

НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
ІНСТИТУТ ПРИКЛАДНОЇ ФІЗИКИ

Кваліфікаційна наукова
праця на правах рукопису

Скороход Роман Володимирович

УДК 538.9, 621.039.53

ДИСЕРТАЦІЯ

РАДІАЦІЙНО-ІНДУКОВАНА СЕГРЕГАЦІЯ В КОНЦЕНТРОВАНИХ
МЕТАЛЕВИХ СПЛАВАХ Fe-Cr ТА Fe-Cr-Ni

104 – Фізика та астрономія
Фізико-математичні науки

Подається на здобуття наукового ступеня доктора філософії

Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей, результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело

_____ Р.В. Скороход
(підпис, ініціали та прізвище здобувача)

Науковий керівник – Коропов Олександр Володимирович, кандидат фізико-математичних наук, старший науковий співробітник, доцент

СУМИ – 2024

АНОТАЦІЯ

Скороход Р.В. Радіаційно-індукована сегрегація в концентрованих металевих сплавах Fe-Cr та Fe-Cr-Ni. – Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 104 – Фізика та астрономія. – Інститут прикладної фізики Національної академії наук України, Суми, 2024.

Дисертацію присвячено послідовному моделюванню радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих сплавах Fe-Cr і Fe-Cr-Ni на основі системи нелінійних диференціальних рівнянь в частинних похідних, числовим розрахункам та порівняльному аналізу визначальних кількісних характеристик радіаційно-індукованої сегрегації за різних умов опромінення та теоретичному дослідженню пізньої стадії рівноважної сегрегації домішки на міжзеренній межі по механізму визрівання Оствальда.

У роботі представлено літературний огляд важливих результатів, що стосуються провідних досліджень явища радіаційно-індукованої сегрегації (РІС) та визрівання Оствальда (ВО). Розглянуто основні механізми РІС та моделі РІС як в концентрованих так і в розбавлених металевих сплавах. Обговорено експериментальні результати стосовно збагачення або збіднення Cr та інших компонентів на стоках точкових дефектів (поверхнях зразка, міжзеренних межах, межах між фазами, порах, тощо) в сплавах на основі Fe під дією опромінення.

Детально розглянуто модель РІС для концентрованих металевих сплавів, яка базується на першому і другому законах Фіка з урахуванням оберненого ефекту Кіркендала. В даній роботі для моделювання РІС використано саме цю модель, яка з достатньо високою точністю описує зміну концентрацій компонентів за умов опромінення в сплавах Fe-Cr та Fe-Cr-Ni. Математична реалізація цієї моделі призводить до системи зв'язаних нелінійних диференціальних рівнянь в частинних похідних з відповідними початковими та граничними умовами. Обговорено алгоритм розв'язання системи рівнянь РІС у випадку плоскої геометрії зразків з постійною товщиною ℓ . Систему диференціальних рівнянь РІС розв'язано

чисельно для сплавів Fe-Cr та Fe-Cr-Ni за актуальних для експерименту умов опромінення.

Для N-компонентних концентрованих металевих сплавів виділено визначальні кількісні характеристики РІС. До таких ми відносимо наступні: концентраційні профілі компонентів сплаву і точкових дефектів (ТД), поверхневу концентрацію атомів компонентів сплаву, величину поверхневого збагачення (збіднення) атомів, повну ширину концентраційного профілю атомів на рівні половини максимального збагачення (збіднення), сегрегаційну площу атомів та дискримінант РІС атомів в стаціонарному режимі. Відмітимо, що найбільш важливим характеристиками РІС є концентраційні профілі компонентів сплаву та поверхневі збагачення, які несуть основну інформацію про зміну локального складу сплаву та безпосередньо досліджуються в експерименті.

В роботі методом комп'ютерного моделювання проведено дослідження РІС в модельних бездислокаційних зразках сплаву Fe-9Cr та в зразках з різною густиною дислокацій в дислокаційній підсистемі.

Для бездислокаційного шару сплаву Fe-9Cr детально проаналізовано вплив швидкості продукування ТД, набраної дози, температури та товщини зразка на визначальні кількісні характеристики РІС. Показано, що для сплаву Fe-9Cr поверхнева концентрація Cr найбільш суттєво залежить від енергій міграції вакансій та міжвузельних атомів Fe і Cr.

Для сплаву Fe-9Cr продемонстровано процес досягнення стаціонарного режиму РІС при збільшенні дози опромінення, вихід на який спостерігається при дозі $D=1$ зна. В той же час концентраційні профілі вакансій та міжвузельних атомів мало змінюються при $D>10^{-3}$ зна. Показано, що в процесі опромінення (зі збільшенням дози) крутизна концентраційного профілю Cr зменшується, а значення поверхневої концентрації Cr, сегрегаційної площі Cr та повної ширини концентраційного профілю атомів Cr на рівні половини максимального збагачення збільшується.

Показано, що в сплаві Fe-9Cr з ростом температури дифузійні процеси «розмивають» концентраційні профілі Cr, а також збільшують значення

поверхневої концентрації Cr, яке досягає максимального значення при певній температурі та потім суттєво спадає. Зазначена поведінка поверхневої концентрації Cr виникає, оскільки має місце конкуренція двох процесів: відносно високої рекомбінації ТД при низьких температурах та сильної зворотної дифузії при високих температурах. Якісно аналогічна температурна залежність з максимумом спостерігається і для сегрегаційної площі Cr. Значення повної ширини концентраційного профілю атомів Cr на рівні половини максимального збагачення зі збільшенням температури спочатку зростає, а потім прямує до постійної величини.

Встановлено, що для сплаву Fe-9Cr зі збільшенням швидкості продукування радіаційних ТД K_0 концентраційні профілі Cr «звужуються». Відмітимо, що при відносно низьких температурах $T < 300^\circ\text{C}$ концентраційні профілі Cr (як і інші зазначені вище визначальні характеристики РІС), розраховані для різних значень швидкості продукування ТД, мало відрізняються. При відносно високих температурах значення поверхневого збагачення Cr та сегрегаційної площі Cr з ростом швидкості продукування ТД спочатку збільшуються, досягають максимальних значень та спадають. Такий характер обговорюваних залежностей пов'язаний зі збільшенням відносної концентрації ТД за рахунок радіаційної генерації ТД при низьких значеннях швидкості продукування ТД та великою швидкістю анігіляції ТД при високих значеннях K_0 . Значення повної ширини концентраційного профілю атомів Cr на рівні половини максимального збагачення спадає зі збільшенням швидкості продукування ТД.

Достатньо очевидно, що в моделі з ідеальними стоками ТД (концентрації ТД на поверхні зразку дорівнюють нулю) ефекти зворотної дифузії будуть послаблюватися в порівнянні з моделлю з термодинамічно рівноважними граничними концентраціями ТД. Тоді, як нами показано, при низьких швидкостях продукування ТД та високих температурах ефекти РІС в моделі з ідеальними стоками ТД проявляються більш яскраво.

Детально досліджено вплив дислокаційної підсистеми в сплаві Fe-9Cr на визначальні кількісні характеристики РІС. Проаналізовано концентраційні профілі

Cr для зразків сплаву зі значеннями густин дислокацій $\rho_D=10^{12}, 10^{14}, 10^{16} \text{ м}^{-2}$ при різних набраних дозах опромінення та швидкостях продукування ТД. Показано, що в сплаві Fe-9Cr зі збільшенням густини дислокацій в дислокаційній підсистемі сплаву, яка є природним стоком ТД, зменшуються концентрації ТД. Це призводить до зменшення дифузійних потоків атомів Cr та Fe, які пов'язані з дифузійними потоками ТД, і як наслідок, до зменшення значень збагачення Cr та сегрегаційної площі Cr. Встановлено, що висока густина дислокацій та велика швидкість продукування радіаційних ТД є факторами, які уповільнюють встановлення стаціонарного режиму PIS.

Проведені моделювання PIS та розрахунки дискримінанту PIS в стаціонарному режимі PIS в сплаві Fe-20Cr-8Ni вказують на збіднення Cr та збагачення Ni і Fe за умов опромінення. Для сплаву Fe-20Cr-8Ni досліджено вплив температури та швидкості продукування ТД на визначальні кількісні характеристики PIS. Показано, що в сплаві Fe-20Cr-8Ni до виходу на стаціонарний режим PIS з ростом дози опромінення збільшується поверхнева концентрація Cr та Ni.

Для сплаву Fe-20Cr-8Ni також досліджено взаємний вплив швидкості продукування ТД та температури на концентраційні профілі компонентів сплаву. Показано, що вплив збільшення швидкості продукування ТД на концентраційні профілі компонентів сплаву з достатньо високою точністю можна компенсувати відносно невеликим збільшенням температури. Це пов'язано з конкуренцією двох процесів: «розмиванням» концентраційних профілів за рахунок дифузії та їхнім «звуженням» за рахунок радіаційного опромінення.

Проведено моделювання PIS в сплавах Fe-xCr-8Ni та Fe-20Cr-yNi, де $x=19; 19,5; 20; 20,5; 21$ і $y=7; 7,5; 8; 8,5; 9$ при енергіях міграцій вакансій, взятих для сплаву Fe-20Cr-8Ni, а також розрахованих для кожного сплаву з конкретними значеннями x, y . Проведено порівняння значень поверхневих збагачень (збіднень), сегрегаційних площ, повних ширин концентраційних профілів на рівні половини максимального збагачення (збіднення) Cr та Ni для сплавів Fe-xCr-8Ni та Fe-20Cr-

уNi, які розраховані при різних визначених вище значеннях енергій міграції вакансій.

Здійснено порівняння результатів моделювання РІС в сплавах на основі Fe з експериментально одержаними іншими авторами.

Теоретично розглянуто пізню стадію рівноважної сегрегації домішки на міжзеренній межі по механізму визрівання Оствальда у випадку утворення сферичних виділень нової фази. Сформульовано систему рівнянь, яка описує ВО сферичних виділень на міжзеренній межі, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою вбудови атомів домішки в виділення. Ця система складається з рівняння швидкості росту окремого виділення, кінетичного рівняння для функції розподілу виділень нової фази за розмірами, яка нормована на густину виділень та рівняння балансу речовини в системі (закону збереження речовини). В законі збереження речовини ураховуються атоми домішки, які знаходяться як в твердих розчинах в міжзеренній межі і тілі зерна, так і в виділеннях нової фази.

Знайдено асимптотичні часові залежності середнього і критичного радіусів виділення, пересичення твердого розчину атомів домішки в міжзеренній межі, функції розподілу виділень за розмірами, густини виділень (числа виділень на одиницю площі міжзеренної межі), коефіцієнта заповнення міжзеренної межі виділеннями (площі, що покривається виділеннями на одиниці площі міжзеренної межі) та повного числа атомів домішки у виділеннях. Коефіцієнт заповнення міжзеренної межі виділеннями є характеристикою специфічною для двовимірних задач ВО. Обговорюються границі застосування проведеного розгляду.

Ключові слова: радіаційно-індукована сегрегація, мікроструктура, опромінення, концентровані металеві сплави та сталі, комп'ютерне моделювання, концентраційні профілі, поверхнєве збагачення, точкові дефекти, дифузія, коефіцієнт дифузії, дислокаційна підсистема сплаву, рівноважна сегрегація, міжзеренна межа, визрівання Оствальда, механічні властивості.

Список публікацій здобувача за темою дисертації

1. Наукові праці, в яких опубліковані основні наукові результати

1. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в бінарних сплавах / **Р.В. Скороход**, О.М. Бугай, В.М. Білик, В.Л. Денисенко, О.В. Коропов // Східно-європейський фізичний журнал. – 2018. – Том 5, № 1 — С. 61–69. DOI: 10.26565/2312-4334-2018-1-07

2. Коропов О.В. Визрівання Оствальда сферичних виділень на міжзеренній межі, яке лімітується поверхневою кінетикою / О.В. Коропов, **Р.В. Скороход** // Східно-європейський фізичний журнал. – 2019. – № 1 — С. 75–85. DOI: 10.26565/2312-4334-2019-1-07

3. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в стопі Fe–9 ат.% Cr з урахуванням дислокаційної підсистеми стопу / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Металофізика та новітні технології. – 2022. – Том 44, № 6.– С. 691–711. DOI: 10.15407/mfint.44.06.0691

2. Наукові праці апробаційного характеру

4. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в тонких плівках Fe-Cr. / **Р.В. Скороход** // Збірник тез IV Всеукраїнської науково-практичної конференції молодих учених «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 24-25 квітня 2018 р.). – Суми, 2018. – С. 53-54.

5. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в тонких плівках Fe-Cr-Ni. / **Р.В. Скороход**, В.Л. Денисенко, О.В. Коропов // Збірник тез XIV Міжнародної науково-технічної конференції молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики» (Харків, 14-16 листопада 2018 р.). – Харків, 2018. – С. 46-47.

6. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в сплавах Fe-Cr-Ni під дією іонного опромінення. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов, В.Л. Денисенко, В.Ю. Сторіжко // Збірник тез XVII Конференції з фізики високих енергій та ядерної фізики (Харків, 26-29 березня 2019 р.). – Харків, 2019. – С.78.

7. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в потрійних концентрованих металевих сплавах. / **Р.В. Скороход** // Збірник тез V Всеукраїнської науково-практичної конференції молодих учених «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 22-24 квітня 2019 р.). – Суми, 2019. – С. 70-71.

8. **Скороход Р.В.** Математична модель радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих металевих сплавах Fe-Cr-Ni. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Збірник тез VIII Міжнародної науково-практичної конференції «Математика в сучасному технічному університеті» (Київ, 27–28 грудня 2019 р.). – Вінниця: Видавець ФОП Кушнір Ю. В., 2020. – С. 153-160.

9. **Скороход Р.В.** Розрахунки визначальних кількісних характеристик радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих металевих сплавах Fe-Cr-Ni. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Збірник тез VI Всеукраїнської науково-практичної конференції молодих учених «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 13-15 квітня 2020 р.). – Суми, 2020. – С. 45-48.

10. Коропов О.В. Диференціальні рівняння радіаційно-індукованої сегрегації в N-компонентних концентрованих металевих стопах. / О.В. Коропов, **Р.В. Скороход** // Збірник тез IX Міжнародної науково-практичної конференції «Математика в сучасному технічному університеті» (Київ, 28–29 грудня 2020 р.). – Вінниця: Видавець ФОП Кушнір Ю. В., 2021. – С. 80-89.

11. **Скороход Р.В.** Моделювання впливу дислокаційної підсистеми на ефекти радіаційно-індукованої сегрегації в трикомпонентному сплаві Fe-20%Cr-8%Ni. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Збірник тез VII Всеукраїнської науково-практичної конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 12-14 квітня 2021 р.). – Суми, 2021. – С. 76-77.

12. **Skorokhod R.** The governing quantitative characteristics of radiation-induced segregation in Fe-Cr-Ni alloy. / **R. Skorokhod**, O. Koropov // Proceedings of XII

Conference of Young Scientists “Problems of Theoretical Physics” (Kyiv, December 21 – 22, 2021). – Kyiv, 2021. – P. 9-10.

13. **Скороход Р.В.** Вплив енергій міграцій вакансій компонентів сплаву на ефекти радіаційно-індукованої сегрегації в аустенітних сплавах Fe-Cr-Ni. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Збірник тез VIII Всеукраїнської науково-практичної конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 24-26 жовтня 2022 р.). – Суми, 2022. – С. 71-73.

14. **Скороход Р.В.** Дослідження впливу швидкості продукування точкових дефектів та температури на радіаційно-індуковану сегрегацію в сплавах Fe-Cr-Ni методом комп’ютерного моделювання. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Збірник тез IX Всеукраїнської науково-практичної конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 10-12 квітня 2023 р.). – Суми, 2023. – С. 78-80.

15. **Скороход Р.В.** Розрахунки визначальних кількісних характеристик радіаційно-індукованої сегрегації в сплавах Fe-20Cr-8Ni за різних умов опромінення. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Збірник тез XXIII Всеукраїнської школи-семінару молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини (Львів, 26-27 жовтня 2023 р.). – Львів, 2023. – С. 28.

16. **Skorokhod R.** The Mutual Influence of Production Rate of Point Defects and Temperature on the Effects of Radiation-Induced Segregation in the Fe-20Cr-8Ni Alloy. / **R. Skorokhod**, O. Koropov // Proceedings of XIV Conference of Young Scientists “Problems of Theoretical Physics” (Kyiv, January 16 – 17, 2024). – Kyiv, 2024. – P. 12.

17. Коропов О.В. Пізня стадія сегрегації домішки на міжзеренній межі у випадку утворення сферичних виділень нової фази, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою. / О.В. Коропов, **Р.В. Скороход** // Збірник тез X Всеукраїнської науково-практичної конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 15-17 квітня 2024 р.). – Суми, 2024. – С. 85-86.

ABSTRACT

Skorokhod R. V. Radiation-induced segregation in concentrated Fe-Cr and Fe-Cr-Ni metal alloys. –Manuscript.

The thesis for the scientific degree of the doctor of philosophy by specialty 104 – physics and astronomy. – Institute of Applied Physics, National Academy of Sciences of Ukraine, Sumy, 2024.

The thesis is devoted to the sequential modeling of radiation-induced segregation in concentrated Fe-Cr and Fe-Cr-Ni alloys based on a system of nonlinear partial differential equations, numerical calculations and comparative analysis of the governing quantitative characteristics of radiation-induced segregation under different irradiation conditions and theoretical research of late stages of equilibrium segregation of impurities at the grain boundary by the Ostwald ripening mechanism.

The paper presents a literature review of important results related to leading studies of the phenomenon of radiation-induced segregation (RIS) and Ostwald ripening (OR). The main mechanisms of RIS and models of RIS in concentrated and dilute metal alloys are considered. Experimental results regarding the enrichment or depletion of Cr and other components on the point defects sinks (sample surfaces, grain boundaries, boundaries between phases, voids, etc.) in Fe-based alloys under irradiation are discussed.

The RIS model for concentrated metal alloys, which is based on Fick's first and second laws, taking into account the inverse Kirkendall effect, is considered in detail. In this work, this model was used for RIS modeling, which describes with a sufficiently high accuracy the change in the concentrations of components under irradiation in Fe-Cr and Fe-Cr-Ni alloys. The mathematical implementation of this model leads to a system of coupled nonlinear partial differential equations with appropriate initial and boundary conditions. The algorithm for solving the system of RIS equations in the case of flat geometry of samples with constant thickness is discussed. The system of RIS differential equations was solved numerically for Fe-Cr and Fe-Cr-Ni alloys under the relevant irradiation conditions for the experiment.

For N-component concentrated metal alloys the governing quantitative characteristics of RIS were highlighted. We include the following: concentration profiles

of alloy components and point defects (PD), surface concentration of atoms of alloy components, the value of surface enrichment (depletion) of atoms, the full width of the concentration profile of atoms at half maximum enrichment (depletion), segregation area of atoms and the discriminant RIS of atoms in a steady state. We note that the most important characteristics of RIS are the concentration profiles of the alloy components and surface enrichments, which carry the main information about the change in the local composition of the alloy and are directly investigated in the experiment.

In the paper, the computer simulation method was used to study RIS in model dislocation-free samples of the Fe-9Cr alloy and in samples with different dislocation densities in the dislocation subsystem.

For the dislocation-free layer of the Fe-9Cr alloy, the influence of the production rate of PD, the received dose, the temperature, and the thickness of the sample on the governing quantitative characteristics of the RIS was analyzed in detail. It is shown that for the Fe-9Cr alloy, the surface concentration of Cr most significantly depends on the vacancies and interstitials migration energies of both Fe and Cr.

For the Fe-9Cr alloy, the process of reaching the steady state of RIS with increasing irradiation dose is demonstrated, the output of which is observed at a dose of $D=1$ dpa. At the same time, the concentration profiles of vacancies and interstitials change little at $D>10^{-3}$ dpa. It is shown that in the process of irradiation (with increasing dose), the steepness of the Cr concentration profile decreases, and the value of the surface concentration of Cr, the segregation area of Cr, and the full width of the concentration profile of Cr atoms at half maximum enrichment increases.

It is shown that in the Fe-9Cr alloy, with increasing temperature, diffusion processes "blur" the concentration profiles of Cr. Diffusion processes also increase the value of the surface concentration of Cr, which reaches a maximum value at a certain temperature and then significantly decreases. The specified behavior of the surface concentration of Cr occurs because there is a competition between two processes: relatively high PD recombination at low temperatures and strong back diffusion at high temperatures. A qualitatively similar temperature dependence with a maximum is also observed for the segregation area of Cr. The value of the full width of the concentration

profile of Cr atoms at the half maximum enrichment with increasing temperature first increases, and then approaches a constant value.

It was found that for the Fe-9Cr alloy, with an increase in the production rate of radiation PD K_0 , the concentration profiles of Cr "narrowing". Note that at relatively low temperatures $T < 300^\circ\text{C}$, the concentration profiles of Cr (as well as the other governing characteristics of the RIS mentioned above), calculated for different values of the production rate of PD, differ little. At relatively high temperatures, the values of the surface enrichment of Cr and the segregation area of Cr with the growth of the production rate of PD initially increase, reach maximum values, and then decrease. This character of the discussed dependencies is associated with an increase in the relative concentration of PD due to radiation generation of PD at low values of the production rate of PD and a high rate of annihilation of PD at high values of K_0 . The value of the full width of the concentration profile of Cr atoms at the half maximum enrichment decreases with an increase in the production rate of PD.

It is quite obvious that in the model with ideal PD sinks (the concentration of PD on the surface of the sample is equal to zero), the effects of back diffusion will be weakened compared to the model with thermodynamically equilibrium boundary concentrations of PD. Then, as we have shown, at low production rates of PD and high temperatures, the effects of RIS in the model with ideal PD sinks are more pronounced.

The effect of the dislocation subsystem in the Fe-9Cr alloy on the governing quantitative characteristics of the RIS was studied in detail. The concentration profiles of Cr for alloy samples with values of dislocation densities $\rho_D = 10^{12}, 10^{14}, 10^{16} \text{ m}^{-2}$ at different received radiation doses and production rates of PD were analyzed. It is shown that in the Fe-9Cr alloy, with an increase in the density of dislocations in the dislocation subsystem of the alloy, which is a natural PD sink, the concentration of PD decreases. This leads to a decrease in the diffusion fluxes of Cr and Fe atoms, which are related to the diffusion fluxes of PD, and as a result, to a decrease in the values of enrichment of Cr and segregation area of Cr. It was established that the high density of dislocations and the high production rate of radiation PD are factors that slow down the establishment of the steady state of RIS.

The conducted modeling of RIS and calculations of the discriminant of RIS in the steady state in the Fe-20Cr-8Ni alloy indicate depletion of Cr and enrichment of Ni and Fe under irradiation conditions. For the Fe-20Cr-8Ni alloy, the influence of temperature and production rate of PD on the governing quantitative characteristics of RIS was investigated. It is shown that in the Fe-20Cr-8Ni alloy, the surface concentration of Cr and Ni increases with the increase of the irradiation dose before reaching the steady state of RIS.

For the Fe-20Cr-8Ni alloy, the mutual influence of the production rate of PD and temperature on the concentration profiles of the alloy components was also investigated. It is shown that the effect of an increase in the production rate of PD on the concentration profiles of the alloy components can be compensated with a sufficiently high accuracy by a relatively small increase in temperature. This is due to the competition of two processes: "blurring" of concentration profiles due to diffusion and their "narrowing" due to radiation exposure.

Modeling of RIS was carried out in Fe-xCr-8Ni and Fe-20Cr-yNi alloys, where $x=19; 19.5; 20; 20.5; 21$ and $y=7; 7.5; 8; 8.5; 9$ at the vacancies migration energies taken for the Fe-20Cr-8Ni alloy, as well as calculated for each alloy with specific values of x, y . A comparison of values of surface enrichments (depletions), segregation areas, full widths of concentration profiles at half maximum enrichment (depletion) of Cr and Ni for Fe-xCr-8Ni and Fe-20Cr-yNi alloys, which were calculated at different values of the vacancies migration energies defined above.

A comparison of the results of RIS modeling in Fe-based alloys with experimentally obtained by other authors was made.

The late stage of equilibrium segregation of the impurity at the grain boundary according to the Ostwald ripening mechanism in the case of the formation of spherical precipitates of a newly phase is theoretically considered. A system of equations which describes surface-kinetics-limited of impurity atom imbedding into the precipitate growth of OR of spherical precipitates on the grain boundary is formulated. This system consists of the equation of growth rate of the precipitate, the kinetic equation for the precipitates size distribution function which is normalized by the precipitates density, and the equation

of the balance of matter in the system (the law of conservation of matter). The law of conservation of matter takes into account the atoms of impurities which are in solid solutions of the grain boundary and the body of the grain as well as in the precipitates.

The asymptotic time dependences are found for the average and critical precipitate radius, supersaturation of solid solution of impurity atoms in the grain boundary, precipitate size distribution function, precipitate density (the number of precipitates per unit area of the grain boundary), the factor of grain boundary filling with precipitates (the area covered by the precipitates per unit area of the grain boundary) and the total number of impurity atoms in precipitates. The factor of grain boundary filling with precipitates is a characteristic of the two-dimensional OR problem. A discussion of the limits of validity of obtained results is given

Key words: radiation-induced segregation, microstructure, irradiation, concentrated metal alloys and steels, computer simulation, concentration profiles, surface enrichment, point defects, diffusion, diffusion coefficient, alloy dislocation subsystem, equilibrium segregation, grain boundary, Ostwald ripening, mechanical properties.

The publication list of the applicant of PhD thesis

1. The scientific works containing the main published scientific results

1. **Skorokhod R.V.** Modeling Radiation-Induced Segregation in Binary Alloys / **R.V. Skorokhod**, O.M. Buhay, V.M. Bilyk, V.L. Denysenko, O.V. Koropov // East European Journal of Physics. – 2018. – Vol. 5, no. 1 — P. 61–69. DOI: 10.26565/2312-4334-2018-1-07

2. Koropov O.V. Surface-Kinetics-Limited Ostwald Ripening of Spherical Precipitates at Grain Boundaries / O.V. Koropov, **R.V. Skorokhod** // East European Journal of Physics. – 2019. – No. 1 — P. 75–85. DOI: 10.26565/2312-4334-2019-1-07

3. **Skorokhod R.V.** Modelling of Radiation-Induced Segregation in Fe–9 at.% Cr Alloy with Alloy Dislocation Subsystem Considered / **R.V. Skorokhod**, O.V. Koropov // Metallophysics and advanced technologies. – 2022. – Vol. 44, no. 6.– P. 691–711. DOI: 10.15407/mfint.44.06.0691

2. The scientific works of an approbatory character

4. **Skorokhod R.V.** Modeling of radiation-induced segregation in Fe-Cr thin films. / **R.V. Skorokhod** // Proceeding of the IV All-Ukrainian Scientific-Practical Conference of Young Scientists "Modern Problems of Experimental and Theoretical Physics and Methodology for Teaching Physics" (Sumy, 24-25 April 2018). – Sumy, 2018 – P. 53-54.

5. **Skorokhod R.V.** Modeling of radiation-induced segregation in Fe-Cr-Ni thin films. / **R.V. Skorokhod**, V.L. Denysenko, O.V. Koropov // Proceeding of the XIV International Scientific and Technical Conference Young Scientists and Specialists "Problems of Modern Nuclear Power" (Kharkiv, 14-16 November 2018). – Kharkiv, 2018 – P. 46-47.

6. **Skorokhod R.V.** Modeling of radiation-induced segregation in Fe-Cr-Ni alloys under ion irradiation. / **R.V. Skorokhod**, O.V. Koropov, V.L. Denysenko, V.Yu. Storizhko // Proceeding of the XVII Conference on High Energy Physics and Nuclear Physics (Kharkiv, 26-29 March 2019). – Kharkiv, 2019 – P. 78.

7. **Skorokhod R.V.** Modeling of radiation-induced segregation in ternary concentrated metal alloys. / **R.V. Skorokhod** // Proceeding of the V All-Ukrainian Scientific-Practical Conference of Young Scientists "Modern Problems of Experimental and Theoretical Physics and Methodology for Teaching Physics" (Sumy, 22-24 April 2019). – Sumy, 2019 – P. 70-71.

8. **Skorokhod R.V.** Mathematical model of radiation-induced segregation in Fe-Cr-Ni concentrated metal alloys. / **R.V. Skorokhod**, O.V. Koropov // Proceeding of the VIII International Scientific-Practical Conference "Mathematics in Modern Technical University" (Kyiv, 27–28 December 2019). – Vinnytsia: Publisher FOP Kushnir Yu.V., 2020. – P. 153-160.

9. **Skorokhod R.V.** Calculations of the governing quantitative characteristics of radiation-induced segregation in concentrated Fe-Cr-Ni metal alloys. / **R.V. Skorokhod**, O.V. Koropov // Proceeding of the VI All-Ukrainian Scientific-Practical Conference of Young Scientists "Modern Problems of Experimental and Theoretical Physics and Methodology for Teaching Physics" (Sumy, 13-15 April 2020). – Sumy, 2020. – P. 45-48.

10. Koropov O.V. Differential equations of radiation-induced segregation in N-component concentrated metal alloys. / O.V. Koropov, **R.V. Skorokhod** // Proceeding of the IX International Scientific-Practical Conference “Mathematics in Modern Technical University” (Kyiv, 28–29 December 2020). – Vinnytsia: Publisher FOP Kushnir Yu.V., 2021. – P. 80-89.

11. **Skorokhod R.V.** Modeling the influence of the dislocation subsystem on the effects of radiation-induced segregation in a three-component Fe-20%Cr-8%Ni alloy. / **R.V. Skorokhod**, O.V. Koropov // Proceeding of the VII All-Ukrainian Scientific-Practical Conference with International Participation "Modern Problems of Experimental and Theoretical Physics and Methodology for Teaching Physics" (Sumy, 12-14 April 2021). – Sumy, 2021. – P. 76-77.

12. **Skorokhod R.** The governing quantitative characteristics of radiation-induced segregation in Fe-Cr-Ni alloy. / **R. Skorokhod**, O. Koropov // Proceedings of XII Conference of Young Scientists “Problems of Theoretical Physics” (Kyiv, December 21 – 22, 2021). – Kyiv, 2021. – P. 9-10.

13. **Skorokhod R.V.** The influence of vacancies migrations energies of alloy components on the effects of radiation-induced segregation in Fe-Cr-Ni austenitic alloys./ **R.V. Skorokhod**, O.V. Koropov // Proceeding of the VIII All-Ukrainian Scientific-Practical Conference with International Participation "Modern Problems of Experimental and Theoretical Physics and Methodology for Teaching Physics" (Sumy, 24-26 October 2022). – Sumy, 2022. – P. 71-73.

14. **Skorokhod R.V.** Study of the influence of the production rate of point defects and temperature on radiation-induced segregation in Fe-Cr-Ni alloys by computer modeling. / **R.V. Skorokhod**, O.V. Koropov // Proceeding of the IX All-Ukrainian Scientific-Practical Conference with International Participation "Modern Problems of Experimental and Theoretical Physics and Methodology for Teaching Physics" (Sumy, 10-12 April 2023). – Sumy, 2023. – P. 78-80.

15. **Skorokhod R.V.** Calculations of the governing quantitative characteristics of radiation-induced segregation in Fe-20Cr-8Ni alloys under different irradiation conditions. / **R.V. Skorokhod**, O.V. Koropov // Proceeding of the XXIII All-Ukrainian

School-Seminar of Young Scientists in Statistical Physics and Theory of Condensed Matter (Lviv, 26-27 October 2023). – Lviv, 2023. – P. 28.

16. **Skorokhod R.** The Mutual Influence of Production Rate of Point Defects and Temperature on the Effects of Radiation-Induced Segregation in the Fe-20Cr-8Ni Alloy. / **R. Skorokhod**, O. Koropov // Proceedings of XIV Conference of Young Scientists "Problems of Theoretical Physics" (Kyiv, January 16 – 17, 2024). – Kyiv, 2024. – P. 12.

17. Koropov O.V. The late stage of segregation of impurity at the grain boundary in the case of the formation of spherical precipitates of a new phase, the growth of which is limited by surface kinetics. / O.V. Koropov, **R.V. Skorokhod** // Proceeding of the X All-Ukrainian Scientific-Practical Conference with International Participation "Modern Problems of Experimental and Theoretical Physics and Methodology for Teaching Physics" (Sumy, 15-17 April 2024). – Sumy, 2024. – P. 85-86.

ЗМІСТ

ВСТУП.....	22
РОЗДІЛ 1. РАДІАЦІЙНО-ІНДУКОВАНА СЕГРЕГАЦІЯ В МЕТАЛЕВИХ СПЛАВАХ.....	28
1.1. Радіаційні пошкодження матеріалів	28
1.2. Фізика радіаційно-індукованої сегрегації	31
1.3. Механізми радіаційно-індукованої сегрегації	33
1.3.1. Перші припущення про механізми сегрегації в розбавлених сплавах	33
1.3.2. Зворотний ефект Кіркендала.....	37
1.4. Експериментальні дослідження радіаційно-індукованої сегрегації Cr в аустенітних та феритно-мартенситних сплавах.....	43
1.5. Пізня стадія сегрегації домішки на міжзеренній межі (визрівання Оствальда).....	46
Висновки до розділу 1	47
РОЗДІЛ 2. МОДЕЛЮВАННЯ РІС В ДВОКОМПОНЕНТНИХ КОНЦЕНТРОВАНИХ МЕТАЛЕВИХ СПЛАВАХ Fe-Cr	49
2.1. Модель РІС для N -компонентних концентрованих металевих сплавах	49
2.1.1. Основні рівняння РІС для N -компонентних концентрованих металевих сплавах.....	49
2.1.2. Початкові та граничні умови до рівнянь РІС у випадку плаского металевого шару	53
2.1.3. Перетворення системи рівнянь РІС для числових розрахунків	55
2.1.4. Визначальні кількісні характеристики РІС	58
2.2. Рівняння РІС для сплавів Fe-9Cr та вхідні параметри моделювання	60
2.2.1. Дискримінант РІС в сплаві Fe-9Cr	62
2.2.2. Чутливість моделі РІС до вхідних параметрів	64
2.3. Розрахунки визначальних кількісних характеристик РІС в сплаві Fe-9Cr та їх залежності від зовнішніх параметрів	66
2.3.1. Концентраційні профілі Cr.....	66

2.3.2. Концентраційні профілі ТД.....	68
2.3.3. Швидкість анігіляції ТД та її координатні залежності.....	70
2.3.4. Залежності поверхневої концентрації Cr, сегрегаційної площі Cr та $FWHM_{Cr}$ від зовнішніх параметрів	71
2.4. Вплив різних граничних концентрацій ТД на результати моделювання РІС	77
2.5. Вплив дислокаційної підсистеми сплаву на ефекти РІС в сплаві Fe-9Cr.....	83
2.5.1. Постановка задачі.....	83
2.5.2. Концентраційні профілі компонентів та ТД.....	84
2.5.3. Швидкості анігіляції ТД і поглинання ТД дислокаційною підсистемою та їхні координатні залежності.....	86
2.5.4. Залежності поверхневого збагачення Cr, сегрегаційної площі Cr та $FWHM_{Cr}$ від набраної дози, швидкості продукування ТД, температури та густини дислокацій	87
2.6. Порівняння з експериментом	91
Висновки до розділу 2.....	94
РОЗДІЛ 3. МОДЕЛЮВАННЯ РАДІАЦІЙНО-ІНДУКОВАНОЇ СЕГРЕГАЦІЇ В ТРИКОМПОНЕНТНИХ КОНЦЕНТРОВАНИХ СПЛАВАХ Fe-Cr-Ni.....	96
3.1. Основні рівняння моделі та вхідні параметри	96
3.1.1. Дискримінант РІС в сплаві Fe-20Cr-8Ni	98
3.2. Розрахунки визначальних кількісних характеристик РІС в сплаві Fe-20Cr-8Ni та їх залежності від зовнішніх параметрів.....	99
3.2.1. Концентраційні профілі Cr, Ni.....	99
3.2.2. Залежності поверхневого збіднення Cr та збагачення Ni, сегрегаційних площ Cr і Ni, $FWHM_{Cr(Ni)}$ від зовнішніх параметрів	100
3.3. Розрахунок енергій міграції вакансій в аустенітних сплавах Fe-Cr-Ni.....	104
3.4. Дослідження впливу швидкості продукування точкових дефектів та температури на радіаційно-індуковану сегрегацію	110
Висновки до розділу 3.....	113

РОЗДІЛ 4. ПІЗНЯ СТАДІЯ СЕГРЕГАЦІЇ ДОМІШКИ НА МІЖЗЕРЕННІЙ МЕЖІ У ВИПАДКУ УТВОРЕННЯ СФЕРИЧНИХ ВИДІЛЕНЬ НОВОЇ ФАЗИ, РІСТ ЯКИХ ЛІМІТУЄТЬСЯ ПОВЕРХНЕВОЮ КІНЕТИКОЮ	115
4.1. Система рівнянь, яка описує ВО сферичних виділень на ММ, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою вбудови атомів домішки в виділення.....	115
4.1.1. Рівняння дифузії атомів домішки в ММ.....	115
4.1.2. Швидкість дифузійного росту сферичного виділення нової фази на ММ.....	118
4.1.3. Рівняння для функції розподілу виділень нової фази за розмірами та закон збереження речовини в системі.....	121
4.2. Асимптотичний аналіз Ліфшиця-Сльозова.....	123
4.2.1. Асимптотики змін критичного радіуса виділення та пересичення твердого розчину атомів домішки в ММ.....	123
4.2.2. Асимптотики функції розподілу виділень нової фази за розмірами та густини виділень	127
4.2.3. Асимптотики коефіцієнта заповнення міжзеренної ММ та повного числа атомів домішки у виділеннях.....	129
4.3. Оцінка розміру виділень нової α' -фази, збагаченої Cr, на ММ в сплавi Fe-Cr (стадія визрівання Оствальда).....	132
Висновки до розділу 4	133
ВИСНОВКИ.....	135
ПОДЯКИ.....	137
СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ	138
ДОДАТОК	159

ВСТУП

Актуальність теми. Вивід з експлуатації діючих і побудова нових ядерних реакторів є складними та дороговартісними процесами. Тому нагальними є задачі подовження терміну дії ядерних реакторів II і III поколінь та поступовий перехід до реакторів IV покоління, які мають бути більш безпечними і ефективними. Рішення поставлених задач потребує фундаментального розуміння еволюції мікроструктури та властивостей конструкційних матеріалів в широкому діапазоні умов опромінення (швидкостей продукування точкових дефектів, набраних доз, температур, тощо). Адже, зміни мікроструктури і локального складу в сплавах за умов опромінення, негативно впливають на їхні механічні та фізико-хімічні властивості і призводять до таких радіаційно-стимульованих явищ як розпухання, повзучість, зміцнення, окрихчення, тощо.

