кластери точкових дефектів у реакторних сталях

Методом КД визначалось, як змінюються середній розмір і чисельна щільність VC та SIAC для умов опромінювання [46,47], якщо температура реактора БР2 (м. Мол, Бельгія) зменшиться до 123 °С після 0,46, 0,96, 2,31, 6,94, 11,6, 12,2, 12,7 13,3 13,9, 14,5, 14,6, 14,8 та 15 діб опромінення при температурі 300 °С. Параметри матеріалу, які використовувались у розрахунках, наведені у таблиці 1.5 (розділ 1). Результати розрахунків представлені на рис. (3.1, 3.10) [127-130].

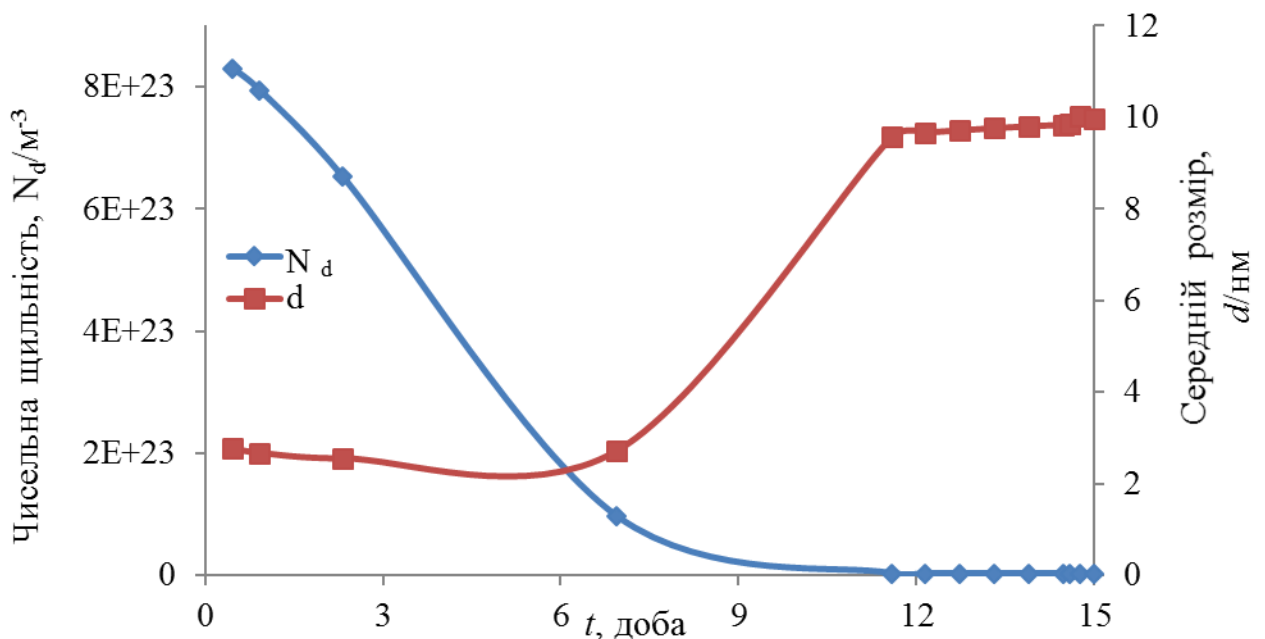


Рис. 3.1. Зміна чисельної щільності, N_d , та середнього розміру, d , SIAC в α – залізі у залежності від часу для нейтронного флаксу [46, 47], коли температура реактора була зменшена від 300 °С до 123 °С.

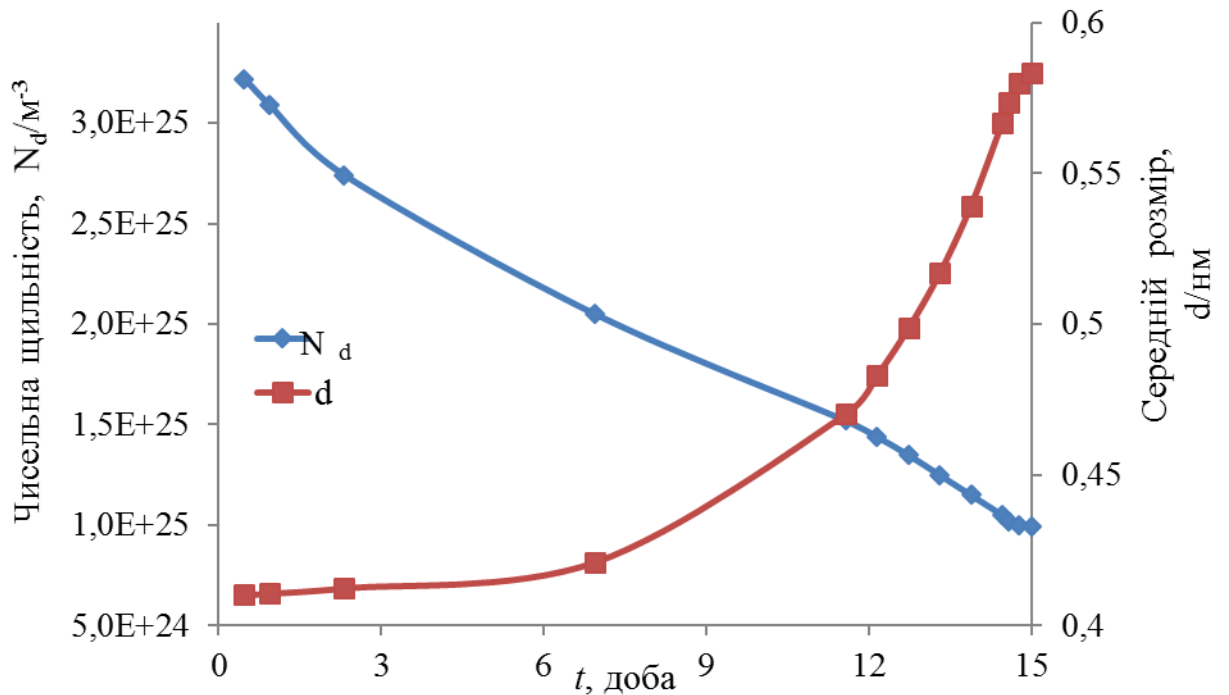


Рис. 3.2. Зміна чисельної щільності, N_d , та середнього розміру, d , VC в α – залізі у залежності від часу для нейтронного флаксу [46,47], коли температура реактора була зменшена від 300 °С до 123 °С.

Вкладом VC у зростання межі текучості α -заліза $\Delta\sigma$ будемо нехтувати відповідно до [122], оскільки середній розмір VC менший, ніж 0,6 нм (рис. 3.2). Отже величина $\Delta\sigma$ розраховувалась із параметрів SIAC за співвідношенням (2.11).

Значення $\Delta\sigma$ α -заліза в залежності від часу, коли температура реактора була зменшена від 300 °С до 123 °С, наведені на рис. 3.3 [127].

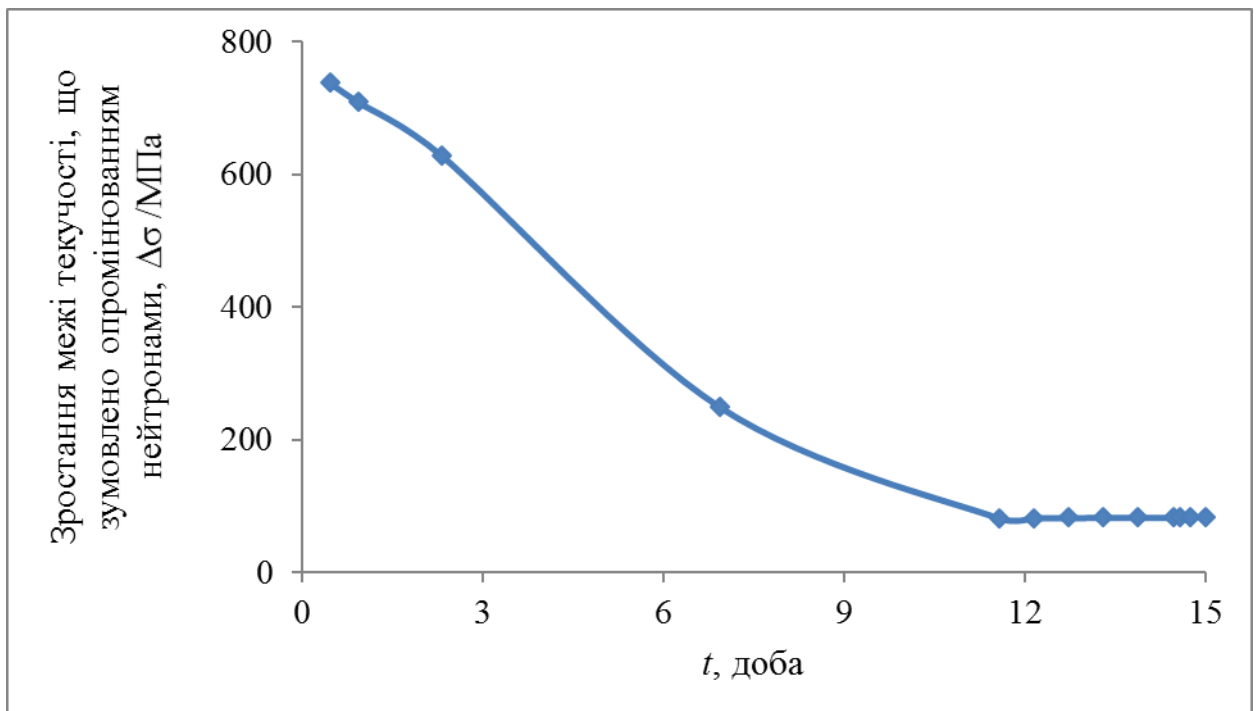


Рис. 3.3. Зміна межі текучості α – заліза, що зумовлена опромінюванням нейтронами з флаксом [46, 47], у залежності від часу, коли температура реактора була зменшена від 300 °С до 123 °С.

Методом КД було також досліджено вплив зміни температури на початку та наприкінці опромінювання у [47] на середній розмір, чисельну щільність кластерів та зростання $\Delta\sigma$ опромінюваного α -заліза. Експериментальні дані для калібровки КД були взяті з [46, 47].

При запуску атомного реактора температура його корпусу зростає від кімнатної (~ 288 К) до робочої (~ 573 К), а при його зупинці знижується до ~ 373 К досить повільно (рис. 3.4) для того, щоб уникнути появи термічних напружень, які можуть призвести до руйнування корпусу [123, 131].

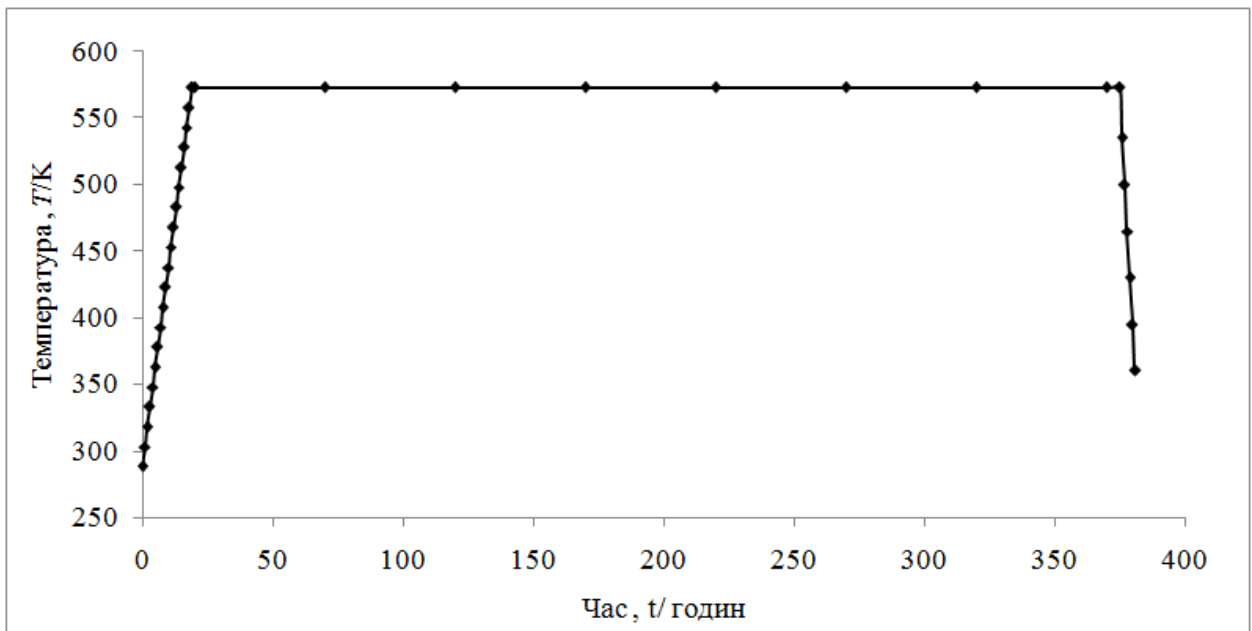


Рис. 3.4. Зміна температури корпусу атомного реакторі БР-2 [47] протягом опромінення.

Для промислового атомного реактора, який експлуатується понад 400 тисяч годин зазначена зміна температури не повинна суттєво впливати на механічні властивості корпусу, але для науково-дослідного реактора, де опромінювання триває усього декілька сотен годин, ефект, що обговорюється, заслуговує на увагу. На рисунках (3.5 – 3.10) представлені результати КД щодо залежності від часу опромінювання концентрації поодиноких міжвузельних атомів, поодиноких вакансій, середнього розміру та чисельної щільності VC і SIAC з урахуванням та без урахування зміни температури корпусу реактора [131].

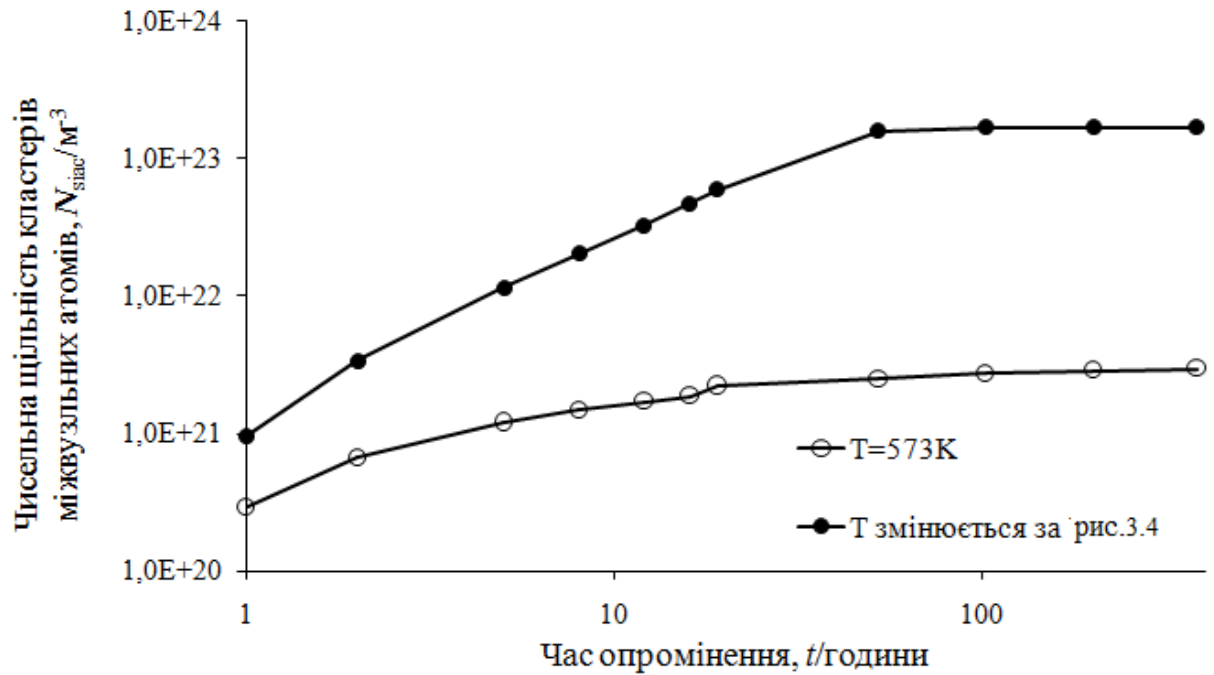


Рис. 3.5. Залежність від часу опромінення чисельної щільності SIAC, N_{SIAC} , яка розрахована у припущенні про постійну температуру реактора та з урахуванням зміни температури за рис. 3.4.

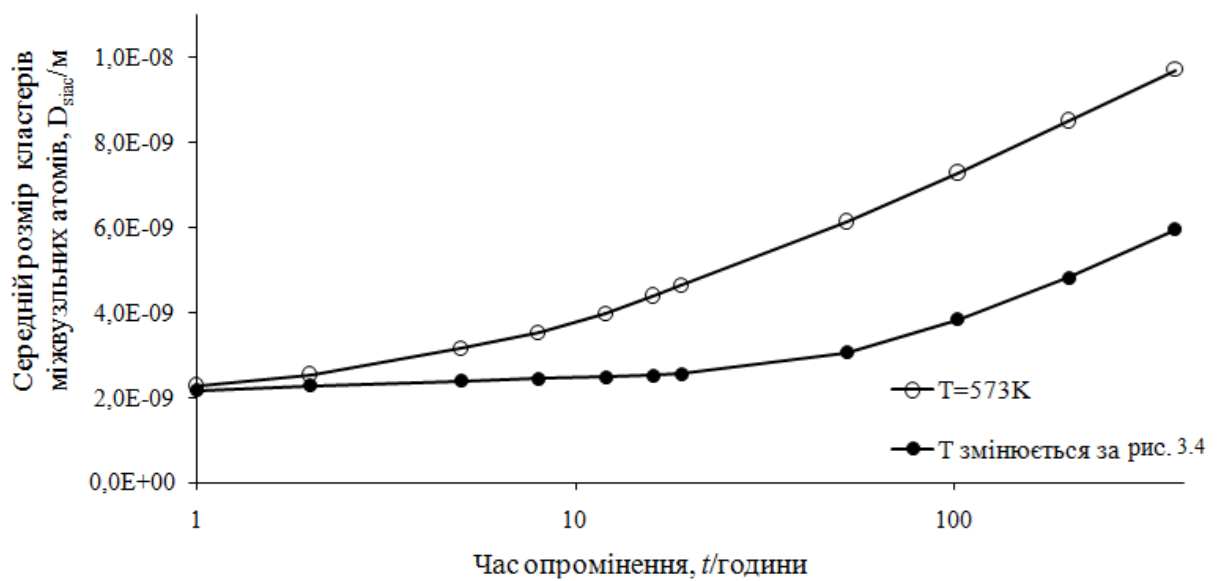


Рис. 3.6. Залежність від часу опромінення середнього розміру SIAC, D_{SIAC} , яка розрахована у припущенні про постійну температуру реактора та з урахуванням зміни температури за рис. 3.4.

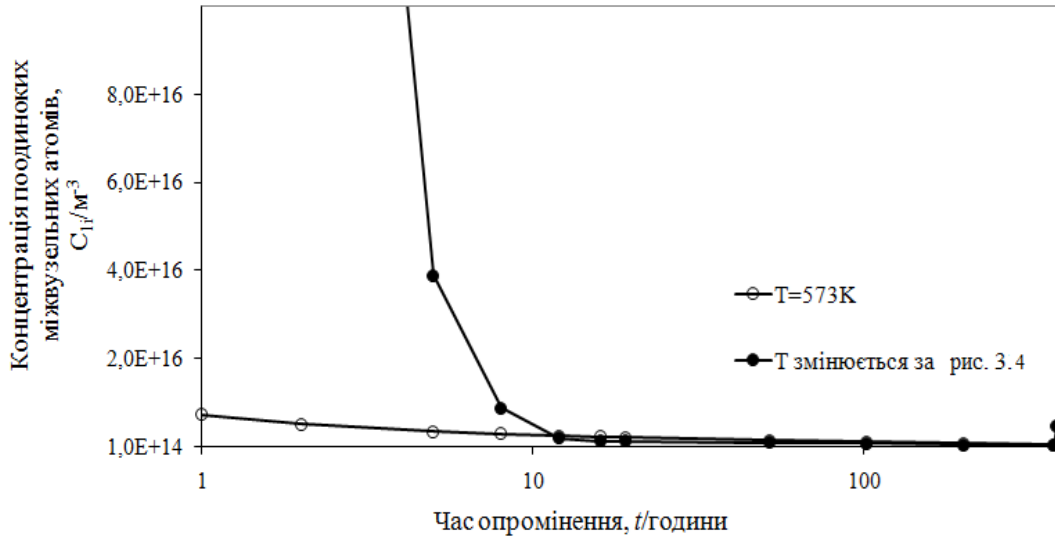


Рис. 3.7. Залежність від часу опромінення концентрації поодиноких міжвузельних атомів, C_{1i} , яка розрахована у припущенні про постійну температуру реактора та з урахуванням зміни температури за рис. 3.4.