Одним з радіаційно-стимульованих явищ, яке полягає в просторовому перерозподілі атомів сплаву під дією опромінення, є радіаційно-індукована сегрегація. Це явище, зокрема, призводить до деградації механічних властивостей матеріалу, прискорення утворення виділень нової фази, тощо. Дана дисертаційна робота присвячена моделюванню радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих металевих сплавах Fe-Cr та Fe-Cr-Ni від початку опромінення до виходу на стаціонарний режим за різних швидкостей продукування точкових дефектів, температур, а також числовим розрахункам та аналізу визначальних кількісних характеристик радіаційно-індукованої сегрегації. Необхідність даного дослідження зумовлена тим, що радіаційно-індукована сегрегація є одним із важливих механізмів зміни локального складу сплаву за умов опромінення, може призводити до утворення виділень нової фази і отже впливає на механічні та фізико-хімічні властивості опромінених металевих сплавів. В дисертаційній роботі додатково теоретично досліджується пізня стадія рівноважної сегрегації домішки на міжзеренній межі по механізму визрівання Оствальда у випадку утворення сферичних виділень нової фази, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Дисертаційна робота виконувалась у відділі № 30 «Ядерно-фізичних досліджень» та в лабораторії №41 «Інтегрованого моделювання механічних властивостей конструкційних матеріалів під дією опромінення» Інституту прикладної фізики НАН України і є частиною досліджень, які проводилися за темами: «Дослідження радіаційно-індукованої сегрегації в конструкційних матеріалах ядерної енергетики при їх опроміненні іонами» (державний реєстраційний номер 0118U002291, термін виконання 2018-2019 рр.), «Дослідження радіаційних дефектів та радіаційно-індукованої сегрегації домішок у сплавах цирконію під дією опромінення іонами з використанням методів ядерного мікроаналізу» (державний реєстраційний номер 0116U002993, термін виконання 2016-2018 рр.), «Інтегроване багаторівневе моделювання і експериментальна перевірка радіаційної стійкості конструкційних матеріалів реакторів на період експлуатації понад 60 років» (державний реєстраційний номер 0119U102415, термін виконання 2019-2021 рр.), «Дослідження радіаційної стійкості матеріалів реакторів ВВЕР в умовах понаднормової експлуатації з використанням інтегрованого багаторівневого моделювання та експериментальної валідації ядерно-фізичними та структурними методами» (державний реєстраційний номер 0122U002427, термін виконання 2022-2024 рр.).

Мета і завдання дослідження. Метою дисертаційної роботи є послідовне чисельне дослідження явища радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих металевих сплавах Fe-Cr і Fe-Cr-Ni за різних умов опромінення та теоретичний аналіз пізньої стадії рівноважної сегрегації домішки на міжзеренній межі по механізму визрівання Оствальда.

Досягнення поставленої мети передбачало виконання наступних наукових завдань:

- розрахунок визначальних кількісних характеристик радіаційно-індукованої сегрегації за різних умов опромінення;
- з'ясувати особливості впливу дислокаційної підсистеми сплаву на ефекти радіаційно-індукованої сегрегації;

- встановити характер взаємного впливу швидкості продукування точкових дефектів та температури на концентраційні профілі компонентів сплаву;
- теоретичний аналіз пізньої стадії сегрегації домішки на міжзеренній межі у випадку утворення сферичних виділень нової фази, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою.

Об'єктом дослідження є явище радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих металевих сплавах та явище рівноважної сегрегації домішки на міжзеренній межі.

Предметом дослідження є розподіли концентрацій компонентів сплаву та точкових дефектів в опромінених концентрованих сплавах Fe-Cr та Fe-Cr-Ni, а також виділення нової фази на міжзеренній межі.

Методи дослідження. При виконанні дисертаційної роботи використовувалися методи математичної фізики та числового моделювання. Зокрема, при перетворенні системи рівнянь радіаційно-індукованої сегрегації для її подальшого числового аналізу використовувалися процедури обезрозмірювання, масштабування та метод скінченних різниць. При дослідженні визрівання Оствальда сферичних виділень нової фази використано асимптотичний аналіз Ліфшиця-Сльозова.

Наукова новизна отриманих результатів:

- Розраховано визначальні кількісні характеристики радіаційно-індукованої сегрегації для сплавів Fe-9Cr та Fe-20Cr-8Ni за різних значень швидкостей продукування точкових дефектів, набраних доз опромінення і температур та проведено аналіз залежностей визначальних кількісних характеристик від названих умов опромінення.
- Продемонстровано, що в при різних швидкостях продукування точкових дефектів, набраних дозах опромінення та температурах дислокаційна підсистема подавляє ефекти радіаційно-індукованої сегрегації.
- Вперше методами комп'ютерного моделювання показано, що вплив збільшення швидкості продукування точкових дефектів на ефекти радіаційно-

індукованої сегрегації можна з достатньо високою точністю компенсувати відносно невеликим підвищенням температури.

- Вперше теоретично розглянуто кінетику сферичних виділень нової фази на міжзеренній межі, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою, з урахуванням дифузійних потоків атомів домішки з глибини зерна до міжзеренної межі на стадії визрівання Оствальда.

Практичне значення отриманих результатів. Отримані в дисертації результати можуть бути використані при моделюванні й прогнозуванні змін локального складу концентрованих сплавів Fe-Cr та Fe-Cr-Ni за умов опромінення, а також слугувати основою для дослідження радіаційно-індукованої сегрегації в сплавах з більшим числом компонент. Крім того одержані результати можуть бути використані при дослідженні кінетики росту сферичних виділень нової фази, які розташовані на міжзеренній межі. Зокрема, в роботі детально досліджено залежності визначальних кількісних характеристик радіаційно-індукованої сегрегації від швидкості продукування точкових дефектів, набраної дози опромінення, густини дислокацій в дислокаційній підсистемі сплаву, температури, товщини зразку, тощо. Показано, що дислокаційна підсистема, яка є ефективним стоком точкових дефектів, подавляє ефекти радіаційно-індукованої сегрегації. Продemonстровано як впливає вибір граничних умов на поверхні зразка на результати моделювання радіаційно-індукованої сегрегації. Досліджено взаємний вплив швидкості продукування точкових дефектів та температури на концентраційні профілі компонентів сплаву Fe-20Cr-8Ni.

Результати дисертаційної роботи можуть бути використані в Інституті прикладної фізики НАН України, Національному науковому центрі «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України, Інституті ядерних досліджень НАН України, Інституті електрофізики і радіаційних технологій НАН України, Державному підприємстві «Національна атомна енергогенеруюча компанія «Енергоатом», на фізико-технічному факультеті Харківського національного університету імені В. Н. Каразіна та в інших наукових центрах.

Особистий внесок здобувача полягає у формуванні україномовного огляду літературних джерел, в яких відображений світовий досвід моделювання і експериментальних досліджень радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих металевих сплавах на основі Fe та дослідження деяких теоретичних питань визрівання Оствальда. Здобувачем також проведено дослідження відповідно до мети та завдань дисертаційної роботи. Основні результати, які відображено в дисертаційній роботі, отримано при активній безпосередній участі здобувача. А саме автор був залучений до розробки обчислювальних кодів, проведення числового моделювання, аналізу одержаних результатів, написання наукових праць. Мета дисертаційної роботи, наукові завдання, методи їх вирішення та отримані результати обговорювалися з науковим керівником.

У роботі [1] автор провів числове моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в сплаві Fe-Cr, одержав основні залежності, дослідив чутливість моделі від вхідних параметрів та вплив граничних умов на результат моделювання.

У роботі [2] автор брав участь у одержанні аналітичних виразів.

У роботі [3] автор розрахував визначальні кількісні характеристики радіаційно-індукованої сегрегації за різних умов опромінення, одержав основні залежності, брав участь у аналізі результатів.

Основні наукові результати презентувалися дисертантом на Всеукраїнських та міжнародних наукових конференціях [4-17].

Апробація результатів дисертації. Матеріали дисертаційного дослідження доповідалися та обговорювалися на наукових семінарах в Інституті прикладної фізики НАН України та на наступних конференціях: XIV Міжнародній науково-технічній конференції молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики» (Харків, 2018), XVII Конференції з фізики високих енергій та ядерної фізики (Харків, 2019), Міжнародній науково-практичній конференції «Математика в сучасному технічному університеті» (Київ, 2019, 2020), Conference of Young Scientists “Problems of Theoretical Physics” (Kyiv, 2021, 2024), XXIII Всеукраїнській школі-семінарі молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої

речовини (Львів, 2023), Всеукраїнській науково-практичній конференції «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 2018-2024).

Публікації. Результати дисертації роботи опубліковані у 3 наукових працях, із них: 1 стаття в провідному фаховому журналі, що індексується наукометричними базами Scopus та Web of Science, 1 стаття в провідному фаховому журналі, що індексуються наукометричною базою Web of Science, 1 стаття в провідному фаховому журналі, що індексується наукометричною базою Scopus та 14 тез доповідей конференцій.

Структура і обсяг дисертації. Дисертаційна робота складається зі вступу, чотирьох розділів, висновків, переліку використаних джерел та додатку. Обсяг дисертації складає 161 сторінку машинописного тексту, обсяг основної частини становить 115 сторінок та містить 75 рисунків. Список використаних джерел складається із 199 найменувань.

РОЗДІЛ 1.

РАДІАЦІЙНО-ІНДУКОВАНА СЕГРЕГАЦІЯ В МЕТАЛЕВИХ СПЛАВАХ

Як відомо, за умов опромінення в матеріалах відбуваються різноманітні процеси та явища такі як: каскадне утворення ТД, їхня анігіляція, радіаційно-стимульована дифузія ТД, радіаційно-індукована сегрегація, зародження і ріст дислокаційних петель, вакансійних та газонаповнених пор, виділень нової фази та ін. [18-22]. Названі процеси та явища призводять до погіршення механічної міцності [23] і корозійної стійкості матеріалу [24], радіаційного розпухання [25, 26], радіаційної повзучості [27, 28], радіаційного зміцнення [29], зміни температури в'язко-крихкого переходу [30], постійної ґратки та розміру зерен [31], тощо і негативно впливають на механічні і фізико-хімічні властивості опромінених матеріалів. Основними матеріалами сучасної ядерної енергетики є аустенітні нержавіючі сталі, феритно-мартенситні сплави з високою концентрацією Cr, сплави на основі Zr та ін. [20, 32-35].

1.1. Радіаційні пошкодження матеріалів

Радіаційні пошкодження матеріалів виникають за рахунок того, що налітаюча високоенергетична частинка при зіткненні з атомом ґратки передає йому частину своєї кінетичної енергії. Загальна кількість пошкоджень, завданих матеріалу, залежить як від властивостей опроміненого матеріалу (компонентного складу, мікроструктури, тощо), так і від зовнішніх умов опромінення (типу частинок, температури, швидкості продукування ТД, набраної дози). Якщо енергія налітаючої частинки перевищує порогову енергію зміщення E_d , тобто мінімальну енергію, необхідну для вибивання атома ґратки (в залежності від матеріалу $20 < E_d < 100$ eV [21]), то атом ґратки (первинно вибитий атом) зміщується зі свого положення, утворюючи пару Френкеля (пару вакансія – міжвузельний атом). В подальшому налітаюча частинка та первинно вибитий атом (primary knock-on atom) можуть зміщувати інші атоми ґратки, створюючи каскад ТД (каскад пошкодження).

Кількість пар Френкеля, які продукуються первинно вибитим атомом з енергією E_{PKA} в моделі NRT (Norgett, Robinson, Torrens) [36], визначається за формулою

$$N_{NRT} = \frac{0,8T_{dam}(E_{PKA})}{2E_d}, \quad (1.1)$$

де T_{dam} – енергія пошкодження, яка дорівнює частині енергії первинно вибитого атому, що розсіюється при пружних зіткненнях з атомами ґратки.

Частина радіаційних ТД, як відомо, рекомбінує під час каскадної стадії. Вцілілу долю ТД, яка «пережила» каскадну стадію, можна знайти, як:

$$\xi = \frac{N_D}{N_{NRT}} \quad (1.2)$$

де N_D – кількість стійких зміщень наприкінці каскаду пошкодження (наприклад, для Fe, який опромінюється нейтронами $\xi \approx 0,32 \pm 0,5$ [37]).

При тривалому опроміненні концентрації ТД $C_{v(i)}$ суттєво перевищують термодинамічно рівноважні значення $C_{v(i)}^{eq}$ за даної температури, що призводить до збільшення рухливих ТД в матеріалі. В подальшому ТД можуть взаємно рекомбінувати, дифундувати в матриці матеріалу, що призводить, зокрема, до зародження та росту двовимірних і тривимірних протяжних дефектів (дислокаційних петель [38, 39], вакансійних і газонаповнених пор [40, 41], виділень нової фази [42, 43] та ін.), або поглинатися на стоках ТД: вільних поверхнях, дислокаціях, межах між фазами і міжзеренних межах (ММ). Зазначені процеси можуть суттєво змінити властивості матеріалу з часом. Схематично еволюція ТД в матеріалі за умов опромінення наведена на рис. 1.1.

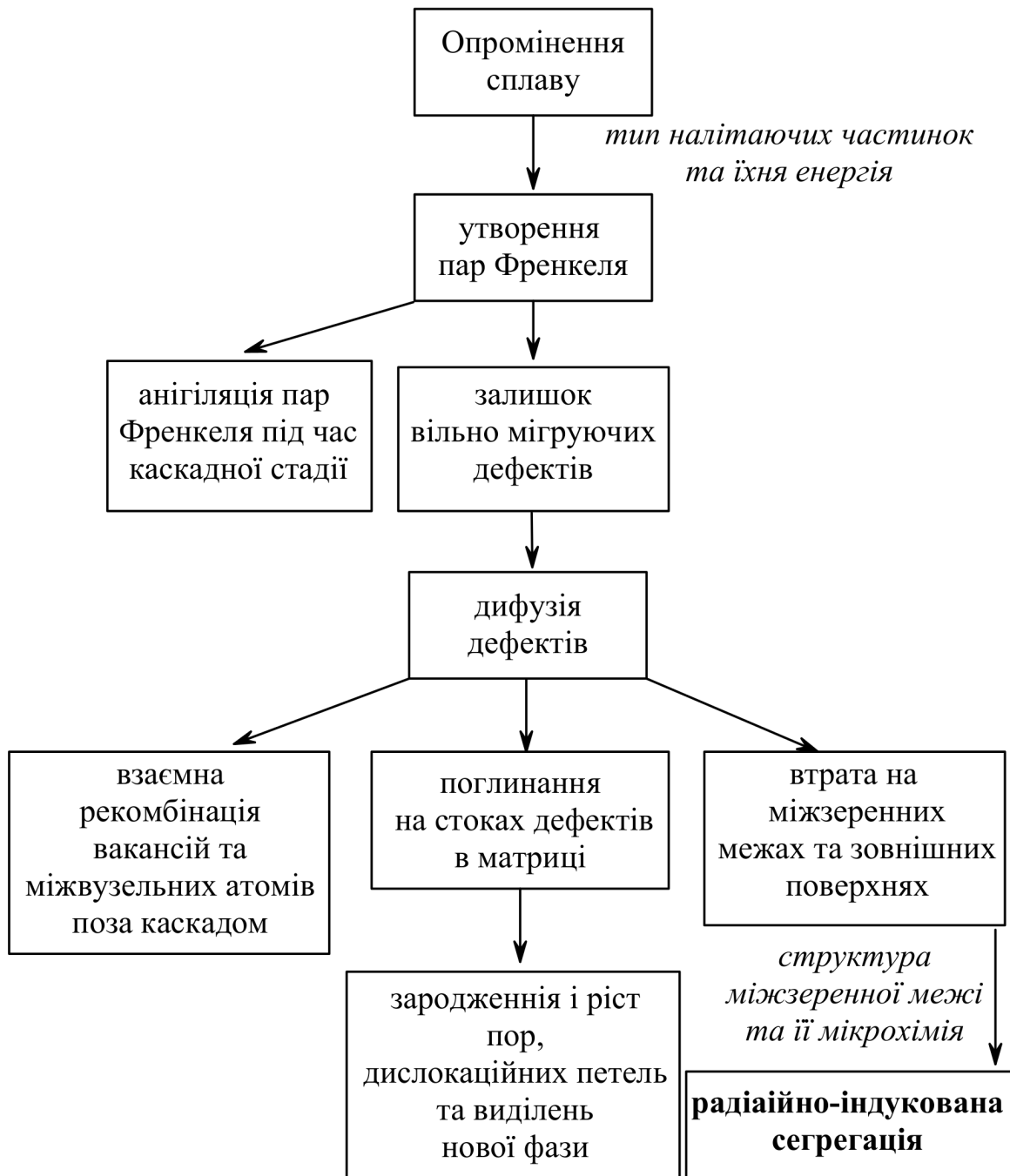


Рис. 1.1. Схематичне зображення еволюції ТД.

Для кількісного описання радіаційних пошкоджень матеріалу, як правило, використовують одиницю набраної дози: зміщення на атом (зна). Один зна вказує на те, що кожен атом ґратки за умов опромінення, в середньому, змістився зі свого вузла один раз. Набрана доза опромінення може бути записана у вигляді

$$D = K_0 t = \frac{\Phi \cdot \gamma}{N_0} t \quad (1.3)$$

де K_0 – швидкість продукування ТД [$\text{зна} \cdot \text{с}^{-1}$], t – час опромінення [с], Φ – потік налітаючих частинок [$\text{іон} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$], γ – кількість зміщених атомів ґратки однією налітаючою частинкою на одиницю довжини по нормалі до поверхні, N_0 – атомна густина матеріалу. Як відомо [19], швидкість продукування ТД в реакторах на легкій воді $K_0 = 10^{-8} - 10^{-7}$ зна/с, що відповідає декільком зна/рік, під електронним опроміненням $K_0 = 10^{-6} - 10^{-5}$ зна/с, під іонним опроміненням $K_0 = 10^{-4} - 10^{-2}$ зна/с. Зазначимо, що на прискорювальному мас-спектрометрі AMS-1MV Tandetron ІПФ НАН України при опроміненні матеріалів реакторобудування іонами Fe досягається швидкість продукування ТД $K_0 = 2,7 \cdot 10^{-3}$ зна/с [44].

Особливого значення мають дослідження впливу опромінення на конструкційні матеріали ядерних реакторів, які протягом тривалого терміну служби піддаються високим дозам радіаційного опромінення і при цьому повинні зберігати необхідні механічні і фізико-хімічні властивості та стабільні розміри. Для прикладу зазначимо, що реактори на легкій воді можуть зазнавати доз опромінення до 70 зна, а реактори IV покоління – в сотні зна (в тому числі реактор на біжучій хвилі (traveling-wave reactor) до 600 зна) [45, 46].

1.2. Фізика радіаційно-індукованої сегрегації

Явище РС полягає в просторовому перерозподілі атомів компонентів металевго сплаву за умов опромінення при проміжних температурах ($T = 0,3 - 0,5 T_{\text{пл.}}$) [19], що призводить до локальних змін долей компонентів сплаву. Перерозподіл компонентів сплаву відбуватиметься, якщо певний ТД (вакансія чи міжвузельний атом) по різному пов'язаний з головними, домішковими та легуючими компонентами сплаву при його міграції до стоку ТД. Такий ефект призводить до збагачення або збіднення названих компонентів поблизу стоків ТД. Збагачення або збіднення окремого компоненту сплаву на стоках ТД залежить від відносної взаємодії кожного компоненту з потоками ТД. Збіднення Cr та збагачення

Ni, Si і P на ММ в опроміненому зразку нержавіючої сталі 300-тої серії наведено на рис. 1.2 [47].

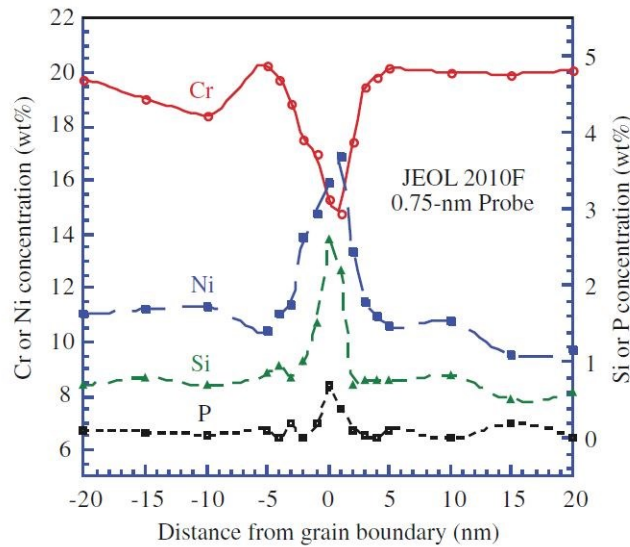


Рис. 1.2. Концентраційні профілі Cr, Ni, Si та P поблизу ММ в опроміненому нейтронами зразку нержавіючої сталі 300-тої серії. Рисунок взятий з роботи [47].

Для модельної двокомпонентної системи 50%A–50%B явище РІС схематично зображене на рис. 1.3 [19]. Зокрема, на рис. 1.3 а наведено схематичний концентраційний профіль вакансій $C_v(x)$ поблизу стоку ТД. Показано також, що потік вакансій J_v до стоку ТД врівноважується протилежними за напрямком потоками атомів компонентів сплаву А J_A^v та В J_B^v . Якщо доля атомів елементу А, які беруть участь у потоці вакансій, більша, ніж доля атомів А в сплаві, то буде спостерігатися збіднення елементу А поблизу стоку ТД та, відповідно, збагачення елементу В.

На рис. 1.3 б представлено схематичний концентраційний профіль міжвузельних атомів $C_i(x)$ поблизу стоку ТД. Потік міжвузельних атомів J_i до стоку ТД врівноважується потоком атомів компонентів сплаву J_A^i та J_B^i . Якщо доля атомів елементу В, які беруть участь у потоці міжвузельних атомів, більша, ніж доля атомів В в сплаві, то буде спостерігатися збагачення елементу В поблизу стоків ТД та збіднення елементу А.

Виходячи з наведених вище міркувань, на рис. 1.3 в зображено результуючі концентраційні профілі компонентів А $C_A(x)$ та В $C_B(x)$.

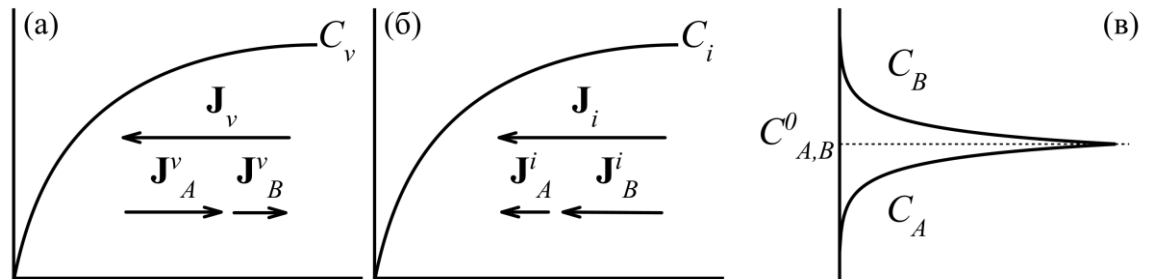


Рис. 1.3. Схематичне зображення РІС в двокомпонентному сплаві 50%A–50%B.

Рисунок взятий з роботи [19].

Відмітимо, що градієнти концентрації викликають зворотну дифузію компонентів сплаву. Якщо потоки компоненту врівноважуються зворотною дифузією, то при опроміненні можна спостерігати стаціонарний режим РІС [19], тобто стан, в якому профілі концентрації компонентів сплаву не змінюється під дією опромінення зі сталою швидкістю продукування ТД.

1.3. Механізми радіаційно-індукованої сегрегації

1.3.1. Перші припущення про механізми сегрегації в розбавлених сплавах

Ідеї описання РІС виникли з експериментів, проведених на неопромінених матеріалах, в яких пересичення нерівноважними вакансіями створювалося не за рахунок опромінення, а за рахунок швидкого охолодження після високотемпературного відпалу.

Для пояснення градієнтів твердості поблизу ММ, які виникають в зразках зонно-рафінованих Pb, Sn та Zn з домішками після гартування [48-50] Аустом (Aust) та співавторами [50] було запропоновано механізм, який вони назвали механізмом

кластеризації розчиненої речовини. Відповідно до цього механізму, нерівноважні вакансії, які дифундують до стоків ТД, в системах з додатною енергією зв'язку атому розчиненої речовини з вакансією, можуть перетягувати атоми розчиненої речовини до стоків ТД. За допомогою даного механізму автори [50] пояснювали збагачення розчиненої речовини на стоках ТД.

Інший механізм сегрегації розчиненої речовини був запропонований в роботі [51]. Згідно з цим механізмом зворотний потік атомів розчиненої речовини (від стоків ТД), який викликаний потоком вакансій (до стоків ТД), буде непропорційно складатися з найбільш мобільних атомів різних сортів розчину заміщення. Таким чином, атоми розчиненої речовини, значення коефіцієнтів дифузії яких вищі ніж у атомів матриці, та, які мають низьку енергію зв'язку атому розчиненої речовини з вакансією (порядку теплової енергії або менше), будуть дифундувати протилежно напрямку потоку вакансій. Цей механізм дозволяє пояснити збіднення розчиненої речовини на стоках ТД.

Ентоні (Anthony) зі співавторами [52-55] об'єднали два попередніх механізми та припустили, що сегрегація розчиненої речовини виникає за рахунок двох механізмів: 1) дифузії атомів протилежно потоку вакансій; 2) перетягування атомів вакансіями. В роботі [54] Ентоні зазначив, що достатньо тривалий ефект радіаційного опромінення призводить до суттєво сильнішої сегрегації домішки ніж при охолодженні. Отже, розраховане збагачення Zn на ММ в сплаві Al-Zn при опроміненні нейтронами ($\Phi = 2,5 \cdot 10^{15}$ нейтрон/см² с) протягом 3 місяців становило $\Delta C_{Zn}/C_{Zn} \cdot 100\% = 600\%$, а при повітряному охолодженні від $T = 630$ °С до кімнатної температури – $\Delta C_{Zn}/C_{Zn} \cdot 100\% = 80\%$.

В подальшому Окамото та Відерсіч (Okamoto and Wiedersich) [56] додали механізм сегрегації, згідно з яким атоми меншого розміру (відносно атомів матричного елемента) легше розміщуються в позиціях розташування міжвузельних атомів, ніж більшого. Це призводить до того, що відношення концентрації атомів розчиненої речовини меншого розміру до концентрації більшого, які входять до складу потоку міжвузельних атомів, перевищує відношення їхніх концентрацій в

матриці. Як результат, на стоках ТД буде спостерігатися збагачення атомів розчиненої речовини меншого розміру та збіднення атомів більшого розміру.

В моделі РІС Окамото та Відерсіча [56] припускалося, що спричинений ТД потік атомів розчиненої речовини $\mathbf{J}_s^p$ до стоків ТД пропорційний потоку тих ТД $\mathbf{J}_p$, які викликають сегрегацію розчиненої речовини, тобто

$$\mathbf{J}_s^p = \beta_s^p \mathbf{J}_p, \quad (1.4)$$

де індекс s відповідає атому розчиненої речовини, а p – ТД, коефіцієнт пропорційності β_s^p є мірою ефективності перетягування. Відмітимо, що β_s^p може набувати додатних і від’ємних значінь в залежності від домінуючого механізму сегрегації. Умову стаціонарного режиму в даній моделі можна записати у вигляді

$$\mathbf{J}_s^p = -\beta_s^p D_p \nabla C_p = -D_s \nabla C_s = -\mathbf{J}_s, \quad (1.5)$$

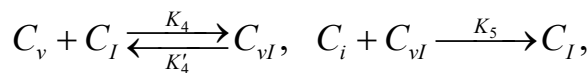
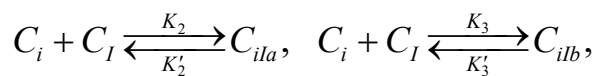
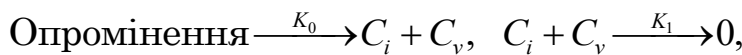
де D_p та D_s – коефіцієнти дифузії ТД та атомів розчиненої речовини.

Джонсон та Лам (Johnson and Lam) [57] розробили модель для дослідження РІС розчиненої речовини в ГЦК (гранецентрованих кубічних) металах. Модель включає взаємодію $\langle 100 \rangle$ розщеплених міжвузельних атомів з домішками (див. рис. 1.4), вакансій з домішками та можливість міграції зв’язаних комплексів.

Система рівнянь РІС в моделі Джонсона та Лама [57] складається з шести зв’язаних диференціальних рівнянь в частинних похідних:

$$\left\{ \begin{aligned}
\frac{\partial C_i}{\partial t} &= \nabla^2 \mathbf{J}_i + K_0 - K_1 C_i C_v - K_2 C_i C_I + K'_2 C_{ila} - K_3 C_i C_I + K'_3 C_{ilb} \\
&\quad - K_5 C_i C_{vl} - K_8 C_i C_{is}, \\
\frac{\partial C_v}{\partial t} &= \nabla^2 \mathbf{J}_v + K_0 - K_1 C_i C_v - K_4 C_v C_I + K'_4 C_{vl} - K_6 C_v C_{ila} \\
&\quad - K_7 C_v C_{ilb} - K_9 (C_v - C_v^{eq}) C_{vs}, \\
\frac{\partial C_I}{\partial t} &= \nabla^2 \mathbf{J}_I - K_2 C_i C_I + K'_2 C_{ila} - K_3 C_i C_I + K'_3 C_{ilb} - K_4 C_v C_I + K'_4 C_{vl} \\
&\quad + K_5 C_i C_{vl} + K_6 C_v C_{ila} + K_7 C_v C_{ilb}, \\
\frac{\partial C_{ila}}{\partial t} &= \nabla^2 \mathbf{J}_{ila} + K_2 C_i C_I - K'_2 C_{ila} - K_6 C_v C_{ila}, \\
\frac{\partial C_{ilb}}{\partial t} &= K_3 C_i C_I - K'_3 C_{ilb} - K_7 C_v C_{ilb}, \\
\frac{\partial C_{vl}}{\partial t} &= \nabla^2 \mathbf{J}_{vl} + K_4 C_v C_I - K'_4 C_{vl} - K_5 C_i C_{vl},
\end{aligned} \right. \quad (1.6)$$

де C_I – концентрація домішки, C_{ila} , C_{ilb} – концентрації двох типів комплексів (*a* та *b*) міжвузельний атом–домішка, C_{vl} – концентрація комплексів вакансія–домішка, C_{is} і C_{vs} – ефективна концентрація стоків міжвузельних атомів та вакансій, $\mathbf{J}_k$ – потоки ТД, домішки та комплексів ТД–домішка. Відмітимо, що в комплексах міжвузельний атом–домішка типу *a* $\langle 100 \rangle$ розщеплені міжвузельні атоми розташовані в положенні другого найближчого сусіда відносно домішки та можуть викликати міграцію домішки. В комплексах типу *b* – в положенні першого найближчого сусіда відносно домішки і не можуть викликати міграцію домішки (див. рис. 1.4). Константи швидкості K_i в системі рівнянь (1.6) відповідають наступним реакціям:



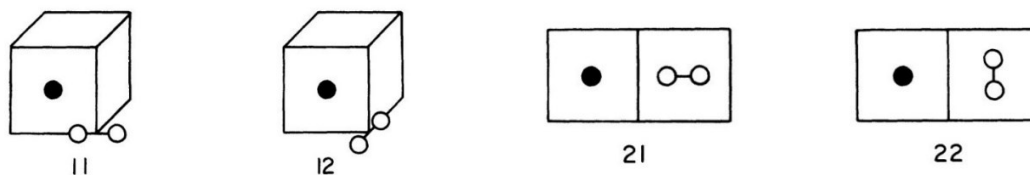
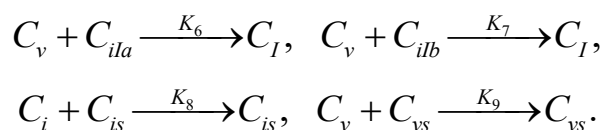


Рис. 1.4. Зв'язані конфігурації комплексів <100> розщеплений міжвузельний атом–домішка. До типу *a* відносяться конфігурації 21 та 22, до типу *b* – 12.

Рисунок взятий з роботи [57].

В сучасних дослідженнях для моделювання РІС в розбавлених металевих сплавах використовують механізм перетягування розчиненої речовини точковими дефектами [58-64]. Згідно з цим механізмом ТД утворюють зв'язані комплекси з атомами розчинених речовин, які рухаються до або від стоків ТД. Розчинені речовини, які мають атоми меншого розміру в порівнянні з атомами розчинника, міцно зв'язуються з міжвузельними атомами, що призводить до їхнього збагачення на стоках ТД. Атоми розчинених речовин більшого розміру слабо зв'язуються з вакансіями, що призводить до їхнього збіднення на стоках ТД [60]. В роботі [63] зазначено, що комплекси ТД-розчинена речовина можна виділити в сплавах, в яких концентрація розчинених речовин не перевищує 1–2%, а при більших концентраціях індивідуальний характер комплексів втрачається. Виявляється, що хоча цей підхід був розроблений для сплавів з малими концентраціями компонентів, він непогано описує ефекти РІС і для сплавів з достатньо високими концентраціями компонентів, що підтверджується експериментально[64].

1.3.2. Зворотний ефект Кіркендала

В 1978 р. Марвіком (Marwick) [65] для описання РІС в концентрованих металевих сплавах був запропонований зворотний механізм Кіркендала. При

побудові моделі РІС в концентрованих сплавах Марвік [65] виходив з припущення, що ефект Кіркендала [66], на перший погляд, є точною протилежністю РІС. Адже, згідно з ефектом Кіркендала градієнти концентрацій компонентів сплаву, які виникають внаслідок різної взаємодії компонентів з вакансіями, викликають потік вакансій. Натомість, при РІС градієнти концентрацій компонентів сплаву виникають внаслідок потоку згенерованих опроміненням вакансій.

Марвіком [65] зазначено, що в теорії Кіркендала нехтується будь-якими зв'язками між вакансіями та окремими сортами атомів, що є суттєвим спрощенням. Для концентрованих сплавів це припущення прийнятне, оскільки будь-яка вакансія матиме представників усіх компонентів сплаву серед своїх найближчих сусідів [65], тобто неможливо виділити комплекси вакансія-компонент сплаву. Однак, із вищесказаного видно, що в розбавлених сплавах нехтувати зв'язками між ТД та окремими сортами атомів некоректно. Відмітимо, що в роботі [65] не розглядався вплив міжвузельних атомів на перерозподіл компонентів сплаву.

Значний внесок в теорію РІС Марвіка [65], яка базується на зворотному ефекті Кіркендала для двокомпонентних концентрованих сплавів було здійснено Відерсічем, Окамото та Лемом [67]. Ці автори припустили, що в двокомпонентному сплаві А-В в процесі РІС атоми А і В дифундують лише за вакансійним та міжвузельним механізмами. Отже, потік міжвузельних атомів продукує рівний за значенням та напрямком потік атомів компонентів сплаву, які дифундують за міжвузельним механізмом:

$$\mathbf{J}_i = \mathbf{J}_i^A + \mathbf{J}_i^B = \mathbf{J}_A^i + \mathbf{J}_B^i,$$

а потік вакансій продукує рівний за значенням і протилежний за напрямком потік атомів компонентів сплаву, які дифундують за вакансійним механізмом:

$$\mathbf{J}_v = \mathbf{J}_v^A + \mathbf{J}_v^B = -(\mathbf{J}_A^v + \mathbf{J}_B^v).$$

Відповідно, вирази для потоків атомів А та В матимуть вигляд:

$$\mathbf{J}_A = \mathbf{J}_A^v + \mathbf{J}_A^i = -\mathbf{J}_v^A + \mathbf{J}_i^A,$$

$$\mathbf{J}_B = \mathbf{J}_B^v + \mathbf{J}_B^i = -\mathbf{J}_v^B + \mathbf{J}_i^B.$$

Система рівнянь РІС в моделі [67], яка описує просторово-часову еволюцію ТД та компонентів сплаву має вигляд

$$\begin{cases} \frac{\partial C_A}{\partial t} = -\nabla \mathbf{J}_A, \\ \frac{\partial C_v}{\partial t} = -\nabla \mathbf{J}_v + K_0 - R_{iv} C_v C_i, \\ \frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla \mathbf{J}_i + K_0 - R_{iv} C_v C_i, \end{cases} \quad (1.7)$$

де K_0 – швидкість продукування ТД, R_{iv} – коефіцієнт рекомбінації ТД. Концентрацію атомів сорту В можна знайти з виразу

$$C_B = C_A - 1.$$

Модель РІС в трикомпонентних сплавах вперше була сформульована в роботі Лама та співавторів [68]. Для розрахунку РІС в аустенітних сплавах Fe-Cr-Ni, зазначена модель була вдосконалена в роботах Перкса (Perks) та співавторів [69, 70]. В моделі Перкса [70] припускалося, що в аустенітних сплавах ефект РІС обумовлений різною взаємодією атомів компонентів сплаву з вакансіями, а міжвузельні атоми практично не впливають на результат РІС. Відмітимо, що в моделі Перкса коефіцієнти дифузії вакансій не залежать від кількісного складу сплаву. Подальші теоретичні дослідження РІС в трикомпонентних аустенітних

сплавах Fe-Cr-Ni наведено в роботах [71, 72]. В роботі [73] модель Перкса застосовано для моделювання РІС в п'ятикомпонентному сплаві Fe-Cr-Ni-Si-Mo.

В роботі [74] було запропоновано метод розрахунку енергій міграції вакансій компонентів аустенітних сплавів Fe-Cr-Ni $E_{k,v}^m$ (нижній індекс $k=Fe, Cr, Ni$) на основі локального складу сплаву і було показано, що коефіцієнти дифузії

$$d_{k,v} \sim \exp\left(-\frac{E_{k,v}^m}{k_b T}\right)$$

залежать від стехіометрії сплаву. Сама модель, яка представлена

в [74], отримала назву модифікована модель Перкса або modified inverse Kirkendall model (МІК). На рис. 1.5 наведено залежності концентрації Cr на ММ C_{Cr}^{gb} від температури T (а) та набраної дози опромінення D (б), які розраховані в моделях Перкса та МІК [74]. З рис. 1.3 видно, що результати, одержані в рамках моделі МІК, краще збігаються з експериментом ніж на основі моделі Перкса.

В роботі [75] зазначено, що для багатоконпонентних сплавів в стаціонарному режимі РІС існує пропорційність між градієнтом концентрації k -го компоненту сплаву ∇C_k та градієнтом концентрації вакансій ∇C_v :

$$\nabla C_k = \mathcal{D}_k \nabla C_v,$$

де $\mathcal{D}_k$ – дискримінанту РІС, який має наступний вигляд [75]:

$$\mathcal{D}_k = \frac{\frac{d_{k,v} C_k}{D_k} \sum_{j \neq k} \frac{d_{j,i} C_j}{D_j} - \frac{d_{k,i} C_k}{D_k} \sum_{j \neq k} \frac{d_{j,v} C_j}{D_j}}{\sum_j \frac{d_{j,i} C_j}{D_j}}. \quad (1.8)$$

В формулі (1.8) $d_{k,p}$ – кінетичні коефіцієнти, через які виражаються коефіцієнти дифузії компонентів D_k та ТД D_p . Дискримінант РІС вказує на збіднення ($\mathcal{D}_k > 0$) чи збагачення ($\mathcal{D}_k < 0$) компонентів сплаву на стоках ТД в стаціонарному режимі

РІС. Розраховані в [75] значення $\mathcal{D}_k$ для аустенітних сплавів Fe-Cr-Ni свідчать, що по компоненту Cr завжди буде збіднення на стоках ТД, по Ni – збагачення, а ситуація по Fe залежить від концентраційного складу сплаву.

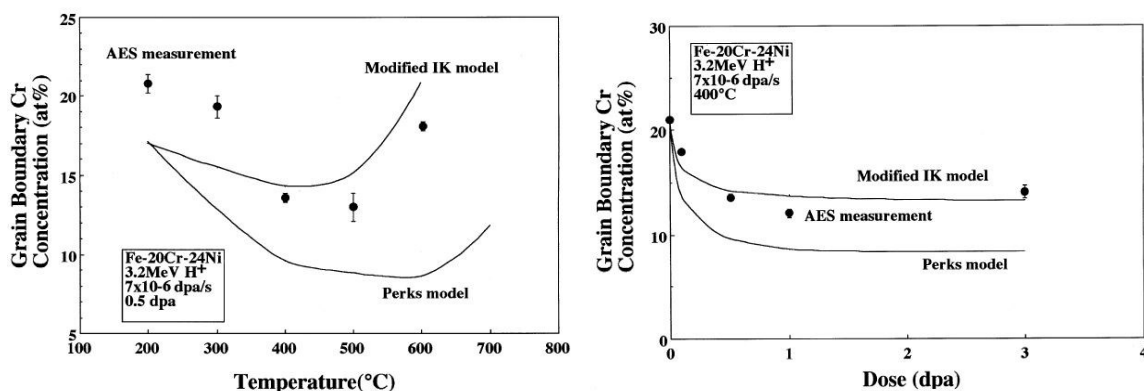


Рис. 1.5. Залежності концентрації Cr на ММ від температури (а) та дози (б) у сплаві Fe-20Cr-24Ni, отримані експериментально і розрахована в моделях Перкса [69] та моделі, яка представлена в [74]. Рисунок взятий з роботи [74].

Вплив домішкових елементів, які мають атоми більшого розміру ніж атоми Fe на РІС в аустенітних сплавах Fe-Cr-Ni досліджено в роботах [76-78]. Автори [76-78] вважали, що домішки утворюють з вакансіями комплекси вакансія-домішка. Теоретично встановлено, що додавання таких домішок, а саме: Hf, Zn, Ti призводить до зменшення збіднення Cr на ММ [76-78], що добре співвідноситься з експериментальними результатами [64, 77]. Зазначений ефект пояснюється тим, що домішки більшого розміру, які утворюють комплекси вакансія-домішка і мігрують від ММ, зменшують кількість вільних вакансій, які доступні для дифузії Cr в глибину зерна. В роботі [79] теоретично показано, що додавання розчинених речовин, які мають атоми меншого розміру ніж атоми Fe, а саме Si і P зменшують збіднення Cr та збагачення Ni на ММ. Таке послаблення ефектів РІС пояснюється сильною взаємодією домішок меншого розміру з міжвузельними атомами [79].

В роботах [80, 81] обговорено коректність застосування моделі РІС, яка базується на зворотному ефекті Кіркендала до феритно-мартенситних сплавів на прикладі двокомпонентного сплаву Fe-9Cr. Автори [80] зазначили, що в феритно-

мартенситних сплавах, на відміну від аустенітних сталей, міжвузельні атоми сильно впливають на процеси РІС. В роботі [81] встановлено, що в феритно-мартенситних сплавах домінуючим механізмом РІС є механізм, який базується на зворотному ефекті Кіркендала. Даний механізм, на відміну від механізму перетягування розчиненої речовини точковими дефектами (див. наприклад [58-64]), дозволяє пояснити перехід від збагачення Cr до збіднення при зміні температури [81]. На додаток, механізм, який базується на зворотному ефекті Кіркендала дозволяє пояснити зменшення величини збагачення Cr зі збільшенням масової концентрації Cr в сплаві [81].

Перерозподіл елементів в матеріалі при опроміненні іонами Cr чистого Fe та сплаву Fe-14Cr методом математичного моделювання досліджено в роботі [82]. Автори [82] врахували вплив імплантованих іонів та неоднорідну по глибині імплантації швидкість продукування ТД на перерозподіл компонентів сплаву. В роботі [82] показано, що профіль імплантованих іонів, який одержаний з врахуванням РІС, може значно відрізнятися від профілю імплантованих іонів, розрахованого за допомогою SRIM.

Проведені розрахунки РІС на основі моделі, яка враховує структуру ММ в аустенітних нержавіючих сталях [83-87] та феритно-мартенситному сплаві Fe-9мас.%Cr [88] вказують на залежність значення збагачення/збіднення компонентів на ММ від куту розорієнтації зерен θ . В роботі [88] автори зазначають, що ефективність поглинання ТД на ММ збільшується з ростом енергії ММ, а саме збагачення Cr на ММ з великим кутом розорієнтації є найвищим та зменшується для ММ з малими кутами розорієнтації і спеціальних ММ. В роботі [86] при моделюванні РІС в нержавіючій сталі серії 304 автори встановили, що на ММ $\Sigma 3$ ефекти РІС подавляються навіть при високих дозах опромінення ($D \geq 40$ зна), а на випадкових ММ з великим кутом розорієнтації РІС була максимальною.

Моделювання РІС при радіаційному росту зерна в нанокристалічному аустенітному сплаві Fe–Cr–Ni проведено в роботі [89]. Показано, що з ростом зерна ефекти РІС стають сильнішими завдяки як збільшенню розміру зерна так і руху стоків ТД. Автори [89] наголошують, що при типовому зростанні зерна, яке

спостерігається в експериментах, зміна елементного складу в малих зернах може бути досить значною, щоб змінити відносну стабільність фаз.

В роботі [90] методом числового моделювання проаналізовано дифузійні потоки поблизу ММ в опромінених сплавах Fe-Cr-Ni. Виявлено, що дифузійні потоки в околі ММ сильно змінюються внаслідок РІС. Це призводить до утворення «W-подібних» концентраційних профілів компонентів сплаву при низьких дозах опромінення, також автори зазначають можливість зміни збагачення на збіднення або навпаки компонентів сплаву поблизу стоків ТД до досягнення стаціонарного стану. В роботі [90] встановлено, що домінуючим механізм дифузії для Cr та Fe є вакансійний, тоді як для Ni домінуючий механізм дифузії може змінюватися з вакансійного на міжвузельний.

Туркіном зі співавторами [91, 92] сформульовано модель РІС на базі концепції ефективного середовища для двокомпонентних сплавів за умов опромінення та отримано рівняння швидкостей реакцій для концентрацій ТД.

Відмітимо, що для моделювання РІС в феритних сплавах в тому числі використовують підходи, які базуються на методі фазового поля [93-98] та атомістичний кінетичний метод Монте-Карло [94, 99, 100]. Крім сплавів на основі Fe з великим вмістом Cr комп'ютерні дослідження РІС проведено для сплавів Fe–Cu–Mn [101], Fe–Ti–Y–O [102], Cu–Au [103], а також сплавів на основі Ni [104, 105].

1.4. Експериментальні дослідження радіаційно-індукованої сегрегації Cr в аустенітних та феритно-мартенситних сплавах

На практиці концентрації основних та домішкових елементів в опромінених сплавах вимірюють як на стоках ТД, так і в різних точках поблизу них. Такі вимірювання слугують основою для побудови концентраційних профілів досліджуваних елементів (див. наприклад рис. 1.3). В даному підрозділі ми сконцентруємо увагу переважно на експериментальних результатах, пов'язаних зі збідненням чи збагаченням Cr на стоках ТД в аустенітних та феритно-мартенситних

сплавах, хоча дана характеристика і не несе повне уявлення про РІС Cr в зазначених сплавах.

При високих дозах опромінення в зразках аустенітних сталей спостерігається збіднення Cr та збагачення Ni на ММ [47, 77, 85, 106-114], дислокаційних петлях [110, 115], навколо пор заповнених He [116], тощо. В роботі [47] зазначається, що збагачення Cr на ММ в неопромінених відпалених нержавіючих сталях сприяє утворенню «W-подібних» профілів Cr при низьких дозах та затримує розвиток стаціонарного профілю збіднення (див. рис. 1.6). Автори роботи [112] спостерігали «W-подібний» концентраційний профіль Cr в околі ММ в зразку 304 нержавіючої сталі, який опромінений нейтронами до дози $D \sim 3,5$ зна (див. рис. 1.7).

В опромінених протонами сплавах Ni-18Cr, Ni-18Cr-9Fe і Ni-18Cr-0.08P спостерігалось збіднення Cr на ММ [106, 117]. За однакових умов опромінення в сплаві Ni-18Cr-9Fe значення збіднення Cr менше ніж в Ni-18Cr, а в сплаві Ni-18Cr-0.08P – більше [117].

В феритно-мартенситних сплавах результат збагачення чи збіднення Cr на стоках ТД залежить від масової концентрації Cr в сплаві, температури під час опромінення, наявності домішкових елементів, тощо. Факт збагачення Cr спостерігається в опромінених нейтронами сплавах FV448 [118], Fe-Cr-Al (10-13мас.%Cr і 5-6мас.%Al) [119], Eurofer97 [120], HT9 [121-123], Fe-3ат.%Cr [29], опромінених електронами сплавах Fe-10Cr-xMn-3Al (x=5, 10 або 15) [124], опромінений протонами сталі T91 [125, 126], опромінений іонами Ni^+ сталі HCM12A [127], опромінені іонами гелію RAFM сталі [128]. Зазначається наявність збіднення Cr в матриці опромінених іонами Fe^+ плівок Fe-10ат.%Cr при кімнатній температурі [129] та $T = 300$ C [31], що, ймовірно, спричиняє збагачення Cr на ММ.

Зміна концентрації Cr в бік збіднення спостерігається в опроміненому нейтронами сплаві Fe-3Cr [29], опромінених електронами сплавах Fe-5 ат.% Cr та Fe-13 ат.% Cr [130], опромінений протонами сталі F82H [131], опромінених іонами Ni^+ сплавах E911 і E911+1 мас.% Hf [64], сталі HT9 при опроміненні іонами Fe^{++} [132] та подвійним пучком He і Fe^{++} [133].

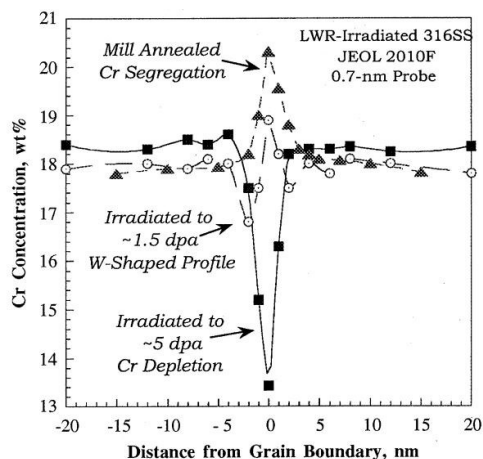


Рис. 1.6. Концентраційні профілі Cr в околі високоенергетичної ММ в комерційній сталі 316SS. Рисунок взятий з роботи [47].

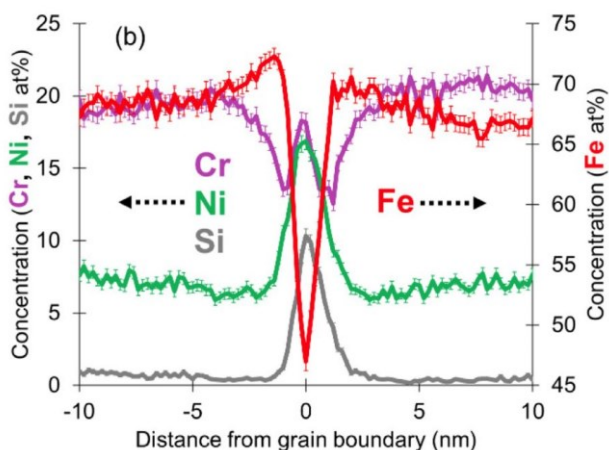


Рис. 1.7. Концентраційні профілі Cr, Ni, Si та Fe в околі ММ, одержані за допомогою атомно-зондової томографії. Рисунок взятий з роботи [112].

В опромінених іонами C^+ сплавах Fe-13мас.%Cr та Fe-13мас.%Cr-1мас.%Si зафіксовано збагачення Cr, а в сплаві Fe-13мас.%Cr-1мас.%Ti – збіднення Cr [134]. Автори роботи [108] зазначають факт збіднення Cr на ММ в опромінених іонами Cr^{3+} сплавах Fe-9Cr-2Mo, Fe-13Cr-2Mo, Fe-13Cr-2Mo-NbVB та збагачення Cr на $\langle 100 \rangle$ дислокаційній петлі в сплаві Fe-13Cr-2Mo-NbVB. В роботі [135] після опромінення іонами Fe зразку сплаву Fe-12мас.%Cr автори виявили як збагачення, так і збіднення Cr на різних ММ в рамках одного зразку.

Дослідження РІС на ММ в опромінених протонами феритно-мартенситних сплавах T91, HT9, HCM12A та Fe-9Cr при різних значеннях набраної дози та

температури наведено в роботах [136, 137]. Деякі експериментальні результати роботи [137] представлені на рис. 1.8. Для сталі T91 при дозі $D=3$ зна зі збільшенням температури від $T=600$ С до $T=700$ С збагачення Cr переходить у збіднення [137]. Для HT9 при $T=400$ С та дозі $D=3$ зна спостерігається збагачення Cr, а при $D=7$ та $D=10$ зна – збіднення [136, 137]. В сталі HCM12A при $T=400$ С, дозі $D=3$ зна в дослідженні [136] сегрегації Cr не спостерігалось, а в роботі [137], за тих же умов, зафіксовано збагачення Cr на ММ, при $D=7$ зна виявлено збіднення Cr [136]. В сплаві Fe-9Cr при $T=400$ С, дозах $D=1, 3, 7, 10$ зна спостерігалось збагачення Cr [137].

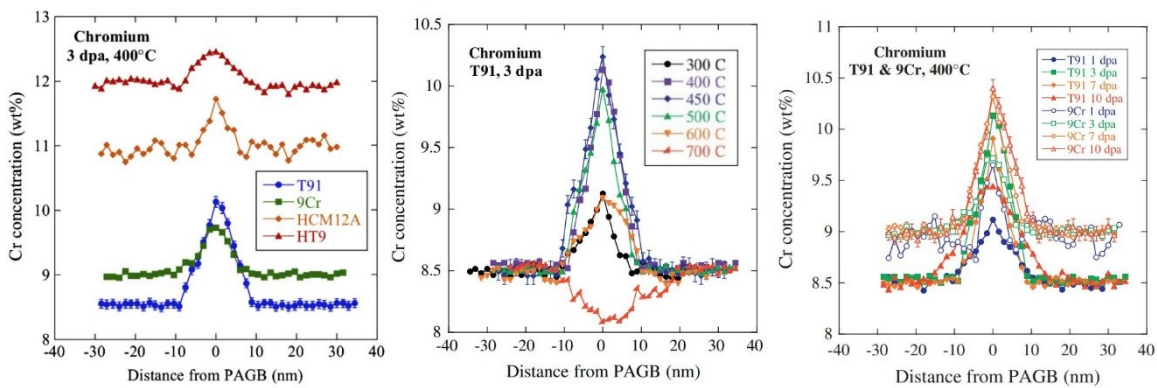


Рис. 1.8. Концентраційні профілі Cr в феритно-мартенситних сплавах за різних умов опромінення. Рисунок взятий з роботи [137].

1.5. Пізня стадія сегрегації домішки на міжзеренній межі (визрівання Оствальда)

Явище РІС відноситься до нерівноважної сегрегації, яка відбувається під опроміненням. В пересиченому атомами домішки твердому розчині при достатньо високих температурах відбувається сегрегація домішки з об'єму зерна до ММ. Це призводить до збагачення атомів домішки на ММ. Дане явище називається рівноважною сегрегацією (див. монографію Мак Ліна [138]). Вважається, що матриця-сплав в розглянутому інтервалі температур є стабільною, тобто в ній не відбуваються процеси дифузійного перерозподілу компонентів сплаву. Зміни

концентрації домішкових елементів на ММ можуть призвести до пересичення відповідного двовимірного твердого розчину та, як наслідок, до утворення зародків нової фази.

У випадку пересиченого твердого розчину під час сегрегації домішки з об'єму зерен до ММ в її площині можуть утворюються виділення нової фази. На пізній стадії пересичення матеріалу домішками стає малим, тому нові виділення нової фази на ММ не зароджуються. Отже, відбувається процес росту більших виділень та зменшення в розмірі і зникнення менших [139]. На пізній стадії можна вважати, що радіус виділення $R = R(t)$ достатньо великий ($R \gg \delta$, δ – товщина ММ). Ця стадія була відкрита в 1900 р. Оствальдом [140] і одержала назву визрівання Оствальда (ВО) [141-143]. Основи внутрішньо несуперечної та послідовної теорії ВО були закладені в роботах Ліфшиця і Сльозова [144] та Вагнера [145]. З точки зору теорії фазових переходів ВО є останньою, так званою пізньою стадією фазового переходу 1 роду (див. [139]).

До питань, які розглядалися в теорії ВО, належать, зокрема: визрівання багатокомпонентних виділень [146], ріст острівцевих плівок на твердій поверхні [147-150], ріст кристалів в рідинах [151], ВО з урахуванням шуму [152], процес ВО в нерозбавлених бінарних розчинах, в яких враховано вплив нерівноважних вакансій [153], ріст квантових точок [150, 154], ВО плоских виділення на ММ [155, 156] та інші питання [141-143, 157-176].

Швидкість зростання виділень нової фази негативно впливає на стабільність мікроструктури [175] та механічні властивості сплавів, в тому числі призводить до старіння металевих конструкцій [142, 143, 177].

Висновки до розділу 1

Моделювання РІС на сьогодні є актуальною задачею, адже зміни локального складу сплаву, які відбуваються за умов опромінення, можуть прискорювати утворення виділень нової фази та призводять до деградації механічних і фізико-хімічних властивостей сплавів. Із літературного огляду випливає, що незважаючи

на певні досягнення у цьому напрямку є коло відкритих питань, які не були розглянуті у попередніх роботах, зокрема:

- не проведено комплексного і всеохоплюючого дослідження визначальних кількісних характеристик РІС в сплавах Fe-Cr та Fe-Cr-Ni від початку опромінення до виходу на стаціонарний режим РІС за різних набраних дозах, швидкостях продукування ТД та температурах;
- детально не проаналізований вплив дислокаційної підсистеми сплаву на визначальні кількісні характеристики РІС;
- методами комп'ютерного моделювання не досліджено взаємний вплив швидкості продукування ТД і температури на концентраційні профілі компонентів сплаву за умов опромінення, що дає змогу точніше обирати параметри симуляційних експериментів при дослідженні змін локальної концентрації сплаву в корпусах ядерних реакторів;
- не проведено теоретичного дослідження пізньої стадії (визрівання Оствальда) сегрегації домішки на ММ у випадку утворення сферичних виділень нової фази, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою вбудови атомів домішки в виділення.

РОЗДІЛ 2.

МОДЕЛЮВАННЯ РІС В ДВОКОМПОНЕНТНИХ КОНЦЕНТРОВАНИХ МЕТАЛЕВИХ СПЛАВАХ Fe-Cr

2.1. Модель РІС для N -компонентних концентрованих металевих сплавах

Для зручності в рівняннях РІС концентрацію будемо вимірювати в долях числа атомів чи вакансій по відношенню до загального числа атомів розчину $C_m = N_m / N^{tot}$, а не числом атомів або вакансій в одиниці об'єму $C_m^V = N_m / V$, де $m = 1, 2, 3, \dots, v, i$, N_m – число атомів чи вакансій сорту m , N^{tot} – сумарне число атомів сплаву, а V – об'єм сплаву. З означення середнього атомного об'єму $\Omega = V^{tot} / N^{tot} = \frac{V^{tot} / N_m}{N^{tot} / N_m} = \frac{1 / C_m^V}{1 / C_m}$ випливає, що доля числа атомів чи вакансій визначається виразом

$$C_m = \Omega \cdot C_m^V. \quad (2.1)$$

Відмітимо також, що для зручності в тексті роботи та на рисунках концентрації компонентів сплаву приводитимуться в ат.%, тобто $C_m \cdot 100\%$, а концентрації ТД в молярних долях.

2.1.1. Основні рівняння РІС для N -компонентних концентрованих металевих сплавах

Під час моделювання РІС в концентрованих сплавах на основі Fe застосовувалась модель, яка базується на першому та другому законах Фіка з врахуванням оберненого ефекту Кіркендалла (inverse Kirkendall model) [19, 67, 80, 81, 178]. Розглянемо N -компонентний концентрований металевий сплав, який складається з атомів сорту $k = 1, 2, 3, \dots, N$. Тоді просторово-часова еволюція

концентрацій атомів сорту k $C_k(x, t)$, вакансій (v) $C_v(x, t)$ та міжвузельних атомів (i) $C_i(x, t)$ задається системою з $k + 2$ зв'язаних нелінійних диференціальних рівнянь у частинних похідних [19, 67]:

$$\begin{cases} \frac{\partial C_k}{\partial t} = -\nabla \mathbf{J}_k, (k = 1, 2, 3, \dots, N) \\ \frac{\partial C_v}{\partial t} = -\nabla \mathbf{J}_v + K_0 - R_{iv} C_v C_i, \\ \frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla \mathbf{J}_i + K_0 - R_{iv} C_v C_i. \end{cases} \quad (2.2)$$

де $\mathbf{J}_k$ та $\mathbf{J}_p$ (тут і далі нижній індекс $p = v, i$) – потоки атомів сорту k і ТД сорту p , R_{iv} – коефіцієнт рекомбінації вакансій та міжвузельних атомів, K_0 – швидкість продукування радіаційних ТД. Відмітимо, що концентрації ТД $C_{v(i)}(x, t)$ на декілька порядків менше концентрацій атомів сорту k $C_k(x, t)$ (наприклад, як показано в роботі [1], при температурі $T = 300^\circ\text{C}$, швидкості продукування радіаційних ТД $K_0 = 10^{-5}$ зна/с, набраній дозі опромінення $D = 1$ зна максимальні значення концентрацій ТД дорівнюють: $C_v = 4,422 \times 10^{-9}$ молярних доль, $C_i = 1,514 \times 10^{-10}$ молярних доль), таким чином з достатньо великою точністю можна вважати, що

$$\sum_{k=1, 2, 3, \dots, N} C_k = 1. \quad (2.3)$$

Вирази для потоків атомів сорту k $\mathbf{J}_k$ і ТД $\mathbf{J}_{v(i)}$ в N -компонентний сплавах можна записати як:

$$\mathbf{J}_k = -\alpha D_k \nabla C_k + C_k (d_{k,v} \nabla C_v - d_{k,i} \nabla C_i), \quad (2.4)$$

$$\mathbf{J}_v = -D_v \nabla C_v + \alpha C_v \left(\sum_{k=1,2,3,\dots,N} d_{k,v} \nabla C_k \right), \quad (2.5)$$

$$\mathbf{J}_i = -D_i \nabla C_i - \alpha C_i \left(\sum_{k=1,2,3,\dots,N} d_{k,i} \nabla C_k \right), \quad (2.6)$$

де D_k та D_p – коефіцієнти дифузії компонентів сорту k і ТД сорту p , $d_{k,v}$ та $d_{k,i}$ – кінетичні коефіцієнти (diffusivity coefficients [19, 67]) компонентів сорту k , які дифундують за вакансійними і міжвузельними механізмами, відповідно, α – термодинамічний фактор. Коефіцієнти дифузії атомів компонентів сплаву мають вигляд:

$$D_k = d_{k,v} C_v + d_{k,i} C_i. \quad (2.7)$$

а коефіцієнти дифузії ТД:

$$D_p = \sum_{k=1,2,3,\dots,N} d_{k,p} C_k, \quad (2.8)$$

Вирази для кінетичних коефіцієнтів $d_{k,p}$ можна записати в формі Арреніуса як [19]:

$$d_{k,p} = d_{k,p}^0 \exp\left(\frac{-E_{k,p}^m}{k_b T}\right), \quad (2.9)$$

де $d_{k,p}^0$ – передекспоненціальний фактор, $E_{k,p}^m$ – енергія міграції ТД сорту p за допомогою атомів сорту k , k_b – стала Больцмана, T – температура. Швидкість рекомбінації дефектів визначається виразом [99]:

$$R_{iv} = \frac{4\pi r_{iv}}{\Omega} \left[\sum_{k=1,2,3,\dots,N} (d_{k,v} + d_{k,i}) C_k \right], \quad (2.10)$$

де r_{iv} – радіус рекомбінації ТД, Ω – середній атомний об’єм в сплаві.

Будемо вважати, що для потоків компонентів (2.4) та ТД (2.5), (2.6) виконується умова балансу [19,179]

$$\sum_{k=1,2,3,\dots,N} \mathbf{J}_k = -\mathbf{J}_v + \mathbf{J}_i. \quad (2.11)$$

З рівності (2.11) слідує, що в системі (2.2) незалежними є тільки $k+1$ рівняння (тобто вважається, що дифузія атомів в сплаві відбувається лише за вакансійним та міжвузельним механізмами, а іншими механізмами дифузії можна нехтувати). Розв’язуючи систему рівнянь (2.2) відносно концентрацій C_j атомів сорту $j=1,2,3,\dots,N-1$, вакансій C_v та міжвузельних атомів C_i , концентрацію атомів сорту N C_N знайдемо з умови (2.3)

$$C_N = 1 - \sum_{j=1,2,3,\dots,N-1} C_j. \quad (2.12)$$

Підставляючи вирази для дифузійних потоків (2.4)-(2.6) в систему (2.2), одержимо систему зв’язаних диференціальних рівнянь для концентрацій $N-1$ компонентів сплаву C_i , вакансій C_v і міжвузельних атомів C_i :

$$\begin{cases} \frac{\partial C_l}{\partial t} = -\nabla \left[-\alpha D_l \nabla C_l + C_l (d_{l,v} \nabla C_v - d_{l,i} \nabla C_i) \right], (l = 1, 2, 3, \dots, N-1) \\ \frac{\partial C_v}{\partial t} = -\nabla \left[-D_v \nabla C_v + \alpha C_v \left(\sum_{k=1, 2, 3, \dots, N} d_{k,v} \nabla C_k \right) \right] + K_0 - R_{iv} C_v C_i, \\ \frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla \left[-D_i \nabla C_i - \alpha C_i \left(\sum_{k=1, 2, 3, \dots, N} d_{k,i} \nabla C_k \right) \right] + K_0 - R_{iv} C_v C_i \end{cases} \quad (2.13)$$

і додаткове співвідношення (2.12) для концентрації N -го компонента C_N . Одержана система (2.12), (2.13) описує РІС в N -компонентних концентрованих металевих сплавах.

2.1.2. Початкові та граничні умови до рівнянь РІС у випадку плаского металевого шару

Будемо вважати, що зразок сплаву являє собою шар з постійною товщиною ℓ , який займає область $0 \leq x \leq \ell$. Для одержання розподілів атомів і ТД в часі та просторі система зв'язаних диференціальних рівнянь в частинних похідних (2.13) розв'язувалася з використанням відповідних початкових та граничних умов.

Будемо вважати, що в початковий момент часу ($t = 0$) атоми сплаву розподілені випадково по всьому зразку, тобто

$$C_k(x, t) \Big|_{t=0} = C_k^0, \quad (2.14)$$

а концентрації ТД $C_{v(i)}(x, t)$ відповідають термодинамічно рівноважним значенням $C_{v(i)}^{eq}$

$$C_v(x, t) \Big|_{t=0} = C_v^{eq}, \quad C_i(x, t) \Big|_{t=0} = C_i^{eq}. \quad (2.15)$$

Для термодинамічно рівноважних концентрацій ТД C_v^{eq} та C_i^{eq} справедливі наступні формули [19]:

$$C_v^{eq} = \exp\left(\frac{S_v^f}{k_b}\right) \exp\left(-\frac{E_v^f}{k_b T}\right), \quad (2.16)$$

$$C_i^{eq} = \exp\left(-\frac{E_i^f}{k_b T}\right), \quad (2.17)$$

де S_v^f – ентропія формування вакансій, E_v^f – енергія формування вакансій, E_i^f – енергія формування міжвузельних атомів.

Вважаємо, що поверхні зразка ($x=0, x=\ell$) є стоками ТД такої потужності, що концентрації ТД $C_v(x,t)$ та $C_i(x,t)$ в безпосередній близькості від стоків не змінюються при опроміненні та дорівнюють відповідним термодинамічно рівноважним значенням C_v^{eq} і C_i^{eq} . Тоді при $x=0$ сформулюємо наступні граничні умови:

$$C_v(x,t)|_{x=0} = C_v^{eq}, \quad C_i(x,t)|_{x=0} = C_i^{eq}. \quad (2.18)$$

Оскільки ТД генеруються однорідно по всьому об'єму зразку, природно вважати, що задача симетрична відносно площини $x=\ell/2$. Отже, в подальшому будемо розглядати лише ліву половину зразку ($0 \leq x \leq \ell/2$), а градієнти всіх концентрацій в площині симетрії покладемо рівними нулю:

$$\left. \frac{\partial C_k(x,t)}{\partial x} \right|_{x=\ell/2} = \left. \frac{\partial C_v(x,t)}{\partial x} \right|_{x=\ell/2} = \left. \frac{\partial C_i(x,t)}{\partial x} \right|_{x=\ell/2} = 0. \quad (2.19)$$

Враховуючи те, що атоми речовини не імплантуються в зразок і не випаровуються з нього, для концентрації атомів сплаву $C_k(x, t)$ запишемо закон збереження речовини [19]:

$$\int_0^{\ell} C_k(x, t) dx = \frac{\ell}{2} C_k(x=0, t=0), \quad (2.20)$$

який відіграє роль додаткової граничної умови.

2.1.3. Перетворення системи рівнянь РІС для числових розрахунків

Для моделювання РІС систему рівнянь (2.13) перетворимо наступним чином. Похідні по просторовій координаті x апроксимуємо відношенням відповідних скінченних різниць, тобто [180]

$$\nabla C_l = \frac{C_{l+1} - C_{l-1}}{2\Delta x}, \quad \nabla^2 C_l = \frac{C_{l+1} - 2C_l + C_{l-1}}{\Delta x^2}, \quad (2.21)$$

де $\Delta x = \ell$ – крок різницевої схеми (див. рис. 2.1). Введемо безрозмірні кінетичні коефіцієнти $d_{k,v(i)}^*$, безрозмірний час τ та масштабовані концентрації ТД C_v^* та C_i^* представимо у вигляді

$$d_{k,v}^* = \frac{4Td_{k,v}}{\ell}, \quad d_{k,i}^* = \frac{4Td_{k,i}}{\ell}, \quad \tau = \frac{t}{T}, \quad (2.22)$$

$$C_v^* = d_{1,v}^* C_v, \quad C_i^* = d_{1,i}^* C_i. \quad (2.23)$$

Тут характерний час опромінення $T = D/K_0$.

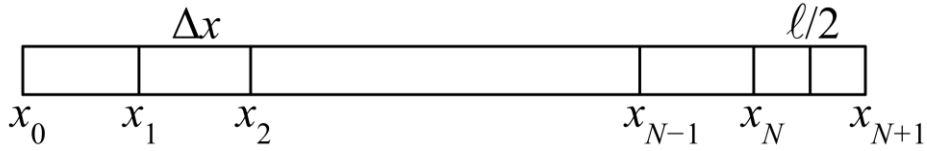


Рис. 2.1. Схематичне зображення розбиття.