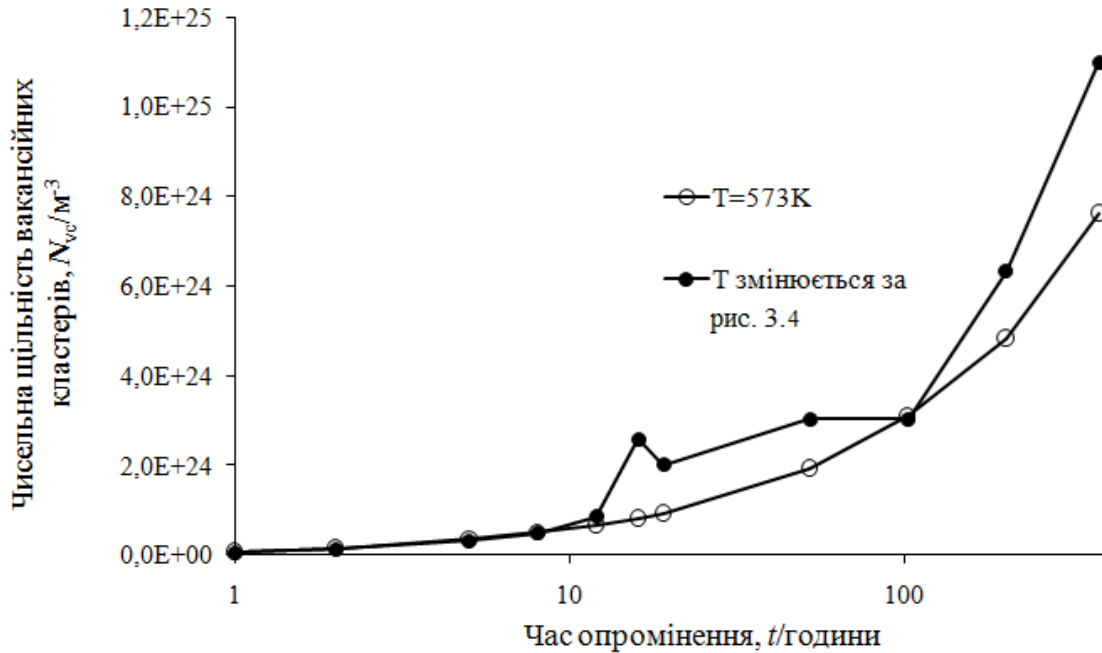


Рис. 3.8. Залежність від часу опромінення чисельної щільності вакансійних кластерів N_{vc} , яка розрахована у припущенні про постійну температуру реактора та з урахуванням зміни температури за рис. 3.4.

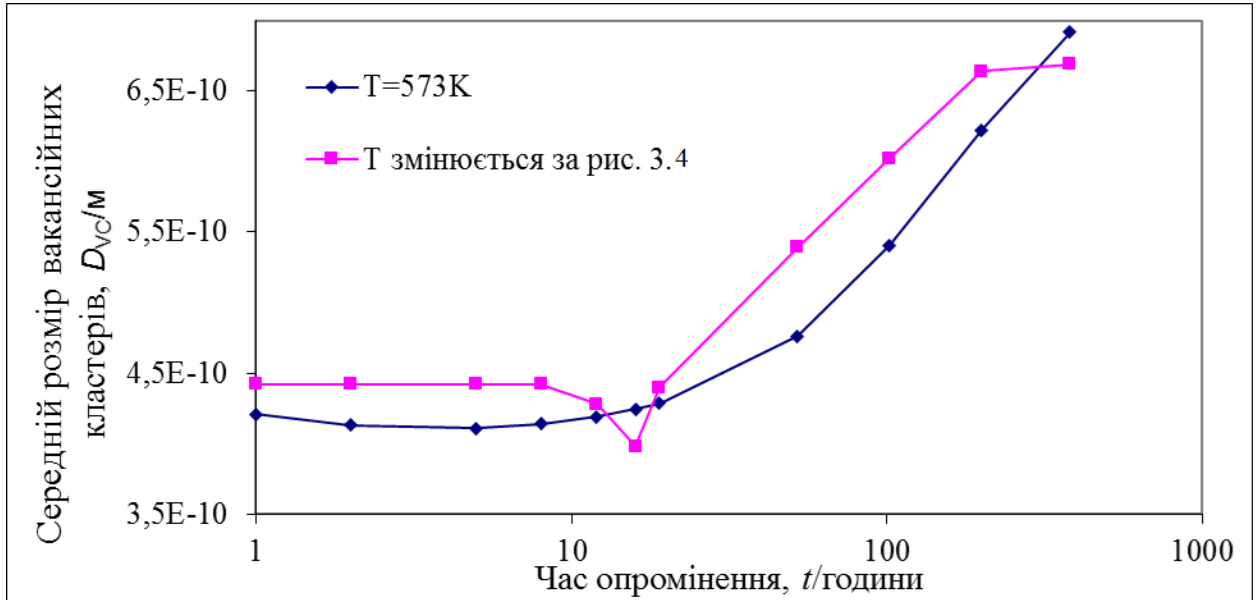


Рис. 3.9. Залежність від часу опромінення середнього розміру VC , D_{vc} , яка розрахована у припущенні про постійну температуру реактора та з урахуванням зміни температури за рис. 3.4.

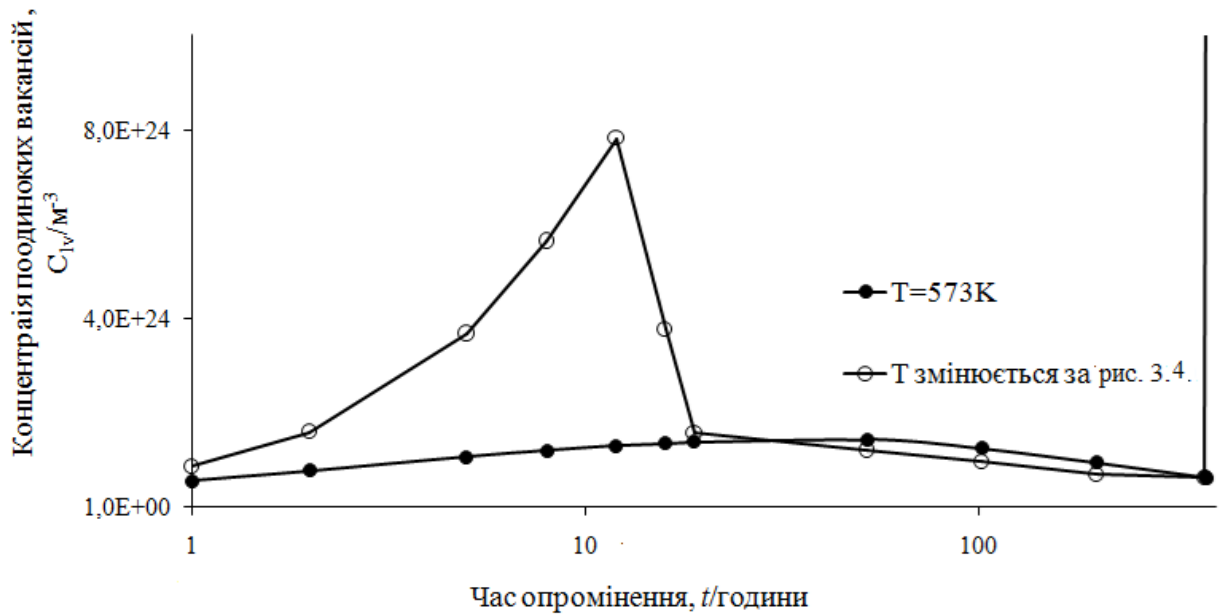


Рис. 3.10. Залежність від часу опромінення концентрації поодиноких вакансій, C_{1v} , яка розрахована у припущенні про постійну температуру реактора та з урахуванням зміни температури за рис. 3.4.

Згідно з рис. 3.5, чисельна щільність SIAC, N_{SIAC} , яка розрахована в припущенні постійної температури реактора, швидко зростає за 16 годин опромінення до $1,86 \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$, а надалі дуже повільно збільшується до $2,96 \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$ протягом подальшого опромінення в реакторі. N_{SIAC} , яка знайдена з урахуванням зміни температури реактора за рис. 3.4, майже для всього часу опромінення на два порядки перевищує N_{SIAC} , що розрахована в припущенні постійної температури, та мало змінюється з часом опромінення більше 52 годин [131]. З точки зору загальних понять фізичної кінетики [52], можна стверджувати, що сукупність кластерів SIAC у корпусі реактора переходить зі нуклеаційної стадії до стадії детерміністського зростання після опромінювання протягом 16 та 52 годин у припущенні постійної температури реактора та її зміни за рис. 3.4, відповідно [131]. Згідно з рис. 3.6, середній розмір SIAC, D_{SIAC} , який розраховано у припущенні постійної температури реактора, монотонно зростає під час опромінення від 2,3 до 9,7 нм; D_{SIAC} ,

який знайдений з урахуванням зміни температури реактора за рис. 3.4, зростає дуже повільно від 2 до 3,1 нм при опроміненні протягом 52 годин, а надалі швидше зростає до 6 нм протягом подальшого опромінення у реакторі [131]. Зазначена різниця залежності від часу опромінення чисельної щільності та середнього розміру SIAS для постійної та змінної за рис. 3.4 температури реактора може бути пояснена відповідною зміною коефіцієнта дифузії та коефіцієнта емісії міжвузельних атомів з температурою (рівняння 36, 39) та відповідає знайденої залежності концентрації поодиноких міжвузельних атомів, C_{1i} , від часу опромінення (рис. 3.7) [131].

На рис. 3.8 [131] зображена залежність від часу опромінення поодиноких вакансій, C_{1v} . При опроміненні протягом 52 годин спостерігається максимум C_{1v} для розрахунків у припущенні постійної температури реактора та при опроміненні протягом 12 годин – для розрахунків у припущенні зміни температури реактора за рис. 3.4. Формування такого максимуму може бути пояснено конкуренцією наступних процесів при опромінюванні:

- 1) зростання C_{1v} за рахунок безперервного процесу виробництва пар Френкеля та її зменшення за рахунок процесу рекомбінації (з часом процес рекомбінації стає несуттєвим внаслідок різкого падіння концентрації поодиноких міжвузельних атомів (рис. 3.7), а також емісії з VC);
- 2) абсорбція поодиноких вакансій дислокаційною сіткою та поверхнею зерен матеріалу, часова інтенсивність якої залежить тільки від коефіцієнту дифузії і C_{1v} та їх абсорбції VC та SIAS, часова інтенсивність якої залежить додатково від розміру та концентрації кластерів точкових дефектів. Зазначимо, що аналогічний максимум часової залежності C_{1v} був знайдений у роботі [42].

Згідно з рис. 3.9, чисельна щільність VC, N_{VC} , яка розрахована в припущенні постійної температури реактора, монотонно зростає до $7,63 \times 10^{24} \text{ м}^{-3}$ протягом опромінення у реакторі; N_{VC} , яка знайдена з урахуванням зміни

температури реактора за рис. 3.4, досягає локального максимуму при часі опромінення протягом 16 годин, практично не змінюється на часовому проміжку опромінення до 102 годин, та монотонно зростає до $1,1 \times 10^{25} \text{ м}^{-3}$ при подальшому опроміненні [131]. Стадія детерміністського зростання для спільноти VC не спостерігається (часова залежність N_{VC} не стає насиченою при опроміненні). Згідно з рис. 3.10, середній розмір VC, D_{VC} , який розраховано в припущенні постійної температури реактора, монотонно зростає під час опромінення від 0,42 до 0,69 нм; D_{VC} , який знайдено при припущенні про зміну температури за рис. 3.4, досягає мінімального значення при такому ж часі опромінення протягом 16 годин, при якому N_{VC} , має локальний максимум [131].

Маючи часову залежність середнього розміру та чисельної щільності кластерів точкових дефектів в опроміненому α -залізі в припущенні постійної температури реактора та її зміни за рис. 3.4, можливо розглянути відповідну залежність зміни межі текучості α -заліза, $\Delta\sigma$, що зазвичай розглядається як характеристика нейтронної крихкості. Внеском VC у величину $\Delta\sigma$ можна знехтувати в нашому дослідженні відповідно до [122], оскільки середній розмір VC менший, ніж 1 нм (рис. 3.9). Внесок SIAS до $\Delta\sigma$ є пропорційний до $\sqrt{N_{SIAS} \times D_{SIAS}}$ [119]. Згідно з рис. 3.11 [131] вказана величина для α -заліза лінійно зростає з часом опромінення при припущенні постійної температури корпусу реактора, що узгоджується з даними [132] щодо впливу точкових дефектів на нейтронну крихкість корпусу, та складним чином змінюється при припущенні про зміну температури за рис. 3.4. При цьому характер зазначеної залежності змінюється саме при опроміненні протягом 19 годин, коли температура корпусу реактора досягає робочої температури $\sim 573 \text{ К}$. Також слід вказати, що різниця в $\sqrt{N_{SIAS} \times D_{SIAS}}$ зростає з часом опромінення.

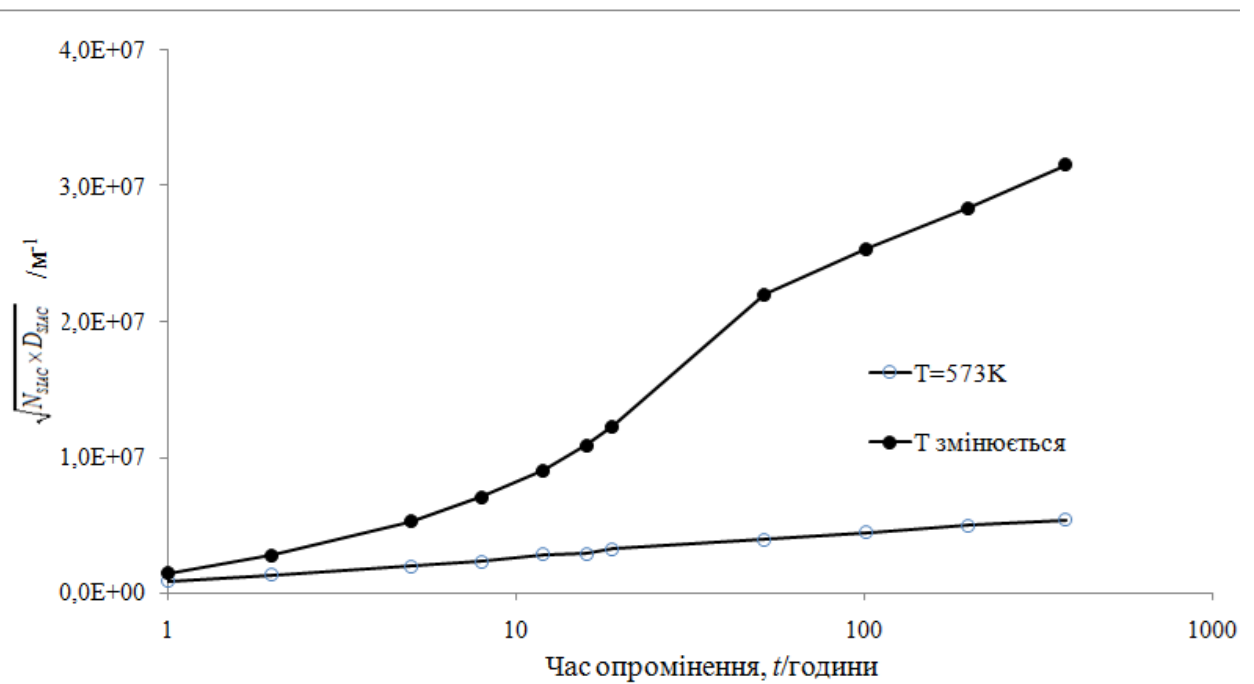


Рис. 3.11. Залежність від часу опромінення міри нейтронної крихкості $\sqrt{N_{SIAC} \times D_{SIAC}}$, яка розрахована у припущенні про постійну температуру реактора та з урахуванням зміни температури за рис. 3.4.

3.3. Врахування зміни температури реактора при калібруванні моделі у моделі кластерної динаміки

Припущення про постійну температуру ($T=573K$) корпусу реактора використовується в [51]. Однак, насправді, T збільшується від 300 К до 573 К протягом 19 годин і зменшується до T 373 К протягом 7 годин (рис. 3.4). Метою нашого дослідження в цьому параграфі є уточнення калібрування моделі КД [51] з урахуванням зазначеної зміни температури. Встановлено, що зниження E_{vm} з 1,3 еВ (таблиця 2.9) до 0,62 еВ у нашому моделюванні забезпечує кращу відповідність результатів КД для моделі з зміною

температури (рис. 3.4) до даних експериментальної електронної мікроскопії (ТЕМ) [133]: середній розмір і чисельна щільність SIAC становить (5 нм і $0,95 \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$) (7 нм і $1,30 \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$) і (10 нм і $4,0 \times 10^{21} \text{ м}^{-3}$) за 0,051, 0,10 і 0,19 дра, відповідно. Знайдене значення E_{vm} 0,62 еВ у цьому моделюванні КД також краще відповідає ступеню чистоти заліза в [113, 133] ($C < 30 \text{ ppm}$), ніж значення 1,3 еВ, знайденого в попередньому моделюванні КД [46].

Дозові залежності середнього розміру, D_{SIAC} та числової щільності, N_{SIAC} , розраховані за допомогою моделювання КД, а також дані ТЕМ [133] представлені на рисунках (рис. 3.12, 3.13) [134]. Моделювання КД для моделі з припущенням про постійну температуру RPV на МТР БР-2 призводить до оцінки на D_{SIAC} і N_{SIAC} у порівнянні як з даними ТЕМ, так і з моделюванням КД зі зміною температури згідно з рис. 3.4.

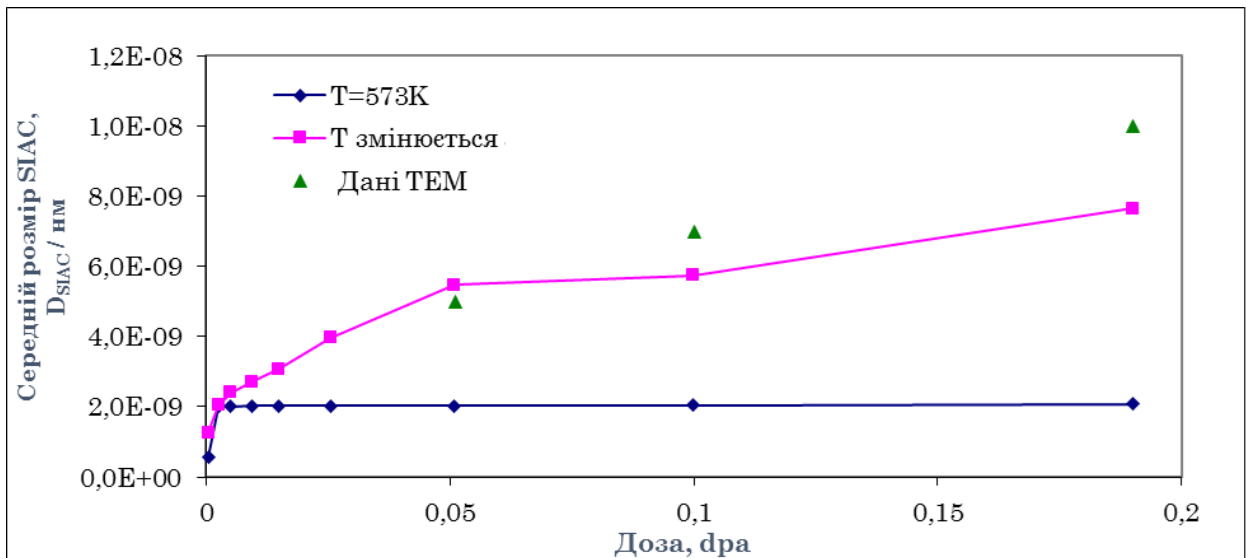


Рис 3.12. Дозова залежність середнього розміру SIAC, D_{SIAC} , розрахована згідно з припущенням про постійну температуру і з урахуванням зміни температури згідно рис. 3.4 у порівнянні з даними ТЕМ.