Для зручності масштабовані концентрації ТД перепозначимо наступним чином

$$V = C_v^*, \quad I = C_i^*. \quad (2.24)$$

В результаті зазначених перетворень (2.21)-(2.24) одержимо вихідні рівняння саме для числових розрахунків концентрацій компонентів сплаву та ТД в точці $x = j$: рівняння для розрахунку концентрації першого компоненту

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_{1,j}}{\partial \tau} = & \frac{(\alpha - 1)(N + 1)^2}{4} [C_{1,j+1}V_{j+1} - C_{1,j-1}V_{j+1} - C_{1,j+1}V_{j-1} + C_{1,j-1}V_{j-1}] \\ & + \frac{(\alpha + 1)(N + 1)^2}{4} [C_{1,j+1}I_{j+1} - C_{1,j-1}I_{j+1} - C_{1,j+1}I_{j-1} + C_{1,j-1}I_{j-1}] \\ & + \alpha(N + 1)^2 [C_{1,j+1}V_j - 2C_{1,j}V_j + C_{1,j-1}V_j] + \alpha(N + 1)^2 [C_{1,j+1}I_j - 2C_{1,j}I_j + C_{1,j-1}I_j] \\ & - (N + 1)^2 [C_{1,j}V_{j+1} - 2C_{1,j}V_j + C_{1,j}V_{j-1}] + (N + 1)^2 [C_{1,j}I_{j+1} - 2C_{1,j}I_j + C_{1,j}I_{j-1}], \end{aligned} \quad (2.25)$$

рівняння для розрахунку концентрації k -го компоненту

$$\begin{aligned}
\frac{\partial C_{k,j}}{\partial \tau} = & \frac{(\alpha-1)(N+1)^2}{4} \frac{d_{k,v}^*}{d_{1,v}^*} [C_{k,j+1}V_{j+1} - C_{k,j-1}V_{j+1} - C_{k,j+1}V_{j-1} + C_{k,j-1}V_{j-1}] \\
& + \frac{(\alpha+1)(N+1)^2}{4} \frac{d_{k,i}^*}{d_{1,i}^*} [C_{k,j+1}I_{j+1} - C_{k,j-1}I_{j+1} - C_{k,j+1}I_{j-1} + C_{k,j-1}I_{j-1}] \\
& + \alpha(N+1)^2 \frac{d_{k,v}^*}{d_{1,v}^*} [C_{k,j+1}V_j - 2C_{k,j}V_j + C_{k,j-1}V_j] + \alpha(N+1)^2 \frac{d_{k,i}^*}{d_{1,i}^*} [C_{k,j+1}I_j - 2C_{k,j}I_j + C_{k,j-1}I_j] \\
& - (N+1)^2 \frac{d_{k,v}^*}{d_{1,v}^*} [C_{k,j}V_{j+1} - 2C_{k,j}V_j + C_{k,j}V_{j-1}] + (N+1)^2 \frac{d_{k,i}^*}{d_{1,i}^*} [C_{k,j}I_{j+1} - 2C_{k,j}I_j + C_{k,j}I_{j-1}],
\end{aligned}
\tag{2.26}$$

рівняння для розрахунку масштабованої концентрації вакансій

$$\begin{aligned}
\frac{\partial V_j}{\partial \tau} = & \sum_{l=1,2,3,\dots,N-1} \left\{ \frac{(1-\alpha)(N+1)^2}{4} (d_{l,v}^* - d_{N,v}^*) [C_{l,j+1}V_{j+1} - C_{l,j-1}V_{j+1} - C_{l,j+1}V_{j-1} + C_{l,j-1}V_{j-1}] \right. \\
& + (d_{l,v}^* - d_{N,v}^*) (N+1)^2 [C_{l,j}V_{j+1} - 2C_{l,j}V_j + C_{l,j}V_{j-1}] \\
& \left. - \alpha(N+1)^2 (d_{l,v}^* - d_{N,v}^*) [C_{l,j+1}V_j - 2C_{l,j}V_j + C_{l,j-1}V_j] \right\} \\
& + d_{N,v}^* (N+1)^2 [V_{j+1} - 2V_j + V_{j-1}] + d_{1,v}^* D \\
& - \frac{4\pi r_{iv} L^2}{\Omega d_{1,i}^*} \left[\sum_{l=1,2,3,\dots,N-1} (d_{l,v}^* - d_{N,v}^* + d_{l,i}^* - d_{N,i}^*) C_{l,j} + d_{N,v}^* + d_{N,i}^* \right] V_j I_j,
\end{aligned}
\tag{2.27}$$

рівняння для розрахунку масштабованої концентрації міжвузельних атомів

$$\begin{aligned}
\frac{\partial I_j}{\partial \tau} = & \sum_{l=1,2,3,\dots,N-1} \left\{ \frac{(\alpha+1)(N+1)^2}{4} (d_{l,i}^* - d_{N,i}^*) [C_{l,j+1} I_{j+1} - C_{l,j-1} I_{j+1} - C_{l,j+1} I_{j-1} + C_{l,j-1} I_{j-1}] \right. \\
& + (d_{l,i}^* - d_{N,i}^*) (N+1)^2 [C_{l,j} I_{j+1} - 2C_{l,j} I_j + C_{l,j} I_{j-1}] \\
& \left. + \alpha (N+1)^2 (d_{l,i}^* - d_{N,i}^*) [C_{l,j+1} I_j - 2C_{l,j} I_j + C_{l,j-1} I_j] \right\} \\
& + d_{N,i}^* (N+1)^2 [I_{j+1} - 2I_j + I_{j-1}] + d_{1,i}^* D \\
& - \frac{4\pi r_{iv} L^2}{\Omega d_{1,v}^*} \left[\sum_{l=1,2,3,\dots,N-1} (d_{l,v}^* - d_{N,v}^* + d_{l,i}^* - d_{N,i}^*) C_{l,j} + d_{N,v}^* + d_{N,i}^* \right] V_j I_j.
\end{aligned}
\tag{2.28}$$

2.1.4. Визначальні кількісні характеристики РІС

До визначальних кількісних характеристик РІС в металевих сплавах будемо відносити наступні:

1) концентраційний профіль атомів сорту k

$$C_k = C_k(x, t); \tag{2.29}$$

2) концентраційні профілі ТД (вакансій і міжвузельних атомів)

$$C_v = C_v(x, t), \quad C_i = C_i(x, t); \tag{2.30}$$

3) поверхнева концентрація атомів сорту k

$$C_k^{surf}(t) = C_k(x, t) \Big|_{x \rightarrow +0}; \tag{2.31}$$

4) поверхнєве збагачення (збіднення) атомів сорту k

$$\Delta C_k = C_k^{surf}(t) - C_k^0; \tag{2.32}$$

5) сегрегаційна площа елемента k – площа фігури, яка обмежена кривою $C_k = C_k(x, t)$ і прямою $C_k = C_k^0$ в межах $0 \leq x \leq l(t)$ [19]:

$$S_k = \int_0^{l(t)} |C_k(x, t) - C_k^0| dx, \quad (2.33)$$

де $l(t)$ – відстань від початку координат ($x=0$) до точки перетину кривої $C_k = C_k(x, t)$ та прямої $C_k = C_k^0$;

6) повна ширина концентраційного профілю атомів сорту k на рівні половини максимального збагачення (збіднення) FWHM_k (full width at half maximum);

7) дискримінант РІС атомів сорту k [19, 75]

$$\mathcal{D}_k = \frac{\frac{d_{k,v} C_k}{D_k} \sum_{j \neq k} \frac{d_{j,i} C_j}{D_j} - \frac{d_{k,i} C_k}{D_k} \sum_{j \neq k} \frac{d_{j,v} C_j}{D_j}}{\alpha \sum_j \frac{d_{j,i} C_j}{D_j}}. \quad (2.34)$$

$\mathcal{D}_k$ – величина, яка вказує на поверхневе збагачення ($\mathcal{D}_k < 0$) або збіднення ($\mathcal{D}_k > 0$) елемента k у стаціонарному режимі РІС. Відмітимо, що дискримінант РІС $\mathcal{D}_k$ не залежить від швидкості набору дози K_0 .

Схематично визначальні кількісні характеристики РІС 1, 3-6 представлені на рис 2.2. Зазначимо, що характеристика 5 є єдиною інтегральною характеристикою РІС.

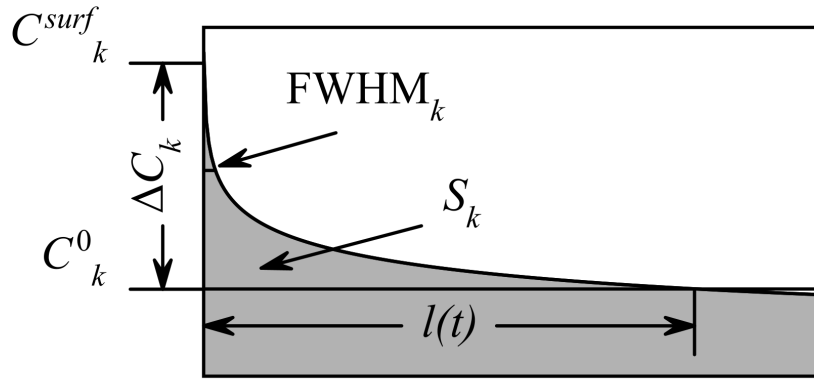


Рис. 2.2. Схематичне зображення визначальних кількісних характеристик РІС.

2.2. Рівняння РІС для сплавів Fe-9Cr та входні параметри моделювання

Просторово-часова еволюція концентрація атомів Cr $C_{Cr}(x,t)$, вакансій $C_v(x,t)$ і міжвузельних атомів $C_i(x,t)$ під дією опромінення в двокомпонентних сплавах Fe-Cr. задається системою трьох рівнянь [19,67]:

$$\begin{cases} \frac{\partial C_{Cr}}{\partial t} = -\nabla \left[-\alpha D_{Cr} \nabla C_{Cr} + (d_{Cr,v} \nabla C_v - d_{Cr,i} \nabla C_i) C_{Cr} \right], \\ \frac{\partial C_v}{\partial t} = -\nabla \left[\alpha C_v (d_{Cr,v} - d_{Fe,v}) \nabla C_{Cr} - D_v \nabla C_v \right] + K_0 - R_{iv} C_v C_i, \\ \frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla \left[-\alpha C_i (d_{Cr,i} - d_{Fe,i}) \nabla C_{Cr} - D_i \nabla C_i \right] + K_0 - R_{iv} C_v C_i. \end{cases} \quad (2.35)$$

Концентрація атомів Fe $C_{Fe}(x,t)$ у будь-якій точці простору x і у будь-який момент часу t може бути визначеною з виразу

$$C_{Fe}(x,t) = 1 - C_{Cr}(x,t). \quad (2.36)$$

Система рівнянь РІС (2.35) разом з початковими та граничними умовами (2.14)-(2.20) розв'язувалася чисельно. Вихідна система РІС, яка одержана після

процедур обезрозмірення і масштабування застосовувалася в чисельних розрахунках. Розрахунки проведені для зразків сплаву Fe-9Cr товщиною ℓ нм з кроком різницевої схеми $\Delta x = \ell$) $\approx 0,2498$ нм по просторовій координаті x , де $N = 600$ (див. рис. 2.1). Значення температури T , швидкості продукування радіаційних ТД K_0 , набраної дози опромінення D , за замовченням, обрані наступними: $T = 300$ °С, $K_0 = 10^{-5}$ зна/с, $D = 1$ зна (що відповідає часу опромінення $t = 10^5$ с).

При моделюванні РС в сплавах Fe-Cr були використані значення параметрів, які наведені в літературних джерелах (табл. 2.1).

Таблиця 2.1. Вхідні параметри для моделювання РС в бінарних сплавах Fe-Cr.

Визначення	Символ	Значення	Посилання
Енергія формування міжвузельних атомів Fe	$E_{\text{Fe},v}^f$	5,0 еВ	[181]
Енергія формування вакансій Fe	$E_{\text{Fe},i}^f$	1,6 еВ	[182]
Енергія міграції міжвузельних атомів Fe	$E_{\text{Fe},i}^m$	0,35 еВ	[81]
Енергія міграції вакансій Fe	$E_{\text{Fe},v}^m$	0,625 еВ	[81, 183]
Передекспоненціальний фактор дифузії міжвузельних атомів в Fe	$d_{\text{Fe},i}^0$	$6,59 \cdot 10^{-7}$ м ² /с	[184]
Передекспоненціальний фактор дифузії вакансій Fe	$d_{\text{Fe},v}^0$	$5,92 \cdot 10^{-6}$ м ² /с	[184]
Енергія міграції міжвузельних атомів Cr	$E_{\text{Cr},i}^m$	0,28 еВ	[81]
Енергія міграції вакансій Cr	$E_{\text{Cr},v}^m$	0,55 еВ	[81]
Передекспоненціальний фактор дифузії міжвузельних атомів Cr	$d_{\text{Cr},i}^0$	$6,85 \cdot 10^{-7}$ м ² /с	[184]
Передекспоненціальний фактор дифузії вакансій Cr	$d_{\text{Cr},v}^0$	$5,46 \cdot 10^{-6}$ м ² /с	[184]
Ентропія формування вакансій	S_v^f	1,0 k_b	[74]
Термодинамічний фактор	α	1,0	

2.2.1. Дискримінант РІС в сплаві Fe-9Cr

Дискримінанти РІС атомів Cr і Fe для двокомпонентних сплавів Fe-Cr в стаціонарному режимі (див. формулу (2.34)) запишемо у вигляді

$$\mathcal{D}_{Cr} = \frac{C_{Fe} C_{Cr} d_{Fe,v} d_{Fe,i}}{\alpha (d_{Fe,i} D_{Cr} C_{Fe} + d_{Cr,i} D_{Fe} C_{Cr})} \left(\frac{d_{Cr,v}}{d_{Fe,v}} - \frac{d_{Cr,i}}{d_{Fe,i}} \right). \quad (2.37)$$

$$\mathcal{D}_{Fe} = \frac{C_{Fe} C_{Cr} d_{Cr,v} d_{Cr,i}}{\alpha (d_{Cr,i} D_{Fe} C_{Cr} + d_{Fe,i} D_{Cr} C_{Fe})} \left(\frac{d_{Fe,v}}{d_{Cr,v}} - \frac{d_{Fe,i}}{d_{Cr,i}} \right). \quad (2.38)$$

Зокрема, як впливає з рівності (1.37), збагачення чи збіднення атомів Cr визначається, виключно, знаком різниці відношень кінетичних коефіцієнтів $d_{j,p}$ за вакансійним ($d_{Cr,v}/d_{Fe,v}$) та міжвузельним механізмами ($d_{Cr,i}/d_{Fe,i}$) і не залежить від концентрацій елементів та ТД.

Якщо відношення коефіцієнтів дифузії за міжвузельним механізмом більше за відношення коефіцієнтів дифузії за вакансійним механізмом, цебто

$$\mathcal{D}_{Cr} \sim \frac{d_{Cr,v}}{d_{Fe,v}} - \frac{d_{Cr,i}}{d_{Fe,i}} < 0, \quad (2.39)$$

то поблизу стоків дефектів буде спостерігатися збагачення атомів Cr. Якщо відношення коефіцієнтів дифузії за вакансійним механізмом більше за відношення коефіцієнтів дифузії за міжвузельним механізмом, тобто

$$\mathcal{D}_{Cr} \sim \frac{d_{Cr,v}}{d_{Fe,v}} - \frac{d_{Cr,i}}{d_{Fe,i}} > 0. \quad (2.40)$$

то поблизу стоків дефектів буде спостерігатися збіднення атомів Cr.

Графічна ілюстрація відношень кінетичних коефіцієнтів $d_{\text{Cr},v}/d_{\text{Fe},v}$ та $d_{\text{Cr},i}/d_{\text{Fe},i}$ для сплаву Fe-9Cr наведена на рис. 2.3. З рис. 2.3 видно, що при температурі $T \approx 211,4^\circ\text{C}$ вираз $d_{\text{Cr},v}/d_{\text{Fe},v} - d_{\text{Cr},i}/d_{\text{Fe},i}$ змінює знак, це означає, що має місце перехід від збіднення Cr (при $T < 211,4^\circ\text{C}$) до збагачення Cr (при $T > 211,4^\circ\text{C}$) в безпосередній близькості до поверхні зразка. Залежність $\Delta C_{\text{Cr}} = C_{\text{Cr}}(T)$ для температурного проміжку $150 < T < 300^\circ\text{C}$ при швидкості продукування ТД $K_0 = 10^{-5}$ зна/с і набраній дозі $D = 1$ зна зображена на рис. 2.4.

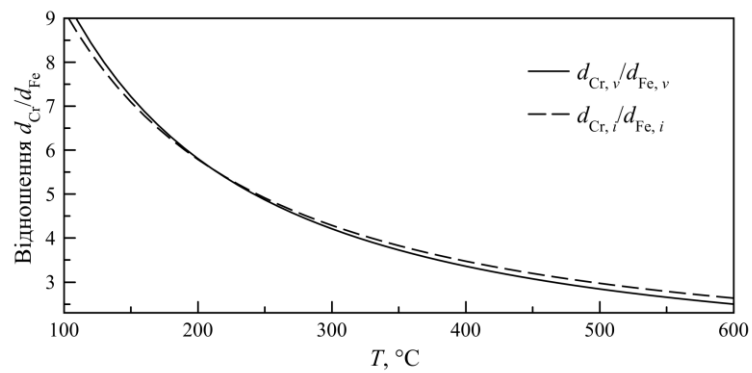


Рис. 2.3. Відношення кінетичних коефіцієнтів $d_{\text{Cr},v}/d_{\text{Fe},v}$ (суцільна лінія) та $d_{\text{Cr},i}/d_{\text{Fe},i}$ (штрихова лінія).

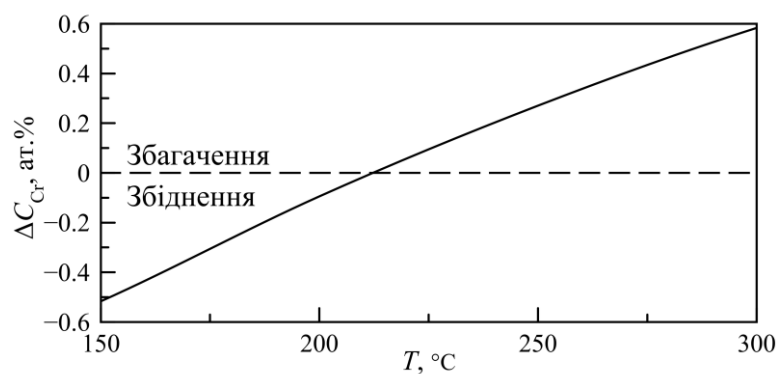


Рис. 2.4. Залежність збагачення Cr від температури.

2.2.2. Чутливість моделі РІС до вхідних параметрів

Визначимо як незначні зміни вхідного параметру p (див. табл. 2.1) впливають на поверхневу концентрацію компонента сплаву C^{surf} . Розрахуємо похідну поверхневої концентрації компонента сплаву від вхідного параметра $\partial C^{surf} / \partial p$, яку можна апроксимувати наступним чином [74, 81]:

$$\frac{\partial C^{surf}}{\partial p} \approx \frac{\delta C^{surf}}{\delta p} = \frac{C^{surf}(p') - C_{reference}^{surf}}{p' - p_{reference}}, \quad (2.41)$$

де $C_{reference}$ – поверхневе значення концентрації компонента сплаву, що розраховується при еталонному значенні вхідного параметра $p_{reference}$, $C^{surf}(p')$ – поверхневе значення концентрації компонента сплаву, що розраховується при значенні вхідного параметра p' . Відмітимо, що для концентрацій та вхідних параметрів виконуються наступні нерівності:

$$|p' - p_{reference}| \ll p_{reference}, \quad (2.42)$$

$$|C^{surf}(p') - C_{reference}^{surf}| \ll C_{reference}^{surf}. \quad (2.43)$$

Далі для зручності перейдемо до значущості S_p^C , яка є відносною зміною розрахованої поверхневої концентрації компонента сплаву по відношенню до відносної зміни вхідного параметра [74, 81]:

$$S_p^C = \frac{C^{surf}(p') - C_{reference}^{surf}}{p' - p_{reference}} \cdot \frac{p_{reference}}{C_{reference}^{surf}}. \quad (2.44)$$

З виразу (2.44) випливає, що поверхневі концентрації компонентів сплаву найбільш чутливі до тих параметрів, які мають найбільші абсолютні значення значущості. При чому додатне значення значущості відповідає збільшенню поверхневої концентрації з ростом значення відповідного параметра, а від'ємне – зменшенню.

Значущість параметрів S_p^{Cr} були розраховані при збільшенні вхідних параметрів p на 0.1% для двох температур $T = 350^\circ\text{C}$ та $T = 450^\circ\text{C}$ при швидкості продукування дефектів $K_0 = 10^{-5}$ зна/с і набраної дози $D = 1$ зна. Результати розрахунків представлені на рис. 2.4. Поверхнева концентрація Cr C_{Cr}^{surf} найбільш чутлива до енергій міграції вакансій і міжвузельних атомів Fe та Cr. Зі збільшенням енергій міграції вакансій Cr $E_{Cr,v}^m$ та міжвузельних атомів Fe $E_{Fe,i}^m$ поверхнева концентрація Cr збільшується, а з ростом енергій міграції вакансій Fe $E_{Fe,v}^m$ і міжвузельних атомів Cr $E_{Cr,i}^m$ – зменшується. Підвищення температури T призводить до суттєвого зменшення значущості всіх параметрів крім енергії формування вакансій Fe $E_{Fe,v}^f$.

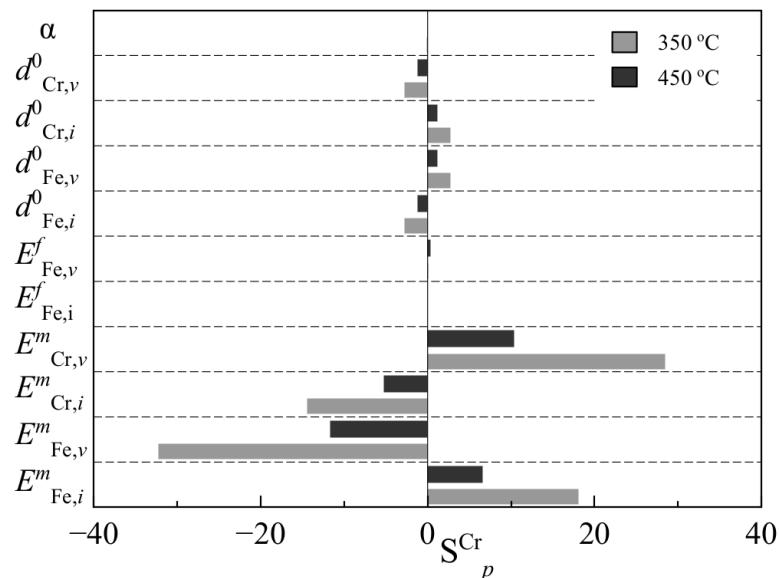


Рис. 2.5. Значущість параметрів для поверхневої концентрації Cr.

2.3. Розрахунки визначальних кількісних характеристик РІС в сплаві Fe-9Cr та їх залежності від зовнішніх параметрів

2.3.1. Концентраційні профілі Cr

На рис. 2.6 зображені залежності $C_{Cr} = C_{Cr}(x)$, які розраховані за температури $T = 300\text{ }^{\circ}\text{C}$, швидкості продукування радіаційних ТД $K_0 = 10^{-5}\text{ зна/с}$ та різних значеннях набраної дози $D = 10^{-3}\text{ зна}$, $D = 10^{-2}\text{ зна}$, $D = 10^{-1}\text{ зна}$, $D = 1\text{ зна}$. Зі збільшенням дози D криві прямують до верхньої з зображених кривих, яка відповідає стаціонарному режиму РІС. Розрахунки показують, що стаціонарний режим РІС для обраних умов ($T = 300\text{ }^{\circ}\text{C}$, $K_0 = 10^{-5}\text{ зна/с}$) настає при дозі опромінення $D \approx 1\text{ зна}$. В процесі опромінення (зі збільшенням дози D) крутизна профілю концентрації Cr зменшується, а значення поверхневої концентрації Cr C_{Cr}^{surf} збільшується. Відмітимо, що з віддаллю від поверхні концентрація Cr C_{Cr} монотонно зменшується (див. рис. 2.6).

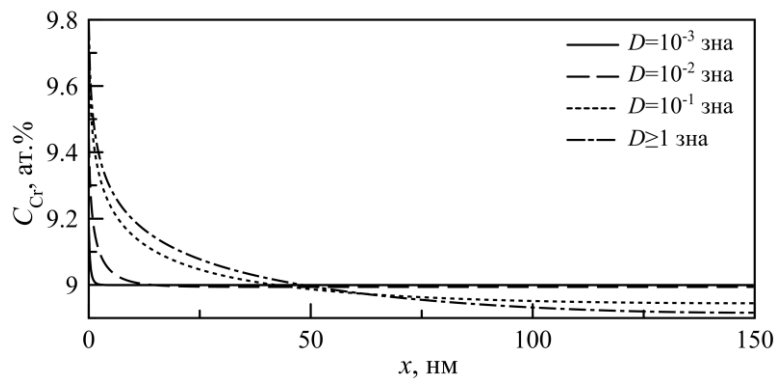


Рис. 2.6. Концентраційні профілі Cr в процесі опромінювання до досягнення стаціонарного режиму.

На рис. 2.7 наведені залежності $C_{Cr} = C_{Cr}(x)$, які розраховані при $K_0 = 10^{-5}\text{ зна/с}$, $D = 1\text{ зна}$ і значеннях температури $T = 250\text{ }^{\circ}\text{C}$, $T = 300\text{ }^{\circ}\text{C}$, $T = 400\text{ }^{\circ}\text{C}$, $T = 500\text{ }^{\circ}\text{C}$. На рис. 2.8 зображені поверхневі концентрації атомів Cr C_{Cr}^{surf} ,

сегрегаційні площі S_{Cr} та повні ширини концентраційних профілів атомів Cr на рівні половини максимального збагачення $FWHM_{Cr}$ до вказаних на рис. 2.7 концентраційних профілів $C_{Cr}(x)$. З рис. 2.7 видно, що з ростом температури крутизна концентраційних профілів Cr зменшується, оскільки дифузійні процеси протікають більш ефективно і «розмивають» концентраційні профілі.

На рис. 2.9 зображені залежності $C_{Cr} = C_{Cr}(x)$, які розраховані при температурі $T = 450^\circ\text{C}$, дозі $D = 1$ зна та при різних значеннях швидкостей продукування ТД $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $K_0 = 10^{-5}$ зна/с, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, $K_0 = 10^{-7}$ зна/с. З рис. 2.9 видно, що з ростом K_0 крутизна концентраційних профілів Cr збільшується, тобто швидкість продукування радіаційних ТД K_0 «звужує» концентраційні профілі. Натомість, з розрахунків видно, що при $T = 300^\circ\text{C}$ для зазначених значень K_0 концентраційні профілі Cr $C_{Cr}(x)$ мало відрізняються. Обговорювана поведінка залежностей $C_{Cr}(x)$ пов'язана з конкуренцією двох процесів: «розмиванням» концентраційних профілів за рахунок дифузії зі збільшенням T та їхнім «звуженням» за рахунок радіаційного опромінення з ростом K_0 .

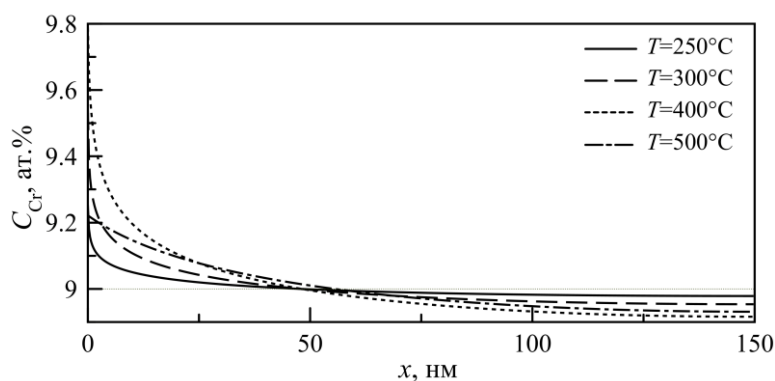


Рис. 2.7. Концентраційні профілі Cr при різних значеннях температури.

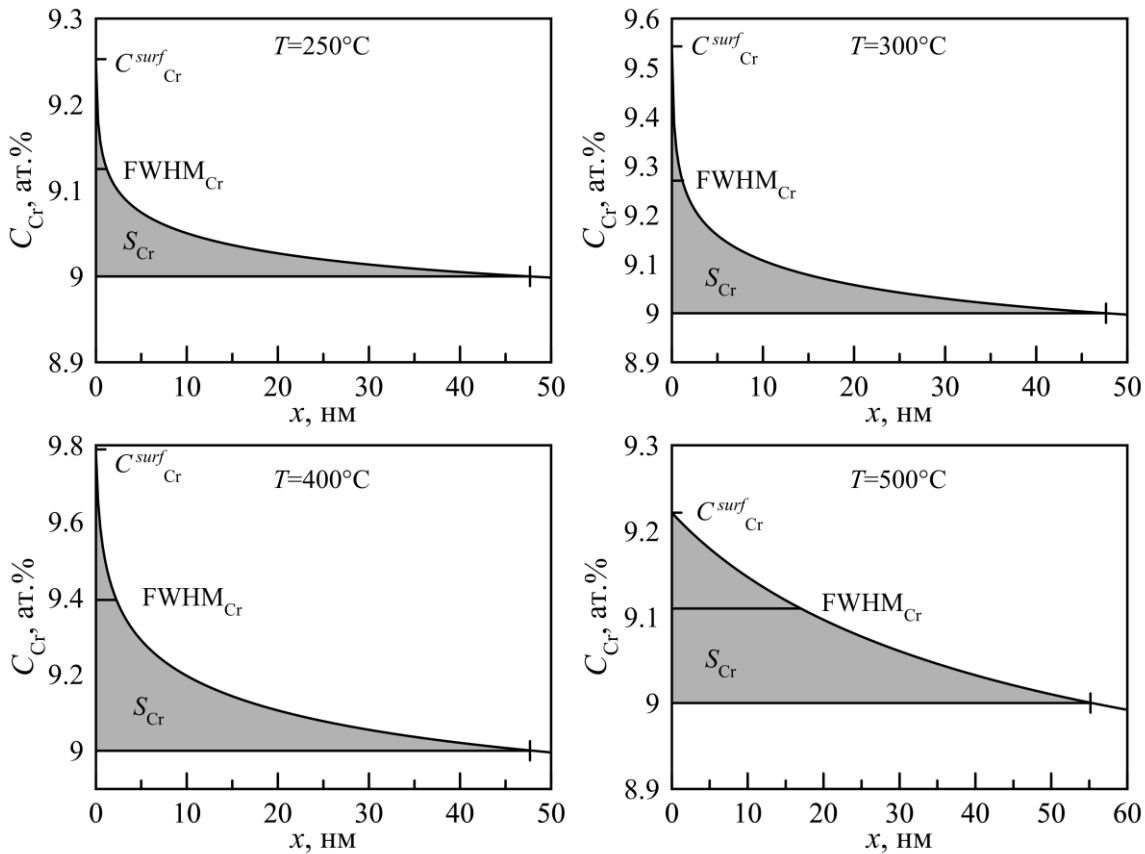


Рис. 2.8. Зображення поверхневої концентрації атомів Cr, сегрегаційної площі S_{Cr} та $FWHM_{Cr}$ на концентраційних профілях Cr при різних значеннях температури.

2.3.2. Концентраційні профілі ТД

На рис. 2.10 представлено залежності $C_{v(i)} = C_{v(i)}(x)$, розраховані при значеннях температури $T = 250^\circ\text{C}$, $T = 300^\circ\text{C}$, $T = 400^\circ\text{C}$, $T = 500^\circ\text{C}$. На рис. 2.11 наведено такі ж самі залежності $C_{v(i)} = C_{v(i)}(x)$ при значеннях швидкості продукування ТД $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $K_0 = 10^{-5}$ зна/с, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, $K_0 = 10^{-7}$ зна/с. Оскільки міжвузельні атоми дифундують набагато швидше вакансій, концентрації міжвузельних атомів значно менші від концентрацій вакансій за однакових умов опромінення (T і K_0), хоча вони, як правило, мають подібну форму.

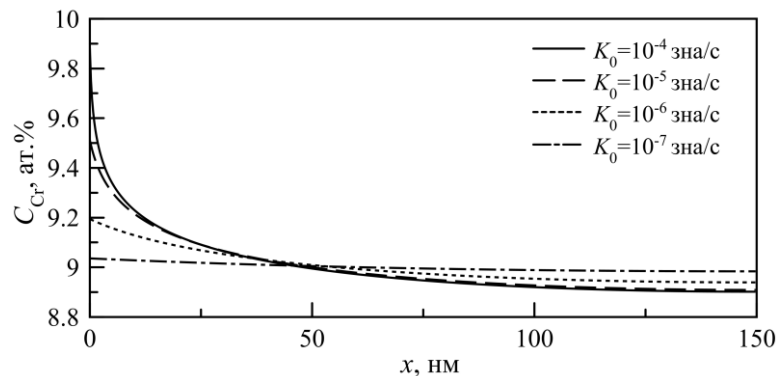


Рис. 2.9. Концентраційні профілі Cr при різних значеннях швидкостей продукування радіаційних ТД.

Як видно з рис. 2.10, при збільшенні температури T зменшується збагачення ТД $C_{v(i)} - C_{v(i)}^{eq}$ за рахунок їх більш швидкої дифузії на стоки. Так, вже при температурі $T = 500^\circ\text{C}$ концентрація вакансій в глибині зразка $C_v^{bulk} = 2,92 \cdot 10^{-10}$ молярних доль слабо відрізняється від їх термодинамічно рівноважної концентрації $C_v^{eq} = 1,01 \cdot 10^{-10}$ молярних доль (див. штрихпунктирну криву на рис. 2.10 а). З ростом швидкості набору дози K_0 збільшуються концентрації радіаційних ТД за рахунок більшої кількості утворених пар Френкеля (див рис. 2.11).

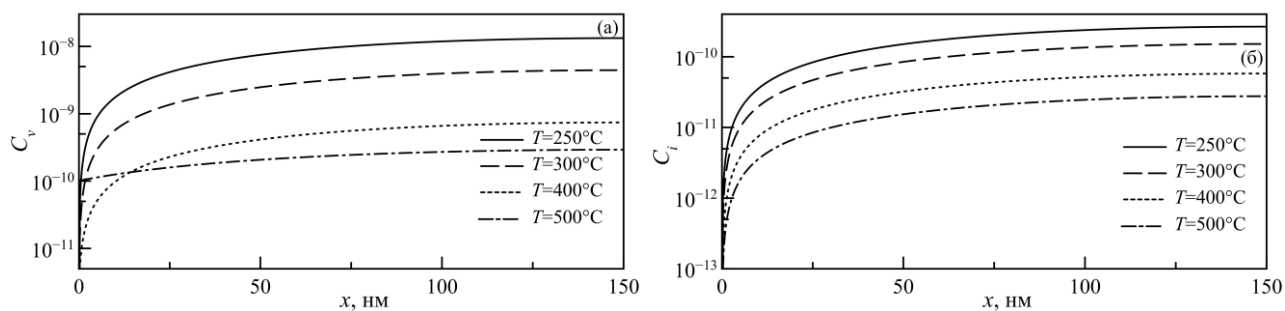


Рис. 2.10. Концентраційні профілі вакансій (а) і міжвузельних атомів (б) при різних значеннях температури.

Як показують розрахунки, концентраційні профілі ТД мало змінюються зі збільшенням дози опромінення D від $D = 10^{-3}$ зна до $D = 1$ зна, при цьому

спостерігається саме зменшення концентрацій ТД з ростом D . Наприклад, значення концентрацій вакансій при $D=10^{-3}$ зна в глибині зразка $C_v^{bulk} = 4,433 \cdot 10^{-9}$ молярних доль, а при $D=1$ зна – $C_v^{bulk} = 4,422 \cdot 10^{-9}$ молярних доль. Ці результати можна трактувати, як вихід на стаціонарний режим відносно концентрацій ТД.

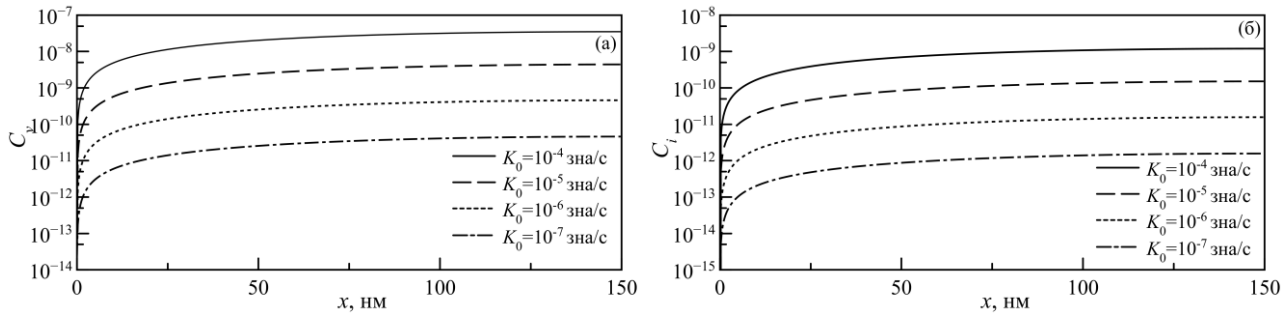


Рис. 2.11. Концентраційні профілі вакансій (а) і міжвузельних атомів (б) при різних значеннях швидкостей продукування радіаційних ТД.

2.3.3. Швидкість анігіляції ТД та її координатні залежності

Для зручності в системі рівнянь (2.35) позначимо швидкість анігіляції пари вакансія-міжвузельний атом наступним чином: $R_{IV} = R_{iv} C_v C_i$ [с⁻¹]. На рис. 2.12 та 2.13 зображені залежності $R_{IV} = R_{IV}(x)$ при різних значеннях T і K_0 . На всьому проміжку $0 < x < 150$ нм значення швидкості анігіляції ТД R_{IV} зростає з віддаленням від поверхні зразка. З рис. 2.12 видно, що в глибині зразку з ростом температури T величина R_{IV}^{bulk} зменшується. Як показано на рис. 2.13, з ростом швидкості продукування ТД K_0 збільшується кількість пар Френкеля і як наслідок збільшується швидкість анігіляції ТД R_{IV} , в тому числі R_{IV}^{bulk} в глибині зразка.

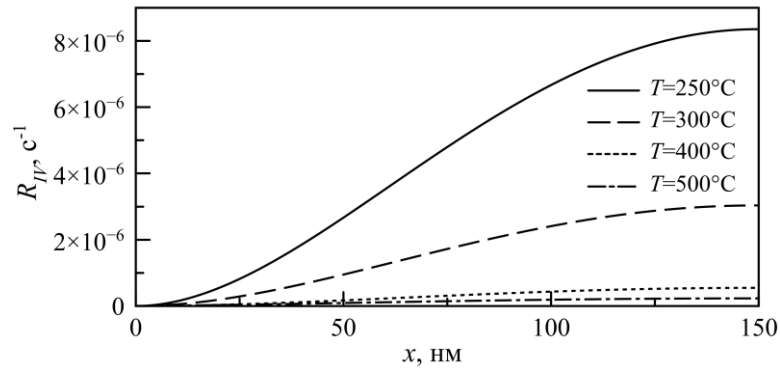


Рис. 2.12. Залежності швидкості анігіляції ТД від координати при різних значеннях температури.

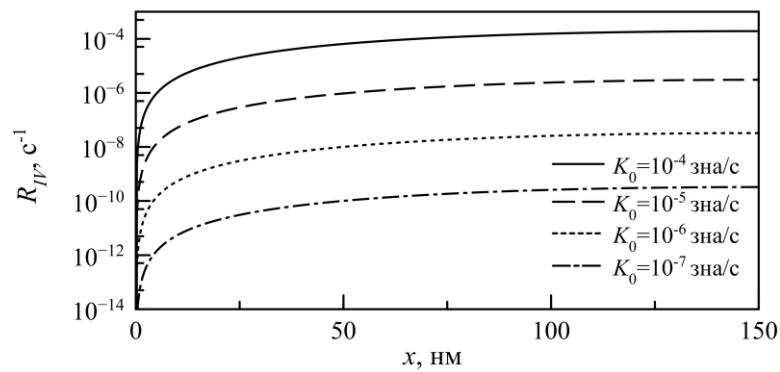


Рис. 2.13. Залежності швидкості анігіляції ТД від координати при різних значеннях швидкостей продукування ТД.

2.3.4. Залежності поверхневої концентрації Cr, сегрегаційної площі Cr та FWHM_{Cr} від зовнішніх параметрів

Залежності поверхневої концентрації Cr $C_{Cr}^{surf} = C_{Cr}^{surf}(D)$, сегрегаційної площі Cr $S_{Cr} = S_{Cr}(D)$ та $FWHM_{Cr} = FWHM_{Cr}(D)$, які розраховані при $K_0 = 10^{-5}$ зна/с, представлено на рис. 2.14, 2.15 і 2.16, відповідно, де температура приймає значення $T = 250^\circ\text{C}$, $T = 300^\circ\text{C}$, $T = 400^\circ\text{C}$, $T = 500^\circ\text{C}$.

Для всіх зазначених температур в інтервалі доз опромінення $10^{-4} < D < 1$ зна поверхнева концентрація C_{Cr}^{surf} , сегрегаційна площа $S_{Cr}(D)$ та характеристика $FWHM_{Cr}$ зростають зі збільшенням D , а при подальшому рості дози D (

$1 < D < 10$ зна) названі визначальні кількісні характеристики РІС залишаються практично незмінними. Така поведінка зазначених характеристик вказує на те, що при дозі $D \approx 1$ зна відбувається вихід на стаціонарний режим РІС. Відмітимо, що залежності $\text{FWHM}_{\text{Cr}}(D)$ при $T = 250^\circ\text{C}$ та $T = 300^\circ\text{C}$ мають близькі значення.

Температурні залежності визначальних кількісних характеристик будемо розраховувати від $T = 250^\circ\text{C}$ до $T = 600^\circ\text{C}$ при якій поверхневе збагачення Cr прямує до 0. Відмітимо, що характерні робочі температури реакторів на легкій воді лежать в інтервалі $265 < T < 350^\circ\text{C}$, а у випадку ядерних реакторів IV покоління температури можуть сягати $T = 1100^\circ\text{C}$ [22, 185, 186].

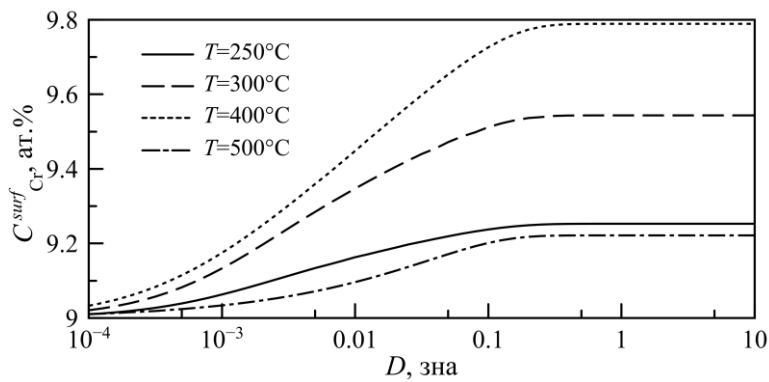


Рис. 2.14. Залежності поверхневої концентрації атомів Cr від дози при різних значеннях температури.

Залежності $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}} = C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}(T)$, $S_{\text{Cr}} = S_{\text{Cr}}(T)$ і $\text{FWHM}_{\text{Cr}} = \text{FWHM}_{\text{Cr}}(T)$, розраховані при дозі $D=1$ зна, зображені на рис. 2.17, 2.18 та 2.19 відповідно, де швидкість продукування ТД приймає значення $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $K_0 = 10^{-5}$ зна/с, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, $K_0 = 10^{-7}$ зна/с. Відмітимо, що зазначені визначальні характеристики РІС при температурах $T = 250^\circ\text{C}$, $T = 300^\circ\text{C}$, $T = 400^\circ\text{C}$, $T = 500^\circ\text{C}$ і $K_0 = 10^{-5}$ зна/с наведено на рис. 2.8.

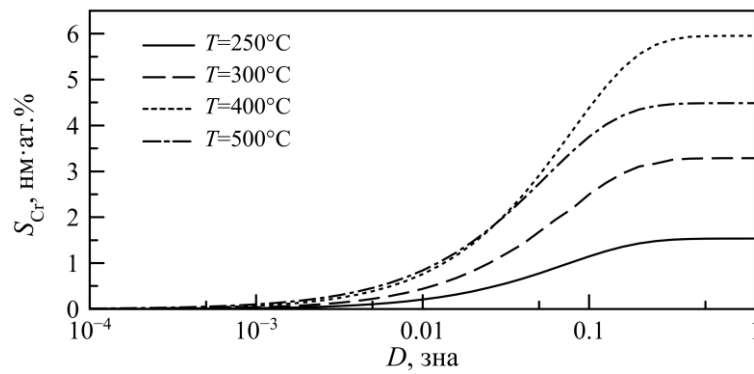


Рис. 2.15. Залежності сегрегаційної площі Cr від дози при різних значеннях температури.

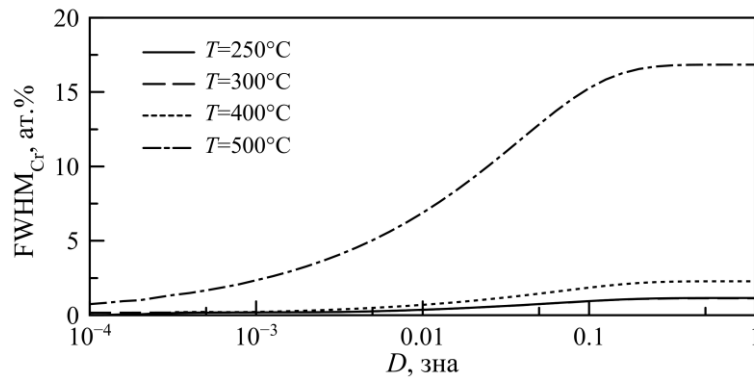


Рис. 2.16. Залежності FWHM_{Cr} від дози при різних значеннях температури.

З рис. 2.17 видно, що на розглянутому температурному проміжку $250 < T < 600^\circ\text{C}$ спостерігається саме збагачення Cr ($\Delta C_{\text{Cr}} = C_{\text{Cr}}^{\text{surf}} - C_{\text{Cr}}^0 > 0$). З ростом температури T значення $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}$ спочатку зростає, досягає максимального значення при $T^{\text{max}}(C_{\text{Cr}}^{\text{surf}})$ та потім спадає. Такий вигляд залежності $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}(T)$ визначається: (і) високим значенням рекомбінації ТД при низькій температурі та (іі) високою зворотною дифузією при високих T [19].

Для залежностей $S_{\text{Cr}}(T)$, як і для залежностей $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}(T)$, при збільшенні температури T спостерігається зростання величини S_{Cr} , яка досягає максимального значення при T_s^{max} та потім спадає (див. рис. 2.18).

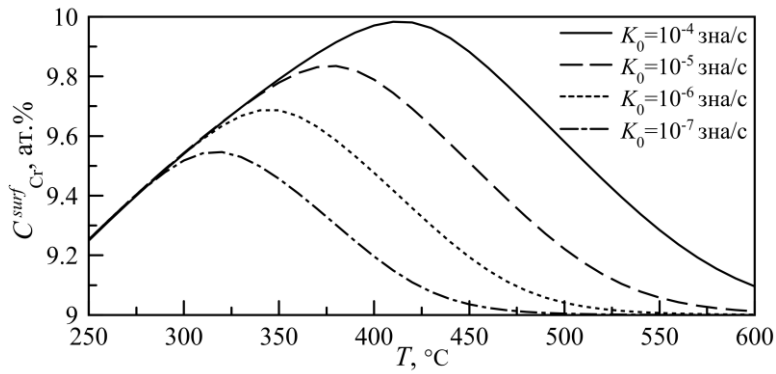


Рис. 2.17. Залежності поверхневої концентрації атомів Cr від температури при різних значеннях швидкостей продукування радіаційних ТД.

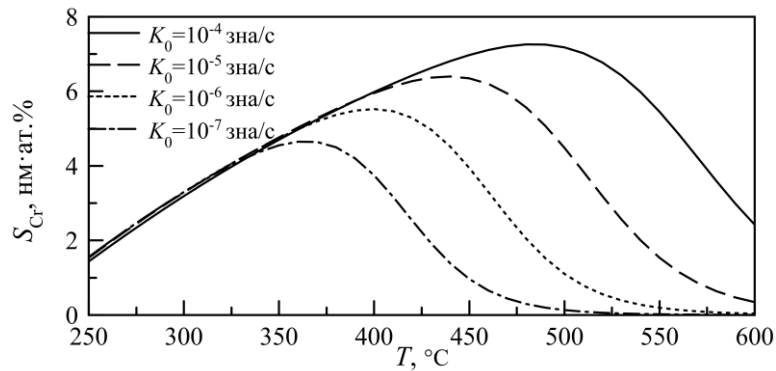


Рис. 2.18. Залежності сегрегаційної площі Cr від температури при різних значеннях швидкостей продукування радіаційних ТД.

Як показано на рис. 2.19, при $K_0 = 10^{-7}$ зна/с на температурному проміжку $250 < T < 300$ °C значення FWHM_{Cr} змінюється мало. Подальше суттєве зростання значення FWHM_{Cr} пов'язане з «розмиванням» концентраційних профілів з ростом температури (див. рис. 2.9). При $T > 500$ °C спостерігається вихід на постійну величину $\text{FWHM}_{\text{Cr}} \approx 27,47$ нм. Подібні залежності мають місце і при інших значеннях швидкості продукування радіаційних ТД ($K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $K_0 = 10^{-5}$ зна/с, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с). В залежностях $\text{FWHM}_{\text{Cr}}(T)$, які відповідають вищим значенням K_0 область суттєвого зростання FWHM_{Cr} спостерігається при більш високих температурах, що пов'язано з зазначеною вище конкуренцією

дифузійних та радіаційних процесів в системі. Вихід на постійну величину в залежностях $\text{FWHM}_{\text{Cr}}(T)$ при $K_0 = 10^{-4}$ зна/с та $K_0 = 10^{-5}$ зна/с на рис. 2.19 не досягається і, очевидно, відбувається при температурах $T > 600^\circ\text{C}$.

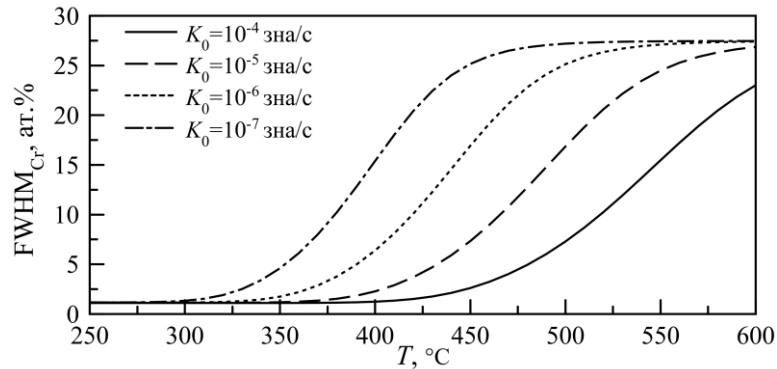


Рис. 2.19. Залежності FWHM_{Cr} від температури при різних значеннях швидкостей продукування радіаційних ТД.

На рис. 2.20, 2.21 та 2.22 відповідно представлені залежності $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}} = C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}(K_0)$, $S_{\text{Cr}} = S_{\text{Cr}}(K_0)$ і $\text{FWHM}_{\text{Cr}} = \text{FWHM}_{\text{Cr}}(K_0)$ при температурах $T = 250^\circ\text{C}$, $T = 300^\circ\text{C}$, $T = 400^\circ\text{C}$, $T = 500^\circ\text{C}$.

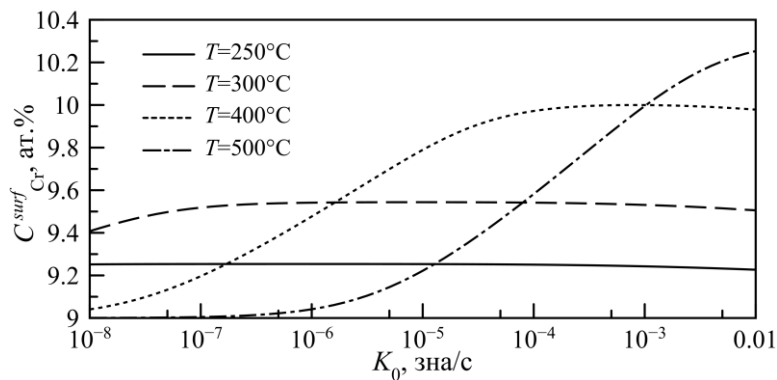


Рис. 2.20. Залежності поверхневої концентрації атомів Cr від швидкості продукування радіаційних ТД при різних значеннях температур.

З рис. 2.20 видно, що при температурі $T = 300^\circ\text{C}$ в залежності $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}(K_0)$ з ростом швидкості продукування ТД K_0 спостерігається збільшення значення $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}$

, яке при $K_0 = 10^{-6}$ зна/с досягає максимального значення та потім повільно спадає. Подібна залежність має місце і при $T = 400^\circ\text{C}$, але зростання $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}(K_0)$ більш яскраво виражено і охоплює більший інтервал значень K_0 : $10^{-8} < K_0 < 10^{-4}$ зна/с. При $T = 250^\circ\text{C}$ поверхнева концентрація Cr $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}$ мало змінюється на всьому вказаному діапазоні $10^{-8} < K_0 < 10^{-2}$ зна/с. При $T = 500^\circ\text{C}$ в зазначеному діапазоні швидкостей продукування ТД K_0 спостерігається лише зростання $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}$ (див. рис. 2.20). Зазначена поведінка залежності $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}(K_0)$ виникає, оскільки має місце конкуренція двох процесів: збільшення відносної концентрації дефектів $(C_{v(i)} - C_{v(i)}^{\text{eq}})$ за рахунок радіаційної генерації ТД, це призводить до збільшення збагачення Cr , а збільшення швидкості анігіляції ТД R_{IV} веде до зменшення збагачення Cr .

Як слідує з рис. 2.21, в залежностях $S_{\text{Cr}}(K_0)$ при $T = 250^\circ\text{C}$ і $T = 300^\circ\text{C}$ на проміжку $10^{-8} < K_0 < 10^{-4}$ зна/с значення S_{Cr} практично не змінюється, подальше збільшенням K_0 призводить до повільного зменшення S_{Cr} . При температурах $T = 400^\circ\text{C}$ та $T = 500^\circ\text{C}$ спостерігається збільшення значення S_{Cr} , яке сягає максимального значення при $T^{\text{max}}(S_{\text{Cr}})$ і поступово спадає. Відмітимо, що при $T = 500^\circ\text{C}$ в залежності $S_{\text{Cr}}(K_0)$ максимум більш яскраво виражений ніж при $T = 400^\circ\text{C}$ (див. рис. 2.21).

Як показано на рис. 2.22, при $T = 250^\circ\text{C}$ та $T = 300^\circ\text{C}$ характеристика FWHM_{Cr} мало змінюється (повільно спадає) на всьому проміжку $10^{-8} < K_0 < 10^{-2}$ зна/с. Для залежностей $\text{FWHM}_{\text{Cr}}(K_0)$ при $T = 400^\circ\text{C}$ і $T = 500^\circ\text{C}$ існує область суттєвого зменшення значення FWHM_{Cr} з ростом K_0 .

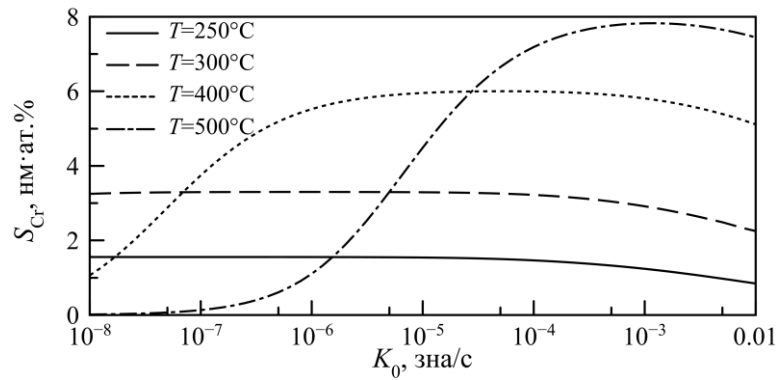


Рис. 2.21. Залежності сегрегаційної площі Cr від швидкості продукування радіаційних ТД при різних значеннях температури.

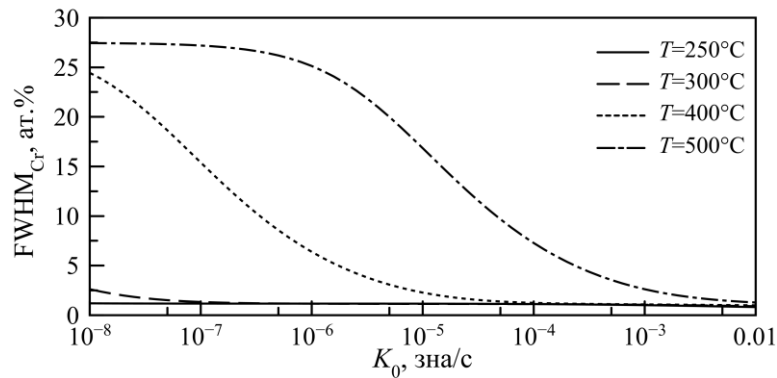


Рис. 2.22. Залежності FWHM_{Cr} від швидкості продукування радіаційних ТД при різних значеннях температури.

На рис. 2.23 наведені залежності ΔC_{Cr} від товщини шару ℓ $\Delta C_{\text{Cr}} = \Delta C_{\text{Cr}}(\ell)$. Збільшення товщини шару ℓ призводить до збільшення поверхневого збагачення Cr ΔC_{Cr} , це пов'язано зі збільшенням кількості радіаційних ТД, які мігрують до поверхні зразку та збільшенням дифузійного потоку Cr на поверхню.

2.4. Вплив різних граничних концентрацій ТД на результати моделювання РІС

Проведемо порівняння результатів розрахунків РІС моделі з термодинамічно рівноважними концентраціями ТД на поверхні шару $x=0$ (2.18) та моделі з ідеальними стоками ТД, тобто моделі, у якій будь-який ТД в безпосередній

близькості від поверхні безперечно поглинається поверхнею і не має шансів повернутись назад. Граничні значення концентрацій вакансій і міжвузельних атомів в цій моделі рівні нулю:

$$C_v(x,t)|_{x=0} = 0, \quad C_i(x,t)|_{x=0} = 0. \quad (2.45)$$

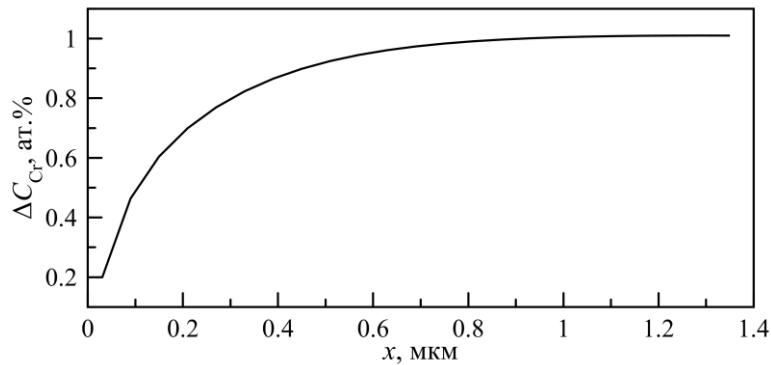


Рис. 2.23. Залежність поверхневого збагачення Cr від товщини шару.

На рис. 2.24 зображені залежності $C_v = C_v(x)$, які розраховані при $T = 500^\circ\text{C}$, $K_0 = 10^{-5}$ зна/с, $D = 1$ зна для моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами (суцільна лінія) та моделі з ідеальними стоками ТД (штрихова лінія). З рис. 2.24 видно, що на зазначеному проміжку $0 < x < 150$ нм концентрації C_v в моделі з ідеальними стоками ТД менші ніж в моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами. Також відмітимо, що на інтервалі $0 < x < 50$ нм градієнт концентрації вакансій ∇C_v в моделі з ідеальними стоками ТД помітно більший ніж в моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами. Зазначимо, що при температурах $T = 250^\circ\text{C}$, $T = 300^\circ\text{C}$, $T = 400^\circ\text{C}$, як слідує з розрахунків, на проміжку $1 < x < 150$ нм концентрації вакансій C_v для обох моделей за одних і тих умов опромінення (T , K , D) приймають близькі значення.

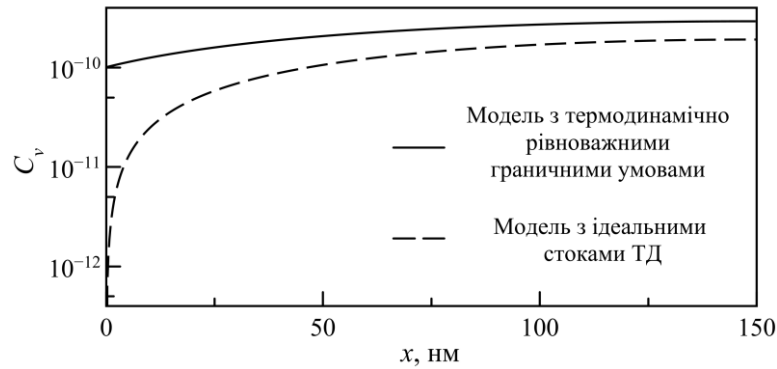


Рис. 2.24. Концентраційні профілі вакансій для моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами (суцільна лінія) та моделі з ідеальними стоками ТД (штрихова лінія).

На рис. 2.25 представлені залежності $C_{Cr}^{surf} = C_{Cr}^{surf}(T)$, розраховані при $D=1$ зна і $K_0=10^{-6}$ зна/с для моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами (суцільна лінія) та моделі з ідеальними стоками ТД (штрихова лінія). Залежності $S_{Cr} = S_{Cr}(T)$ та $FWHM_{Cr} = FWHM_{Cr}(T)$, які розраховані для обох моделей при $D=1$ зна і $K_0=10^{-6}$ зна/с наведено на рис. 2.26 і 2.27. Зі збільшенням T від $T=250^\circ\text{C}$ до $T=320^\circ\text{C}$ поверхневі концентрації Cr C_{Cr}^{surf} для обох моделей приймають близькі значення. При подальшому збільшенні T від $T=320^\circ\text{C}$ до $T=600^\circ\text{C}$ значення C_{Cr}^{surf} для моделі з ідеальними стоками ТД продовжує поступово зростати. Можна думати, що це пов'язано з тим, що в моделі з ідеальними стоками ТД при достатньо високих температурах ефекти зворотної дифузії будуть подавлятися. Наявність максимуму в залежності $C_{Cr}^{surf}(T)$ при $T=370^\circ\text{C}$ та подальше спадання $C_{Cr}^{surf}(T)$ при $T>370^\circ\text{C}$ в моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами пов'язано з ростом зворотної дифузії.

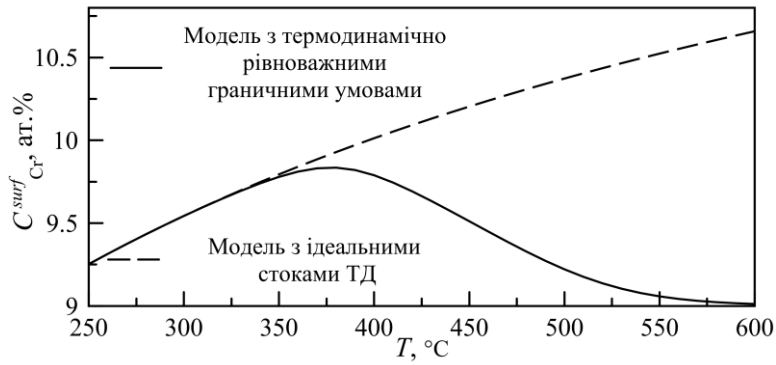


Рис. 2.25. Залежності поверхневої концентрації Cr від температури для моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами (суцільна лінія) та моделі з ідеальними стоками ТД (штрихова лінія).

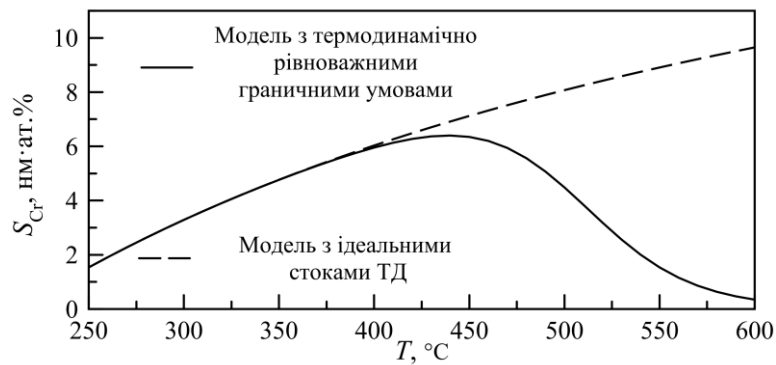


Рис. 2.26. Залежності сегрегаційної площі Cr від температури для моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами (суцільна лінія) та моделі з ідеальними стоками ТД (штрихова лінія).

На рис. 2.28 зображені залежності $C_{Cr}^{surf} = C_{Cr}^{surf}(K_0)$, розраховані при $D=1$ зна і $T=300\text{ °C}$ для моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами (суцільна лінія) та моделі з ідеальними стоками ТД (штрихова лінія).

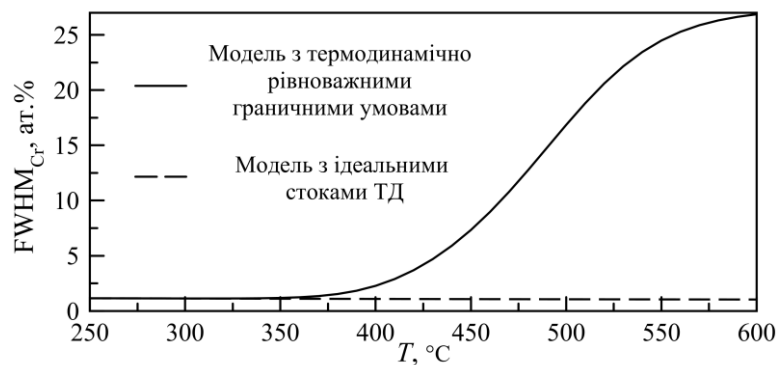


Рис. 2.27. Залежності FWHM_{Cr} від температури для моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами (суцільна лінія) та моделі з ідеальними стоками ТД (штрихова лінія).

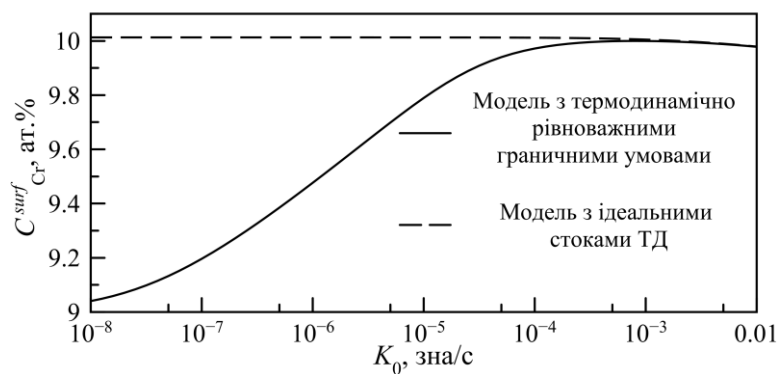


Рис. 2.28. Залежності поверхневої концентрації Cr від швидкості продукування радіаційних ТД для моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами (суцільна лінія) та моделі з ідеальними стоками ТД (штрихова лінія).

Залежності $S_{\text{Cr}} = S_{\text{Cr}}(K_0)$ та $\text{FWHM}_{\text{Cr}} = \text{FWHM}_{\text{Cr}}(K_0)$, які розраховані для обох моделей при $D = 1$ зна і $T = 300$ °C представлено на рис. 2.29 і 2.30. В моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами характер залежності $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}(K_0)$ на інтервалі $10^{-8} < K_0 < 10^{-4}$ зна/с, де спостерігається суттєве збільшення значення $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}(K_0)$, пов'язане з конкуренцією дифузійних і радіаційних процесів в системі. В моделі з ідеальними стоками ТД зворотна дифузія подавляється і значення $C_{\text{Cr}}^{\text{surf}}(K_0)$ буде визначитись в першу чергу радіаційними ефектами. Тоді

на відміну від попередньої моделі, при низьких значеннях K_0 буде спостерігатися значна поверхнева концентрація Cr C_{Cr}^{surf} , а поступове спадання C_{Cr}^{surf} при збільшенні K_0 пояснюється ростом швидкості анігіляції ТД R_{IV} .

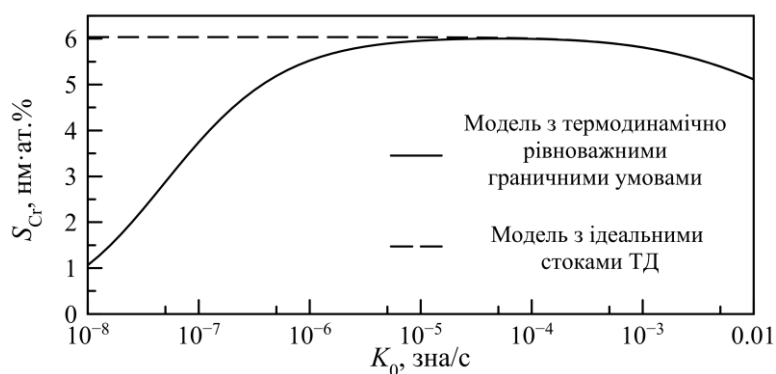


Рис. 2.29. Залежності сегрегаційної площі Cr від швидкості продукування радіаційних ТД для моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами (суцільна лінія) та моделі з ідеальними стоками ТД (штрихова лінія).

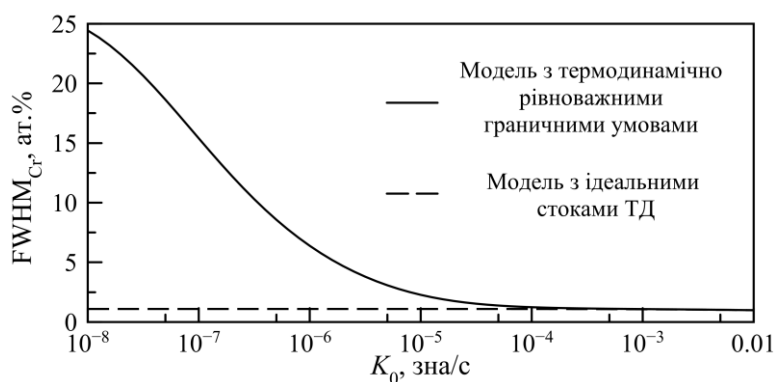


Рис. 2.30. Залежності $FWHM_{Cr}$ від швидкості продукування радіаційних ТД для моделі з термодинамічно рівноважними граничними умовами (суцільна лінія) та моделі з ідеальними стоками ТД (штрихова лінія).

2.5. Вплив дислокаційної підсистеми сплаву на ефекти РІС в сплаві Fe-9Cr

2.5.1. Постановка задачі

Далі будемо розглядати зразок сплаву, який містить дислокаційну підсистему, тобто достатньо велику кількість дислокацій, які перетинають одиничну площину. Така дислокаційна підсистема в сплаві трактується нами, як розосереджений стік ТД і описується в термінах густини дислокацій ρ_D . Для того, щоб вплив дислокаційної підсистеми на дифузійні процеси в зразку був помітний, має виконуватися нерівність $\rho_D \ell$. В даному дослідженні прийнято $\ell = 10^{-14}$ м², тоді $\rho_D \gg 10^{13}$ м⁻². Для врахування дислокаційної підсистеми в рівняннях РІС (2.35) введемо доданок $k_p^2 D_p (C_p - C_p^{eq})$, який описує швидкість поглинання дислокаційною підсистемою ТД сорту p [19]. Отже вихідна система рівнянь РІС буде мати вигляд:

$$\begin{cases} \frac{\partial C_{Cr}}{\partial t} = -\nabla \left[-\alpha D_{Cr} \nabla C_{Cr} + (d_{Cr,v} \nabla C_v - d_{Cr,i} \nabla C_i) C_{Cr} \right], \\ \frac{\partial C_v}{\partial t} = -\nabla \left[\alpha C_v (d_{Cr,v} - d_{Fe,v}) \nabla C_{Cr} - D_v \nabla C_v \right] + K_0 - R_{iv} C_v C_i - k_v^2 D_v, \\ \frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla \left[-\alpha C_i (d_{Cr,i} - d_{Fe,i}) \nabla C_{Cr} - D_i \nabla C_i \right] + K_0 - R_{iv} C_v C_i - k_i^2 D_i. \end{cases} \quad (2.46)$$

де k_p^2 – потужність стоків ТД сорту p , яка описується формулою [19, 88]

$$k_p^2 = 4\pi r_{pD} \frac{\rho_D}{\Delta}, \quad (2.47)$$

r_{pD} – радіус захвату дислокацією ТД сорту p , Δ – відстань між кристалографічними площинами ($\Delta = a$).

Відмітимо, що в опромінених металевих сплавах на основі Fe зазвичай спостерігають значення густини дислокацій $\rho_D \approx 10^{14} \text{ м}^{-2}$ [187, 188].

2.5.2. Концентраційні профілі компонентів та ТД

На рис. 2.31 а та 2.31 б для доз опромінення $D=1$ зна і $D=12$ зна представлено концентраційні профілі Cr $C_{Cr} = C_{Cr}(x)$, які розраховані при $T = 300$ °C, $K_0 = 10^{-5}$ зна/с та різних значеннях густини дислокацій ρ_D ($\rho_D = 0$, $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$). З рис. 2.31 видно, що зі збільшенням значення ρ_D зменшується поверхнева концентрація атомів Cr C_{Cr}^{surf} , а саме для набраної дози опромінення $D=1$ зна при $\rho_D = 0$ $C_{Cr}^{surf} = 9,54$ ат.%, при $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$ $C_{Cr}^{surf} = 9,50$ ат.%, при $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$ $C_{Cr}^{surf} = 9,37$ ат.%, при $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$ $C_{Cr}^{surf} = 9,19$ ат.%.