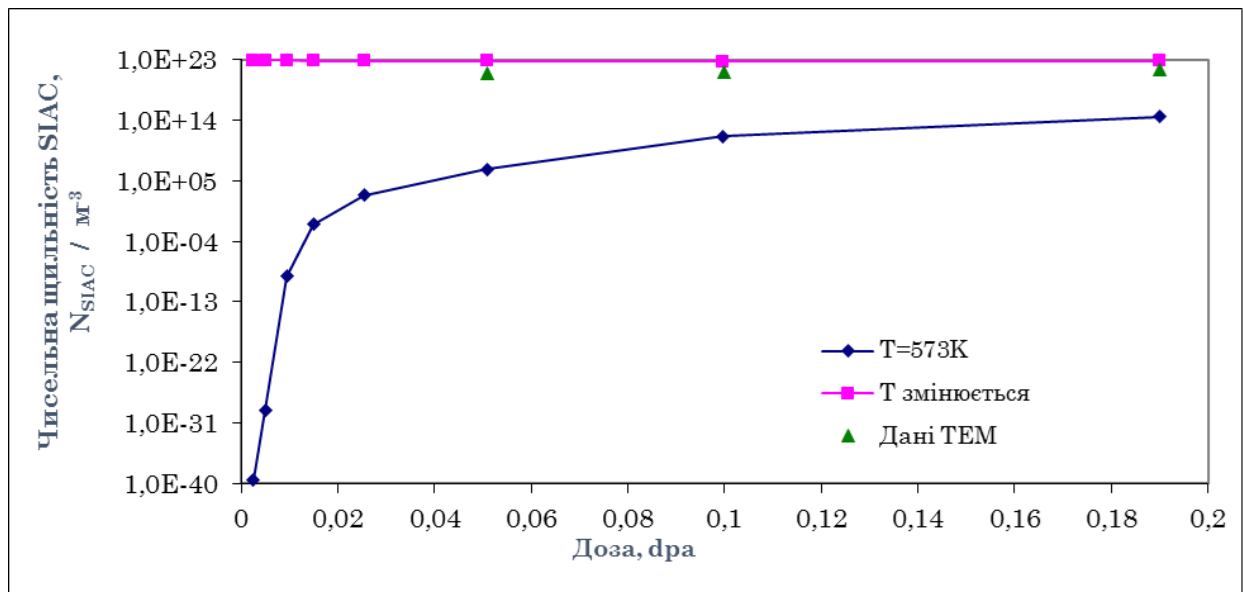


Рис. 3.13. Дозова залежність чисельної щільності SIAC, N_{SIAC} , розрахована за припущенням про постійну температуру та з урахуванням зміни температури згідно рис. 3.4 у порівнянні з даними TEM.

3.4. Оцінка зміни механічної стабільності реакторних сталей під нейтронним опроміненням, ініційованною зміною температури

У цьому параграфі використовується фізико-механічна модель міжзеренного руйнування [135], яке спричинено еволюцією пор, для оцінки механічної стабільності реакторних сталей. Критерій мікропластичного колапса (критерій міжзеренного руйнування) у [135] записується у вигляді:

$$\frac{dF_{eq}}{dk_p} = (1 - S_\Sigma) \frac{d\sigma_{eq}}{dk_p} - \sigma_{eq} \frac{dS_\Sigma}{dk_p} \quad (3.1)$$

де F_{eq} – інтенсивність напруги $F_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2} S_{ij} S_{ij}}$; $S_{ij} = F_{ij} - F_m \delta_{ij}$, $F_m = F_{ii} / 3$, S_Σ – відносна площа пор, тобто площа пор, віднесена на одиницю площі деформованої грані зерна, σ_{eq} – інтенсивність ефективних напружень

$\sigma_{eq} = \frac{F_{eq}}{1 - S_{\Sigma}}$, k_p – інтенсивність приросту пластичної деформації $k_p = \int d\varepsilon_{eq}^p$,

$$d\varepsilon_{eq}^p = d\varepsilon_{ii}^p / 3.$$

Величина відносної площини S_{Σ} пор знаходиться з рівняння (3.2):

$$S_{\Sigma} = \frac{S_{gb} d_g^2}{(d_g^3 + V_{gb} d_g^2)^{2/3}} = \frac{S_{gb}}{\left[1 + \frac{V_{gb}}{d_g}\right]^{2/3}} = C_S S_{gb} \quad (3.2)$$

де площа пор та об'єм на одиницю площі (S_{gb} та V_{gb}) визначаються формулами (3.3) та (3.4) відповідно:

$$S_{gb} = \pi \sum_{j=1}^M (R_j^M)^2 \rho_j \quad (3.3)$$

$$V_{gb} = \frac{4}{3} \pi h(\psi) \sum_{j=1}^M (R_j^M)^3 \rho_j \quad (3.4)$$

Тут R_j^M – радіус пори j -го типу тобто пори, яка зародилася на j -му часовому інтервалі навантаження, d_g – розмір зерна полікрісталла, ξ_{eq}^{sr} – швидкість непружної деформації; $\rho_j = \alpha_{Fj} (\xi_{eq}^{sr})_j \Delta t_j$ – кількість пор на одиницю площини, що народились на j -му етапі навантаження за час Δt_j ; $h(\psi) = (1 / (1 + \cos \psi) - 0,5 \cos \psi) \sin \psi$, ψ – кут між дотичної до поверхні пори та площиною границі зерна, на якій розміщена пора; α_{Fj} – швидкість народження пор при нейтронному опроміненні, яка визначається за рівнянням (3.5):

$$\alpha_{Fj} = \alpha_{int} \left((\sigma_o + \Delta \sigma) / \sigma_o \right)^m \quad (3.5)$$

де α_{int} – швидкість народження пор у відсутності нейтронного опромінення, $\sigma_o = 200$ МПа – межа текучості для комерційно α -заліза [136], m – константа матеріала.

Еволюція розміра пори розраховується з рівняння (3.6):

$$R_j^M = R_j^{M-1} + f_1\left(\frac{\Lambda_q}{R_j^{M-1}}, q_m\right) R_j^{M-1} (\xi_{eq})_j \Delta t_j \quad (3.6)$$

Тут $M > 1, R_j^1 = R_0$

$$f_1\left(\frac{\Lambda_q}{R}, q_m\right) = \frac{1}{h(\psi)} \left\{ \frac{1}{2} \left[\left(\frac{\Lambda_q}{R}\right)^3 f\left(\frac{\Lambda_q}{R}\right) - \frac{3}{4} \right] + 0,3(q_m)^r \exp(1,5q_m) \right\} \quad (3.7)$$

$$f\left(\frac{\Lambda}{R}\right) = \left[\ln \frac{R+\Lambda}{R} + \left(\frac{R}{R+\Lambda}\right)^2 \left(1 - \frac{1}{4} \left(\frac{R}{R+\Lambda}\right)^2\right) - \frac{3}{4} \right]^{-1};$$

$$\Lambda = \left(\frac{D_\Lambda \sigma}{\xi^{cp}}\right)^{1/3}; \quad D_\Lambda = \frac{\Omega D_b \delta_b}{kT_a}$$

де R – радіус пори, Λ – параметр дифузійного шляху визначає розмір зони, зростання якої обумовлене диффузією вакансій [137], Ω – атомний об'єм, δ_b – дифузійна товщина границі зерна, σ – тиск на метал, D_b – коефіцієнт зернограничної дифузії, T_a – абсолютна температура.

Еволюція радіуса пор для часу опромінення до двох діб наведена на рис. 3.14 для наступних значень параметрів: $D_v = 7,36 \times 10^{-20} \text{ м}^2/\text{с}$; $d_g = 2,5 \times 10^{-4} \text{ м}$; $\Omega = \Omega_{\text{Fe bcc}} = 1,779 \times 10^{-29} \text{ м}^3$; $q_m = 1$; $\sigma = 2 \times 10^7 \text{ Па}$; $\delta_b = 2,5 \times 10^{-6} \text{ м}$; $a_{\text{int}} = 10^6 \text{ с}^{-1} \text{ м}^{-2}$; $\xi_{\text{cr}} = 10^{-5}$; $\psi = 90^\circ$; $R_j^1 = R_0 = 5 \times 10^{-10} \text{ м}$; $m = 2$. Еволюція відносної площини пор у залізі під навантаженням і опроміненням за режимом [113] при зменшенні його температури від $300 \text{ }^\circ\text{C}$ до $123 \text{ }^\circ\text{C}$ у порівнянні з постійної температури реактора ($T = 300 \text{ }^\circ\text{C}$) та наведена на рис. 3.15 [138].

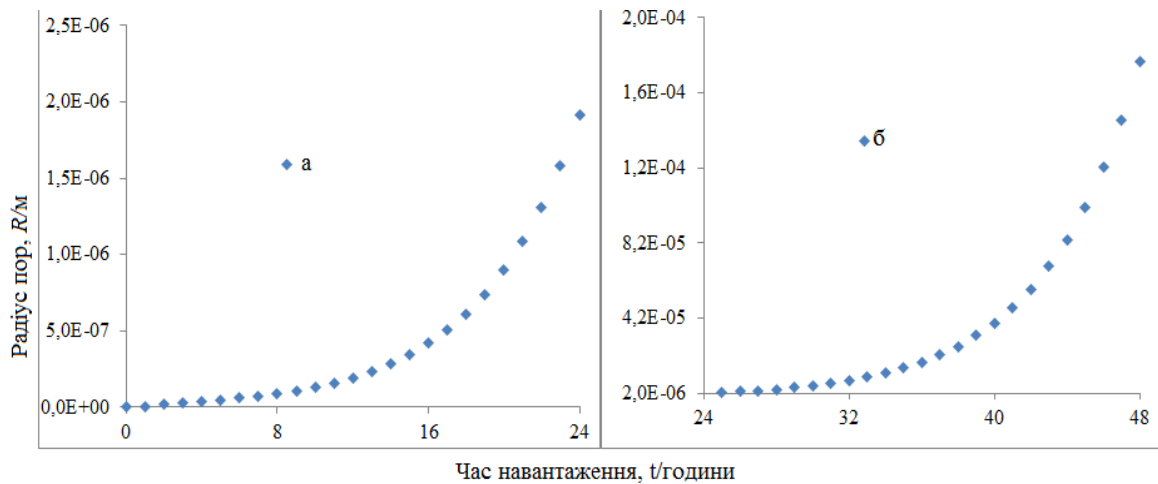


Рис. 3.14. Еволюція пор у залізі під навантаженням 40 МПа протягом двох діб (а – перша доба, б – друга доба).

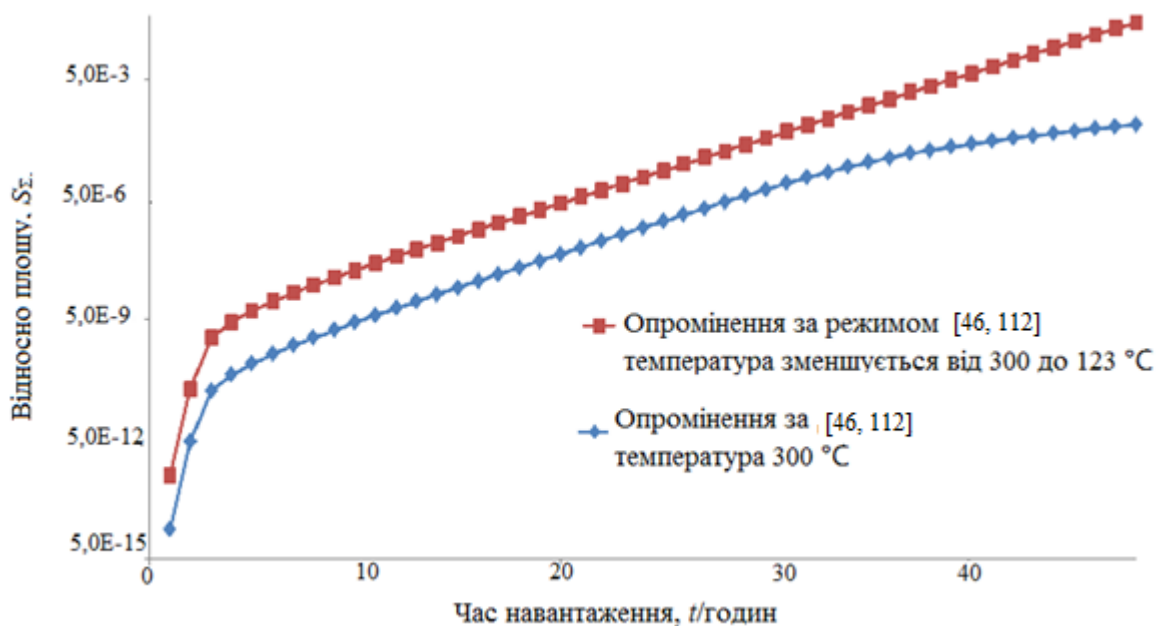


Рис. 3.15. Еволюція у часі відносної площі пор, S_r , у залізі під навантаженням, що опромінено за режимом [113] при температурі 300 °C та при зменшенні температурі від 300 до 123 °C.

Отож, відносна площа пор у залізі при внутрішньому тиску 20 МПа, яке має місце в атомних реакторів водо-водяного типу, та опроміненні з

нейтронним флаксом $1,39 \times 10^{-7}$ дпа/с (9×10^{17} н/м²/с, $E > 1$ MeV) [46], зростає за дві доби до 0,0004 та 0,14 при постійній температурі реактора 300 °С та при зменшенні температурі від 300 до 123 °С, відповідно [138]. Отож, матеріал реактора при зменшенні його температурі стає більш механічно нестабільним ніж у випадку постійної температурі реактора.

Висновки до розділу 3

1. Зменшення величини $\Delta\sigma$, яка є кількісною характеристикою явища нейтронної крихкості, приблизно на порядок при зниженні температури реактору з 300 °С до 123 °С, вказує на необхідність внесення поправки при використанні експериментальних даних про нейтронну крихкість зразків-свідків для оцінки крихкості корпусу атомного реактору.

2. Сукупність кластерів міжвузельних атомів переходить з нуклеаційної до детерміністської стадії за 16 та 52 години в припущенні щодо постійної температури корпусу реактора та про її зміну за рис. 3.14, відповідно.

3. Сукупність вакансійних кластерів не досягає детерміністської стадії для обох припущень щодо постійної та змінної температури .

4. Для обох припущень щодо часової залежності температури реактора спостерігається немонотонна залежність концентрації поодиноких вакансій від часу опромінення.

5. Зростання межі текучості α -заліза внаслідок опромінення відбувається пропорційно часу опромінення в припущенні щодо постійної температури реактора та більш складним чином у припущенні щодо зміни температури за рис. 3.4.

6. Різниця в нейтронній крихкості, яка знайдена в припущенні постійної та змінної температури, зростає з часом опромінення.

7. Врахування зміни температури реактора при дослідженні у [46] дозволяє при калібруванні моделі КД отримати значення енергії міграції вакансій у залізі, $E_{vm} = 0,62$ еВ, яке більш відповідає ступеню чистоти заліза у [46], а саме вмісту вуглеця менше ніж 30 артм, ніж значення $E_{vm} = 1.30$ еВ, яке отримано у [46] при припущенні про постійну температуру протягом нейтронного опромінення.

8. Показано можливість використання результатів КД про індуковане опромінення збільшення межі текучості для оцінки зміни механічної

стабільності реакторних матеріалів у рамках фізико-механічної моделі міжзеренного руйнування [135], яке спричинено еволюцією пор.

РОЗДІЛ 4

МОДЕЛЮВАННЯ МЕТОДОМ КЛАСТЕРНОЇ ДИНАМІКИ ЗМІНИ МІКРОСТРУКТУРИ ВОЛЬФРАМУ У ПРОЦЕСІ ІЗОХРОННОГО ВІДПАЛУ

Четвертий розділ присвячено дослідженню методом кластерної динаміки впливу зміни мікроструктури вольфраму у процесі ізохронного відпалу. Вольфрам і його сплави розглядаються у сучасному матеріалознавстві як перспективні конструкційні матеріали для реакторів термоядерного синтезу. К цьому часу виконана велика низка досліджень щодо мікроструктур та властивостей вольфраму. Але дотепер, актуальним залишається питання про моделювання впливу вуглеця на кінетику процесів у вольфрамі також як і визначення розмірності дифузії міжвузлей у ньому. У цьому розділі будуть надані результати спроби прояснити зазначені проблеми методом кластерної динаміки.

4.1. Загальні відомості про поведінку вольфраму в експлуатаційних умовах термоядерного реактора

Оскільки вольфрам має високу температуру плавлення і високу стійкість до енергетичних частинок, він вважається кандидатом для конструкційних термоядерних реакторів з магнітним утриманням плазми [139-142]. На конструкційні властивості реактору синтеза будуть впливати не тільки нейтрони з енергією 14 MeV з термоядерної плазми, але також і нейтрони з низької енергією, уповільнені і розсіяні назад від поверхонь, охолоджуючих або екрануючих компонентів термоядерного реактора.

Для дивертора та першої стінки ректора необхідний радіаційно-стійкий матеріал на основі вольфраму, який зазнає значної деградації властивостей, зумовленої нейтронним опроміненням. Для розробки такого матеріалу та прогнозування його поведінки компонента матеріалу при нейтронному опроміненні з дозою до 100 дпа та температурі 1000 °С потрібно базове розуміння радіаційних ефектів у вольфрамі, яке можна отримати завдяки аналізу процесів відновлення опроміненого матеріалу.

4.2. Інтерпретація етапів відновлення у вольфрамі

Як відомо з [143] вольфрам відноситься до тугоплавків металів. Методами формування дефектів у тугоплавких металах можуть бути опромінення, холодна обробка і закалка. Електронне опромінення та закалка є найважливішими для виявлення властивостей елементарних дефектів. Експериментальні методи їх дослідження - вимірювання електричного опору, накопиченої енергії, зміни розмірності та параметру решітки; використання польової іонної мікроскопії та спостереження за видимими кластерами дефектів методом просвічуючої електронної мікроскопії. Інтерпретація етапів відновлення тугоплавких металів дозволяє стверджувати, що у них існують специфічні конфігурації дефектів. Представлені механізми відновлення базуються в основному на експериментальних дослідженнях [144-146]. Метали VI групи (молібден та вольфрам) мають дуже схожу поведінку відновлення, яка відрізняється від поведінки металів групи V (ніобія та танталу).

Стадії відновлення вольфраму та молібдену зображені на рис.4.1 та рис. 4.2 [144-146].

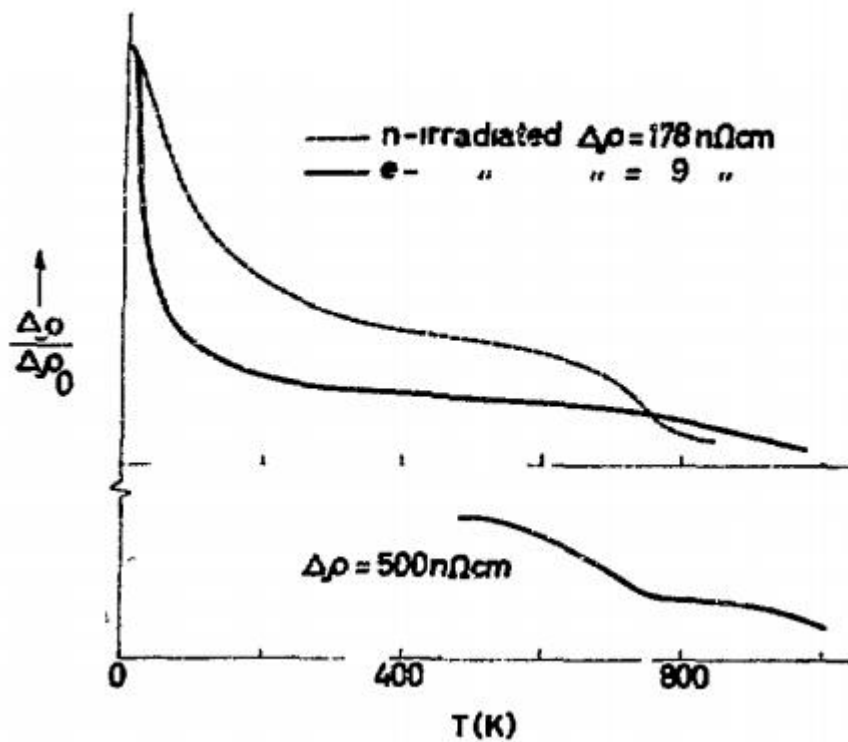


Рис. 4.1. Відновлення вольфраму після нейтронного опромінення [144], електронного опромінення [145] та холодної обробки [146].

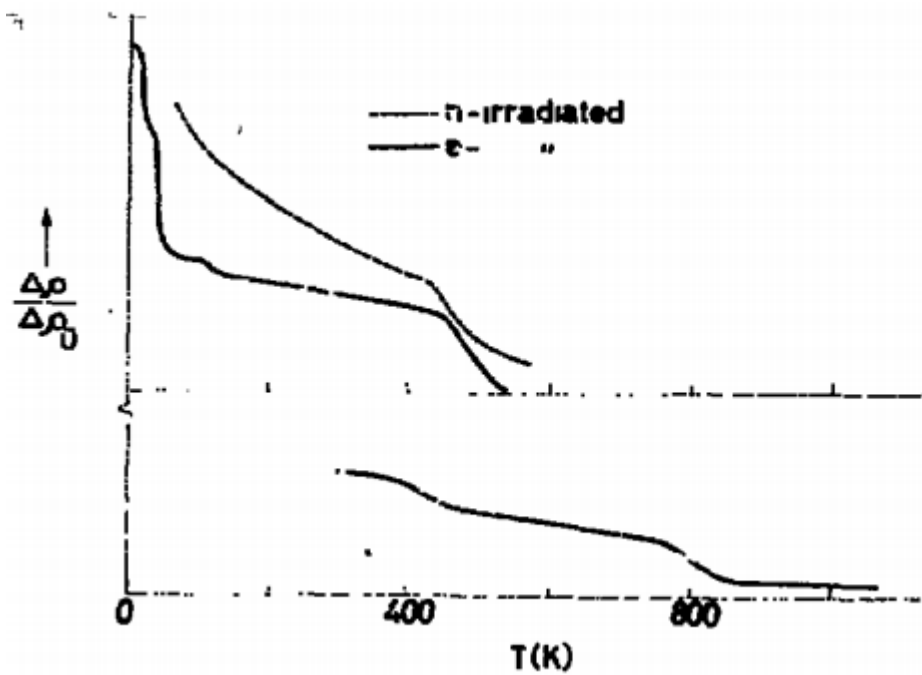


Рис. 4.2. Відновлення молібдену після нейтронного та електронного опромінення [147, 148] та холодної обробки [149].

У таблиці 4.1 узагальнено запропоновані інтерпретації етапів III до VI. Автори, які цитуються в таблиці 4.1 [150, 151, 152], погоджуються з тим, що міграція вакансій повинна бути пов'язана з IV стадією відновлення. Однак, останні результати закалки вольфраму та молібдену викликають певні сумніви щодо цієї інтерпретації. В [153] вдалося закалити вольфрам у рідкому металі та досліджувати відновлення загартованих дефектів. Немає сумніву, що в [153] спостерігалися однотипні дефекти. До теперішнього часу існує значна невизначеність щодо ізохронного етапу відновлення застиглих дефектів.

Таблиця 4. 1

Запропоновані інтерпретації стадій відновлення III - V в молібдені та вольфрамі

Стадія	[150]	[151]	[152]
III	Міграція внутрішньоточкового дефекту	Міграція ді-вакансій	Розпад міжвузельних комплексів та міграція міжвузельних домішкових комплексів
IV	Міграція вакансій		
V	Розпад вакансійних комплексів		

Визначено, що енергія активації III стадії у вольфрамі становить від 1,5 до 1,9 еВ [146]. Звідси випливає, що число стрибків при відпалі в загартованих зразках становить порядку 10^5 - 10^6 за 1 секунду. Ця кількість стрибків видається розумною, якщо процес відновлення визначає формування невеликих кластерів. В роботі [154] повідомили, що чисельна

щільність дислокацій у вольфрамі після закалки дорівнює 10^8 см⁻². Для цієї числової щільності поглиначів теорія дифузії дає 10^8 стрибків за 1 секунду для статистичного розподілу циліндричних поглиначів. Слід згадати, що при низькій концентрації точкових дефектів дислокації є домінуючими поглиначами для мігруючих дефектів.

Зазвичай передбачається, що у вольфрамі вільна міграція дефектів відбувається при температурі близько 70 К. Але щодо результатів польової іонної мікроскопії [155] слід зробити висновок, що вільна міграція відбувається поблизу 30 К. При зазначеній температурі відбувається перший підетап. Міграція збільшується за рахунок попередньої закалки в експерименті [145]. У статті [156] така поведінка розглядається як вказівка на конкретну конфігурацію дефекту. Очевидно, що питання вільної міграції при низьких температурах та природа підетапів досі відкриті для обговорення. Кожна модель має багато "регульованих" параметрів, але у кожній моделі стадія відновлення III відіграє центральну роль. У вольфрамі ця стадія може бути введена значно помітніше, ніж у будь-якому іншому матеріалі, тому що у вольфрамі можна легко накопичити 1000 дефектів на мільйон атомів на III стадії. Існує два можливих варіанта інтерпретації явищ на цієї стадії відновлення: вона пов'язана або з дефектом міжвузельного типу або з дефектом вакансійного типу. Процес відновлення на цій стадії може бути описаним як реакція, контрольована бімолекулярною дифузією [157]. Поглиначі в моделі – вакансії або міжвузельні атоми. Також потрібне припущення, яке пояснює, як можна зберегти велике перевищення вакансій для III стадії. Таким припущенням могло б стати припущення про утворення димерів міжвузлів та/або комплексів міжвузля – домішка. Мозера вводить кілька параметрів, щоб пояснити деякі особливості кривих відпалу в різних матеріалах [158]. Припущення про те, що невеликі кластери є поглиначами дефектів на III стадії, отримало певну підтримку у експерименті [159]. Це узгоджується з електронномікроскопічними спостереженнями малих

дефектних скупчень [160] та з впливом домішок на їх кількість. В останні роки вивчення поведінки відновлення опроміненних та закалених ОЦК металів були предметом інтенсивних досліджень [161, 162]. Значна частина суперечок зосереджується на питанні про конфігурацію SIA в опроміненних металах. Ця суперечка бере свій початок з 1959 року, коли Корбетт, Сміт і Уокер (Corbett, Smith та Walker, CSW) у [163] запропонували наступні моделі відновлення для опроміненої електронами міді при 4,2 К: модель (1), згідно до якої відновлювальні підетапи I_A , I_B і I_C відбуваються через анігіляцію близьких пар Френкеля; модель (2), згідно до якої підетапи відновлення I_D і I_E викликані кореляваною і некорельованою довгою міграцією швидкої SIA, відповідно; модель (3), згідно до якої стадія відновлення III викликана міграцією вакансій. До цього в 1958 р. Зеєгер стверджував, що все відновлення на I етапі відбуваються через анігіляцію близької пари Френкеля і що етап III спричинений міграцією на далекій відстані повільної SIA. Модель, що використовує одне SIA [163], по суті, виходить з CSW-моделі, тоді як модель, що використовує димер SIA [164] вимагає існування швидкого одновимірного руху SIA на I етапі, який є метастабільним і термічно перетворюється до стабільної повільної тривимірної SIA (димер SIA поділяється на поодинокі SIA), які згодом стають мобільними на III етапі.

4.3. Вивчення міграції міжвузельних атомів у вольфрамі.

У металах з ОЦК і ГЦК структурами, дві найбільш вірогідні структури SIA є «гантеля», де один вузол решітки займають два атома, і "краудіон", де механічне напруження виникає через введення додаткового атома [165]. Цікаво, що різниця в структурах такого типу SIA призводить до відмінностей у способі міграції SIA, оскільки структура типу гантелі відповідає тривимірній міграції, тоді як краудіон-структура – одновимірної міграції

вздовж своєї осі. Ця різниця в вимірності міграції SIA (3D або 1D) сильно впливає на швидкість реакції між мобільним SIA і нерухомим дефектом [166–171] а також між двома SIA [172, 173]. Менша розмірність міграції в основному призводить до більш високих швидкостей реакції. Тому структурна та міграційна розмірність руху SIA є ключовим фактором у процесах, де створюється SIA, таких як мікроструктурна еволюція в опроміненних матеріалах при ядерному поділу та синтезу [174]. Починаючи з 1950-х років було проведено багато досліджень структури SIA в металах ОЦК та ГЦК в низькотемпературному діапазоні нижче початку III стадії під час процесів відновлення зразків, опроміненних при надзвичайно низьких температурах [175, 176]. Для ОЦК металів був проведений рентгенівський структурний аналіз та вимірювання макроскопічних властивостей для заліза (Fe) та молібдену (Mo). Структура SIA в цих металах при низьких температурах визначалася як $\langle 011 \rangle$ гантелі [175, 176]. У вольфрамі (W) структуру SIA при низьких температурах також визначали як $\langle 011 \rangle$ гантеля за результатами вимірювань внутрішнього тертя [177, 178]. Уявлення про SIA-гантелі в ОЦК металах – широко прийняті. Однак, суперечливі результати були отримані за останнім часом при моделюванні у рамках теорії функціональної щільності, де було показано, що найбільш стабільні структури SIA є $\langle 011 \rangle$ гантелями для Fe [29, 179], але для інших металів ОЦК, включаючи Mo і W, це $\langle 111 \rangle$ краудіони [178, 180].

Метою досліджень [181] було експериментально визначення розмірності міграції SIA в W з високою чистотою та інших важливих параметрів, що пов'язані з динамікою SIA – енергії активації для міграції SIA, E_m^I , і радіусів реакції SIA та вакансії, реакції SIA та інший SIA, а також реакції SIA та атом домішки r_{IV} , r_{II} , r_{IX} , відповідно. Одним із найнадійніших експериментальних методів прямого виявлення динаміки дефектів усередині матеріалу є метод ТЕМ [182, 183]. Динаміку різних точкових дефектів було

безпосередньо виявлено, коли швидкість їх міграції була надзвичайно повільною і зразки у вигляді вуглецевих нанотрубок були надзвичайно тонкими [183]. На рис. 4.3 наведено схему дослідів [183], де вивчалась динамічна поведінка швидко мігруючих поодиноких SIA.

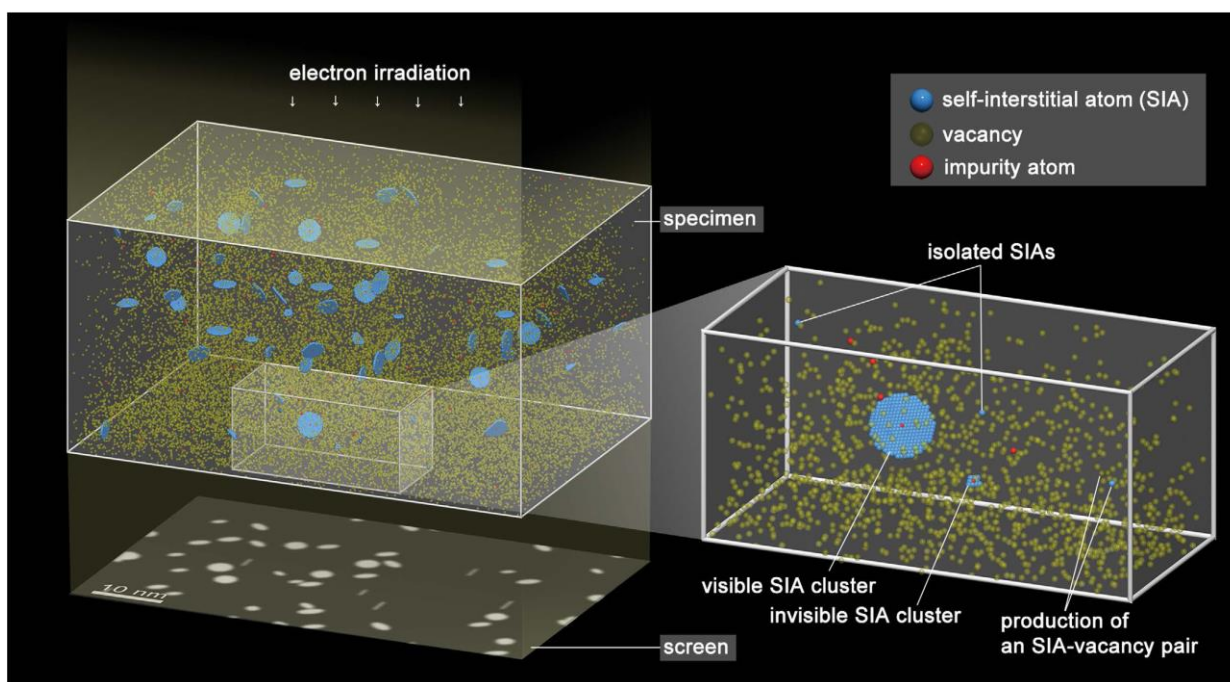


Рис. 4.3. Схематичний вигляд дослідження [183].

Спостерігалось як окремі SIA мігрують та реагують з іншими об'єктами: нерухомими вакансіями, що призводять до взаємного знищення; домішками атомів, що призводить до формування SIA – домішкових комплексів у вигляді гетерогенне ядро SIA – кластер; іншими SIA, що призводить до створення кластерів SIA. Процес формування нанорозмірних кластерів SIA, які можна безпосередньо зобразити за допомогою TEM, відображає численні реакції за участю SIA, швидкість яких сильно залежить від розмірності міграції (3D або 1D), частоти міграції та радіусу реакції з іншими об'єктами. У [181] динаміка SIA, невидимих у TEM, була отримана під час безпосереднього спостереження за процесом формування TEM – видимих кластерів SIA. Мікроструктура, що відображається в зразку – це

знімок (час опромінення: 331,14 с), отриманий методом Монте-Карло реакцій SIA для параметрів динаміки SIA, що відтворює експериментальні дані. У [181] пропонують альтернативний метод виявлення динаміки швидко мігруючих SIA, при якому HVEM ефективно поєднується з комп'ютерним моделюванням. Під дією високоенергетичного електронного опромінення тільки ізольовані SIA і вакансії утворюються практично просторово однорідно в процесі первинного ушкодження. Процес кластеризації SIA, який може безпосередньо спостерігатися за допомогою HVEM, повинен відображати динаміку SIA, включаючи вимір міграції. В дослідженні [181] визначили параметри, які стосуються динаміки SIA, із процесу формування кластерів SIA у формі дислокаційних петель [174], виконавши як експерименти HVEM, так і об'єктно-кінетичне моделювання методом Монте-Карло (ОКМС) [184-187] численних реакцій точкових дефектів і дислокаційних петель.

У порівняно давніх моделюваннях було знайдено стабільну структуру SIA у формі $\langle 011 \rangle$ гантелі, і було оцінено E_m^I як 0,37 еВ у [188, 189] та 0,54 еВ у [190], значення яких суттєво перевищують значення $E_m^I \leq 0,020$ еВ, отриманих у [181]. Однак, в останніх дослідженнях методом MD, використовуючи нові міжатомні потенціали, було знайдено, що стабільною структурою SIA є $\langle 111 \rangle$ краудіон, а оцінені значення E_m^I коливались від 0,009 еВ [191] до 0,061 еВ [192]. Нижчі значення E_m^I були отримані з використанням комбінації моделей теорії функціональної щільності та моделі Френкеля-Конторова (0,0026 еВ) [193] та у моделюванні методом молекулярної статистики (0,002 еВ) [194]. З вимірювань електричного опору було знайдено значення $E_m^I = 0,054$ еВ [195], а зі спостереження поверхневих SIA методом польового іонного зондування – 0,085 еВ [196], що вище, ніж останні значення E_m^I , визначені у моделюваннях [191, 193, 194]. Отож, різноманіття результатів щодо

розмірності руху та енергії міграції SIA у вольфрамі вказує на доцільність проведення додаткових досліджень, зокрема методом кластерної динаміки.

4.4. Моделювання методом кластерної динаміки процесів відновлення вольфраму після його опромінення електронами.

У багатьох дослідженнях вивчалися процеси відновлення ушкодженого вольфраму шляхом ізохронного відпалу. Залишковий електричний опір використовується, зазвичай, для ідентифікації температур і енергій активації різних стадій відпалу. На сьогоднішній день фізичні механізми, що регулюють відновлення пошкоджень у вольфрамі, все ще залишаються суперечливими. У нашому дослідженні КД застосовується для моделювання кінетики точкових дефектів при відпалі вольфраму після електронного опромінення. Особлива увага приділяється впливу вуглецю.

4.4.1. Модель, яка передбачає 3D міграцію міжвузельного атому.

Застосовується ізотропна модель середнього поля для чистого вольфраму і вольфраму з вуглецем у процесі опромінення електронами та подальшого ізохронного відпалу. Отже, в моделі КД для ОЦК-заліза з хромом і вуглецем [197] були внесені зміни для вивчення вольфраму з вуглецевою системою. Крім того, новий створений комп'ютерний код КД враховує висновок [30] про рухливість вакансионного димера V_2 , вакансионного кластера розміром три і чотири, V_3 і V_4 . Параметр решітки

вольфраму, a_0 , приймається $3,1652 \text{ \AA}$ [198]; чисельна щільність дислокації, ρ_d , 10^{12} м^{-2} [199]; розмір зерна, d , 50 \mu м ; вектор Бургерса, b , $2,74 \text{ \AA}$ [198]. Ефективність захоплення вакансії (SIA) дислокаційною сіткою, Z_v (Z_i), приймаються 1 (1,2), як у [197]. Радіус рекомбінації для всіх комплексів: вакансія-SIA, вуглець-SIA, вуглець-вакансія, (вакансія-вуглець)-вакансія, (вакансія-вуглець) -вуглець приймається однаковим і дорівнює $4,65 \text{ \AA}$ ($r_{\text{rec}} = 4,65 \text{ \AA}$) як у [197, 200]. Енергія міграції вакансії, E_{mv} , приймається $1,5 \text{ eV}$ згідно експериментальних даних [201]. Енергія міграції дівакансії, E_{m2v} , кластеру з трьох вакансій, E_{m3v} , і кластеру з чотирьох вакансій, E_{m4v} , приймається відповідно $1,6$, $1,7$ і $1,8 \text{ eV}$. Пре-фактор коефіцієнту дифузії вакансій для кластерів вакансій і SIA, D_{v0} , D_{2v0} , D_{3v0} , D_{4v0} і D_{i0} приймаються $2 \times 10^{-8} \text{ м}^2/\text{с}$. Значення енергії міграції SIA, E_{mi} , $0,013 \text{ eV}$, було розраховано в [188]. У нашому дослідженні значення E_{mi} розглядалось як параметр підгонки для найкращого відтворення експериментальних даних щодо відновлення вольфраму. Енергія формування SIA приймається $9,466 \text{ eV}$ відповідно до [200]. Температурна залежність дифузії вуглецю в вольфрамі була досліджена експериментально та теоретично в [202-205]. Відповідно до даних [202-205], пре-фактор, D_{C0} , та енергія міграції вуглецю в вольфрамі, E_{cm} , приймаються як $2 \times 10^{-8} \text{ м}^2/\text{с}$ та $1,7 \text{ eV}$, відповідно. Значення поверхневої енергії γ приймається $3,119 \text{ Дж/м}^2$, що знаходиться між розрахунковими значеннями [206]: $\gamma = 2,275 \text{ Дж/м}^2$ для кристалографічної площини (100) та $3,221 \text{ Дж/м}^2$ для кристалографічної площини (110). Значення енергії зв'язування димеру SIA, E_{bi} , пар SIA-вуглецю, E_{bic} , вакансія-вуглець, E_{bvc} , (вакансія-вуглець)-вакансія, $E_{bv cv}$ і (вакансія-вуглець)-вуглецю, E_{bvcc} , приймаються як $2,2$ (2.2), $1,15$, $2,3$, $2,3$ та $2,3 \text{ eV}$ відповідно. Для порівняння наводимо тут деякі розрахункові літературні дані: $E_{bi} = 2,12 \text{ eV}$ [206]; $E_{bvc} = 1,93 \text{ eV}$ [204] та $1,39 \text{ eV}$ в [207].