Для значень $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$ та $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$ і дози $D=1$ зна спостерігається мінімуми C_{Cr} в залежностях $C_{Cr} = C_{Cr}(x)$ (рис 2.31 а). Для дози $D=12$ зна (рис. 2.31 б) мінімум C_{Cr} мають місце лише при $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$ (рис 2.31 б). Відмітимо, що згідно з проведеними розрахунками для значення $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$ мінімум концентрації Cr $C_{Cr} = C_{Cr}(x)$ зникає при $D \approx 10^3$ зна. Наявності мінімумів концентрації Cr при високих значеннях ρ_D пов'язані з тим, що при заданих дозах D стаціонарний режим РІС не спостерігається.

Концентраційні профілі Cr $C_{Cr} = C_{Cr}(x)$ для швидкостей продукування ТД $K_0 = 10^{-4}$ зна/с та $K_0 = 10^{-7}$ зна/с, розраховані при $D=1$ зна, (рис. 2.32 б) і вказаних вище значеннях ρ_D наведено на рис. 2.32. При вказаних K_0 для значень $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$ та $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$ спостерігаються мінімуми C_{Cr} (рис 2.21 а), тобто стаціонарний режим РІС за даних умов опромінення не встановлюється. Отже, високі значення ρ_D та K_0 уповільнюють встановлення стаціонарного режиму РІС.

На рис. 2.33 зображено концентраційні профілі ТД при $\rho_D = 0$, $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$. З рис. 2.33 видно, що зі збільшенням ρ_D зменшуються концентрації ТД, оскільки дислокації є природним стоком ТД [189]. Це, в свою чергу, призводить до зменшення дифузійних потоків атомів Cr та Fe, які пов'язані з дифузійними потоками ТД, та як наслідок до зменшення значень збагачення Cr (див. рис. 2.31).

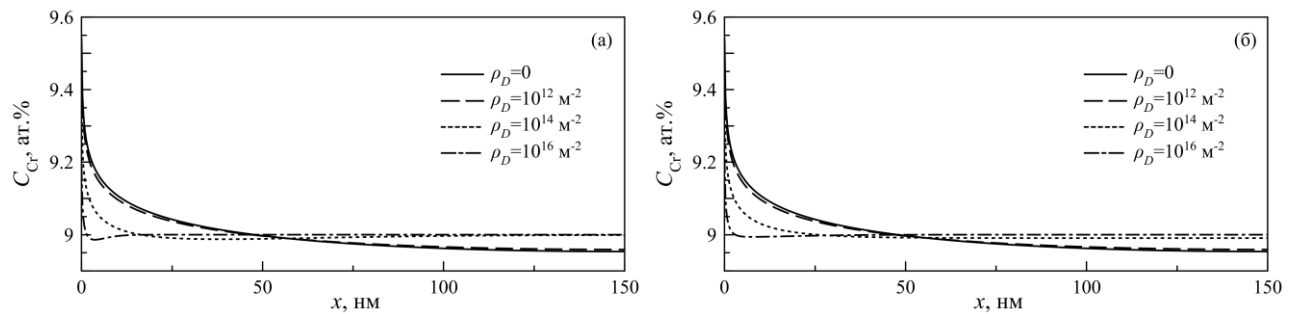


Рис. 2.31. Концентраційні профілі Cr, які розраховані при дозах опромінення 1 зна (а) і 12 зна (б) та різних значеннях густин дислокацій.

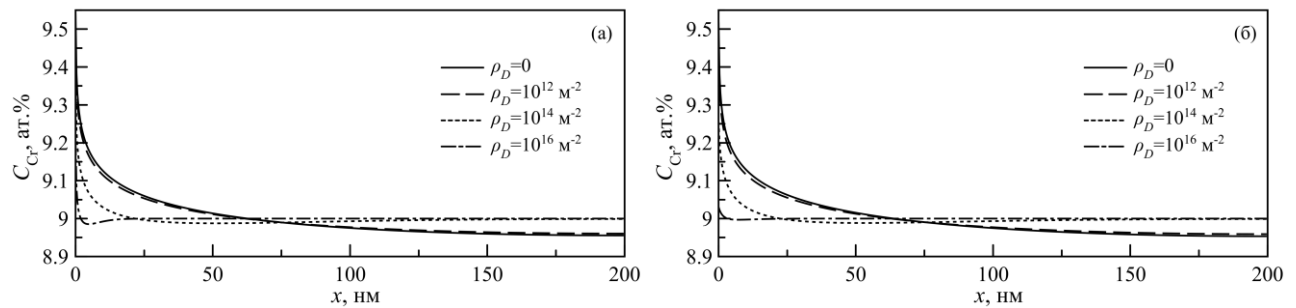


Рис. 2.32. Концентраційні профілі Cr, які розраховані при швидкостях продукування радіаційних ТД 10^{-4} зна/с (а) та 10^{-7} зна/с (б) і різних значеннях густин дислокацій.

2.5.3. Швидкості анігіляції ТД і поглинання ТД дислокаційною підсистемою та їхні координатні залежності

На рис. 2.34 представлені залежності швидкості анігіляції ТД $R_{IV} = R_{IV}(x)$ при різних значеннях ρ_D , а саме $\rho_D = 0$, $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$. Для зручності, швидкість поглинання ТД дислокаційною підсистемою позначимо $R_{Dp} = k_p^2 D_p (C_p - C_p^{eq})$. Залежності $R_{Dv} = R_{Dv}(x)$ і $R_{Di} = R_{Di}(x)$, які побудовані при $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$, наведені на рис. 2.35 а та 2.35 б.

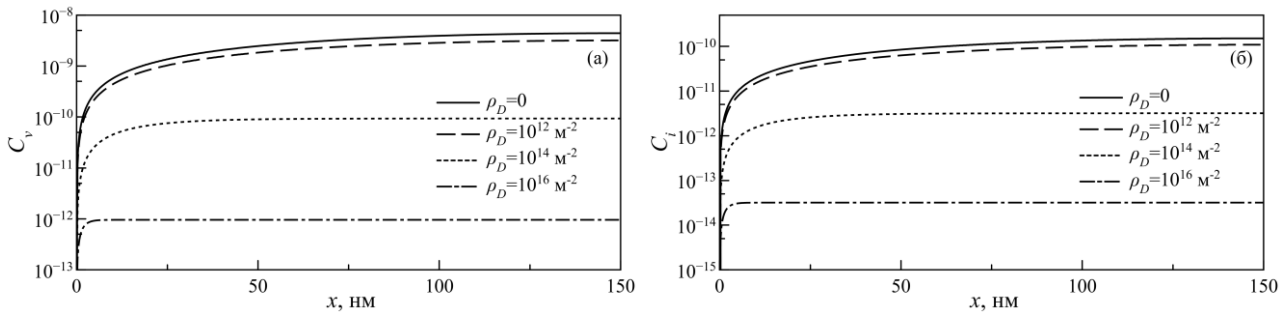


Рис. 2.33. Концентраційні профілі вакансій (а) і міжвузельних атомів (б), які розраховані при різних значеннях густин дислокацій.

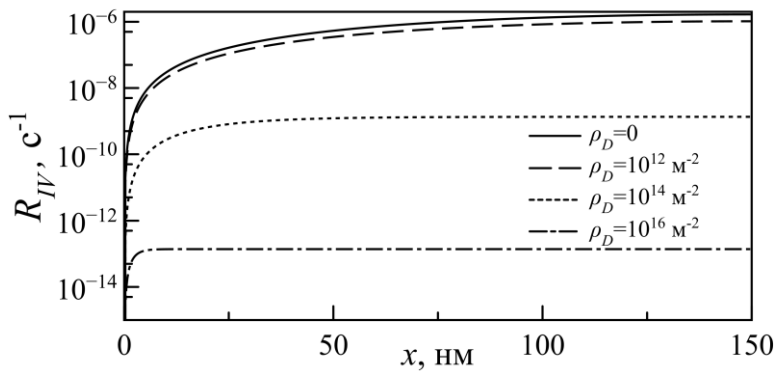


Рис. 2.34. Залежності R_{IV} від координати при різних значеннях густин дислокацій.

З рис. 2.34 видно, що на всьому проміжку $0 < x < 150 \text{ нм}$ для вказаних ρ_D значення величини R_{IV} зростає з віддаленням від поверхні зразка. Відмітимо, що

значення швидкостей анігіляції ТД R_{IV} для значень $\rho_D = 0$ та $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$ мало відрізняється. З ростом ρ_D величина R_{IV}^{bulk} в глибині зразку зменшується за рахунок зменшення концентрацій ТД.

З рис. 2.35 слідує, що значення швидкості поглинання ТД R_{Dp} при значеннях $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$ та $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$ зростає з віддаленням від поверхні зразка. При $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$ і $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$ величини R_{Dv} (рис. 2.35 а) та R_{Di} (рис. 2.35 б) досягають постійного значення $R_{Dv}^{bulk} = R_{Di}^{bulk} = 10^{-5} \text{ с}^{-1}$ на достатньої відстані від поверхні. Відмітимо, що швидкості поглинання вакансій R_{Dv} і міжвузельних атомів R_{Di} дислокаційною підсистемою мають близькі значення при одних і тих же значеннях координати x і густини дислокацій ρ_D .

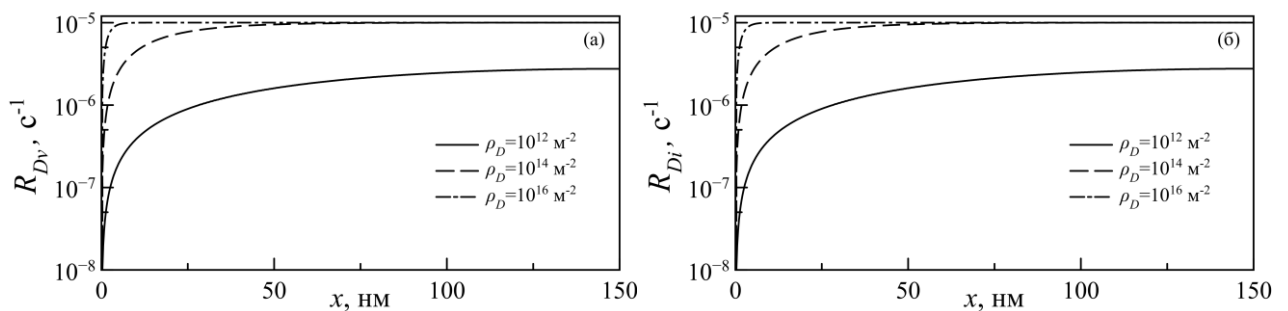


Рис. 2.35. Залежності R_{Dv} (а) та R_{Di} (б) від координати при різних значеннях густин дислокацій.

2.5.4. Залежності поверхневого збагачення Cr, сегрегаційної площі Cr та $FWHM_{Cr}$ від набраної дози, швидкості продукування ТД, температури та густини дислокацій

На рис. 2.36 представлені залежності $\Delta C_{Cr} = \Delta C_{Cr}(D)$ при зазначених вище значеннях ρ_D . Поверхне збагачення Cr ΔC_{Cr} помітно зменшується зі збільшенням значення густини дислокацій ρ_D на всьому діапазоні набраних доз $10^{-4} < D < 10^2$ зна. З рис. 2.36 видно, що для значень $\rho_D = 0$ і $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$ вихід на

стаціонарний режим РІС спостерігається при $D \approx 1$ зна, для $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$ значення набраної дози $D \approx 12$ зна.

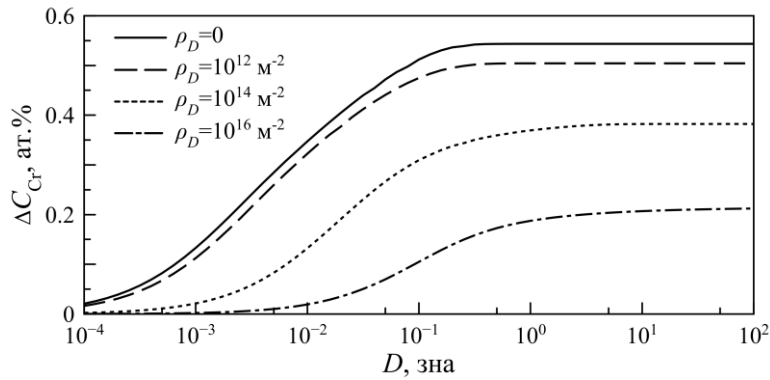


Рис. 2.36. Залежності збагачення атомів Cr від набраної дози при різних значеннях густин дислокацій.

На рис. 2.37 представлені залежності $\Delta C_{\text{Cr}} = \Delta C_{\text{Cr}}(\rho_D)$, які розраховані при швидкості продукування ТД $K_0 = 10^{-5}$ зна/с, набраній дозі $D = 1$ зна та значеннях температури $T = 250^\circ\text{C}$, $T = 300^\circ\text{C}$, $T = 400^\circ\text{C}$, $T = 500^\circ\text{C}$. На рис 2.38 наведені залежності $\Delta C_{\text{Cr}} = \Delta C_{\text{Cr}}(\rho_D)$, які розраховані при $T = 300^\circ\text{C}$, $D = 1$ зна та значеннях $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $K_0 = 10^{-5}$ зна/с, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, $K_0 = 10^{-7}$ зна/с. Зі збільшенням густини дислокацій ρ_D при всіх зазначених температурах T та швидкостях продукування ТД K_0 спостерігається зменшення збагачення Cr ΔC_{Cr} , оскільки дислокаційна підсистема ефективно поглинає ТД і, отже, послаблює ефекти РІС. Зі збільшенням густини дислокацій ρ_D перехід від досить слабого зменшення ΔC_{Cr} до явно вираженого спостерігається при $\rho_D \gtrsim \text{м}^{-2}$. Відмітимо, що при $T = 500^\circ\text{C}$ за умови $\rho_D > 10^{14} \text{ м}^{-2}$ значення ΔC_{Cr} практично рівні нулю, тобто при таких значеннях параметрів T і ρ_D дислокаційна підсистема практично подавляє ефект поверхневого збагачення атомів Cr (див. рис. 2.37).

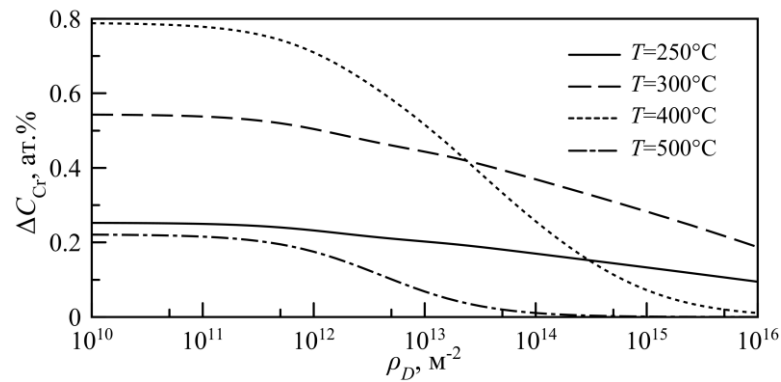


Рис. 2.37. Залежності поверхневого збагачення атомів Cr від густини дислокацій різних значеннях температур.

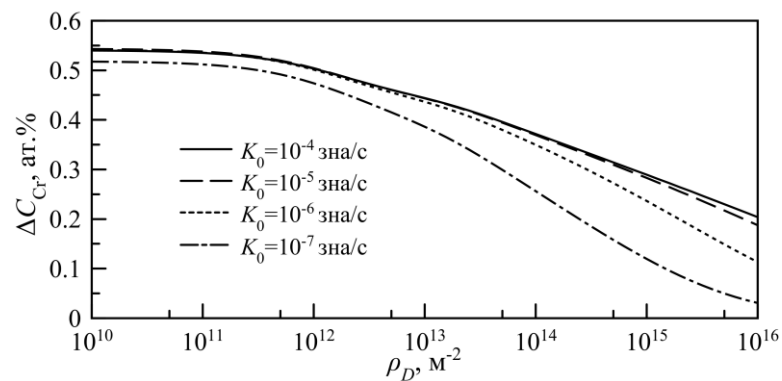


Рис. 2.38. Залежності поверхневого збагачення атомів Cr від густини дислокацій при різних значеннях швидкостей продукування ТД .

На рис. 2.39 зображені залежності поверхневого збагачення Cr $\Delta C_{Cr} = \Delta C_{Cr}(T)$ при $D=1$ зна, $K_0=10^{-5}$ зна/с і значеннях $\rho_D=0$, $\rho_D=10^{12}$ м⁻², $\rho_D=10^{14}$ м⁻², $\rho_D=10^{16}$ м⁻². Наявність максимумів в залежностях $\Delta C_{Cr}(T)$ обговорювалась в підрозділі 2.3.4 в поясненнях до рис. 2.17. З ростом ρ_D максимальні значення $\Delta C_{Cr}(T)$ спостерігаються при нижчих температура $T_{\Delta C}^{\max}$.

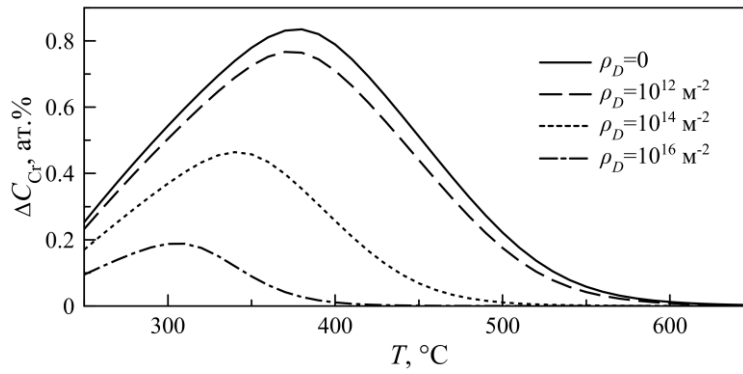


Рис. 2.39. Залежності поверхневого збагачення атомів Cr від температури при різних значеннях густин дислокацій.

На рис. 2.40 наведені залежності поверхневого збагачення Cr від швидкості продукування ТД $\Delta C_{Cr} = \Delta C_{Cr}(K_0)$ при значеннях густини дислокацій $\rho_D = 0$, $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$. Зі збільшенням K_0 поверхневе збагачення Cr ΔC_{Cr} спочатку зростає, далі виходить на постійне значення та поступово спадає. Відмітимо, що при вищих значеннях ρ_D спостерігається нижчі значення ΔC_{Cr} за одних і тих же значень K_0 .

Залежності сегрегаційної площі Cr $S_{Cr} = S_{Cr}(T)$, які розраховані при $D=1$ зна, $K_0 = 10^{-5}$ зна/с і різних значеннях густин дислокацій $\rho_D = 0$, $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$, представлені на рис. 2.41. На рис. 2.42 наведені залежності $S_{Cr} = S_{Cr}(K_0)$, які розраховані при $D=1$ зна, $T = 300^\circ\text{C}$ та вказаних вище значеннях ρ_D . При $\rho_D = 0$ і $\rho_D = 10^{12} \text{ м}^{-2}$ на інтервалі $10^{-8} < K_0 < 10^{-4}$ зна/с спостерігається незначна зміна значення S_{Cr} , подальше збільшення K_0 призводить до відносно повільного зменшення S_{Cr} . При $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $\rho_D = 10^{16} \text{ м}^{-2}$ на всьому інтервалі $10^{-8} < K_0 < 10^{-2}$ зна/с значення S_{Cr} змінюється несуттєво.

В роботі також було одержано залежності $\text{FWHM}_{Cr} = \text{FWHM}_{Cr}(T)$ (див. рис. 2.43) та $\text{FWHM}_{Cr} = \text{FWHM}_{Cr}(K_0)$ (див. рис. 2.44) за різних значеннях ρ_D .

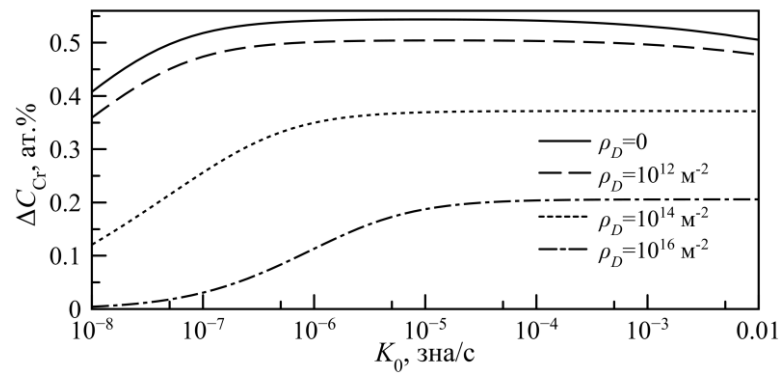


Рис. 2.40. Залежності поверхневого збагачення атомів Cr від швидкості продукування ТД при різних значеннях густин дислокацій.

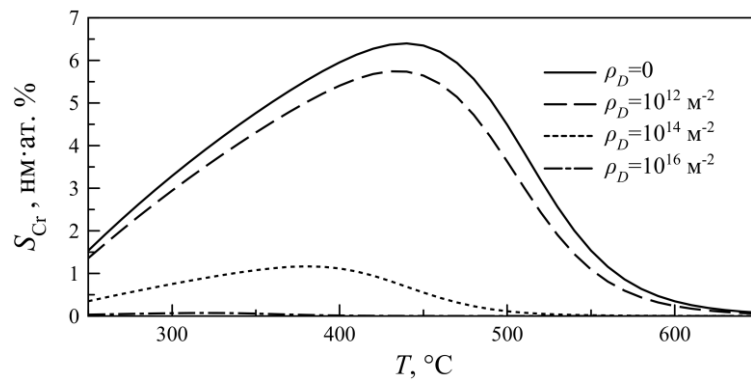


Рис. 2.41. Залежності сегрегаційної площі Cr від температури при різних значеннях густин дислокацій.

2.6. Порівняння з експериментом

Під час виконання даного дослідження проведено моделювання опромінення в сплавах Fe-8,37мас.%Cr та Fe-9мас.%Cr до дози $D=1$ зна за сталої швидкості продукування ТД $K_0=1,2 \cdot 10^{-5}$ зна/с, товщини зразку ℓ нм і температури $T=400$ °C для модельного бездислокаційного зразку та зразку сплаву з густиною дислокацій $\rho_D=10^{14}$ м⁻². Одержані профілі концентрації Cr порівнюються з експериментально одержаними на ММ у сплавах Т91 (основні компоненти якого Fe-8,37мас.%Cr-0,9мас.%Mo-0,45мас.%Ni) (рис. 2.45) та Fe-9мас. %Cr (рис. 2.46) [137].

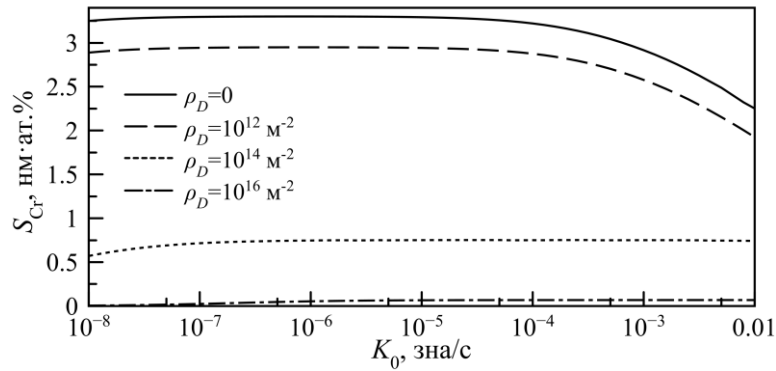


Рис. 2.42. Залежності сегрегаційної площі Cr від швидкості продукування ТД при різних значеннях густин дислокацій.

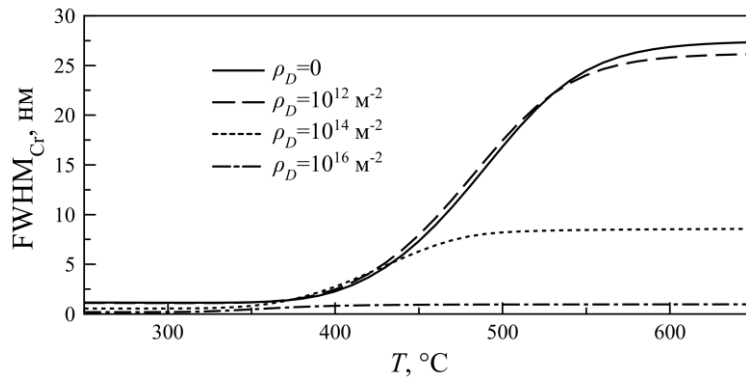


Рис. 2.43. Залежності FWHM_{Cr} від температури при різних значеннях густин дислокацій.

Розрахований концентраційний профіль Cr для бездислокаційного зразку сплаву Fe-8,37мас.%Cr, що відповідає Fe-8,93ат.%Cr, задовільно узгоджується з експериментальним. Розраховане поверхнєве збагачення Cr для бездислокаційного зразку сплаву Fe-9мас.%Cr, що відповідає Fe-9,6ат.%Cr, більша за експериментально одержану; це пов'язано з тим, що енергії міграції ТД Cr і Fe залежать від стехіометрії сплаву [81, 184, 190]. Розраховані значення поверхневих концентрацій Cr для сплавів Fe-8,37мас.%Cr і Fe-9мас.%Cr при $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$ (в опромінених сплавах Fe-Cr спостерігаються значення $\rho_D \approx 10^{14} \text{ м}^{-2}$ [187, 188]) суттєво менші за експериментально одержані.

Відмітимо також, що для сплавів T91 та Fe-9мас. %Cr в експерименті при дозі $D = 3 \text{ зна}$ спостерігається збільшення концентрації Cr [137], натомість при

моделюванні РІС для бездислокаційного зразку сплаву при $D > 1$ зна концентрація Cr змінюється мало.

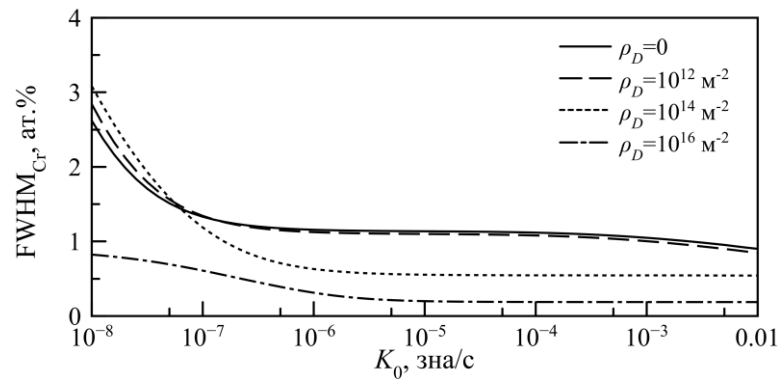


Рис. 2.44. Залежності FWHM_{Cr} від швидкості продукування ТД при різних значеннях густин дислокацій.

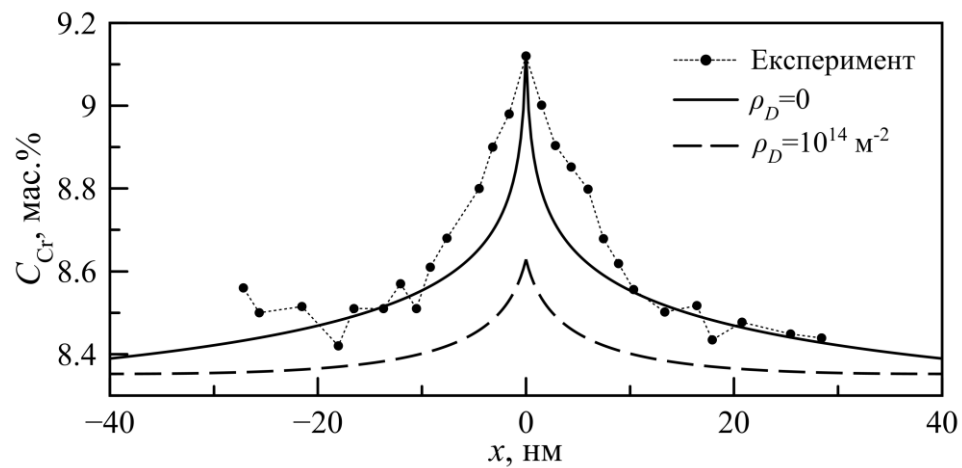


Рис. 2.45. Експериментальний концентраційний профіль Cr в сплаві Т91, який опромінений протонами з енергією 2MeV до дози $D = 1$ зна (пунктирна крива) [137] та розраховані профілі Cr в бездислокаційному зразку сплаву Fe-8,37мас.%Cr (суцільна крива) і зразку сплаву Fe-8,37мас.%Cr з $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$ (штрихова крива).

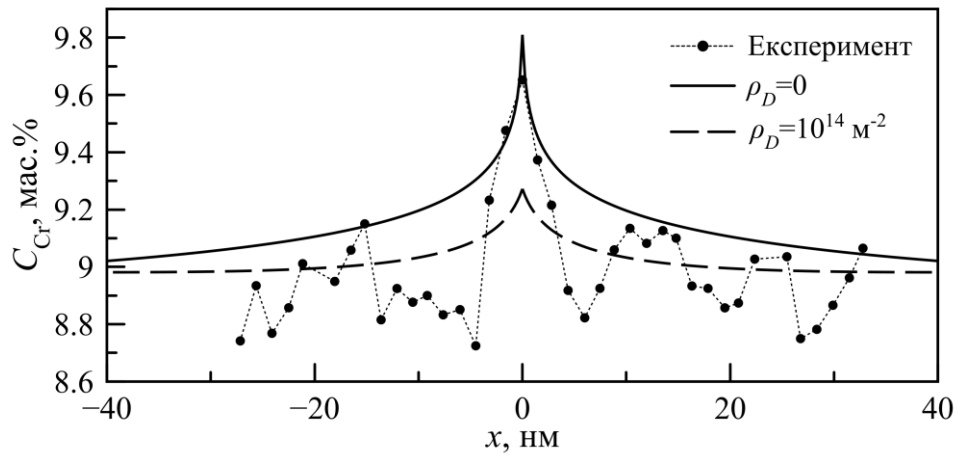


Рис. 2.46. Концентраційні профілі Cr в сплавi Fe-9мас. %Cr, який опромінений протонами з енергією 2MeV до дози $D=1$ зна (пунктирна крива) [137], в бездислокаційному зразку сплаву Fe-9мас.%Cr (суцільна крива) та зразку сплаву Fe-9мас.%Cr з $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$ (штрихова крива).

Висновки до розділу 2

1. В даному розділі для сплаву Fe-9Cr здійснено моделювання РІС та розрахунки визначальних кількісних характеристик РІС за різних швидкостей продукування ТД, набраних доз, температур та товщин зразка. Продemonстровано досягнення стаціонарного режиму РІС, який для бездислокаційного зразку сплаву настає при дозі $D \approx 1$ зна. Встановлено, що при $T = 211,4^\circ\text{C}$ має місце перехід від збіднення Cr (при $T < 211,4^\circ\text{C}$) до збагачення Cr (при $T > 211,4^\circ\text{C}$). Зазначимо, що одержані методом комп'ютерного моделювання значення поверхневого збагачення/збіднення Cr при досягненні стаціонарного режиму РІС відповідають теоретично розрахованим значенням дискримінанту РІС.

2. Для модельного бездислокаційного зразка детально проаналізований вплив швидкості продукування ТД, набраної дози опромінення, температури та товщини зразка на визначальні кількісні характеристики РІС. Показано, що збільшення температури призводить до розширення («розмивання») концентраційних профілів Cr, а збільшення швидкості продукування ТД – до звуження концентраційних

профілів Cr. В залежностях поверхневої концентрації Cr (поверхневого збагачення Cr) і сегрегаційної площі Cr від температури та швидкості продукування ТД зафіксовано максимуми. Визначено, що збільшення розміру зразка призводить до збільшення поверхневого збагачення Cr аж до виходу на постійне значення.

3. Проведено порівняння результатів моделювання РІС в моделях, які відповідають різним граничним умовам для концентрацій ТД. Показано, що в моделі з ідеальними стоками ТД (концентрації ТД на поверхні зразку дорівнюють нулю) при високих значеннях температур та низьких значеннях швидкостей продукування ТД ефекти РІС проявляються більш яскраво порівняно з моделлю з термодинамічно рівноважними значеннями концентрацій ТД на поверхні зразку.

4. Проведено дослідження впливу дислокаційної підсистеми сплаву Fe-9Cr на визначальні кількісні характеристики РІС в широкому діапазоні швидкостей продукування ТД ($10^{-8} < K_0 < 10^{-2}$ зна/с), набраних доз (від початку опромінення до $D = 100$ зна) та температур ($250 < T < 650$ °C). Показано, що з ростом густини дислокацій величини концентрацій ТД, поверхневого збагачення Cr та сегрегаційної площі Cr зменшуються, оскільки дислокаційна підсистема ефективно поглинає ТД і, отже, послаблює ефекти РІС. Встановлено, що суттєве зменшення зазначених характеристик РІС спостерігається з ростом значень ρ_D від $\rho_D \geq 10^{12}$ м⁻². З розрахунків слідує, що з ростом значень густини дислокацій або швидкості продукування ТД доза, за якої спостерігається вихід на стаціонарний режим РІС збільшується.

Основні результати, що представлені у цьому розділі, опубліковано в роботах [1, 3, 4, 8, 10].

РОЗДІЛ 3.

МОДЕЛЮВАННЯ РАДІАЦІЙНО-ІНДУКОВАНОЇ СЕГРЕГАЦІЇ В ТРИКОМПОНЕНТНИХ КОНЦЕНТРОВАНИХ СПЛАВАХ Fe-Cr-Ni

3.1. Основні рівняння моделі та вхідні параметри

Система рівнянь, яка описує просторово-часову еволюцію концентрацій компонентів C_{Cr} , C_{Ni} , C_{Fe} та ТД C_i , C_v трикомпонентного концентрованого сплаву Fe-Cr-Ni під дією реакторного опромінення є частинним випадком системи диференціальних рівнянь для N-компонентного сплаву (2.2), але з додаванням членів, відповідальних за поглинання ТД на дислокаційній підсистемі зразку. Зазначену систему рівнянь представимо у вигляді

$$\begin{cases} \frac{\partial C_{Cr}}{\partial t} = -\nabla \left[-D_{Cr} \alpha \nabla C_{Cr} - C_{Cr} (d_{Cr,i} \nabla C_i - d_{Cr,v} \nabla C_v) \right], \\ \frac{\partial C_{Ni}}{\partial t} = -\nabla \left[-D_{Ni} \alpha \nabla C_{Ni} - C_{Ni} (d_{Ni,i} \nabla C_i - d_{Ni,v} \nabla C_v) \right], \\ \frac{\partial C_v}{\partial t} = -\nabla \left[C_v \alpha \sum_{k=Cr, Ni} (d_{k,v} - d_{Fe,v}) \nabla C_k - D_v \nabla C_v \right] + K_0 - R_{iv} C_v C_i - k_v^2 D_v, \\ \frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla \left[-C_i \alpha \sum_{k=Cr, Ni} (d_{k,i} - d_{Fe,i}) \nabla C_k - D_i \nabla C_i \right] + K_0 - R_{iv} C_v C_i - k_i^2 D_i. \end{cases} \quad (3.1)$$

Система рівнянь РІС (3.1) у випадку, коли всі концентрації залежать тільки від координати x (одновимірний випадок) і часу t , розв'язувалася чисельно. Початкові і граничні умови, які використано при розв'язанні системи (3.1) та математичний алгоритм її розв'язання обговорено в розділі 2. Після обезрозмірювання і масштабування системи (3.1) одержимо вихідну для розрахунків систему. Розрахунки проведені для зразків сплаву товщиною ℓ нм з кроком різницевої схеми $\Delta x \approx 0.333$ нм. За замовченням, значення температури T , швидкості продукування ТД K_0 , набраної дози опромінення D та

густини дислокацій ρ_D обрані наступними: $T = 350^\circ\text{C}$, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, $D = 10$ зна (що відповідає часу опромінення $t = 10^7$ с), $\rho_D = 10^{14}$ м⁻². Прийняті вхідні параметри для чисельних розрахунків представлені в таблиці 3.1.

Таблиця 3.1. Вхідні параметри.