Майстер-рівняння, яке наведено у як для електронного опромінення, так і для пост-опроміненового відпалу вольфраму має вигляд системи звичайних диференціальних рівнянь для концентрацій вакансій, міжвузлій (4.1-4.3) і вуглець-точкових дефектних комплексів (4.4-4.11), які наведені у [208, 209]:

$$\begin{aligned}
\frac{dC_{1v(i)}}{dt} = & G_{dpa} - \frac{4\pi r_{rec} (D_v + D_i) C_{1v} C_{li}}{\Omega_W} - \frac{4\pi r_{rec} (D_c + D_i) C_c C_{li v(i)}}{\Omega_W} \\
& - \rho_d Z_v \left(1 + \frac{6(\rho_d Z_v)^{-0.5}}{d} \right) D_{v(i)} (C_{1v(i)} - C_{1v(i)}^e) - 4\beta_{1v(i)}^{v(i)} C_{1v(i)} + 4\alpha_{2v(i)}^{v(i)} C_{2v(i)} - \sum_{n=2} \beta_{nv(i)}^{v(i)} C_{nv} \\
& + \sum_{n=3} \alpha_{mv(i)}^{v(i)} C_{nv(i)} + \beta_{2v(i)}^{i(v)} C_{2v(i)} - \sum_{n=2} \beta_{ni(v)}^{v(i)} C_{ni(v)} \\
& - \frac{4\pi r_{rec} (D_c + D_{v(i)})}{\Omega_W} \cdot \left(C_c C_{1v(i)} - (C_c + C_{v(i)}) \exp\left(-\frac{E_{bcv(i)}}{k_B T}\right) \right) - \\
& k_v \cdot \frac{4\pi r_{rec} D_v C_{1v} C_{vc}}{\Omega_W} \left(1 - \exp\left(-\frac{E_{bvcv}}{k_B T}\right) \right)
\end{aligned} \tag{4.1}$$

$$\frac{dC_{2v(i)}}{dt} = 2\beta_{1v(i)}^{v(i)} C_{1v} - 2\alpha_{2v(i)}^{v(i)} C_{2v(i)} - \beta_{2v(i)}^{v(i)} C_{2v(i)} + \alpha_{3v(i)}^{v(i)} C_{3v} - \beta_{2v(i)}^{i(v)} C_{2v} + \beta_{3v(i)}^{i(v)} C_{3v(i)} \tag{4.2}$$

$$\begin{aligned}
\frac{dC_{nv(i)}}{dt} = & \beta_{(n-1)v(i)}^{v(i)} C_{(n-1)v(i)} + (\beta_{(n+1)v(i)}^{i(v)} + \alpha_{(n+1v(i))}^{v(i)}) C_{(n+1)v(i)} \\
& - (\beta_{nv(i)}^{v(i)} + \beta_{nv(i)}^{i(v)} + \alpha_{nv(i)}^{v(i)}) C_{nv(i)} \quad \text{for } n > 2
\end{aligned} \tag{4.3}$$

$$\frac{dC_{vcc}}{dt} = \frac{4\pi r_{rec} D_c}{\Omega_W} \cdot C_c \cdot C_{vc} \left(1 - \exp\left(-\frac{E_{bvcc}}{k_B T}\right) \right) \tag{4.4}$$

$$\frac{dC_{vcv}}{dt} = \frac{4\pi r_{rec} D_v}{\Omega_W} \cdot C_v \cdot C_{vc} \left(1 - \exp\left(-\frac{E_{bvcv}}{k_B T}\right) \right) \tag{4.5}$$

$$\begin{aligned}
\frac{dC_{ic}}{dt} = & \frac{4\pi r_{rec} (D_c + D_i)}{\Omega_W} \cdot \left(C_c C_i - (C_c + C_i) \exp\left(-\frac{E_{bic}}{k_B T}\right) \right) - \\
& \frac{4\pi r_{rec} D_c}{\Omega_W} \cdot C_c \cdot C_{vc} \left(1 - \exp\left(-\frac{E_{bvcc}}{k_B T}\right) \right)
\end{aligned} \tag{4.6}$$

$$\frac{dC_{vc}}{dt} = \frac{4\pi r_{rec} (D_c + D_{v(i)})}{\Omega_w} \cdot \left(C_c C_{1v(i)} - (C_c + C_{v(i)}) \exp\left(-\frac{E_{bcv(i)}}{k_B T}\right) \right) - \frac{4\pi r_{rec} D_v C_{1v} C_{vc}}{\Omega_w} \left(1 - \exp\left(-\frac{E_{bvcv}}{k_B T}\right) \right) \quad (4.7)$$

Тут G_{dpa} дорівнює відношенню дози опромінення (в дра) до часу опромінення для випадку опромінення електронів і нуля для випадку пост-опроміненого відпалу, C_{vc} – концентрація пар вакансії-вуглецю, C_{vcc} і C_{vcv} – концентрація (вакансія-вуглець)-вуглецевих і (вакансійно-вуглецеві) комплексів вакансії; $\beta_{nv(i)}^{v(i)}$ і $(\alpha_{mv(i)}^{v(i)})$ – коефіцієнти абсорбції і коефіцієнт емісії V , V_2 , V_3 , V_4 (міжвузельного атому) з VC (SIAC), які розраховуються аналогічно [198] та [199] для припущення щодо 3D дифузії міжвузельного атому:

Коефіцієнт абсорбції вакансії, V_2 , V_3 , V_4 (SIA) та VC:

$$\beta_{nv(i)}^{v(i)} = \frac{4\pi(r_{nv} + r_{kv(i)})D_{v(i)}C_{1v(i)}}{\Omega} \quad (4.8)$$

Коефіцієнт приєднання вакансії, кластерами V_2 , V_3 , V_4 (міжвузельного атому) та SIAC:

$$\beta_{nv(i)}^{v(i)} = \frac{2\pi(r_{ni} + r_{kv(i)})D_{v(i)}C_{1v(i)}}{\Omega} \quad (4.9)$$

$$\beta_{ic} = \frac{4\pi(r_i + r_c)(D_i + D_c)C_c}{\Omega} \quad (4.10)$$

Емісія з кластеру:

$$\alpha_{mv(i)}^{v(i)} = \beta_{m-1v(i)}^{v(i)} \exp\left(-\frac{E_b}{k_B T}\right) \quad (4.11)$$

Система рівнянь (4.1-4.7) описує:

(4.1) генерацію вакансії та міжвузельного атому;

(4.2) рекомбінацію вакансії – міжвузельного атому;

- (4.3) абсорбцію вакансії (міжвузельного атому) мережою дислокацій;
- (4.4) абсорбцію вакансії (міжвузельного атому) вуглецем;
- (4.5) рекомбінацію вакансія-SIA; абсорбцію вакансії (міжвузельного атому VC та SIAC)
- (4.6) поглинання вакансії (SIA) кластером вакансій (VC) та кластером SIA (SIAC);
- (4.7) емісію вакансії та SIA відповідно від VC та SIAC;

Оскільки еволюція точкової дефектної системи у відпаленому вольфрамі після опромінення є сукупністю кінетичних процесів з різними характерними часами, інтеграція головного рівняння (4.1-4.7) є типовою проблемою жорстких звичайних диференціальних рівнянь. Отже, пакет підпрограми FORTRAN, LSODE, розв'язувач Лівермора для звичайних диференціальних рівнянь [57], заснований на методі формули зворотної диференціації [210], був прийнятий як основна програма комп'ютерного коду. Згідно до [211], час опромінення та температура опромінення приймаються як 0,0001 дпа, 43200 секунд та 5 К; температурний крок для ізохронного відпалу був 5 К, а час відпалу на кожному кроці був вибраний 300 секунд для температури нижче 450 К і 600 секунд для температури від 450 К до 500 К. Проведено моделювання КД для випадку присутності вільних атомів вуглецю в вольфрамі з концентрацією близько 100 артм і для вольфраму, що не містить вуглецю.

Було встановлено, що опромінення електронами з дозою 0,0001 дпа протягом 43200 секунд при температурі 5 К призводить до утворення пар Френкеля з концентрацією близько 100 артм як у чистому вольфрамі, так і в вольфрамі з вуглецем. Збільшення E_{mi} до 0,163 еВ забезпечило досить гарну відповідність між експериментальними даними [211] та імітаційними даними у нашому дослідженні. Розраховані температурні залежності концентрації

вільних міжвузлей, вільних вакансій, вільних атомів вуглецю, VC, SIAC, комплексів вакансія-вуглець і (вакансія-вуглець)-вакансія у пост-опроміненному відпаленому вольфрамі представлені на рис. (4.4-4.6) [209]. Для температурного діапазону ізохронного відпалу від 4,2 до 100 К (етап I відновного спектру вольфраму [211]) ми спостерігаємо:

(1) зниження концентрації вільних вакансій до значення приблизно 29 аррт (57 аррт) для чистого вольфраму (вольфраму з вуглецем) і вільного SIA до нуля як для чистого вольфраму (вольфраму з вуглецем), утворення кластерів SIA (SIAC) при концентрації кластеризації SIA близько 21 аррт (10,6 аррт) для чистого вольфраму (вольфраму з вуглецем), без кластеризації вакансій для чистого вольфраму (вольфраму з вуглецем) в інтервалі температур від 55 до 100 К;

(2) утворення пар вуглець-SIA з концентрацією близько 43 аррт і зменшенням вільних атомів вуглецю до значення приблизно 57 аррт для вольфраму з вуглецем в тому ж температурному діапазоні;

(3) не утворюється пари вакансія-вуглець, (вакансія-вуглець)-вакансія і (вакансія-вуглець)-вуглець.

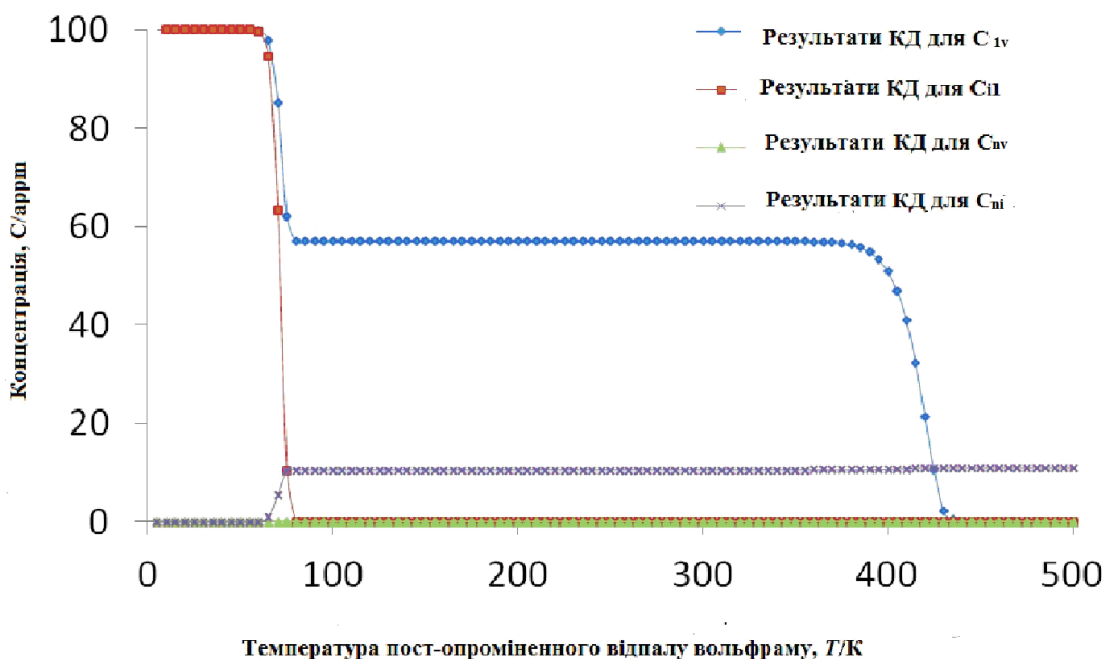


Рис. 4.4. Температурна залежність концентрації вільних вакансій (C_{lv}), вільних міжвузельних атомів (C_{li}), VC (C_{nv}) і кластерів міжвузельних атомів (C_{ni}) у пост-опроміненному відпаленому вольфрамі, легованого вуглецем до 100 артм, відповідно до моделі з 3D дифузією міжвузельного атому.

З метою порівняння результатів КД з експериментальними даними [200], диференційоване відновлення ізохронного опору було розраховано за рівнянням (4.12) згідно [211, 212]:

$$100\% \cdot \frac{(\rho - \rho_0) / \rho_0}{\ln T - \ln T_0} = 100\% \cdot \frac{(n - n_0) / n_0}{\ln T - \ln T_0} \quad (4.12)$$

Тут ρ і ρ_0 – питомий електричний опір для заданої температури T та залишковий опір відповідно; n і n_0 – загальна кількість пар Френкеля при температурах T та T_0 . Було встановлено, що наш КД експеримент добре відтворює пік відновлення при 70 К (рис. 4.7) [209].

Для температурного діапазону ізохронного відпалу від 100 до 500 К (етап II відновного спектру [211]) спостерігається в моделюваннях КД (рис. 4.5, 4.6):

(1) зниження концентрації вільних вакансій до нуля, відсутність значних змін концентрації вільних SIA, кластеризація вакансій і SIA для вольфраму з вуглецем в інтервалі температур від 360 до 500 К;

(2) зниження концентрації пар вуглець- SIA до нуля, збільшення концентрації атомів вуглецю до 100 артм для вольфраму з вуглецем в однаковому температурному діапазоні;

(3) відсутність зміни значущості концентрацій точкових дефектів для чистого вольфраму;

(4) дуже незначне підвищення концентрації вакансія-вуглець, (вакансія-вуглець)-вакансія та (вакансія-вуглець)-вуглець.

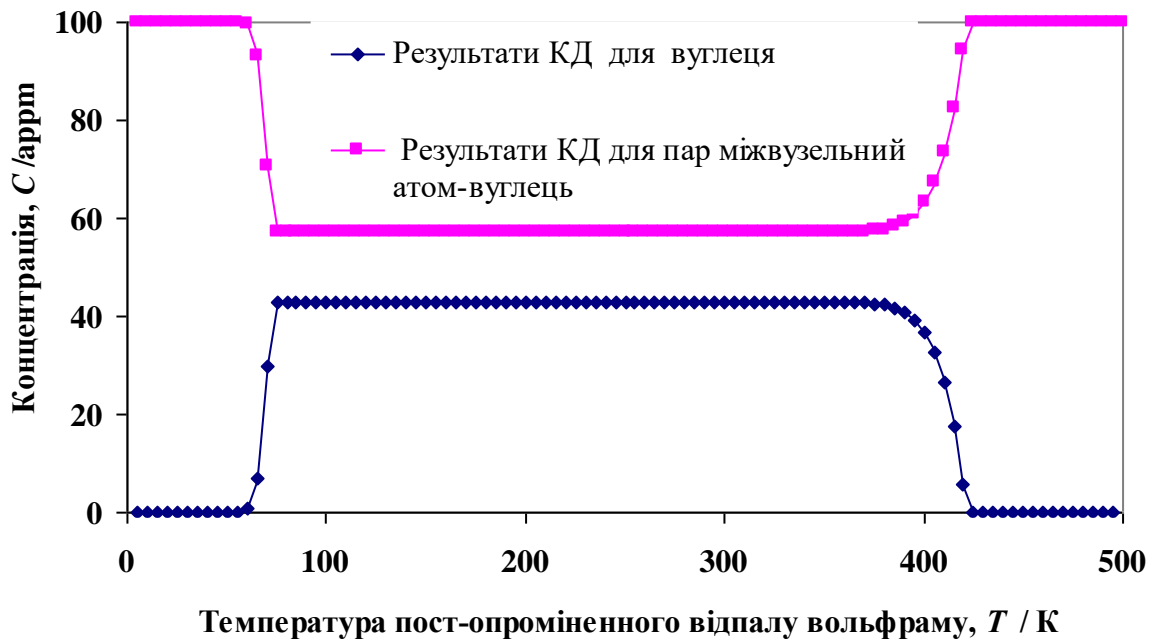


Рис. 4.5. Температурна залежність концентрації пар вуглецю та вольфраму в вольфрамі після опромінення відпалу.

За результатами моделювання КД другий пік відновлення має місце при температурі 420 К для вольфраму з вуглецем, і відсутній для чистого вольфраму (рис. 4.7) [201], що підтверджує гіпотезу [212] про роль домішок (у данному випадку вуглеця) як пасток для точкових дефектів на II стадії.

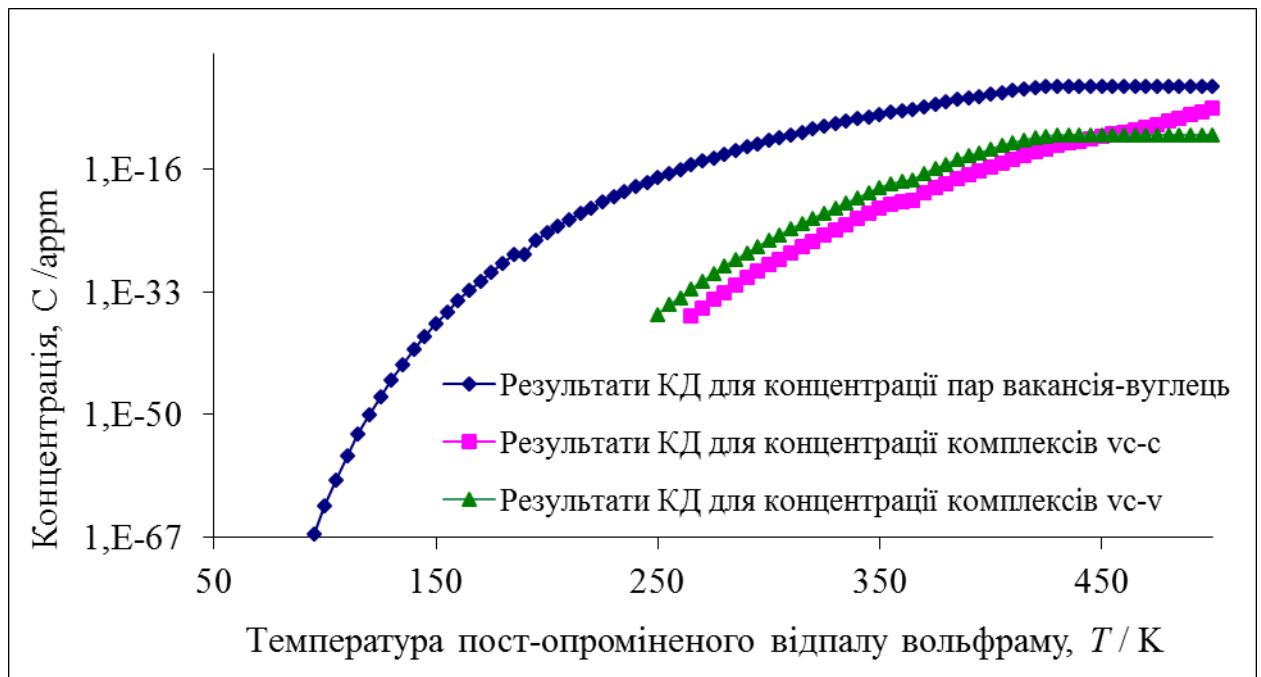


Рис. 4.6. Температурна залежність концентрації пар вакансії-вуглецю, комплексів $vc-c$ і $vc-v$ у вольфрамі після опромінення відпалу.

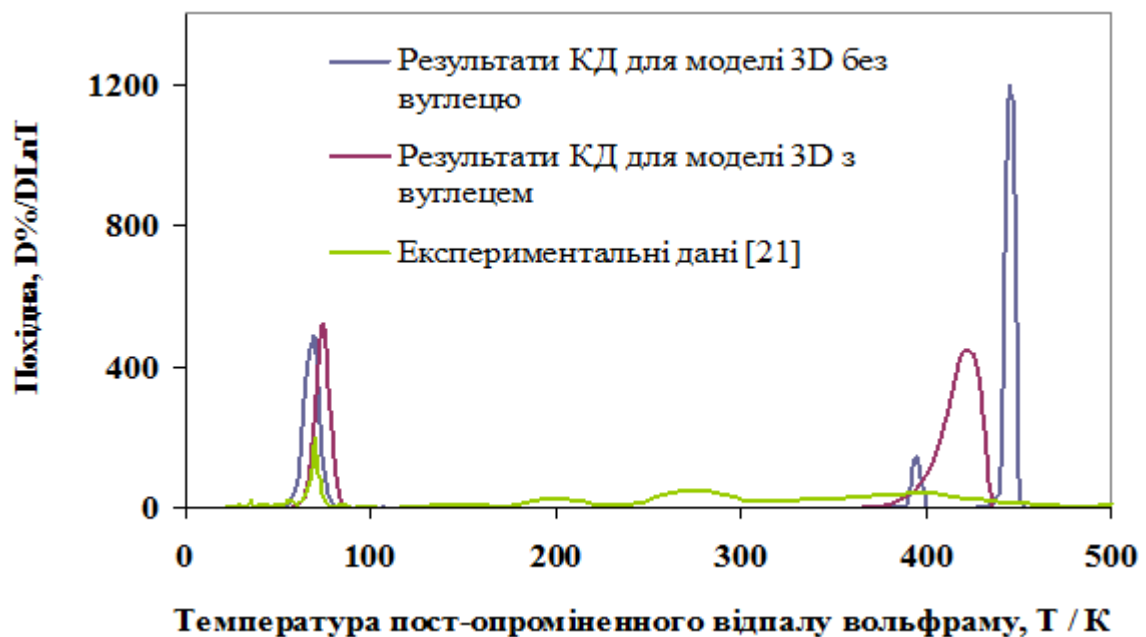


Рис. 4.7. Похідна та температурний графік даних відновлення опромінення вольфрамом після опромінення.

Процес першого порядку, який приписують рекомбінації пари (вакансія – SIA), і процес другого порядку, який пояснюється великою дифузією одного з цих дефектів, імовірно, SIA обговорюються в [212], щоб виявити фізичну природу піку, які спостерігаються при 70 К на етапі I. Висновок про суміш як процесів першого, так і другого порядку з домінуванням процесу другого порядку зроблено в [212]. Це відповідає рекомбінації пар вакансій SIA та самозахопленню SIA (утворення SIAC) та захопленню SIA домішками та деякими нерухомими поглиначами, але їх природа не була виявлена в [212].

Розглянемо результати нашого моделювання КД, що доповнює дані [212]:

- (1) Усі точкові дефекти нерухомі при післяпроменевому відпалі в інтервалі температур від 5 до 50 К.
- (2) Значення C_{v1} і C_{i1} становлять приблизно 53 і 0 артм, відповідно, для температури відпалу 100 К. Концентрація вільних вакансій падає повільніше, ніж SIA на I етапі. Це показує, що рекомбінація пари (вакансія-SIA) – це не єдиний процес, а отже, процес першого порядку не відноситься до цього етапу.
- (3) Значення концентрації SIA, що кластеризуються в SIAC та вуглецеві пари SIA, приблизно 10,5 артм та 43,0 артм, відповідно, для температури відпалу 100 К. Беручи до уваги, що концентрація C_{v1} зменшується на 47 артм, це означає, що щонайменше 7,5 артм C_{v1} захоплюється нерухомими поглиначами, якими є дислокаційна сітка.

Існує набір спостережуваних експериментальних малих піків відновлення [212], які не відтворені в наших моделюваннях КД. Можлива причина – недостатня кількість даних у будь-якому зі спостерігаємих піків регіону II етапу [212].

4.4.2. Модель, яка передбачає 1D міграцію міжвузельного атому

За даними електронної мікроскопії [181] та кінетичного моделюванням методом Монте-Карло [181,213], міжвузельні атоми у вольфрамі здійснюють 1D-міграцію, тоді як вільні вакансії та VC здійснюють 3D-міграцію. Для визначення ефекту розмірності дифузії міжвузельного атому модель КД для ОЦК залізу з домішками [197] модифікується до вольфраму, легованого вуглецем. Основний набір параметрів, які використовуються у нашому дослідженні, наведено в підрозділі 4.4.1. Для порівняння наведемо деякі розрахункові літературні дані: $E_{bvc} = 2,0$ еВ [207]; $E_{bvc} = 2,39$ еВ [214], $E_{bic} = 0,62$ еВ [214], $E_{bic} = 0,82$ еВ [215].

Майстер-рівняння записується у вигляді (4.1-4.7), але з модифікацією засобу розрахунку абсорбції і емісії: $\beta_{nv}^{v(i)}$ і $(\alpha_{mv(i)}^{v(i)})$ – коефіцієнти абсорбції і коефіцієнт емісії V, V₂, V₃, V₄ (міжвузельного атому) з VC (SIAC), які розраховуються аналогічно [213] та [197] для припущення щодо 1D дифузії міжвузельного атому:

коефіцієнт абсорбції вакансії кластерами V₂, V₃, V₄ та VC :

$$\beta_{nv}^v = \frac{4\pi(r_{nv} + r_{kv})D_v C_{1v}}{\Omega} \quad (4.13)$$

Коефіцієнт абсорбції міжвузельних атомів кластерами VC:

$$\beta_{nv}^i = \frac{2D_i C_{li} (\pi(r_{nv} + r_{li}))^2 C_{nv}}{\Omega} \quad (4.14)$$

Коефіцієнт абсорбції вакансії кластерами V₂, V₃, V₄ та SIAC:

$$\beta_{ni}^v = \frac{2\pi(r_{ni} + r_{1v})D_v C_{1v}}{\Omega} \quad (4.15)$$

Коефіцієнт абсорбції міжвузельних атомів SIAC:

$$\beta_{ni}^i = \frac{2D_i C_{li} (\pi(r_{ni} + r_{li}))^2 C_{ni}}{\Omega} \quad (4.16)$$

$$\beta_{ic} = \frac{2(\pi(r_i + r_c))^2 [(D_i + D_c)C_c]}{\Omega} \quad (4.17)$$

Тут $r_{nv(i)}$ – радіус VC (SIAC) розміром n , r_c – радіус атома вуглецю.

Значення $E_{mi} = 0,125$ еВ забезпечувало найкращу згоду моделювання КД та експериментальних даних [212]. Розраховані температурні залежності концентрації вільних міжвузлей, вільних вакансій, вільних атомів вуглецю, VC, SIAC, комплексів вакансія-вуглець і (вакансія-вуглець)-вакансія у пост-опроміненному відпаленому вольфрамі представлені на рис. (4.8, 4.9). Концентрація міжвузельних атомів зменшується з 100 арум до нуля завдяки відпалу в діапазоні температур (55; 105) K (рис.4.8). Концентрація вільних вакансій (C_{lv}) та вільних атомів вуглецю (C_c) становить приблизно 100 арум в діапазоні температур (5;450) K; підвищення температури відпалу в діапазоні (450; 500) K призводить до незначного зменшення концентрації C_{lv} та C_c (рис. 4.9). VC та комплекси вакансія-вуглець та (вакансія-вуглець)-вакансія починають формуватися в зазначеному температурному діапазоні (рис.4.10).



Рис. 4.8. Температурна залежність концентрації вільних міжвузельних атомів (C_{1i}) у пост-опроміненному відпаленому вольфрамі за результатами КД для моделі з 1D дифузією міжвузельного атому.

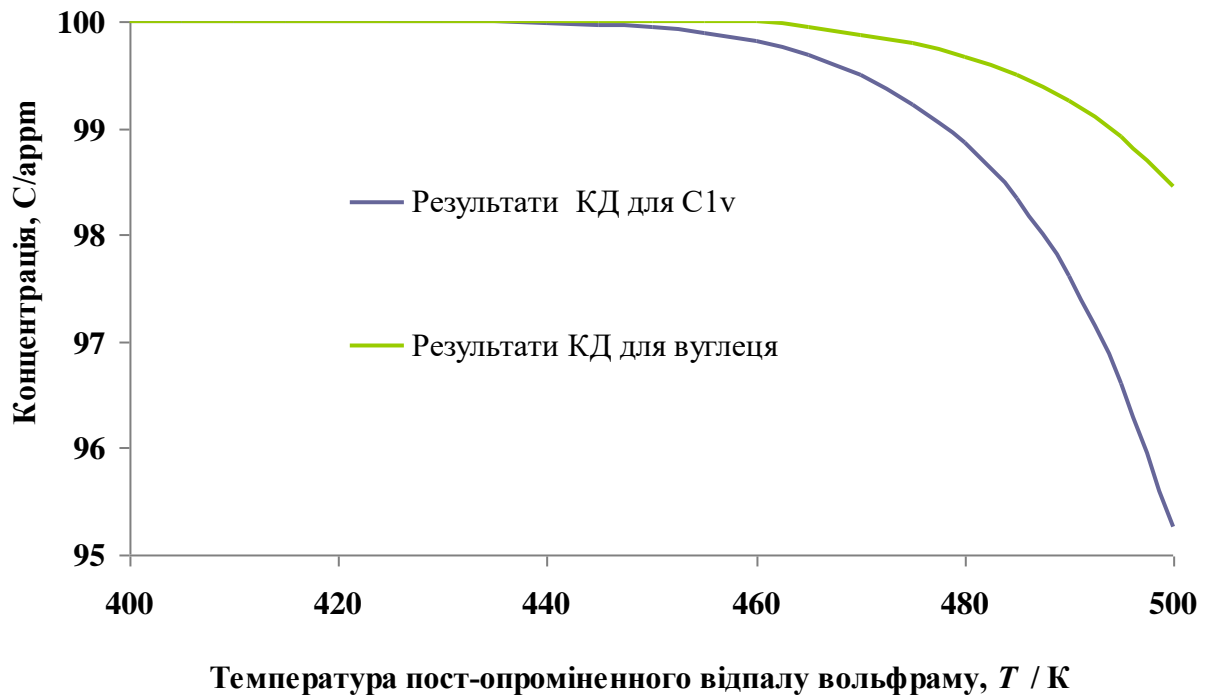


Рис. 4.9. Температурна залежність концентрації вільних вакансій (C_{1v}) та вільних атомів вуглецю (C_c) у пост-опроміненному відпаленому вольфрамі за результатами КД для моделі з 1D дифузією.

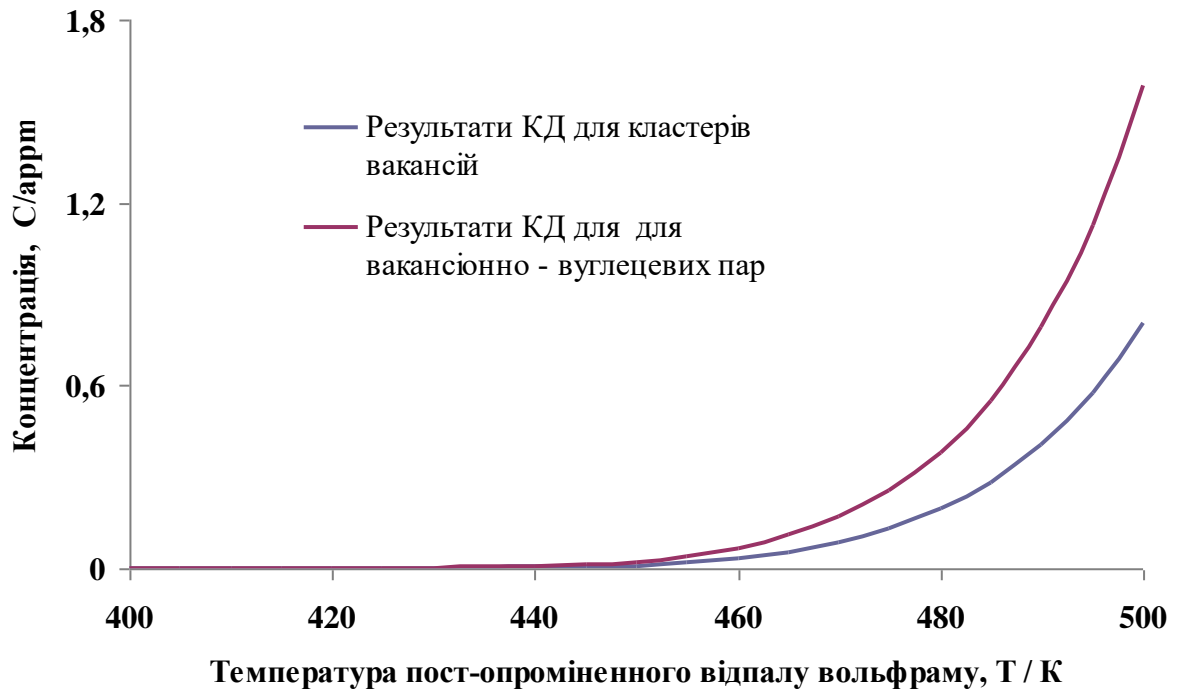


Рис. 4.10. Температурна залежність концентрації VC (C_{vc}) та вакансія-вуглець пар (C_{vc}) у пост-опроміненному відпаленому вольфраму за результатами КД для моделі з 1D дифузією міжвузельного атому.

Диференціальні криві відновлення ізохронної резистивності як для чистого вольфраму, так і вольфраму, який леговано вуглецьом, представлені на рис. 4.11. Спостерігається узгодження розрахункового та експериментального положення відновленого піку в діапазоні температур від 5 до 100 K (етап I). З порівняння рисунків 4.7 та 4.11 спостерігаємо, що амплітуда першого піку, знайденого у моделі 3D дифузії SIA, приблизно у 2,5 рази вище експериментального значення [212], але у моделі 1D дифузії SIA амплітуда розрахункового та експериментального піку практично співпадають. З цього можна зробити висновок про те, що застосування моделі 1D дифузії SIA підтверджує результати моделювання методом функціональної теорії щільності [200], експериментального дослідження методом просвічуючої мікроскопії [181] та методом Монте-Карло [181, 213] щодо 1D дифузії

міжвузельних атомів у вольфрамі. Певна згода експериментального та розрахункового спектру відновлення опіру також спостерігається для 1D моделі наприкінці II стадії пост-опроміненного відпалу (100; 500) К. При цьому модель, яка враховує присутність вуглеця, забезпечує кращу згоду з експериментом.

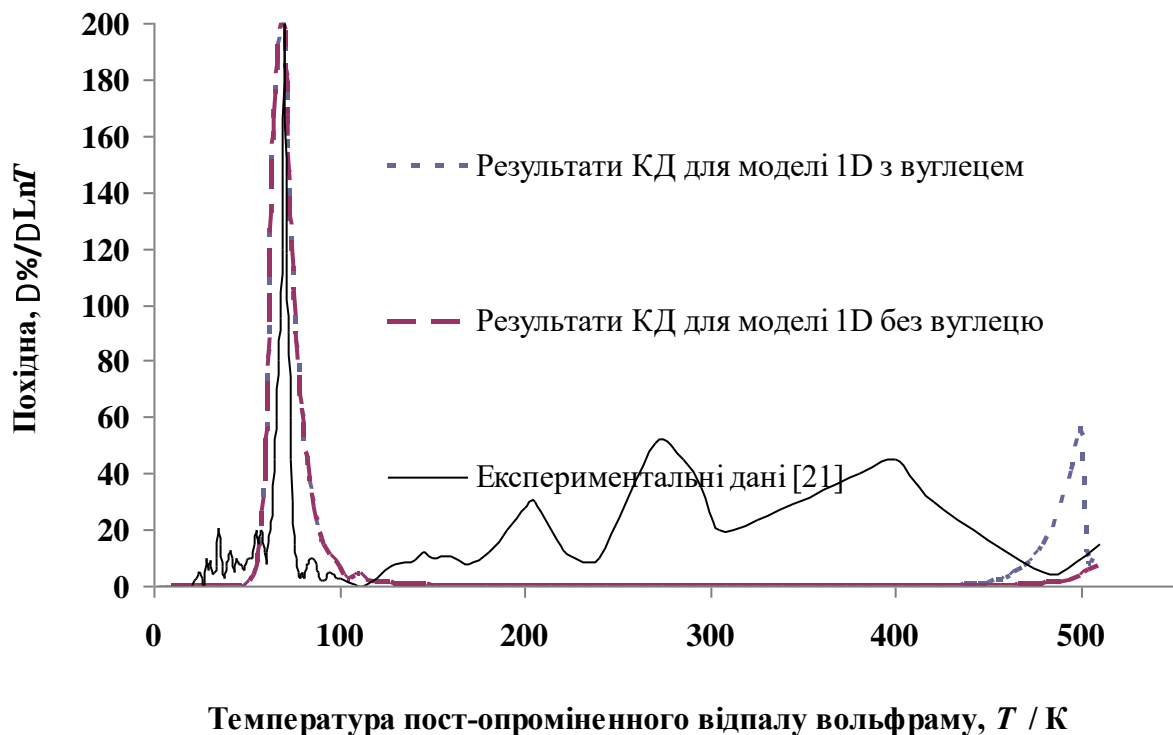


Рис. 4.11. Диференціальні криві відновлення ізохронної резистивності для чистого вольфраму і вольфраму, який легований вуглецем, за результатами КД для моделі з 1D дифузиею міжвузельного атому.

Тепер ми можемо резюмивати внесок моделювання методом КД до з'ясування механізму міграції міжвузельних атомів у вольфрамі. Модель, яка передбачає 3D дифузію міжвузельних атомів, відтворює при моделюванні методом КД положення піку експериментального відновлення на етапі I близько 70 К для вольфраму та вольфраму, легovanого вуглецем, але розрахована амплітуда піку (близько 500) більше, ніж експериментальна (близько 200). Більш того, в експерименті [212] не спостерігаються

розрахункові піки відновлення наприкінці II етапу. Положення першого експериментального піка відновлення диференціального ізохронного опіру вольфраму [212] задовільно відтворюється моделюванням методом КД за обома моделями з 1D та 3D дифузиею міжвузельного атому. 1D модель дифузії забезпечує повну згоду розрахункової та експериментально вимірюваної амплітуди першого піку відновлення. 3D модель дифузії переоцінює амплітуду цього піку у два рази порівняно з експериментальним значенням. Додавання вуглецю до 100 артм не впливає на розрахункове положення та амплітуду першого піку відновлення. Подібний ефект було отримано методом Монте-Карло, де досліджувался вплив міді на спектр відновлення опромінюваних електронами сплавів Fe-Cu [213].

Для 1D моделі дифузії міжвузельного атому найкраще узгодження між результатами КД та експериментальними даними [212] досягається при значення $E_{mi} = 0,125$ еВ, яке менше ніж $E_{mi} = 0,163$ еВ для 3D моделі дифузії, але далеко від $E_{mi} = 0,013$ еВ, яке отримано у розрахунках [202]. Отже, значення $E_{mi} = 0,125$ еВ можна вважати ефективним. Причиною розбіжності цього значення та даними [202]. може бути використання моделі середнього поля при симуляціях методом КД тоді як 1D-міграція міжвузельних атомів є суттєво просторово корельованим процесом [181].

Моделювання методом КД призводить до сильного піку спектру відновлення в кінці II етапу для моделі з 3D дифузиею міжвузельного атому, але цей пік не спостерігається в експерименті [212]. Навпаки, у [212] знайдено декілька невеликих піків відновлення на II етапі. Така залежність не є типовою для відновлення опромінених матеріалів, де на кожній стадії відновлення знаходиться лише один пік. Моделювання методом КД для моделі, яка передбачає 1D дифузиею міжвузельного атому, призводить до деякого збігу експерименту [212] і розрахованого спектру відновлення наприкінці другого етапу. Можна погодитися з вказівкою [212] про

необхідність додаткового, більш ретельного вимірювання опіру на II етапу відновлення. Також доцільним, з нашої точки зору, будуть додаткові дослідження II етапу відновлення методом спектроскопії аннигіляції позитронів.

Висновки до розділу 4

- Етап вільної міграції при низьких температурах для більшості тугоплавких металів, у тому разі і у вольфрамі, не є вивченим у повній мірі; найважливішою проблемою слід признати питання врахування ефекту домішок.
- Вуглець не впливає на положення піку відновлення у вольфрамі.
- Порівняння результатів моделювання методом КД для моделей з 1D дифузією та 3D дифузією міжвузельного атому з експериментальними даними про ізохронний відпал вольфраму, який опромінено електронами [212], підтверджує результати моделювання методом функціональної теорії щільності [200], експериментального дослідження методом просвічуючої мікроскопії [181] та методом Монте-Карло [181, 213] щодо 1D дифузії міжвузельних атомів у вольфрамі.

ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ТА ВИСНОВКИ

У роботі розроблені нові підходи для передбачення фізичних характеристик матеріалів сучасного радіаційного матеріалознавства. Способи застосування розроблених підходів продемонстровано на прикладах заліза та вольфраму під дією електронного, іонного та нейтронного опромінення.

1. Модифікований метод інтегрування диференціальних рівнянь за кодом LSODE забезпечує надійність дослідження кінетики дефектів в опроміненних реакторних матеріалів.

2. Знайдено залежність від фляксу середнього розміру і чисельної щільності VC та SIAC у чистому залізі, яке опромінено нейтронами, має три режими, які позначені двома критичними значеннями фляксу $6,9 \times 10^{-9}$ дпа/с і $1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с для обох флюенсів: 0,026 дпа та 0,19 дпа. Уперше встановлено, що при малих и великих фляксах спостерігається близькі значення D_{SIAC} , що може бути обгрунтуванням використання даних, отриманих при іонному опроміненні або у науково-дослідних атомних реакторах до прогнозування кінетики процесів у комерційних атомних реакторів.

3. Знайдено залежність індукованого опроміненням зміцнення від фляксу має два режими з критичним значенням $1,70 \times 10^{-7}$ дпа/с ($1,10 \times 10^{14}$ н/м²/с).

4. Показано, що ідентичні критичні значення залежностей потоку величини і щільності чисельності VC та SIAC можна пояснити взаємозв'язком між положенням піку розподілу точкових кластерів після каскадної стадії і критичними розмірами VC і SIAC.

5. Знайдена різниця в нейтронній крихкості, яка розрахована в припущенні постійної та змінної температури, зростає з часом опромінення

6. Врахування зміни температури реактора дозволяє при калібруванні моделі КД отримати значення енергії міграції вакансій у залізі, $E_{vm} = 0.62$ еВ, яке більш відповідає ступені чистоти заліза, а саме вмісту вуглеця менше ніж 30

аррт, ніж значення $E_{vm} = 1.30$ eВ, при припущені про постійну температуру протягом нейтронного опромінення.

7. Знайдено засіб використання результату КД про індуковане опромінення збільшення межі текучості для оцінки зміни механічної стабільності реакторних матеріалів у рамках фізико-механічної моделі міжзеренного руйнування, яке спричинено еволюцією пор.

8. Встановлено з порівняння результатів моделювання методом КД для моделей щодо 1D дифузії та 3D дифузії міжвузельного атому зі експериментальними даними про ізохронний відпал вольфраму, який опромінено електронами, підтверджує результати моделювання методом функціональної теорії щільності, експериментального дослідження методом просвічуючої мікроскопії та методом Монте-Карло, щодо 1D дифузії міжвузельних атомів у вольфрамі.

СПИСОК ВИКОРИСТОВАНИХ ДЖЕРЕЛ

1. Becker R. and Döring W. Kinetische Behandlung der Keimbildung in übersättigten Dämpfen. *Ann. Phys.* 1935. Vol. 416. P. 719-752.
2. Lepinoux J., Sigli C. Precipitate growth in concentrated binary alloys: A comparison between kinetic Monte Carlo simulations, cluster dynamics and the classical theory. *Philosophical Magazine*. 2013. Vol. 93. P. 3194-3215.
3. Jourdan T., Bencteux G., Adjanor G. Efficient simulation of kinetics of radiation induced defects: A cluster dynamics approach. *Journal of Nuclear Materials*. 2014. Vol. 444. P. 298–313.
4. Theory and experimental background on dimensional changes in irradiated alloys. *J. of Nuclear Materials*. 1994. Vol. 216. P. 97-123
5. Mathon M., Barbu A., Dunstetter F., Maury F., Lorenzelli N, de Novion C.H. Experimental study and modelling of copper precipitation under electron irradiation in dilute FeCu binary alloys. *J. Nucl. Mater.* 1997. Vol. 245. P. 224-237
6. Akamatsu M., PhD thesis. Paris XI-Orsay University. 1994.
7. Coghlan W., Yoo M. Radius dependence of the sink strength of a dislocation loop. *Proceeding conference on the role of dislocation theory in modelling physical systems* (Florida, USA, June 22-27 1980). Florida 1980. P. 152-155.
8. Bullough R., Wells D.W., Willis J.R., Wood M.H. Cross sections for atomic displacements in solids by fast electrons. Report ORNL-4897. 1973. 116 p.
9. Wolfer W.G., Ashkin M. Stress-Induced Diffusion of Point Defects to Spherical Sinks. *J. Appl. Phys.* 1975. Vol. 46 № 2. P. 547-557.
10. Si-Amhed A., Wolfer W.G. Cross-sections for atomic displacements in solids by fast electrons. Report ORNL- 4897. 1973. 142 p.
11. Woo C.H. Intrinsic bias differential between vacancy loops and interstitial loops. *J. Nucl. Mater.* 1982. Vol. 107. P. 20-30.