Параметр	Позначення	Значення	Посилання
Параметр решітки	a	$3,647 \cdot 10^{-10}$ м	[84]
Радіус рекомбінації ТД	r_{iv}	$1 \cdot 10^{-9}$ м	[82]
Передекспоненціальний фактор дифузії вакансій Cr	$d_{Cr,v}^0$	$3,19 \cdot 10^{-6}$ м ² /с	[74]
Передекспоненціальний фактор дифузії вакансій Ni	$d_{Ni,v}^0$	$1,33 \cdot 10^{-6}$ м ² /с	[74]
Передекспоненціальний фактор дифузії вакансій Fe	$d_{Fe,v}^0$	$2,13 \cdot 10^{-6}$ м ² /с	[74]
Передекспоненціальний фактор дифузії міжвузельних атомів Fe, Cr, Ni	d_i^0	$4,39 \cdot 10^{-8}$ м ² /с	[74]
Енергія міграції вакансій Cr	$E_{Cr,v}^m$	1,214 еВ	[74]
Енергія міграції вакансій Ni	$E_{Ni,v}^m$	1,197 еВ	[74]
Енергія міграції вакансій Fe	$E_{Fe,v}^m$	1,21 еВ	[74]
Енергія міграції міжвузельних атомів Fe, Cr, Ni	E_i^m	0,9 еВ	[74]
Ентропія формування вакансій	S_v^f	$1,0 k_b$	[182]
Енергія формування вакансій Fe	$E_{Fe,v}^f$	1,6 еВ	[181]
Енергія формування міжвузельних атомів Fe	$E_{Fe,i}^f$	5,0 еВ	[74]

Концентраційні профілі Fe, Cr та Ni, які розраховані за вказаних вище умов опромінення, представлено на рис. 3.1. Як слідує з рис. 3.1, поблизу поверхні зразку спостерігається збагачення Fe і Ni та збіднення Cr. Зазначимо, що при початкових значеннях концентрацій $C_{Fe}^0 = 72$ ат.%, $C_{Cr}^0 = 20$ ат.% і $C_{Ni}^0 = 8$ ат.%, значення результуючих поверхневих концентрацій становлять $C_{Fe}^{surf} = 74,838$ ат.%, $C_{Cr}^{surf} = 9,151$ ат.% та $C_{Ni}^{surf} = 16,011$ ат.%.

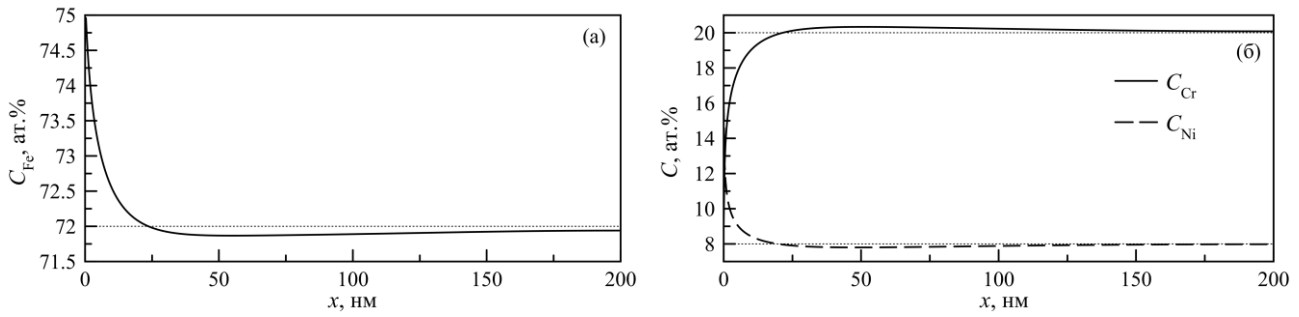


Рис. 3.1. Концентраційні профілі заліза C_{Fe} (а) та хрому C_{Cr} і нікелю C_{Ni} (б).

3.1.1. Дискримінант РІС в сплавi Fe-20Cr-8Ni

У випадку трикомпонентного сплаву вигляду $A-B-C$ дискримінант РІС (2.7) можна записати у вигляді

$$\mathcal{D}_A = \frac{\frac{d_{A,v} C_A}{D_A} \left(\frac{d_{B,v} C_B}{D_B} + \frac{d_{C,v} C_C}{D_C} \right) - \frac{d_{A,i} C_A}{D_A} \left(\frac{d_{B,i} C_B}{D_B} + \frac{d_{C,i} C_C}{D_C} \right)}{\alpha \left(\frac{d_{A,i} C_A}{D_A} + \frac{d_{B,i} C_B}{D_B} + \frac{d_{C,i} C_C}{D_C} \right)}. \quad (3.2)$$

Для розглянутого сплаву Fe-20%Cr-8%Ni на всьому температурному інтервалі $200 < T < 700^\circ\text{C}$ знаки дискримінантів РІС наступні: $\mathcal{D}_{Cr} > 0$, $\mathcal{D}_{Ni} < 0$, $\mathcal{D}_{Fe} < 0$. Отже, при дозах опромінення, близьких до дози виходу на стаціонарний стан має спостерігатися збіднення Cr і збагачення Ni та Fe в безпосередній близькості до макроскопічних стоків ТД. Наприклад, при температурі $T = 350^\circ\text{C}$ дискримінанти РІС Cr, Ni та Fe відповідно дорівнюють $\mathcal{D}_{Cr} = 3,89 \cdot 10^9 > 0$, $\mathcal{D}_{Ni} = -1,9 \cdot 10^9 < 0$, $\mathcal{D}_{Fe} = -1,98 \cdot 10^9 < 0$.

3.2. Розрахунки визначальних кількісних характеристик РІС в сплаві Fe-20Cr-8Ni та їх залежності від зовнішніх параметрів

3.2.1. Концентраційні профілі Cr, Ni

На рис. 3.2 представлено концентраційні профілі Cr ($C_{Cr} = C_{Cr}(x)$) та Ni ($C_{Ni} = C_{Ni}(x)$), розраховано при температурі $T = 350\text{ }^{\circ}\text{C}$, швидкості продукування радіаційних ТД $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, густині дислокацій $\rho_D = 10^{14}$ м⁻² та різних значеннях дози опромінення D ($D = 0,01$ зна, $D = 0,1$ зна, $D = 1$ зна і $D = 10$ зна). З ростом набраної дози значення збіднення Cr ΔC_{Cr} та збагачення Ni ΔC_{Ni} зростають. Стаціонарний режим РІС для зазначених умов ($T = 350\text{ }^{\circ}\text{C}$, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, $\rho_D = 10^{14}$ м⁻²) настає при дозі, яка помітно перевищує 10 зна. Відмітимо наявність максимумів концентрації Cr та мінімумів концентрації Ni в залежностях $C_{Cr} = C_{Cr}(x)$ і $C_{Ni} = C_{Ni}(x)$ відповідно при обраних дозах опромінення $D = 0,01$ зна, $D = 0,1$ зна, $D = 1$ зна і $D = 10$ зна.

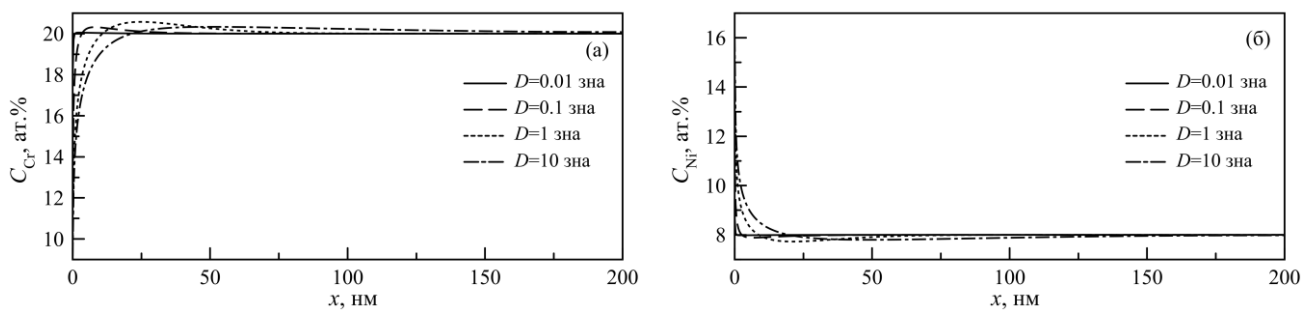


Рис. 3.2. Концентраційні профілі Cr (а) та Ni (б) при різних значеннях дози опромінення.

3.2.2. Залежності поверхневого збіднення Cr та збагачення Ni, сегрегаційних площ Cr і Ni, $\text{FWHM}_{\text{Cr(Ni)}}$ від зовнішніх параметрів

На рис. 3.3 та 3.4 представлені залежності $\Delta C_{\text{Cr}} = \Delta C_{\text{Cr}}(D)$ і $\Delta C_{\text{Ni}} = \Delta C_{\text{Ni}}(D)$ при різних значеннях K_0 та T , відповідно. З ростом дози D опромінення монотонно збільшується збіднення Cr і збагачення Ni при всіх розглянутих (фіксованих) значеннях температури та швидкості набору дози.

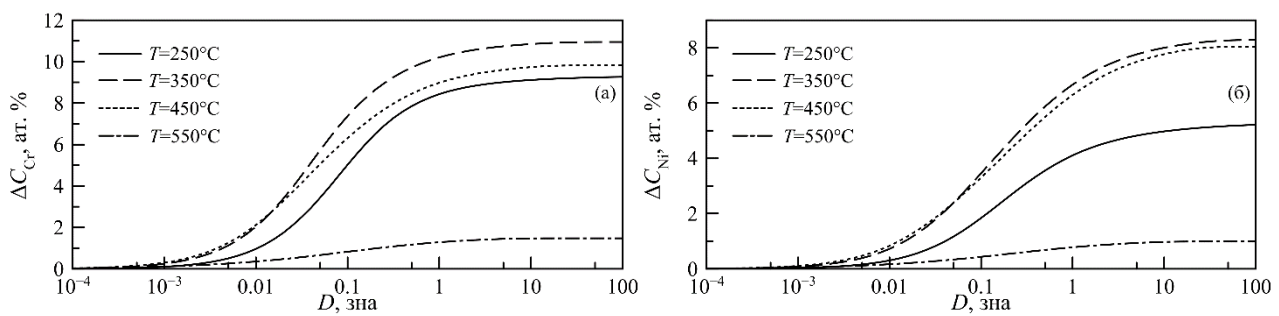


Рис. 3.3. Залежності поверхневого збіднення Cr (а) та збагачення Ni (б) від набраної дози при різних значеннях температур.

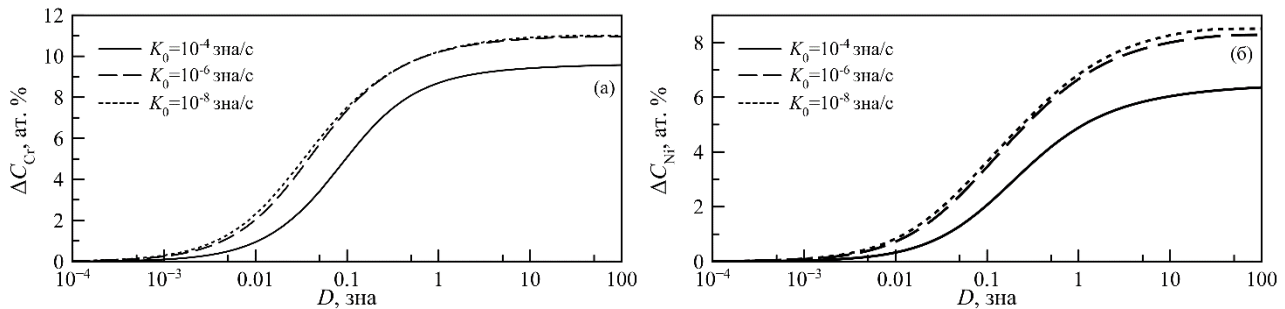


Рис. 3.4. Залежності поверхневого збіднення Cr (а) та збагачення Ni (б) від набраної дози при різних значеннях швидкостей продукування радіаційних ТД.

На рис. 3.5 наведені залежності поверхневого збіднення Cr $\Delta C_{\text{Cr}} = \Delta C_{\text{Cr}}(T)$ та збагачення Ni $\Delta C_{\text{Ni}} = \Delta C_{\text{Ni}}(T)$ при $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $D = 10 \text{ зна}$ та різних значеннях $K_0 = 10^{-4} \text{ зна/с}$, $K_0 = 10^{-6} \text{ зна/с}$, $K_0 = 10^{-8} \text{ зна/с}$. З рис. 3.5 видно, що з ростом температури T величини $\Delta C_{\text{Cr}}(T)$ і $\Delta C_{\text{Ni}}(T)$ спочатку спадають, досягають

максимального значення та потім спадають до $\Delta C_{Cr}(T)$, $\Delta C_{Ni}(T) = 0$ за рахунок збільшення зворотної дифузії з ростом T . Зазначимо, що при достатньо високих температурах значення поверхневих концентрацій Cr ΔC_{Cr} та Ni ΔC_{Ni} практично рівні нулю, тобто ефекти зворотної дифузії подавляють радіаційні. Наприклад при $K_0 = 10^{-8}$ зна/с за умови $T > 520$ °C та при $K_0 = 10^{-6}$ зна/с у випадку $T > 630$ °C саме це і спостерігається.

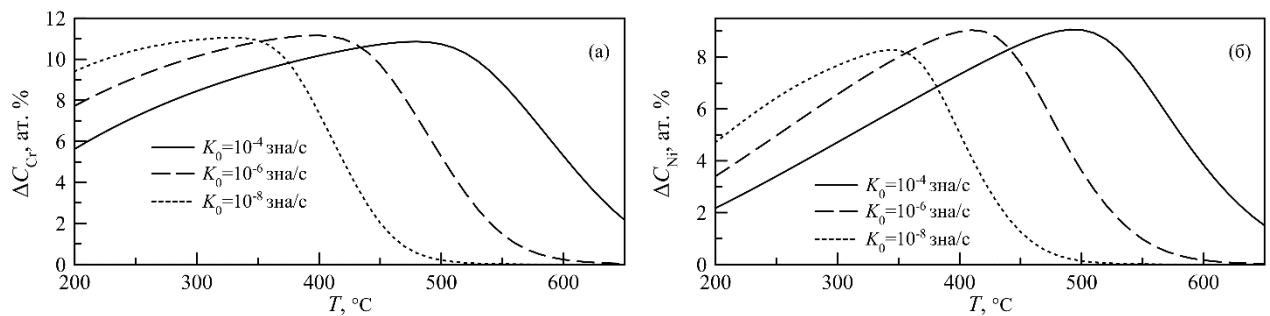


Рис. 3.5. Залежності поверхневого збіднення Cr (а) та збагачення Ni (б) від температури при різних значеннях швидкостей продукування радіаційних ТД.

На рис. 3.6 зображені залежності $S_{Cr} = S_{Cr}(T)$ і $S_{Ni} = S_{Ni}(T)$ при $\rho_D = 10^{14}$ м⁻², $D = 10$ зна і значеннях $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, $K_0 = 10^{-8}$ зна/с. Як видно з рис. 3.6, при $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, $K_0 = 10^{-8}$ зна/с з ростом температури T сегрегаційні площі Cr $S_{Cr}(T)$ та Ni $S_{Ni}(T)$ спочатку зростають, досягають максимального значення та потім спадають.

На рис. 3.7 наведені залежності $FWHM_{Cr} = FWHM_{Cr}(T)$ і $FWHM_{Ni} = FWHM_{Ni}(T)$ при $\rho_D = 10^{14}$ м⁻², $D = 10$ зна і значеннях $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, $K_0 = 10^{-8}$ зна/с. З рис. 3.7 слідує, що при $K_0 = 10^{-8}$ зна/с та $K_0 = 10^{-6}$ зна/с зі збільшенням температури T характеристики $FWHM_{Cr}$ і $FWHM_{Ni}$ зростають до постійного значення $FWHM_{Cr} \approx 9,92$ нм і $FWHM_{Ni} \approx 10,41$ нм. Подібні залежності мають місце і при $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, однак вихід на постійну величину в залежностях $FWHM_{Cr}(T)$ і $FWHM_{Ni}(T)$, згідно з

нашими розрахунками, відбувається при температурах $T > 650^\circ\text{C}$. Як видно з рис. 3.7, при всіх обраних значеннях K_0 існує область суттєвого збільшення $\text{FWHM}_{\text{Cr}}(T)$ та $\text{FWHM}_{\text{Ni}}(T)$, яка пов'язана з «розмиванням» (розширенням) концентраційних профілів $C_{\text{Cr}}(x)$ і $C_{\text{Ni}}(x)$ з ростом T .

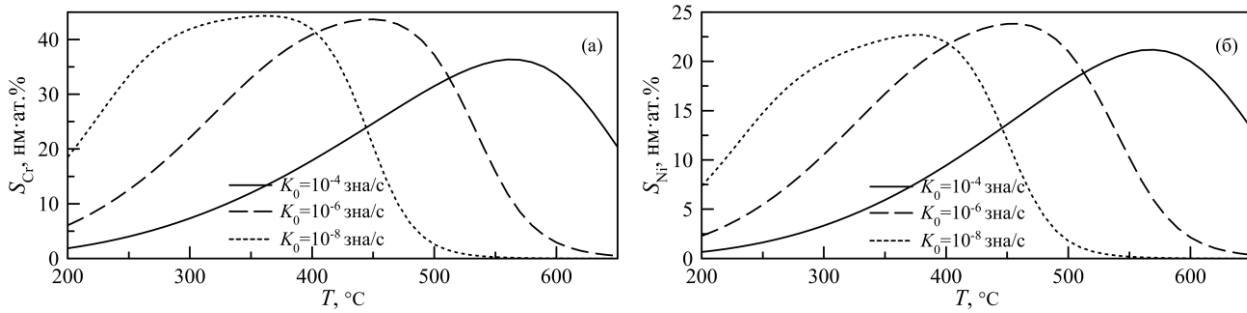


Рис. 3.6. Залежності сегрегаційної площі Cr (а) та Ni (б) від температури при різних значеннях швидкостей продукування радіаційних ТД.

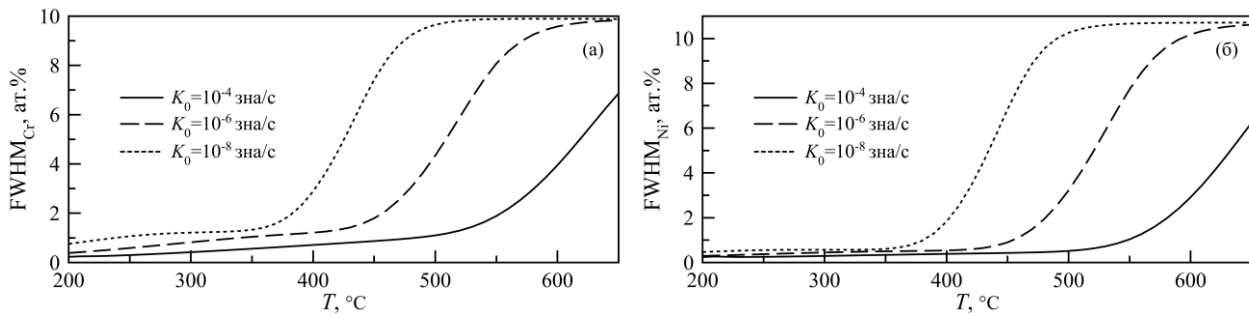


Рис. 3.7. Залежності FWHM_{Cr} (а) та FWHM_{Ni} (б) від температури при різних значеннях швидкостей продукування радіаційних ТД.

На рис. 3.8 зображені залежності $\Delta C_{\text{Cr}} = \Delta C_{\text{Cr}}(K_0)$ та $\Delta C_{\text{Ni}} = \Delta C_{\text{Ni}}(K_0)$ при $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $D = 10$ зна і значеннях $T = 250^\circ\text{C}$, $T = 350^\circ\text{C}$, $T = 450^\circ\text{C}$, $T = 550^\circ\text{C}$. При всіх зазначених температурах зі збільшенням K_0 значення $\Delta C_{\text{Cr}}(K_0)$ та $\Delta C_{\text{Ni}}(K_0)$ спочатку зростають, за рахунок збільшення пересичення радіаційних ТД $(C_{v(i)} - C_{v(i)}^{\text{eq}})$, досягають максимального значення та потім спадають, за рахунок збільшення швидкості анігіляції ТД R_{IV} . З ростом температури максимальні

занчення ΔC_{Cr} і ΔC_{Ni} зсуваються в область більш високих швидкостей продукування ТД K_0 , що обумовлено конкуренцією дифузійних та радіаційних процесів.

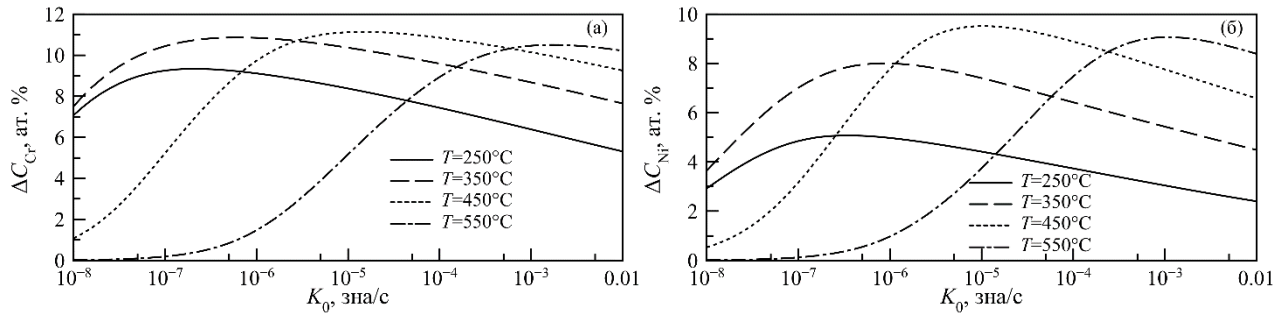


Рис. 3.8. Залежності поверхневої концентрації атомів Cr (а) та Ni (б) від швидкості продукування радіаційних ТД при різних значеннях температур.

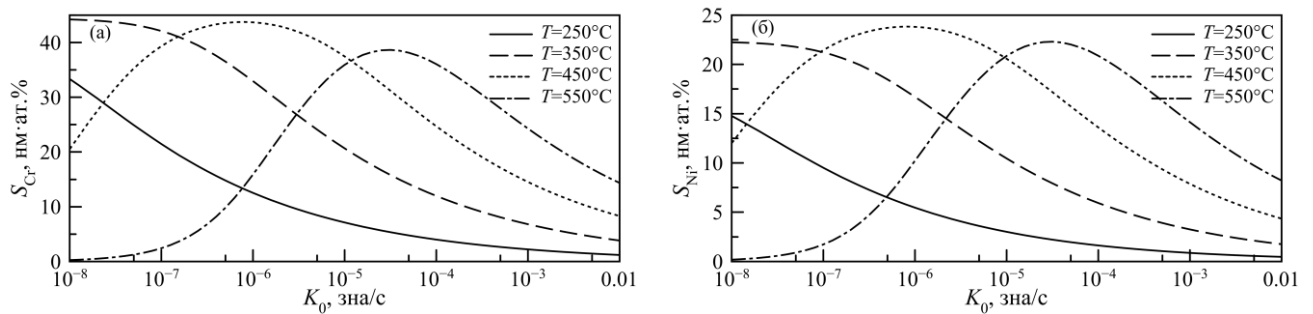


Рис. 3.9. . Залежності сегрегаційної площі Cr (а) та Ni (б) від швидкості продукування радіаційних ТД при різних значеннях температури.

На рис. 3.9 наведені залежності $S_{Cr} = S_{Cr}(K_0)$ та $S_{Ni} = S_{Ni}(K_0)$ при $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $D = 10 \text{ зна}$ і значеннях $T = 250^\circ\text{C}$, $T = 350^\circ\text{C}$, $T = 450^\circ\text{C}$, $T = 550^\circ\text{C}$. На рис. 3.10 представлені залежності $\text{FWHM}_{Cr} = \text{FWHM}_{Cr}(K_0)$ і $\text{FWHM}_{Ni} = \text{FWHM}_{Ni}(K_0)$ при $\rho_D = 10^{14} \text{ м}^{-2}$, $D = 10 \text{ зна}$ і зазначених вище температурах. Як слідує з рис. 3.9, при $T = 250^\circ\text{C}$ і $T = 350^\circ\text{C}$ на всьому проміжку швидкостей продукування ТД $10^{-8} < K_0 < 10^{-2} \text{ зна/с}$ значення $S_{Cr}(K_0)$ та $S_{Ni}(K_0)$ спадають. При $T = 450^\circ\text{C}$ і $T = 550^\circ\text{C}$ зі збільшенням K_0 спочатку спостерігається

збільшення значень $S_{Cr}(K_0)$ і $S_{Ni}(K_0)$, які досягають максимального значення та потім спадають.

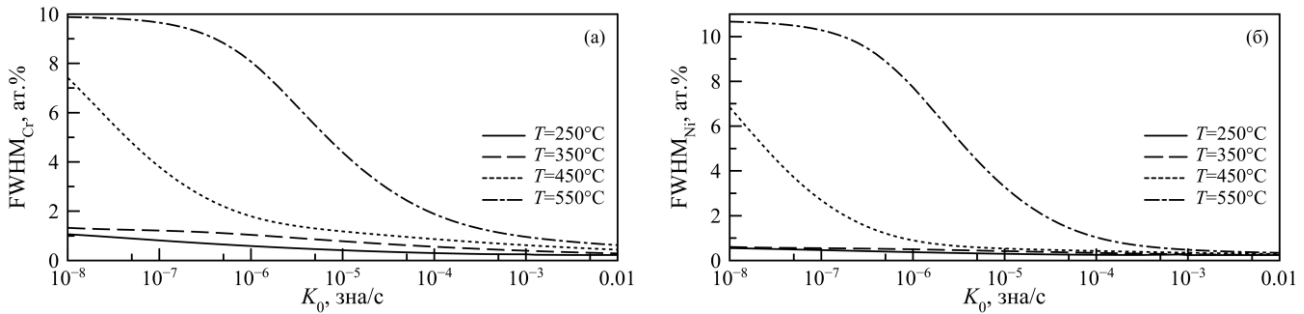


Рис. 3.10. Залежності $FWHM_{Cr}$ (а) та $FWHM_{Ni}$ (б) від швидкості продукування радіаційних ТД при різних значеннях температури.

Як слідує з рис. 3.10 при зазначених значеннях T величини $FWHM_{Cr}$ та $FWHM_{Ni}$ спадають на всьому проміжку швидкостей продукування ТД $10^{-8} < K_0 < 10^{-2}$ зна/с. При $T = 450^\circ\text{C}$ і $T = 550^\circ\text{C}$ існує область суттєвого зменшення значень $FWHM_{Cr}(K_0)$ та $FWHM_{Ni}(K_0)$, яка пов'язана зі «звуженням» концентраційних профілів Cr і Ni за рахунок радіаційного опромінення з ростом K_0 .

3.3. Розрахунок енергій міграції вакансій в аустенітних сплавах Fe-Cr-Ni

Відмітимо, що енергія міграції ТД у сплавах Fe-Cr-Ni залежить від співвідношення елементів, тобто від концентрацій C_{Fe} , C_{Cr} , C_{Ni} [74]. Наприклад, для трикомпонентних аустенітних сплавів Fe-Cr-Ni, які мають ГЦК ґратку, вираз для обчислення енергії міграції вакансій Cr можна записати у вигляді [74]

$$\begin{aligned}
E_{Cr,v}^m = & C_{Cr} \left[E_{pureCr,v}^m - 3 \left(E_{Cr,bcc}^{coh} + G_{Cr}^{bcc \rightarrow fcc} \right) - E_{Cr,v}^f \right] \\
& + C_{Ni} \left[\frac{1}{2} E_{pureNi,v}^m - \left(\frac{2}{Z} + 1 \right) E_{Ni}^{coh} - \frac{2}{Z} \left(E_{Cr,bcc}^{coh} + G_{Cr}^{bcc \rightarrow fcc} \right) \right. \\
& \left. + Z E_{NiCr}^{ord} - E_{Ni,v}^f \right] \\
& + C_{Fe} \left[\frac{1}{2} E_{pureFe,v}^m - \left(\frac{2}{Z} + 1 \right) \left(E_{Fe,bcc}^{coh} + G_{Fe}^{bcc \rightarrow fcc} \right) \right. \\
& \left. - \frac{2}{Z} \left(E_{Cr,bcc}^{coh} + G_{Cr}^{bcc \rightarrow fcc} \right) + Z E_{FeCr}^{ord} - E_{Fe,v}^f \right] \\
& + C_v \left[E_{Cr,bcc}^{coh} + G_{Cr}^{bcc \rightarrow fcc} + E_{Cr,v}^f \right] + \frac{1}{2} E_{pureCr,v}^m + 3 \left(E_{Cr,bcc}^{coh} + G_{Cr}^{bcc \rightarrow fcc} \right) \\
& + \frac{3}{2} E_{Ni}^{coh} + \frac{3}{2} \left(E_{Fe,bcc}^{coh} + G_{Fe}^{bcc \rightarrow fcc} \right) + E_{Cr,v}^f + \frac{1}{2} E_{Ni,v}^f + \frac{1}{2} E_{Fe,v}^f,
\end{aligned} \tag{3.3}$$

де $E_{purek,v}^m$ – енергія міграції вакансій в чистому металі k , $E_{k,v}^f$ – енергія формування вакансій в чистому металі k , E_k^{coh} – енергія зв’язку в чистому металі k , E_{AB}^{ord} – енергія упорядкування для пари $E_{pureFe,v}^m$, $E_{Cr,v}^f$ – кількість найближчих сусідів вакансії в кристалічній ґратці. Відмітимо, що оскільки чистий Cr і чистий Fe мають ОЦК ґратку, то при перетворенні ґратки на ГЦК потрібно врахувати різницю вільної енергії $E_{Ni,v}^f$, тоді $E_{Fe,v}^f$. Вирази для енергій міграції вакансій Ni та Fe мають аналогічний вигляд. Вхідні параметри, які необхідні для розрахунку енергій міграції вакансій Cr, Ni та Fe в аустенітних сплавах Fe-Cr-Ni, зазначені в таблиці 3.2.

Таблиця 3.2. Вхідні параметри для розрахунку енергій міграції вакансій [74].

Параметр	Позначення	Значення	Посилання
Енергія міграції вакансій в чистому Cr	$E_{Cr,bcc}^{coh}$	0,97 еВ	[74]
Енергія міграції вакансій в чистому Ni	E_{Ni}^{coh}	1,04 еВ	[74]
Енергія міграції вакансій в чистому Fe	$E_{pure Fe,v}^m$	1,28 еВ	[74]
Енергія формування вакансій в чистому Cr	$E_{Cr,v}^f$	1,60 еВ	[74]
Енергія формування вакансій в чистому Ni	$E_{Ni,v}^f$	1,79 еВ	[74]
Енергія формування вакансій в чистому Fe	$E_{Fe,v}^f$	1,4 еВ	[74]
Енергія зв'язку в чистому Cr	$E_{Cr,bcc}^{coh}$	-4,10 еВ	[191]
Енергія зв'язку в чистому Ni	E_{Ni}^{coh}	-4,44 еВ	[191]
Енергія зв'язку в чистому Fe	$E_{Fe,bcc}^{coh}$	-4,28	[191]
Різниця вільної енергії Cr	$G_{Cr}^{bcc \rightarrow fcc}$	-0,10 еВ	[191]
Різниця вільної енергії Fe	$G_{Fe}^{bcc \rightarrow fcc}$	0,01 еВ	[191]
Енергія упорядкування для пари NiCr	E_{NiCr}^{ord}	0,005 еВ	[74]
Енергія упорядкування для пари FeCr	E_{FeCr}^{ord}	-0,001 еВ	[74]
Енергія упорядкування для пари NiFe	E_{NiFe}^{ord}	0,003 еВ	[74]
Число найближчих сусідів	Z	12	

На рис. 3.11 наведено значення збіднення Cr $\Delta C_{Cr} = C_{Cr}^0 - C_{Cr}^{surf}$ та збагачення Ni $\Delta C_{Ni} = C_{Ni}^{surf} - C_{Ni}^0$ для сплавів Fe-xCr-8Ni при енергіях міграції вакансій E_v^m , взятих для сплаву Fe-20Cr-8Ni та розрахованих для кожного сплаву при $x = 19; 19,5; 20; 20,5; 21$ (див. табл. 3.3). Зовнішні параметри прийняті наступними: $T = 350^\circ\text{C}$, $K_0 = 10^{-6}$ зна/с, $D = 10$ зна. Значення збіднення Cr ΔC_{Cr} і збагачення Ni ΔC_{Ni} більші для сплавів Fe-xCr-8Ni з більшою концентрацією Cr. Значення ΔC_{Cr} та ΔC_{Ni} в сплавах Fe-19Cr-8Ni, Fe-19,5Cr-8Ni, Fe-20,5Cr-8Ni та Fe-21Cr-8Ni, які розраховані при енергіях міграції вакансій E_v^m , взятих для сплаву Fe-20Cr-8Ni,

менше відрізняються від значень ΔC_{Cr} і ΔC_{Ni} для сплаву Fe-20Cr-8Ni, ніж ΔC_{Cr} і ΔC_{Ni} , які одержані при E_v^m , розрахованих для кожного сплаву при $x = 19; 19,5; 20; 20,5; 21$.

Таблиця 3.3. Значення енергій міграції вакансій в сплавах Fe-xCr-8Ni.

Сплав	$E_{Cr,v}^m$	$E_{Ni,v}^m$	$E_{Fe,v}^m$
Fe-19Cr-8Ni	1,2176 eB	1,1991 eB	1,2124 eB
Fe-19,5Cr-8Ni	1,2111 eB	1,1981 eB	1,2160 eB
Fe-20Cr-8Ni	1,2143 eB	1,1970 eB	1,2098 eB
Fe-20,5Cr-8Ni	1,2127 eB	1,1959 eB	1,2086 eB
Fe-21Cr-8Ni	1,2111 eB	1,1948 eB	1,2073 eB

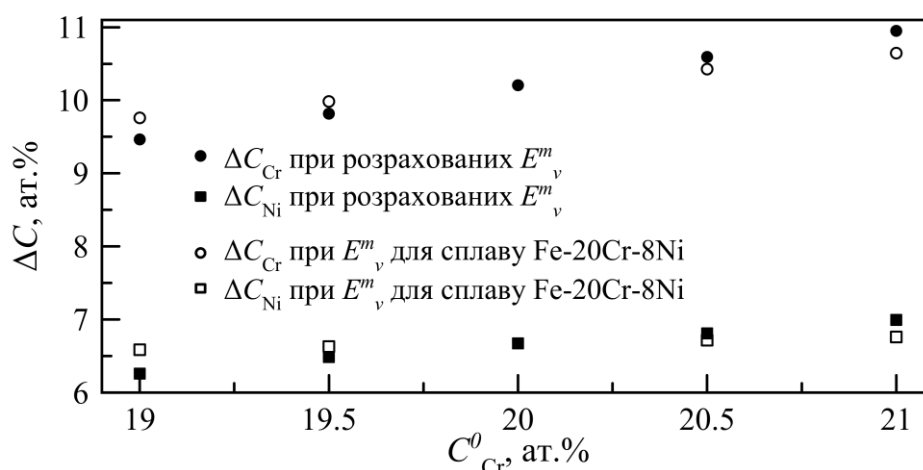


Рис. 3.11. Значення збіднення Cr та збагачення Ni для сплавів Fe-xCr-8Ni при енергіях міграцій вакансій для сплаву Fe-20Cr-8Ni і розрахованих для кожного сплаву при $x = 19; 19,5; 20; 20,5; 21$.

На рис. 3.12 представлено значення ΔC_{Cr} та ΔC_{Ni} для сплавів Fe-20Cr-yNi при E_v^m , взятих для сплаву Fe-20Cr-8Ni та розрахованих для кожного сплаву при $y = 7; 7,5; 8; 8,5; 9$ (див. табл. 3.4). Значення збіднення Cr ΔC_{Cr} для E_v^m , розрахованих для кожного сплаву при $y = 7; 7,5; 8; 8,5; 9$, зменшується зі

збільшенням концентрації Ni у сплаві Fe-20Cr-yNi, а при E_v^m , взятих для сплаву Fe-20Cr-8Ni – зменшується. Значення збагачення Ni ΔC_{Ni} для обох випадків більші для сплавів Fe-20Cr-xNi з вищою концентрацією Ni.

Таблиця 3.4. Значення енергій міграції вакансій в сплавах Fe-20Cr-yNi.