12. Hayns M.R. The nucleation and early growth of interstitial dislocation loops in irradiated materials. *J. Nucl. Mater.* 1975. Vol. 56. P. 267-274.
13. A. Seeger, U. Gosele Steady-state diffusion of point defects to dislocation loops. *Physics Letters A.* 1977. Vol. 6. P. 423-425.
14. Soneda N., Diaz de la Rubia T. Defect production, annealing kinetics and damage evolution in α -Fe: An atomic-scale computer simulation. *Philos. Mag.* 1998. Vol. 78 № 5. P. 995-1019
15. Hirth J.P., Lothe J. Theory of Dislocations, 2nd Ed., Malabar, Florida, 1992. 857 p.
16. Hardouin Duparc A., Moingeon C., Smetniansky-de-Grande N., Barbu A. Microstructure modelling of ferritic alloys under high flux 1 MeV electron irradiations. *J. Nucl. Mater.* 2002. Vol. 302. P. 143–155.
17. Bullough R., Hayns M.R., Wood M.H. Sink strengths for thin film surfaces and grain boundaries. *J. Nucl. Mater.* 1980. Vol. 90. P. 44-5.
18. P. Moser, C. Corbel, P. Lucasson, P. Hautajarvi, Mater. Sci. Forum 15–18 (1987) 925.
19. Landolt-Bornstein, Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, vol. 25, Atomic Defects in Metals, Springer.
20. Johnson R.A., Interstitials and Vacancies in α iron. *Phys. Rev.* 1964. Vol. 134 № A1329. P. 423-427.
21. Stoller R.E., Odette G.R. Primary damage formation in bcc iron. *J. Nucl. Mater.* 1997. Vol. 251. P. 49-60.
22. Vascon R., Doan N.V. Molecular dynamics simulations of displacement cascades in α -iron. *Rad. Effects and Defects in Solids.* 1997. Vol. 141. P. 375-394.
23. Becquart C.S., Domain C., Legris A., Van Duysen J.C. Influence of the interatomic potentials on molecular dynamics simulations of displacement cascades. *J. Nucl. Mater.* 2000. Vol. 280. P. 73-85.

24. Alnatt A.R., Lidiard A.B. Atomic transport in solids. Cambridge University, Cambridge, 1993. 600 p.
25. Norgett M.J., Robinson M.T., Torrens. I.M. A proposed method of calculating displacement dose rates. *Nucl. Eng. Des.* 1975. Vol. 33. P. 50-54.
26. Meslin E., Barbu A., Boulanger L., Radiguet B., Pareige P., Arakawa K., Fu C.C. Cluster-dynamics modelling of defects in α -iron under cascade damage conditions. *J. Nucl. Mater.* 2008. Vol. 382. P.190-196.
27. Puls M., Woo C., Norgett M. Shell-model calculations of interaction energies between point defects and dislocations in ionic crystals. *Philosophical Magazine.* 1977. Vol. 36 № 6. P. 1457-1472.
28. Fu C.C., Willaime F., Ordejón P. Stability and mobility of mono- and di-interstitials in α -Fe. *Phys. Rev. Lett.* 2004. Vol. 92. P. 175503.
29. Willaime F., Fu C.C., Marinica M.C., Torre J.D. Stability and mobility of self-interstitials and small interstitial clusters in α -iron: Ab initio and empirical potential calculations, *Nucl. Instrum. and Meth.* 2005. Vol. 228. P. 92-99.
30. Fu C.C., Torre J.D., Willaime F., Bocquet J.-L., Barbu A. Multiscale modelling of defect kinetics in irradiated iron. *Nat. Mater.* 2005. Vol. 4. P. 68-71.
31. Ziegler J. F. SRIM-2003 // *Nucl. Instr. and Meth. B.* 2004. Vol. 219/220. P. 1027–1036.
32. B. Radiguet, PhD thesis, Rouen University, 2004.
33. Domain C., Becquart C.S. Ab initio study of foreign interstitial atom (C, N) interactions with intrinsic point defects in α -Fe *J. Foct, Phys. Rev.* 2004. Vol. 69. P.144112.
34. A. Duong-Hardouin Duparc, PhD thesis, Paris XI-Orsay University, 1997.

35. Ortiz C.J., Caturla M.J., Fu C.C., Willaime F., He diffusion in irradiated α -Fe: An ab-initio-based rate theory model. *Phys. Rev.* 2007. Vol. 75 № 10. P. 100-102.
36. Bacon D.J., Calder A.F., Gao F. Defect production due to displacement cascades in metals as revealed by computer simulation. *J. Nucl. Mater.* 1997. Vol. 251. P. 1-12.
37. Mayoral M.H, Briceño D.G. PERFECT Project, Advance Report, Deliverable P26. Task II-3-2; Interreg Europe: Lille, France, 2008.
38. Lunéville L., Simeone D., Jouanne C. Calculation of radiation damage induced by neutrons in compound materials. *J. Nucl. Mater.* 2006. Vol. 353. P. 89-100.
39. Eldrup M., Singh B.N., Zinkle S.J., Byun T.S., Farrell K. Dose dependence of defect accumulation in neutron irradiated copper and iron. *J. Nucl. Mater.* 2002. Vol. 307–311. P. 912-917.
40. Stoller, R.E. The role of cascade energy and temperature in primary defect formation in iron. *J. Nucl. Mater.* 2000. Vol. 276. 22–32.
41. Terentyev, D. Study of Radiation Effects in FeCr Alloys for Fusion Applications Using Computer Simulations, PhD Thesis, University of Uppsala. 2006. 183 p.
42. Christien F., Barbu A., Modelling of copper precipitation in iron during thermal aging and irradiation. *J. Nucl. Mater.* 2004. Vol. 324. P. 90-96.
43. Wirth B.D., Odette G.R. *MRS. Soc. Symp. Proc.* 1999. Vol. 540. P. 637–642.
44. Bescuart, C.S., Domain, C., Van Duysen J.C., Raoulot, J.M. The role of Cu in displacement cascades examined by molecular dynamics. *J. Nucl. Mater.* 2001. Vol. 294. P. 274–287.
45. Eldrup M., Singh B.N., *Mat. Sci. Forum.* 2001. Vol. 79. P. 363–365.

46. Gokhman A., Bergner F. Cluster dynamics simulation of point defect clusters in neutron irradiated pure iron. *Radiat. Eff. and Def. in Solids*. 2010. Vol. 165. P. 216-226.
47. Bergner, F., Almazouzi A., Hernandez-Mayoral M., Lambrecht, M., Ulbricht, A. In combined TEM, PAS and SANS investigations of neutron irradiated pure iron. *Nuclear Energy Agency*. 2008. Vol. 260. P. 283–290.
48. Ovcharenko, A.M., Golubov, S.I., Woo, C.H., Huang H., GMIC++: Grouping method in C++: an efficient method to solve large number of master equations comp. *Phys. Commun.* 2003. Vol. 152. Pol. 208–226.
49. Hirth, J.P., Pound, G.M. Pound: Condensation and Evaporation, Nucleation und Growth Kinetics; Band 11 der Serie “Progress in Material Science”, herausgegeben von bruce chalmers. *Pergamon Press*, 1963. Vol. 11. P. 190-200.
50. Konobeev, Yu.V., Dvoriashin A.M., Porollo S.I. Swelling and microstructure of pure Fe and Fe–Cr alloys after neutron irradiation to ~26 dpa at 400 °C. *J. Nucl. Mater.* 2006. Vol. 355. P. 124–130.
51. Singh, B.N., Eldrup, M., Golubov, S.I., Edwards, D.J., Jung, P. Final report on neutron irradiation at low temperature to investigate plastic stability and at high temperature to study cavitation. *RISO-R-1496*. 2005. P. 38-41.
52. Лифшиц Е. М., Питаевский Л. П. Физическая кинетика. — М.: Наука, 1979. 528 с.
53. O. Gokhman, M. Kondria. Cluster dynamics of the first kind phase transition in aged and irradiated materials. / «The ninth International Conference on Material Technologies and MMT-2016».- Ariel, Israel, July 25–29 2016. P. 3:42-3:51.
54. Gokhman A., Boehmert J., Ulbricht A. Kinetic study of copper precipitates under VVER-type reactor conditions. *Radiation Effects and Defects in Solids*. 2003. Vol. 158. P. 783–792.

55. The NAG Fortran Library www.nag.co.uk <https://www.nag.co.uk/nag-fortran-library>
56. Амосов А.А., Копченова Н.В., Дубинский Ю.А. Вычислительные методы для инженеров. М.: Высшая школа. 1994. 544 с.
57. LSODA is part of the ODEPACK provided by Alan C. Hindmarsh 1984 on the CASC server of the Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA 94551, USA. N.N.
58. Alekseenko A.D., Amaev I.B., Gorynin, Nikolaev V.A. Radiation damage to water-moderated water-cooled reactor vessel steel. Energoatomizdat. Moscow, 1981.
59. N. Alekssenko, A. Amaev, I. Gorynin, V. Nikolaev, Radiation Damage of nuclear power plant pressure vessel steels. American Nuclear Society, La Grande Park, Illinois, USA, 1997. 282 p.
60. Revorkyan Yu. R. Mechanisms of radiation embrittlement for NPP reactor pressure materials, Preprint IAE-4879/11, Moscow, 1989.
61. Amaev A., Rryukov A., Levit V., Sokolov M. Radiation stability of WWER-440 vessel materials. ASTM STR 1170. Philadelphia. 1993. 329 p.
62. Nikolaev V.A., Ryadkov L.N. The role of spectrum and density of neutron flux in radiation embrittlement of 15Kh2MFA steel and weld metal. *Radiation material science and structural strength of reactor materials*, S-Petersburg, 2002.
63. Odette G., Lucas G., Klingensmith R., Stoller R. On the Effect of Flux and Composition on Irradiation Hardening at 60°C. *Effects of Radiation on Materials*. 1996. P. 547-568.
64. Jones RB, Bolton CJ. Neutron irradiation embrittlement studies in support of continued operation and validation by sampling of Magnox reactor steel pressure vessels and components. *Twenty Fourth Water Reactor Safety Information Meeting*. 1996. Vol. 2. P. 25–48.

65. Suzuki M., Idei Y., Kizaki M., Onizawa K. Effects of damage rate on irradiation hardening and post-irradiation annealing characteristics of carbon steel. *Effects of Radiation on Materials*. 1999. P. 379-387.
66. Dochi K., Onchi T., Rano F., Fukuya K., Kayano H. Effect of neutron flux on low temperature irradiation embrittlement of reactor pressure vessel steel. *J. Nucl. Mater.* 1999. Vol. 265. P. 78– 90.
67. Yanagita S., Xu Q., Yoshiie T., Ino H. Neutron irradiation rate dependence of damage structures in Fe-Cu model alloys. *Effects of Radiation on Materials*. 2000. P. 516-524.
68. Xu Y., Jia X., Zhang , G. Ning, and Q. Yu. The Effects of Flux on Radiation Embrittlement of Low-Copper Pressure Vessel Steels . *ASTM STP 1366*. 2000. P.118–126
69. Petrequin P. A review of formulas for prediction irradiation embrittlement of reactor vessel materials, *AMES Report*. № 6, 1996. P. 28-36.
70. Langer R., Bartsch R., Foehl J. Irradiation results for different reactors, conference proceedings workshop on dose rate effects in reactor pressure vessel materials. *Conference Proceedings “ Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials*. Olympic Valley, USA. 2001.
71. Rosinski S., Server B. Consideration of Dose Rate in development of an Embrittlement Correlation for U.S. Reactor Pressure Vessel Steels. *Conference Proceedings “ Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials”*. Olympic Valley, USA, 2001.
72. Server B., English C., Rosinski S. Critical review of embrittlement attenuation trough a reactor pressure vessel wall: influence of dose rate. *Conference Proceedings “Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials”*. Olympic Valley, USA, 2001.
73. Suzuki M., Onizava K., Idei Y., Iskander Sh. Evaluation of Mechanical Properties on a Decommissioned Reactor Pressure Vessel. *Conference*

- Proceedings “Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials”*. Olympic Valley, USA, 2001.
74. Dochi K., Soneda N., Onchi T., Ishino S., Odette G., Lucas G. Dose Rate Effect in Low Copper Steels Irradiated in FNR. *Conference Proceedings “Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials”*. Olympic Valley, USA, 2001.
75. Odette G.R., Lucas G.E., Klingensmidt R.D. Recent data and Analysis on Flux Effects on RPV Embrittlement. *Conference Proceedings “Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials”*. Olympic Valley, USA, 2001.
76. Chernobaeva A.A., Rryukov A.M., Amaev A.D., Erak D. Yu., Platonov P.A., Shtrombakh Ya.I. The role of flux effect on radiation embrittlement of vver-440 reactor pressure vessel materials. *Proceeding of IAEA specialist meeting on irradiation embrittlement and mitigation*. Kristal Goos, Russia. 2004.
77. Stoller R.E., Annual Book of ASTM Standards. Philadelphia, USA. 2004. 300 p.
78. Radiguet B., Pareige P., Barbu A., Study of the formation of solutes diffuse agglomerations under irradiation in ferritic standard alloys. *Conference pluridisciplinaire sur les materiaux (Dijon, 13-17 Nov. 2006)*. France. 2006. Vol. 39. P. 12-22.
79. Ballesteros A., Ahlstrand R., Bruynooghe C., Chernobaeva A., Kevorkyan Y., Erak D., Zurko D. Irradiation temperature, flux and spectrum effects. *Progress in Nuclear Energy*. 2011. Vol. 53. P.756-759.
80. Ulbricht A 2006 Thesis TU Bergakademie Freiberg, Germany
81. Ke H., Wells P., Edmondson P.D., Almirall N., Barnard L., Odette G.R., Morgan D. Thermodynamic and kinetic modeling of Mn-Ni-Si precipitates in low-Cu reactor pressure vessel steels. *Acta Mater*. 2017. Vol. 138. P. 10-26.

82. Odette G R, Yamamoto T., Klingensmith D. On the effect of dose rate on irradiation hardening of RPV steels. *Phil. Mag.* 2005. Vol. 85. P. 779–797.
83. Wells P.B., Yamamoto T., Miller B., Milot T., Cole J., Wu Y., Odette G.R. Evolution of manganese-nickel-silicon-dominated phases in highly irradiated reactor pressure vessel steels. *Acta Mater.* 2014. Vol. 80. P. 205-219.
84. Wells P., Almirall N., Yamamoto T., Odette G. On developing a mechanistic model and supporting database to predict high fluence-low flux extended life RPV embrittlement: status, challenges and opportunities. *Transactions of the American Nuclear Society.* 2014. Vol. 111. P. 451-453..
85. Watanabe H., Masaki S., Masubuchi S., Yoshida N., Kamada Y. Radiation induced hardening of ion irradiated RPV steels. *J. Nucl. Mater.* 2011. Vol. 417. P. 932-935.
86. Odette G. R. On the dominant mechanism of irradiation embrittlement of reactor pressure vessel steels. *Scr. Metall.* 1983. Vol. 11. P. 1183–1188.
87. Odette G. R., Lucas G. E. Recent progress in understanding reactor pressure vessel steel embrittlement. *Radiat. Eff. Defects Solids.* 1998. Vol. 144. P. 189–231.
88. Odette G. R., Wirth B. D., Bacon D. J., Ghoniem N. M. Multiscale-multiphysics modeling of radiation-damaged materials: embrittlement of pressure-vessel steels. *MRS Bull.* 2001. Vol. 26. P. 176–181.
89. Jumel S., Van Duysen J. C. INCAS: an analytical model to describe displacement cascades. *J. Nucl. Mater.* 2004. Vol. 328. P. 151–164.
90. Jumel S., Van Duysen J. C. RPV-1: a virtual test reactor to simulate irradiation effects in light water reactor pressure vessel steels. *J. Nucl. Mater.* 2005. Vol. 340. P. 125–148.
91. Jumel S., Van Duysen J. C., Ruste J. Domain C. Interactions between dislocations and irradiation-induced defects in light water reactor pressure vessel steels. *J. Nucl. Mater.* 2005. Vol. 346. P. 79–97.

92. Bergner F., Ulbricht A., Hein H., Kammel M. Flux dependence of cluster formation in neutron-irradiated weld material. *Journal of Physics Condensed Matter*. 2008. Vol 20. P. 104262-104268.
93. Stoller R. E. The effect of neutron flux on radiation-induced embrittlement in reactor pressure vessel steels *Effects of Radiation on Materials*. ASTM STP 1447. USA, West Conshohocken, PA. 2003. P. 326–338.
94. Kobayashi S., Kikuchi H., Takahashi S., Kamada Y., Ara K., Yamamoto T., Klingensmith D., Odette G.R. Neutron irradiation effects on magnetic minor hysteresis loops in nuclear reactor pressure vessel steels. *Philosophical Magazine*. 2008. Vol. 88. P. 1791-1800.
95. Monasterio P. R., Wirth B. D., Odette G, R. Kinetic Monte Carlo modeling of cascade aging and damage accumulation in Fe–Cu alloys *J. Nucl. Mater.* 2007. Vol. 361. P. 127–140.
96. Soneda N., Ishino S., Takahashi A., Dohi K. Modeling the microstructural evolution in bcc-Fe during irradiation using kinetic Monte Carlo computer simulation. *J. Nucl. Mater.* 2003. Vol. 323. P. 169–180.
97. Odette G. Radiation induced microstructural evolution in reactor pressure vessel steels. *MRS Soc, Materials Research Society Symposium*. 1995. Vol. 373. P. 137-148.
98. Odette G. R. Modeling irradiation embrittlement in reactor pressure vessel steels. International Atomic Energy Agency. Vienna. 1998. 550 p.
99. Odette G. R., Wirth B. D. A computational microscopy study of nanostructural evolution in irradiated pressure vessel steels. *J. Nucl. Mater.* 1997. Vol. 251. P. 157–171.
100. Eason E. D., Wright J. E., Odette G. R. Improved embrittlement correlations for reactor pressure vessel steels. Nuclear Regulatory Commission. USA, Washington. 1998. 134 p.
101. Server W. L., English C. A., Naiman D. Q., Rosinski S. T. Charpy embrittlement correlations: status of combined mechanistic and statistical

- bases for U.S. RPV Steels. Palo Alto, CA: Electric Power Research Institute 2001. EPRIMRP-45 Report 1000705
102. Debarberis L., Acosta B., Sevini F., Chernobaeva A., Kryukov A. Fluence rate effect semi-mechanistic modelling on WWER-type RPV welds. *J. Nucl. Mater.* 2006. Vol. 350. P. 89–95.
103. Keiderling U. Wiedenmann A. New SANS Instrument at the BER II Reactor in Berlin, Germany. *Physica B: Condensed Matter.* 1995. Vol. 213. P. 895 – 897.
104. Mansur L. K. Void swelling in metals and alloys under irradiation: an assessment of the theory. *Nucl. Technol.* 1978. Vol. 40. P. 5–34.
105. Maury F., Lorenzelli N., Mathon M., De Novion C., Lagarde P. Copper precipitation in FeCu, FeCuMn, and FeCuNi dilute alloys followed by X-ray absorption spectroscopy. *J. of Physics: Condensed Matter.* 1994. Vol. 6 №2. P. 569-588.
106. Ulbricht A., Bohmert J. Small angle neutron scattering analysis of the radiation susceptibility of reactor pressure vessel steels. *Physica.* 2004. Vol. 350. P. 483–486.
107. Ulbricht A., Bohmert J., Viehrig H. W. Microstructural and mechanical characterization of radiation effects in model reactor pressure vessel steels *J. ASTM Int.* 2005. Vol. 2 №10. P. 151-162.
108. Ulbricht A., Bergner F., Dewhurst C. D., Heinemann A. Small-angle neutron scattering study of post-irradiation annealed neutron irradiated pressure vessel steels. *J. Nucl.Mater.* 2006. Vol. 353. P. 27–34.
109. Reed G. Tarnuzzer E. Examine Yankee plant performance in 1965. *Nucleonics.* 1966. Vol. 24, № 3. P. 42-45.
110. Hernandez Mayoural M., Gomez-Briceno D. Transmission electron microscopy study on neutron irradiated pure iron and RPV model alloys. *Journal of Nuclear Materials.* 2010. Vol. 399. P. 146-153.

111. Hernandez-Mayoral M. Effect of neutron flux on neutron-induced microstructure of RPV materials. EU-FP7, project LONGLIFE, Deliverable. D 3.4. 2013.
112. Jansson V., Malerba L. OKMC simulations of Fe-C systems under irradiation: Sensitivity studies. *J. Nucl. Mater.* 2014. Vol. 452. P. 118-124.
113. Kondria M., Gokhman A. Cluster dynamics simulation of the flux effect for neutron irradiated pure iron. *Radiation Effects and Defects in Solids*. 2019. Vol. 174. P. 56-65.
114. Gokhman A., Caturla M., Bergner F. Damage accumulation in pure iron and high concentrated Fe-12.5 at%Cr alloy: comparison between object kinetic Monte Carlo and cluster dynamics. *Radiation Effects and Defects in Solids*. 2014. Vol. 169. P. 185-193.
115. Bergner F., Lambrecht M., Ulbricht A., Almazouzi A. Comparative small-angle neutron scattering study of neutron-irradiated Fe, Fe-based alloys and a pressure vessel steel. *Journal of Nuclear Materials*. 2010. Vol. 399. P. 129–136.
116. Buswell J.T., English C.A., Hetherington M.G., Phythian W.J., Smith D.W, Vorall G.M. *Proceedings of the 14th International symposium on effects of irradiation in materials*, Vol. 2, Andover, MA, USA, ASTM-STP 1046, 1988, p. 127.
117. Odette G. R., Mader E. V., Lucas G. E., Phythian W. J., English C. A., 16th International symposium on the effects of radiation on materials, ASTM-STP 1175. Philadelphia ,PA. American Society for Testing and Materials. 1993. 373 p.
118. A. Wagner, F. Bergner, R. Chaouadi, H. Hein, M. Hernandez-Mayoural, M. Serrano, A. Ulbricht, E. Altstadt, Effect of neutron flux on the characteristics of irradiation-induced nanofeatures and hardening in pressure vessel steels, *Acta Materialia* **104** (2016) 131-142.

119. Hu X., Donghua X., Sang B. T., Wirth B. Modeling of irradiation hardening of iron after low-dose and low-temperature neutron irradiation. *Modelling and Simulation in Material Science and Engineering*. 2014. Vol. 22. P. 065002-065029.
120. Lambrecht M., Meslin E., Malerba L., Hernández-Mayoral M., Bergner F., Pareige P., Radiguet B., Almazouzi A. On the correlation between irradiation-induced microstructural features and the hardening of reactor pressure vessel steels. *Journal of Nuclear Materials*. 2010. Vol. 406. P. 84–89.
121. Matijasevic M., Almazouzi A. Effect of Cr on the mechanical properties and microstructure of Fe Cr model alloys after n-irradiation. *Journal of Nuclear Materials*. 2008. P. 147–154.
122. Bergner F., Gillemot F., Hernández-Mayoral M., Serrano M., Török G., Ulbricht A., Altstadt E. Contributions of Cu-rich clusters, dislocation loops and nanovoids to the irradiation-induced hardening of Cu-bearing low-Ni reactor pressure vessel steels. *Journal of Nuclear Materials*. 2015. Vol. 461. P. 37–44.
123. Скалозубов В., Габлая Т., Козлов И., Лещетная Е. Критеріальний метод оцінки умов виникнення термоудару на корпус реактора. *Атомная энергетика*. 2014. №15. С. 43-48.
124. Williams T., Ellis D., O'Connell W. Dose rate effects in high and low nickel welds. *Conference Proceedings, Workshop on Dose Rate Effects in Reactor Pressure Vessel Materials/ Olympic Valley, CA*. 2001.
125. https://www.rnpp.rv.ua/assets/DocSite/czentr/prosto_o_slojnom.pdf
126. Афров А.М. и др . ВВЭР-1000: физические основы эксплуатации, ядерное топливо, безопасность. М.: Университетская книга, Логос, 2006. — 488 с.
127. О. Р. Гохман, М. С. Кондря, Т. С. Совкова. Дослідження методом кластерної динаміки впливу зміни температури на нейтронну крихкість

- α -заліза. // Вісник Черкаського університету, серія фізико-математичні науки №1, 2018, с. 12-20.
128. М. С. Кондря, О.Р. Гохман. До оцінки впливу термічного шоку на механічні властивості корпусів високого тиску реакторів атомних станцій. / «International Conference of Students and Young Researchers in Theoretical and Experimental Physics “HEUREKA-2019».— Lviv, Ukraine, May 14-16, 2019. P. 21.
129. О. Р. Гохман, М. С. Кондря. Використання методу кластерної динаміки для моделювання кінетики процесів «лікування» реакторних сталей шляхом відпалу. «Міжнародна конференція студентів і молодих науковців з теоретичної та експериментальної фізики ЕВРИКА-2017». – Львів, Україна, 16–18 травня, 2017. С. 19.
130. М. С. Кондря. Залежність дефектної структури реакторних сталей від флакса та температури. / II Всеукраїнська науково-практична конференція здобувачів вищої освіти і молодих «Фізичні процеси в енергетиці, екології та будівництві». - Одеса, Україна, 11 – 12 квітня, 2019. С. 6.
131. О. Р. Гохман, М. С. Кондря, О. Х. Тадеуш. Вплив зміни температури на початку та наприкінці опромінення в науково-дослідному реакторі на нейтронну крихкість α -заліза. // *Металофізика та новітні технології (Scopus)*, т. 42, № 6, 2019, с. 717–732.
132. Zeman A., Debarberis L., Kupca L., Acosta B., Kutka M., Degmova J. Study of radiation induced degradation of RPV steels and model alloys by positron annihilation and Moessbauer spectroscopy. *Journal of Nuclear Materials*. 2007. Vol. 360. P. 272–281.
133. Lambrecht M., Jardin M., Almazouzi A. Positron annihilation study of alloys for fission and fusion technology. *Phys. Stat. Sol.* 2007. Vol. 4. P. 3477-3480.

134. O. R. Gokhman, M. S. Kondria. Effect the temperature change of material test reactor on calibration of cluster dynamics for neutron irradiation pure iron. // *J_Nano_Electron_Phys (Scopus)*, vol. 11 № 4, 2019, p. 04025-1-04025-4.
135. Марголин Б. З., Гуленко А.Г., Курсевич И.П., Бучатский А.А. Моделирование разрушения материалов при длительном статическом нагружении в условиях ползучести и нейтронного облучения. Сообщение 1. Физико-механическая модель. *Проблемы прочности*. — 2006. № 3. С. 5-22.
136. Lucon E., Abiko K., Lambrecht M., Rehmer B. Tensile Properties of Commercially Pure, High-Purity and Ultra-High-Purity Iron: Results of an International Round-Robin. National Institute of Standards and Technology Technical Note 1879. 36 .
137. Speight M. V., Beere W. Vacancy potential and void growth on grain boundaries. *Metal Sci.* 1975. Vol. 9. P. 180 - 191.
138. О. Р. Гохман, М. С. Кондря, Т. С. Совкова. Оцінка еволюції пор у α -залізі під нейтронним опроміненням. // Вісник Черкаського університету, серія фізико-математичні науки №1, 2019, с. 29-36.
139. Neu R., Bobkov V., Dux R. Kallenbach A. Final steps to an all tungsten divertor tokamak. *J. Nucl. Mater.* 2007. Vol. 363-365. P. 52-59.
140. Bolt H, Barabash V., Federici G., Linke J., Loarte A., Roth J., Sato K. Plasma facing and high heat flux materials - needs for ITER and beyond. *J. Nucl. Mater.* 2001. Vol. 307-311. P. 43-52.
141. Bolt H., Barabash V., Krauss W., Linke J., Neu R., Suzuki S., Yoshida N. Materials for the plasma-facing components of fusion reactors. *J. Nucl. Mater.* 2001. Vol. 329-333. P. 66-73.
142. Neu R., Balden M., Bobkov V. et al. Plasma wall interaction and its implication in an all tungsten divertor tokamak. *Plasma Physics Controlled Fusion*. 2007. Vol. 49 № 12. P. B59-B70.

143. Neutron Irradiation Behavior of Tungsten Akira Hasegaw, Makoto Fukuda, Takashi Tanno and Shuhei Nogami
144. Kuhlmann H.H., Schultz H. Recovery stage III in decarbonized tungsten after neutron irradiation at 4.5 deg K. *Acta Met.* 1966. Vol. 14. P. 798-800.
145. Kunz W., Faber K., Lachermann R., Schultz H. recovery of the electrical resistivity of tungsten following electron irradiation at low temperature. *International conference on defects in refractory.* Mol Belgium . 1972.
146. Schultz H. The recovery of the electrical resistivity of cold-worked tungsten. *Acta Met.* 1964. Vol. 12. P. 649-664.
147. Pichon R., Bichon P., Moser P. Étude des pics de frottement interieur dans le molybdene apres irradiation aux neutrons a 27 K. *J. de Physique Colloques.*1971. Vol. 32. P. 12-15.
148. Pichon R., Vanon F., Bicion P., de Keatinf-Hart G., P. Moser, Étude des défauts ponctuels dans le niobium. *Rev. Phys.* 1970. Vol. 5 № 3. P. 427–436.
149. Stals L., Nihkul J. The recovery of cold-worked molybdenum. *Physica.* 1969. Vol. 45. P.165-178.
150. Stals L., Goedeme G., Nihoul J. Defects in refractory metals. Ed. De Batist, J. Nihoul and L. Stals CEN, Mol Belgium.1972. 393 p.
151. L. Brimhall , H. E. Kissinger, and G. L. Kulcinski. The effect of temperature on void formation in irradiated pure and impure metals. Washington, USA. 1971. 45 p.
152. DiCarlo, J.A. 1994. Creep limitations of current polycrystalline ceramic fibers. *Composites Science and Technology* 51(2): 213–222.
153. Burck P., Köthe A., Werth F. R. Isochronal Annealing of molybdenum quenched from various atmospheres. *Physical status solidi.* 1969. Vol. 36. P.K171-K176.
154. Burck P., Apel G. Zum verfestigungsverhalten verunreinigter zinkeinkristalle. *Physical status solidi.* 1964. Vol. 5. P. 47-50.

155. Scanlan R.M., Styris D.L., Seidman D.N. An in-situ field ion microscope study of irradiated tungsten. *Phil. Mag.* 1971. Vol. 23. P.1459 -1478.
156. Pichon R., Bisogni E., Moser P. Frottement interne dans le zirconium irradié aux neutrons à 77. *Radiation Effects.* 1973. Vol. 20. P.159-168.
157. Stals L., Goedeme G., Nihoul J. Defects in refractory metals. Ed. De Batist, J. Nihoul and L. Stals CEN, Mol Belgium.1972. 393 p.
158. Moser P. Defects in refractory metals. Ed. deBatist, J. Nihoul and L. Stals CEN, Mol Belgium.1972. 393 p.
159. Afman H.B., Mooy J.H., Rademaker H. Radiation damage and stage III annealing of molybdenum. *Scripta met.* 1970. Vol. 4. P. 545-547.
160. Eyre B. L. Direct Observations of Neutron Irradiation Damage in α -Iron. 1962 - *Philosophical Magazine/* 1962. Vol. 7. P. 2107-2113.
161. De Batist R., Nihoul J., L. Staals. Defects in Refractory Metals. Studiecentrum voor Kernenergie. S.C.K./C.E.N. Mol, Belgium, 1972.
162. Arsenault R. J. Proceedings of the nuclear energy. *International Conference on Defects and Defect Clusters in B.C.C. Metals and their alloys.*National Bureau of Standards, Gaithersburg, Maryland, 1973. Vol. 18.
163. Corbett J. W., Smith R. B., Walker R. M. Recovery of electron-irradiated copper. *Recovery Phys. Rev.* 1959. Vol. 114. P.14-52.
164. Frank W. Seeger A. A critique of the unsaturable trap model of radiation damage. *Rad. Effects* . 1975. Vol. 25. P. 17-26.
165. Corbett, J. W. Electron radiation damage in semiconductors and Metals. *Solid State Physics, Suppl.* 1966. Vol. 7. P. 192–195.
166. Frank, W. Defects in Refractory Metals Eds. Batist, R. D., Nihoul, J. & Stals, L. SCK/CEN, Mol.1972. 393 p.
167. Trinkaus H., Singh B. N., Foreman A. J. Glide of interstitial loops produced under cascade damage conditions: Possible effects on void formation. *J Nucl Mater.* 1992. Vol.199. P. 1–5.

168. Borodin V. A., Ryazanov A. I. Swelling modification by one-dimensional diffusion of cascade-produced small interstitial clusters. *J Nucl Mater.* 1998. Vol. 256. P. 47–52.
169. Barashev A. V., Golubov S. I., Trinkaus H. Reaction kinetics of glissile interstitial clusters in a crystal containing voids and dislocations. *Philosophical Magazine.* 2001. Vol. A 81. P. 2515–2532.
170. Semenov A. A., Woo C. H. Void lattice formation as a nonequilibrium phase transition. *Physical Review.* 2006. Vol. 74. P. 15-20.
171. Jansson V., Malerba L., De Backer A., Becquart C. S., Domain, C. Sink strength calculations of dislocations and loops using OKMC. *J Nucl Mater.* 2013. Vol. 442. P. 218–226.
172. Gösele U., Seeger A. Theory of bimolecular reaction rates limited by anisotropic diffusion. *Philos Mag.* 1976. Vol. 34. P. 177–193.
173. Amino T., Arakawa K., Mori, H. Reaction rate between 1D migrating self-interstitial atoms: an examination by kinetic Monte Carlo simulation. *Philos Mag.* 2011. Vol. 91. P. 3276–3289.
174. Gary S. W. Fundamentals of radiation Materials Science. Springer, Berlin. 2007. 345 p.
175. Schilling W. Self-interstitial atoms in metals. *J Nucl Mater.* 1978. Vol. 69–70. P. 465–489.
176. Wollenberger H. J. Point Defects In: Physical Metallurgy, Part II (eds. Cahn, R. W. & Haasen, P.). North Holland Physics Publishing, Amsterdam 1983. 232 p.
177. DiCarlo J. A., Snead C. L., Goland A. N. Stage-I interstitials in electron-irradiated tungsten. *Physical Review.* 1969. Vol. 178. P. 1059–1072.
178. Okuda S., Mizubayashi H. Free Migration of interstitials in tungsten. *Physical Review.* 1975. Vol. 34. P. 815–817.
179. Domain, C., Becquart C. S. Ab initio calculations of defects in Fe and dilute Fe-Cu alloys. *Physical Review.* 2001. Vol. 65. P. 024103-024110.

180. Nguyen-Manh D., Horsfield, A. P., Dudarev, S. L. Self-interstitial atom defects in bcc transition metals: Group-specific trends. *Physical Review*/ 2006. Vol. 73. P.020101-020113.
181. Amino T.. Detection of one-dimensional migration of single self-interstitial atoms in tungsten using high-voltage electron microscopy. *Scientific Reports*. 2016. Vol. 6. P. 1-10.
182. Arakawa K. et al. Observation of the one-dimensional diffusion of nanometer-sized dislocation loops. *Science*. 2007. Vol. 318. P. 956–959
183. Suenaga K. et al. Imaging active topological defects in carbon nanotubes. *Nature Nanotechnology*. 2007. Vol. 2. P. 358–360.
184. Rottler J., Srolovitz D. J., Car R. Point defect dynamics in bcc metals. *Physical Review*. 2005. Vol. 71. P. 064109-064114.
185. Ortiz C. J., Caturla M. J. Simulation of defect evolution in irradiated materials: Role of intracascade clustering and correlated recombination. *Physical Review*. 2007. Vol. 75. P. 184101-184114.
186. Björkas C., Nordlund K., Caturla M. J. Influence of the picosecond defect distribution on damage accumulation in irradiated α -Fe. *Physical Review*. 2011. Vol. 85. P. 024105-024105.
187. Xu D., Wirth, B. D., Li, M., Kirk, M. A. Defect microstructural evolution in ion irradiated metallic nanofoils: Kinetic Monte Carlo simulation versus cluster dynamics modeling and in situ transmission electron microscopy experiments. *Applied Physics Letters*. 2012. Vol.101. P. 101905-101908.
188. Derlet P. M., Nguyen-Manh D., Dudarev S. L. Multiscale modeling of crowdion and vacancy defects in body-centered-cubic transition metals. *Physical Review*. 2007. Vol.76. P. 054107-054111.
189. Guinan M. W., Stuart R. N., Borg R. J. Fully dynamic computer simulation of self-interstitial diffusion in tungsten. *Physical Review*. 1977. Vol. 15. P. 699–710.

190. Carlberg M. H., Münger, E. P., Hultman L. Dynamics of self-interstitial structures in body-centred-cubic W studied by molecular dynamics simulation. *Journal of Physics*. 2000. Vol. 12. P. 79–86.
191. Zhou W. H., Li, Y. G., Huang L. F., Zeng Z., Ju X. Dynamical behaviors of self-interstitial atoms in tungsten. *J Nucl Mater*. 2013. Vol. 437. P. 438–444.
192. Fikar J., Schäublin R. Molecular dynamics simulation of radiation damage in bcc tungsten. *J Nucl Mater*. 209. Vol. 386–388. P. 97–101.
193. Fitzgerald, S. P., Nguyen-Manh, D. Peierls potential for crowdions in the bcc transition metals. *Physical Review*. 2008. Vol. 101. P. 115504- 115509.
194. Ahlgren T., Heinola K., Juslin N., Kuronen A. Bond-order potential for point and extended defect simulations in tungsten. *Journal of Applied Physics*. 2010. Vol. 107. P. 033516-033519.
195. Dausinger F., Schultz, H. Long-range migration of self-interstitial atoms in tungsten. *Physical Review*. 1975. Vol. 35. P.1773–1775.
196. Scanlan R. M., Styris D. L., Seidman D. N. An in-situ field ion microscope study of irradiated tungsten. *Philos Mag*. 1971. Vol. 23. P. 1459–1478.
197. Gokhman A., Pecko S. and Slugeň V. Simulation of nanostructure evolution under helium implantation in Fe-(2.5-12.5)at% Cr alloys at temperature of 343K. *Radiation Effects and Defects in Solids*. 2015. Vol. 170. P . 745-757.
198. Fikar J., Schaublin R. Atomistic simulations of nanometric dislocation loops in bcc tungsten. *Nucl. Instr. Methods Phys. Res*. 2009. Vol. 267. P. 3218–3222.
199. Dieter G. E. Mechanical Metallurgy engineering series. London, symmetric edition. : McGraw-Hill Book Company. England. 1988.
200. Li Y. G., Zhou W. H., Ning R. H., Huang L. F., Zeng Z., Ju X. Cluster dynamics model for accumulation of helium in tungsten under helium ions and neutron irradiation. *Commun. Comput. Phys*. 2012. Vol. 11. P. 1547-1568.

201. Satta A., Willaime F., Stefano de Gironcoli. Vacancy self-diffusion parameters in tungsten: Finite electron-temperature LDA calculations. *Phys. Rev.* 1998. Vol. 57. P. 11184.
202. Withop A. The diffusion of carbon into tungsten. PhD Thesis, The University of Arizona, United States. 1966.
203. Aleksandrov L. N. Fundamentals of the theory of elasticity and plasticity. *Zavodskaya Laboratoriya.* 1976. Vol. 25. P. 925-935.
204. Bushmer C. P., Crayton P. H. Carbon Self-Diffusion in Tungsten Carbide. *Journal of Material Science.* 1971. Vol. 6. P. 981-988.
205. Yue-Lin Liu, Hong-Bo Zhou, Shuo Jin, Ying Zhang, Guang-Hong Lu. Dissolution and diffusion properties of carbon in tungsten. *J. Phys.* 2010. Vol. 22 – P. 445504-45510.
206. Tyson W. R., Miller W. A., Surface free energies of solid metals: Estimation from liquid surface tension measurements. *Surface Science* 1977. Vol. 62. P. 267-276.
207. Miller W. R. Surface free energies of solid metals: Estimation from liquid surface tension measurements. *Surface Science.* 1977. Vol. 62. P. 267
208. М. С. Кондря, О. Р. Гохман. Ізохронний відпал електронно-опроміненого вольфраму, моделювання за методом кластерної динаміки: 1D та 3D модель дифузії міжвузельного атому. // *Фізика і хімія твердого тіла* т. 19, № 1, 2018, с. 5-13.
209. A. Gokhman, D. Terentyev, M. Kondria. Isochronal annealing of electron-irradiated tungsten modelled by КД method: Influence of carbon on the first and second stages of recovering. // *Вісник Черкаського університету, серія фізико-математичні науки* №1, 2017, с. 29-37.
210. Nguyen-Manh D. Modelling of Point Defect-Impurity Interaction in Tungsten and other Bcc Transition Metals. *Advanced Materials Research.* 2009. Vol. 59. P. 253-256.

211. Gear C.W. Numerical initial value problems in ordinary differential Equations. Gear. NJ.: Prentice-Hall, Englewood Cliffs. USA. 1971.
212. Neely H., Keeper D. W., Sosin A. Electron irradiation and recovery of tungsten. *Phys. stat. sol.* 1968. Vol. 28. P. 675-682.
213. Ngayam-Happy R., Olsson P., Becquart C.S., Domain C. Isochronal annealing of electron-irradiated dilute Fe alloys modelled by an ab initio based AKMC method: Influence of solute–interstitial cluster properties. *Journal of Nuclear Materials*. 2010. Vol. 407. P. 16–28.
214. Becquart C. S., C. Domain, U. Sarkar, and et al. Microstructural evolution of irradiated tungsten: Ab initio parameterisation of an OKMC model. *J. Nucl. Mater.* 2010. Vol. 403. P. 75-88.
215. Xiang-Shan Kong, Xuebang Wua, Yu-Wei You, C.S. Liu, Q.F. Fang, Jun-Ling Chen, G.-N. Luo, Wang, Zhiguang. First-principles calculations of transition metal–solute interactions with point defects in tungsten. *Acta Materialia*. 2014. Vol. 66. P. 172-183.