Сплав	$E_{Cr,v}^m$	$E_{Ni,v}^m$	$E_{Fe,v}^m$
Fe-20Cr-7Ni	1,2164 еВ	1,1991 еВ	1,2123 еВ
Fe-20Cr-7,5Ni	1,2154 еВ	1,1981 еВ	1,2111 еВ
Fe-20Cr-8Ni	1,2143 еВ	1,1970 еВ	1,2098 еВ
Fe-20Cr-8,5Ni	1,2133 еВ	1,1959 еВ	1,2086 еВ
Fe-20Cr-9Ni	1,2123 еВ	1,1948 еВ	1,2074 еВ

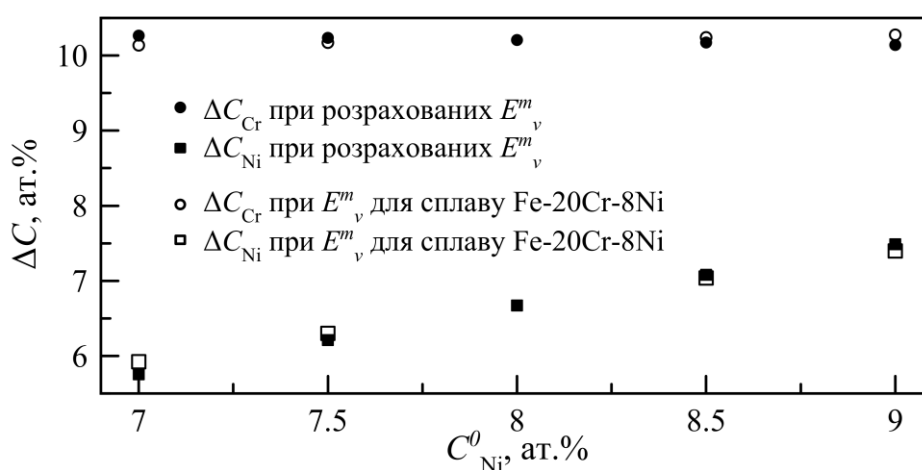


Рис. 3.12. Значення збіднення Cr та збагачення Ni для сплавів Fe-20Cr-yNi при енергіях міграцій вакансій для сплаву Fe-20Cr-8Ni і розрахованих для кожного сплаву при $y = 7; 7,5; 8; 8,5; 9$.

На рис. 3.13 та 3.14 наведено значення $FWHM_{Cr}$ і $FWHM_{Ni}$ для сплавів Fe-xCr-8Ni (рис. 3.13) та Fe-20Cr-yNi (рис. 3.14), які розраховані при різних E_v^m . Значення $FWHM_{Cr}$ і $FWHM_{Ni}$ в сплавах Fe-xCr-8Ni зменшуються зі збільшенням концентрації Cr в матриці сплаву при E_v^m , взятих для сплаву Fe-20Cr-8Ni. Для E_v^m ,

розрахованих для кожного сплаву Fe-xCr-8Ni при $x = 19; 20; 20,5; 21$ значення $FWHM_{Cr}$ – збільшується, а $FWHM_{Ni}$ – зменшується зі збільшенням концентрації Cr. Відмітимо, великі значення $FWHM_{Cr}$ та $FWHM_{Ni}$ в сплаві Fe-19,5Cr-8Ni при розрахованих E_v^m (див. рис. 3.13). Для сплавів Fe-20Cr-yNi Cr значення $FWHM_{Cr}$ збільшується зі збільшенням концентрації Ni, а $FWHM_{Ni}$ – зменшується (див. рис. 3.14).

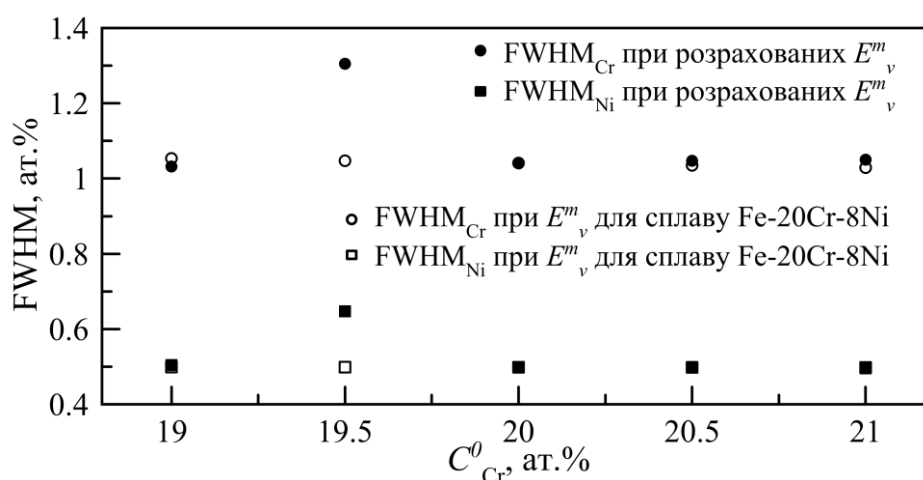


Рис. 3.13. Значення $FWHM_{Cr}$ та $FWHM_{Ni}$ для сплавів Fe-xCr-8Ni при енергіях міграцій вакансій для сплаву Fe-20Cr-8Ni і розрахованих для кожного сплаву при $x = 19; 20; 20,5; 21$.

На рис. 3.15 та 3.16 представлено значення сегрегаційних площ Cr S_{Cr} і Ni S_{Ni} для сплавів Fe-xCr-8Ni та Fe-20Cr-yNi, які розраховані при різних E_v^m .

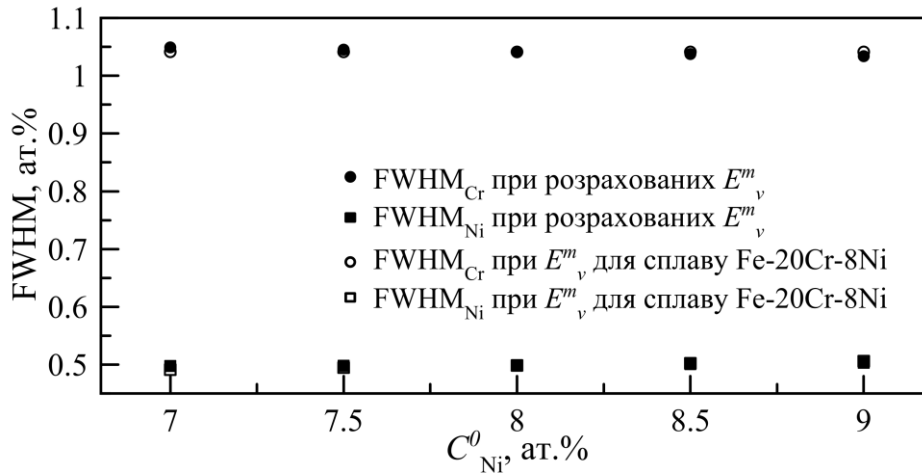


Рис. 3.14. Значення $FWHM_{Cr}$ та $FWHM_{Ni}$ для сплавів Fe-20Cr-yNi при енергіях міграцій вакансій для сплаву Fe-20Cr-8Ni і розрахованих для кожного сплаву при $y = 7; 7,5; 8; 8,5; 9$.

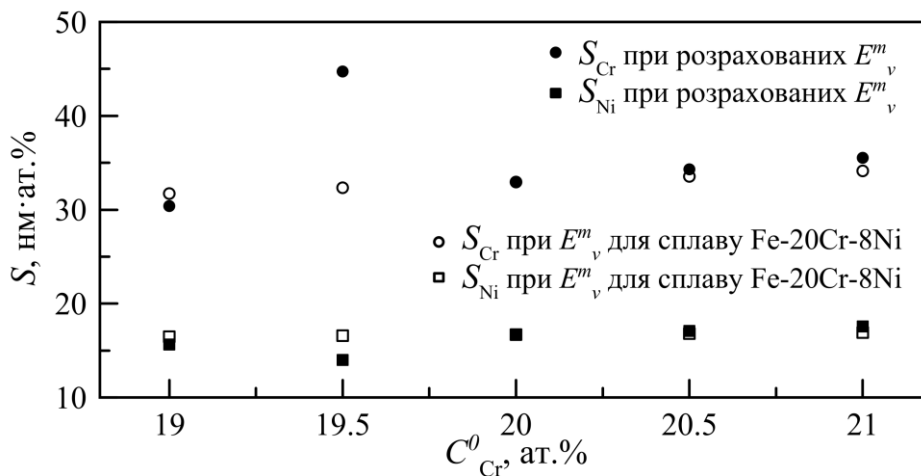


Рис. 3.15. Значення сегрегаційних площ Cr та Ni для сплавів Fe-xCr-8Ni при енергіях міграцій вакансій для сплаву Fe-20Cr-8Ni і розрахованих для кожного сплаву при $x = 19; 20; 20,5; 21$.

3.4. Дослідження впливу швидкості продукування точкових дефектів та температури на радіаційно-індуковану сегрегацію

При порівнянні результатів, які отримані за різних умов опромінення, вплив швидкості продукування ТД компенсують впливом температури [19].

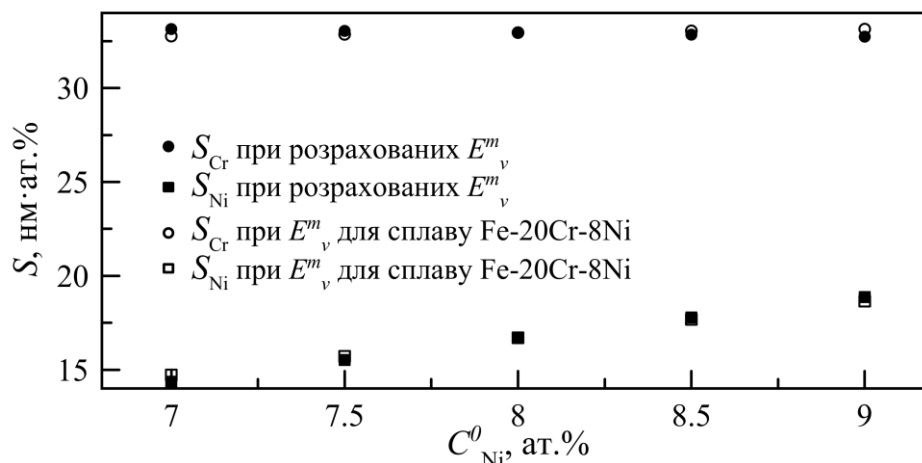


Рис. 3.16. Значення сегрегаційних площ Cr та Ni для сплавів Fe-20Cr-yNi при енергіях міграцій вакансій для сплаву Fe-20Cr-8Ni і розрахованих для кожного сплаву при $y = 7; 7,5; 8; 8,5; 9$.

На рис. 3.17 зображено концентраційні профілі $C_{Cr} = C_{Cr}(x)$ та $C_{Ni} = C_{Ni}(x)$ при дозі $D = 10$ зна. Значення швидкостей продукування ТД K_0 і температур T обрані наступними: $K_0 = 10^{-8}$ зна/с, $T = 350^\circ\text{C}$ (суцільна крива), $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $T = 350^\circ\text{C}$ (штрихова крива), $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $T = 580^\circ\text{C}$ (пунктирна крива). Як показують розрахунки, у випадках $K_0 = 10^{-8}$ зна/с, $T = 350^\circ\text{C}$ та $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $T = 580^\circ\text{C}$ при $x > 5$ нм концентрації Cr C_{Cr} та Ni C_{Ni} приймають близькі значення. Поблизу поверхні значення концентрацій як Cr так і Ni в одних і тих же точках сильно відрізняються. Отже, поблизу поверхні зразка збільшення температури T не компенсує збільшення швидкості продукування ТД K_0 .

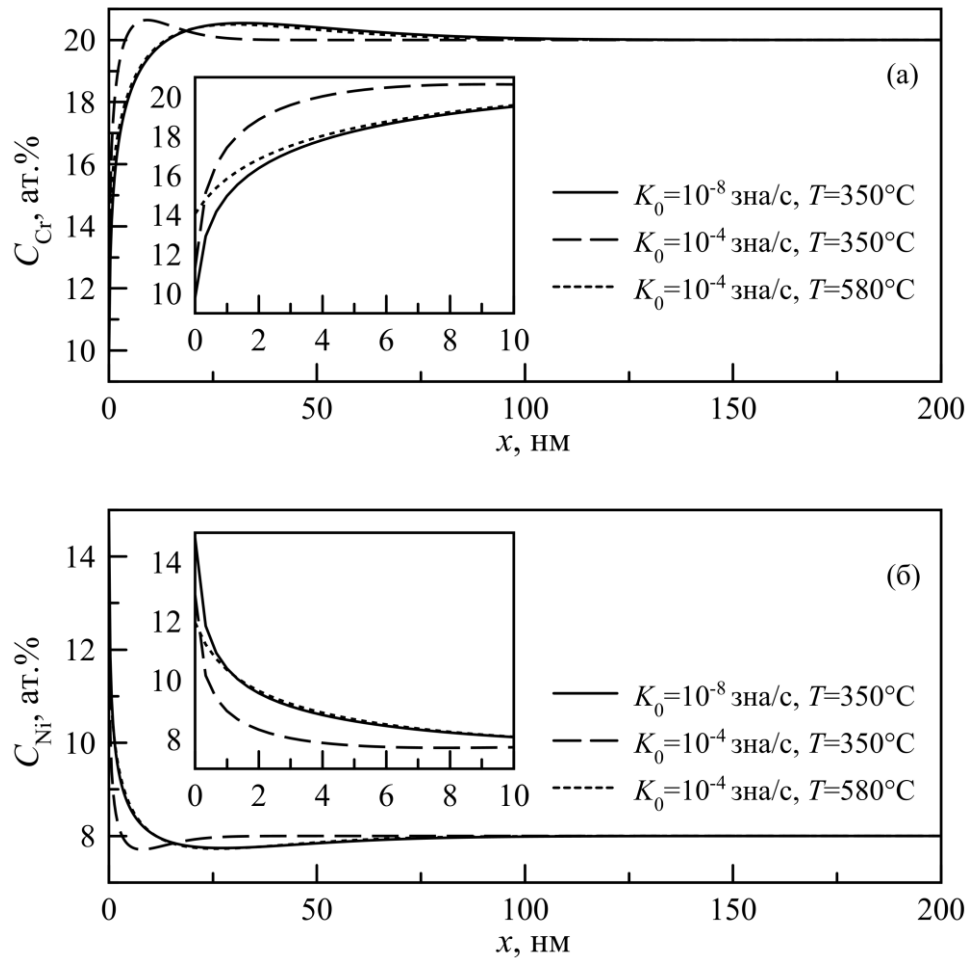


Рис. 3.17. Концентраційні профілі Cr (а) та Ni (б) при різних значеннях швидкостей продукування точкових дефектів та температур.

На рис. 3.18 представлено концентраційні профілі ТД $C_v = C_v(x)$ та $C_i = C_i(x)$ при дозі $D = 10$ зна. Значення швидкостей продукування ТД K_0 і температур T обрані наступними: $K_0 = 10^{-8}$ зна/с, $T = 350$ °C (суцільна крива), $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $T = 350$ °C (штрихова крива), $K_0 = 10^{-4}$ зна/с, $T = 580$ °C (пунктирна крива). З ростом швидкості набору дози K_0 збільшуються концентрації радіаційних ТД за рахунок більшої кількості утворених пар Френкеля. При збільшенні температури T зменшується пересичення радіаційних ТД $C_{v(i)} - C_{v(i)}^{eq}$ за рахунок їх більш швидкої дифузії на стоки. Відмітимо, що при температурі $T = 580$ °C термодинамічно рівноважна концентрація вакансій $C_v^{eq} = 1,45 \cdot 10^{-8}$ молярних доль,

що перевищує концентрацію вакансій в глибині зразка при $K_0 = 10^{-8}$ зна/с, $T = 350$ °С, яка становить $C_v^{bulk} = 7,81 \cdot 10^{-9}$ молярних доль.

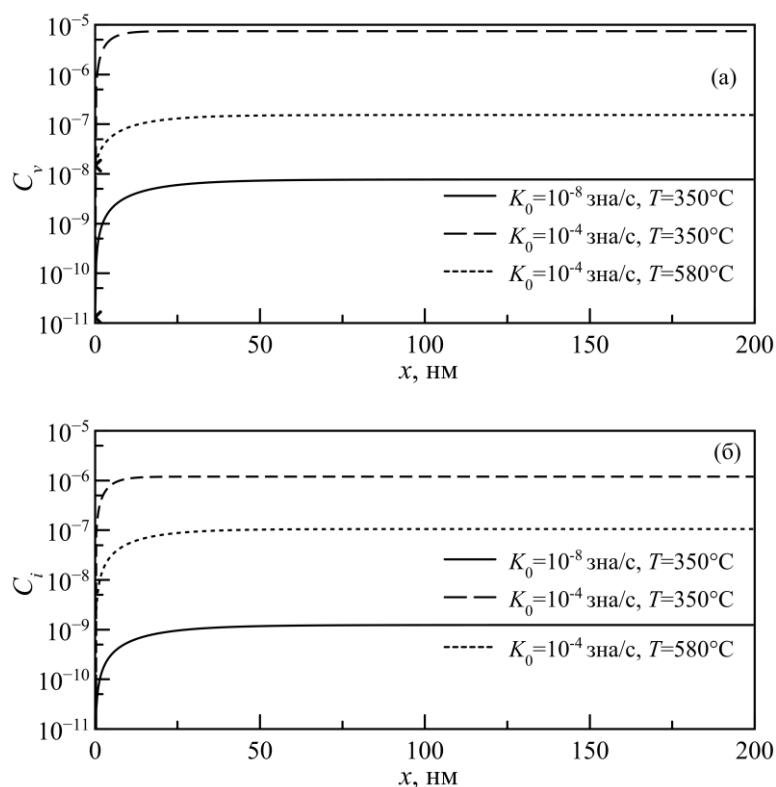


Рис. 3.18. Концентраційні профілі ТД при різних значеннях швидкостей продукування точкових дефектів та температур.

Висновки до розділу 3.

1. У даному розділі проведено комп'ютерне моделювання РІС в сплавах Fe-Cr-Ni. Показано, що при дозах опромінення близьких до дози виходу на стаціонарний режим РІС в сплаві Fe-20Cr-8Ni спостерігається збіднення сплаву по Cr та збагачення по Ni і Fe біля поверхні зразка, що узгоджується зі знаками дискримінанту РІС для цих елементів.

2. В сплаві Fe-20Cr-8Ni розраховано визначальні кількісні характеристики РІС від початку опромінення до виходу на стаціонарний режим РІС в за різних швидкостей продукування ТД та температур. Показано, що як і для сплаву Fe-9Cr в залежностях поверхневого збіднення Cr та збагачення Ni, а також сегрегаційних

площ Cr і Ni від температури та швидкості продукування ТД зафіксовано максимуми.

3. Для сплавів Fe- x Cr-8Ni та Fe-20Cr- y Ni, де $x=19; 19,5; 20; 20,5; 21$ і $y=7; 7,5; 8; 8,5; 9$ здійснено порівняння значень поверхневого збіднення Cr і збагачення Ni, сегрегаційних площ та FWHM Cr і Ni, які розраховані при енергіях міграцій вакансій, взятих для сплаву Fe-20Cr-8Ni, а також розрахованих для кожного сплаву з конкретними значеннями x, y . Встановлено, що значення вказаних визначальних кількісних характеристик РІС в сплавах Fe- x Cr-8Ni та Fe-20Cr- y Ni, які розраховані при енергіях міграції вакансій, взятих для сплаву Fe-20Cr-8Ni, менше відрізняються від значень характеристик РІС для сплаву Fe-20Cr-8Ni, ніж ті ж характеристики, які одержані при енергіях міграції вакансій, розрахованих для кожного сплаву.

4. Методом комп'ютерного моделювання для сплаву Fe-20Cr-8Ni досліджено взаємний вплив швидкості продукування ТД K_0 та температури T на ефекти РІС. Показано, що для зазначеного сплаву зі збільшенням K_0 спостерігається звуження концентраційних профілів компонентів сплаву, з ростом T спостерігається розширення концентраційних профілів компонентів сплаву. Встановлено, що зміну швидкості продукування ТД на концентраційні профілі компонентів сплаву з достатньо високою точністю можна компенсувати відповідним відносно невеликим змінами температури.

Основні результати, що представлені у цьому розділі, опубліковано в роботах [5-16].

РОЗДІЛ 4.

ПІЗНЯ СТАДІЯ СЕГРЕГАЦІЇ ДОМІШКИ НА МІЖЗЕРЕННІЙ МЕЖІ У ВИПАДКУ УТВОРЕННЯ СФЕРИЧНИХ ВИДІЛЕНЬ НОВОЇ ФАЗИ, РІСТ ЯКИХ ЛІМІТУЄТЬСЯ ПОВЕРХНЕВОЮ КІНЕТИКОЮ

4.1. Система рівнянь, яка описує ВО сферичних виділень на ММ, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою вбудови атомів домішки в виділення

4.1.1. Рівняння дифузії атомів домішки в ММ

В даному розділі теоретично розглядається ВО сферичних виділень нової фази, які розташовані на ММ скінченної товщини δ [177]. Вагається, що ріст виділень лімітується поверхневою кінетикою вбудови атомів домішки в виділення. В розгляді враховуються дифузійні потоки атомів домішки до ММ з тіла зерна. На противагу роботам [192-194], радіус виділень R може бути достатньо великим порівняно з характерною довжиною задачі L_B .

ММ будемо розглядати як однорідний ізотропний шар товщиною δ навколо виділення нової фази. Рівняння дифузії атомів домішки в ММ з врахуванням дифузійних потоків атомів домішки з тіла зерна до ММ можна представити у вигляді [195, 196]

$$L_B^2 \Delta n_B - n_B + \overline{n_B} = 0. \quad (4.1)$$

Де L_B – характерна довжина задачі, яка введена у роботах [195, 196], n_B – об’ємна густина атомів домішки в ММ, $\overline{n_B}$ – густина атомів домішки в ММ на відстані від виділення. Характерна довжина задачі визначається формулою [196]

$$L_B = \left(\frac{D_B}{4C\overline{D}_{VB}} d\delta \right)^{1/2}, \quad (4.2)$$

де D_B – об’ємний коефіцієнт дифузії атомів домішки в ММ, d – характерний розмір зерна,

$$\overline{D_{VB}} \equiv \frac{D_V \beta_{VB} d / 2}{D_V + \beta_{VB} d / 2} \quad (4.3)$$

– ефективний (з урахуванням поверхневої на поверхні зерно-ММ) коефіцієнт дифузії атомів домішки в глибині зерна, β_{VB} – поверхневий кінетичний коефіцієнт на поверхні зерно-ММ, що характеризує швидкість переходу атомів домішки з глибини зерна у ММ, D_V – коефіцієнт дифузії атомів домішки в глибині зерна.

Розглянемо сферичне виділення нової фази радіуса $R = R(t)$ ($R \gg \delta$), яке перетинається ММ (рис. 4.1) та будемо вважати, що розмір зерна d значно перевищує радіус виділення ($d \gg R$).

До рівняння (4.1) граничні умови наступні [147, 192-196]:

$$D_B \left. \frac{\partial n_B}{\partial r} \right|_{r=R} = \beta_B [n_B(R) - n_{BR}], \quad n_B|_{r \rightarrow \infty} \rightarrow \overline{n_B}, \quad (4.4)$$

де r – відстань від центра виділення в площині ММ, n_{BR} – термодинамічно рівноважне значення густини атомів домішки в ММ поблизу поверхні ММ-виділення, β_B – поверхневий кінетичний коефіцієнт, який характеризує швидкість переходу атомів домішки з ММ до виділення нової фази.

Для величини n_{BR} справедливий термодинамічний вираз

$$n_{BR} = n_{B\infty} \exp(2\Gamma_B/R), \quad (4.5)$$

де $n_{B\infty}$ – значення n_{BR} поблизу плоскої поверхні ММ-виділення ($R \rightarrow \infty$), $\Gamma_B \equiv \sigma_B \omega / k_b T$, ω – об’єм, що припадає на один атом домішки у виділенні, σ_B – питома міжфазна енергія поверхні ММ-виділення.

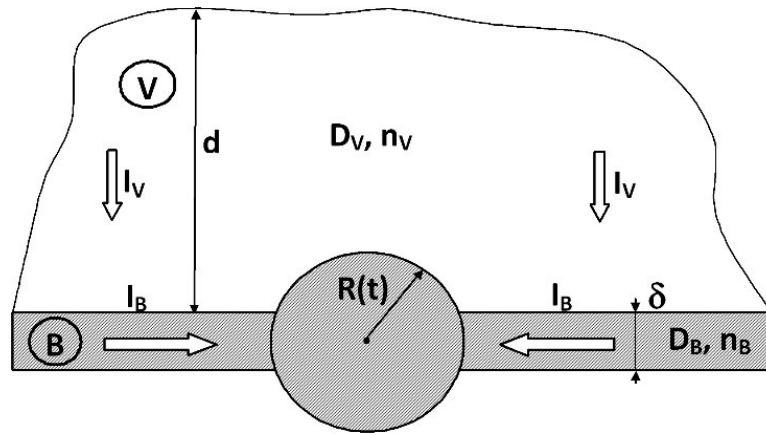


Рис. 4.1. Схематичне зображення поодинокого сферичного виділення нової фази.

Відмітимо, що термодинамічно рівноважний перепад густини атомів домішки в ММ поблизу виділення радіуса R має вигляд:

$$\Delta n_{BR} \equiv \overline{n}_B - n_{BR} = n_{B\infty} \left[\exp(2\Gamma_B / R^*) - \exp(2\Gamma_B / R) \right]. \quad (4.6)$$

де критичний радіус R^* має вигляд

$$R^* = \frac{2\Gamma_B}{\ln(\overline{n}_B / n_{B\infty})}. \quad (4.7)$$

Розв’язок рівняння (4.1), з урахуванням граничних умов (4.4), запишемо у вигляді

$$n_B(r) = \overline{n}_B - K_0(r/L_B) \left[F_0(R/L_B) \right]^{-1} \Delta n_{BR}, \quad (4.8)$$

де

$$F_0(R/L_B) \equiv K_0(R/L_B) + (D_B/\beta_B L_B) K_1(R/L_B), \quad (4.9)$$

$K_0(K_1)$ – функції Бесселя другого роду уявного аргументу нульового та першого порядків [197].

4.1.2. Швидкість дифузійного росту сферичного виділення нової фази на ММ

Швидкість дифузійного росту виділення (яка пропорційна $\mathbf{I}_B = -D_B \nabla n_B$) на поверхні ММ-виділення ($r = R$) має вигляд:

$$\frac{dR}{dt} = \frac{D_B \omega \delta}{2R} \left. \frac{dn_B(r)}{dr} \right|_{r=R}. \quad (4.10)$$

Запишемо швидкості росту dR/dt (4.10) у явному вигляді

$$\frac{dR}{dt} = \frac{D_B \omega \delta}{2RL_B} \frac{K_1(R/L_B)}{F_0(R/L_B)} \Delta n_{BR}. \quad (4.11)$$

Коли ріст виділень лімітується дифузією атомів домішки $((D_B/\beta_B L_B) K_1(R/L_B) \ll K_0(R/L_B))$, тоді

$$\frac{dR}{dt} = \frac{D_B \omega \delta}{2RL_B} \frac{K_1(R/L_B)}{K_0(R/L_B)} \Delta n_{BR}. \quad (4.12)$$

Коли ріст виділень лімітується поверхневою кінетикою вбудови атомів домішки у виділення $((D_B/\beta_B L_B) K_1(R/L_B) \gg K_0(R/L_B))$, тоді

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\beta_B \omega \delta}{2R} \Delta n_{BR}. \quad (4.13)$$

Для виділень достатньо великого радіуса ($R \gg L_B$) з формули (4.11) одержимо

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\overline{D_B} \omega \delta}{2RL_B} \Delta n_{BR}, \quad (4.14)$$

де

$$\overline{D_B} \equiv \frac{D_B \beta_B L_B}{D_B + \beta_B L_B} \quad (4.15)$$

– ефективний коефіцієнт дифузії атомів домішки в ММ. Для виділень малого радіуса ($R \ll L_B$) маємо

$$\frac{dR}{dt} = \frac{D_B \omega \delta}{2R} \frac{\Delta n_{BR}}{RK_0(R/L_B) + D_B/\beta_B}. \quad (4.16)$$

При $R \ll L_B$

$$K_0(R/L_B) = -[\ln(R/2L_B) + \gamma] + 0[(R/2L_B)^2 \ln(R/2L_B)], \quad (4.17)$$

де $\gamma = 0.5772...$ стала Ейлера [197].

За умови малих пересичень твердого розчину атомами домішки в ММ

$$\Delta_B(t) \equiv \frac{\overline{n_B(t)} - n_{B\infty}}{n_{B\infty}} \ll 1 \quad (4.18)$$

формула (4.13) приймає вигляд

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\beta_B \Gamma_B n_{B\infty} \omega \delta}{R} \left(\frac{1}{R^*} - \frac{1}{R} \right), \quad (4.19)$$

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\beta_B n_{B\infty} \omega \delta}{2R} \left(\Delta_B - \frac{2\Gamma_B}{R} \right). \quad (4.20)$$

При малих пересиченнях у виразах (4.19), (4.20) використовуються формули

$$\Delta n_{BR} = 2\Gamma_B n_{B\infty} \left(\frac{1}{R^*} - \frac{1}{R} \right), \quad (4.21)$$

$$\frac{2\Gamma_B}{R^*} = \Delta_B \ll 1. \quad (4.22)$$

Введемо позначення

$$\mathfrak{B} \equiv \beta_B n_{B\infty} \omega \delta, \quad (4.23)$$

тоді остаточно вираз (4.20) запишемо як

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\mathfrak{B}}{2R} \left(\Delta_B - \frac{2\Gamma_B}{R} \right). \quad (4.24)$$

Далі розглянемо ансамбль сферичних виділень на ММ при малих пересиченнях твердого розчину атомами домішки в ММ ($\Delta_B \ll 1$). Тоді швидкість росту dR/dt можна подати у вигляді (4.20), (4.24).

4.1.3. Рівняння для функції розподілу виділень нової фази за розмірами та закон збереження речовини в системі

Для подальшого аналізу введемо наступні безрозмірні величини: безрозмірний радіус виділення $\rho \equiv R/R_0^* = \Delta_{B0} R/2\Gamma_B$ та час $t' \equiv t/t_0$, де $R_0^* \equiv R^*(t)|_{t=0}$ – критичний радіус виділення в момент часу $t = 0$, $\Delta_{B0} \equiv \Delta_B(t)|_{t=0}$ – пересичення атомів домішки в ММ в момент часу $t = 0$, $t_0 \equiv R_0^{*3}/\mathfrak{B}\Gamma_B$ – характерний час задачі. Опустивши штрих при t' , вираз (4.24) представимо наступним чином

$$\rho^2 \frac{d\rho}{dt} = \frac{\rho}{x(t)} - 1, \quad (4.25)$$

де

$$x(t) \equiv R^*(t)/R_0^* = \Delta_{B0}/\Delta_B(t) \quad (4.26)$$

– безрозмірний критичний радіус виділення, очевидно, що в момент часу $t = 0$ $x(0) = 1$.

Введемо функцію розподілу виділень нової фази за розмірами $f(\rho, t)$, яка нормована на густину виділень (число виділень, яке припадає на одиницю площі ММ) $N(t)$, а саме

$$N(t) = \int_0^\infty f(\rho, t) d\rho. \quad (4.27)$$

Шукана функція розподілу $f(\rho, t)$ повинна задовольняти кінетичне рівняння (рівняння неперервності в просторі розмірів) [144, 145]

$$\frac{\partial f(\rho, t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \rho} \left[f(\rho, t) \frac{d\rho}{dt} \right] = 0 \quad (4.28)$$

та рівняння балансу (закон збереження речовини)

$$\overline{n_{B0}}\delta + \overline{n_{V0}}d + \frac{4\pi}{3\omega} R_0^{*3} \int_0^\infty \rho^3 f_0(\rho) d\rho = \overline{n_B}(t)\delta + \overline{n_V}(t)\delta + \frac{4\pi}{3\omega} R_0^{*3} \int_0^\infty \rho^3 f(\rho, t) d\rho, \quad (4.29)$$

де $f_0(\rho) \equiv f(\rho, t)|_{t=0}$ – початкова функція розподілу, $\overline{n_{B0}} \equiv \overline{n_B}(t)|_{t=0}$, $\overline{n_V}(t)$ – густина атомів домішки в глибині зерна, $\overline{n_{B0}} \equiv \overline{n_B}(t)|_{t=0}$, d – характерний поперечний розмір зерна. Зауважимо, що закон збереження речовини (4.29) враховує атоми домішки, які знаходяться в ММ, в глибині зерна та у виділеннях нової фази. Вважаючи, що, як і в роботах [195, 196], на відстані від виділення встановлена термодинамічна рівновага між атомами домішки, які розташовані в зерні поблизу ММ та атомами домішки в самій ММ, запишемо

$$\overline{n_V} = C\overline{n_B}, \quad \overline{n_{V0}} = C\overline{n_{B0}}. \quad (4.30)$$

Враховуючи вирази (4.30) співвідношення для закону збереження речовини (4.29) набуде вигляду

$$Q \equiv \Delta_{B0} + \lambda^* \int_0^\infty \rho^3 f_0(\rho) d\rho = \Delta_B(t) + \lambda^* \int_0^\infty \rho^3 f(\rho, t) d\rho, \quad (4.31)$$

де

$$\lambda^* \equiv \frac{4\pi R_0^{*3}}{3n_{B\infty} \omega (\delta + Cd)}. \quad (4.32)$$

Рівність (4.31) можна записати як

$$\frac{\Delta_B(t)}{Q} + \lambda \int_0^\infty \rho^3 f(\rho, t) d\rho = 1. \quad (4.33)$$

де

$$\lambda \equiv \frac{\lambda^*}{Q} = \frac{4\pi R_0^{*3}}{3n_{B\infty} Q \omega(\delta + Cd)}. \quad (4.34)$$

– константа. Враховуючи вираз (4.26) закон збереження речовини (4.33) представимо у вигляді

$$\frac{\Delta_{B0}}{Qx(t)} + \lambda \int_0^\infty \rho^3 f(\rho, t) d\rho = 1. \quad (4.35)$$

Далі будемо шукати асимптотичні (при $t \rightarrow \infty$) розв'язки рівнянь (4.25), (4.28) та (4.35) за заданої початкової функції розподілу $f(\rho, t)|_{t=0} = f_0(\rho)$. Вказані рівняння описують кінетику ВО сферичних виділень нової фази на ММ, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою.

4.2. Асимптотичний аналіз Ліфшиця-Сльозова

4.2.1. Асимптотики змін критичного радіуса виділення та пересичення твердого розчину атомів домішки в ММ

Введемо безрозмірні змінні u , τ :

$$u \equiv \frac{R}{R^*(t)} = \frac{R}{2\Gamma_B} \Delta_B(t) = \frac{\rho}{x(t)} = \frac{\rho}{\Delta_{B0}} \Delta_B(t), \quad (4.36)$$

$$\tau \equiv \ln x^3 = \ln \left(\frac{R^*(t)}{R_0^*} \right)^3 = \ln \left(\frac{\Delta_{B0}}{\Delta_B(t)} \right)^3, \quad (4.37)$$

$$x^3(\tau) = \exp \tau. \quad (4.38)$$

В змінних u , τ вираз (4.25) набуває вигляду

$$u^2 \frac{du}{d\tau} = \frac{1}{3} [\mu(u-1) - u^3], \quad (4.39)$$

$$\mu = \mu(\tau) \equiv \frac{dt}{x^2 dx} = \frac{3dt}{dx^3} > 0. \quad (4.40)$$

Розв'язок рівняння (4.39) за заданої початкової умови $u|_{\tau=0} = w$ позначимо як $u(w, \tau)$. Тоді, враховуючи, що $\rho(w, \tau) = x(\tau)u(w, \tau)$ (див. (4.36)), $\tau|_{t=0} = 0$, $x|_{\tau=0} = 1$ (див. (4.37), (4.38)), формула для повного числа атомів домішки у виділеннях всіх розмірів на одиницю площі ММ

$$N_i(t) = \frac{4\pi}{3\omega} R_0^{*3} \int_0^\infty \rho^3 f(\rho, t) d\rho \quad (4.41)$$

можна записати за допомогою початкової функції розподілу $f_0(w)$

$$N_i(\tau) = \frac{4\pi}{3\omega} R_0^{*3} x^3(\tau) \int_{w_0(\tau)}^\infty u^3(w, \tau) f_0(w) dw, \quad (4.42)$$

де $w_0(\tau)$ – розв’язок рівняння $u(w_0(\tau), \tau) = 0$, тобто нижня межа початкових радіусів виділень, які не розчинилися до моменту часу τ . Враховуючи (4.41) закон збереження речовини (4.35) представимо наступним чином

$$\frac{\Delta_{B0}}{Qx(\tau)} + \frac{3\lambda\omega}{4\pi R_0^{*3}} N_i(\tau) = 1 \quad (4.43)$$

або, з врахуванням виразів (4.38) та (4.42)

$$1 - \frac{\Delta_{B0}}{Q} \exp(-\tau/3) = \lambda(\exp \tau) \int_{w_0(\tau)}^{\infty} u^3(w, \tau) f_0(w) dw. \quad (4.44)$$

Для того, щоб знайти критичний радіус виділення $x(t)$ та пересичення $\Delta_B(t)$ з рівностей (4.39) і (4.44) визначимо функцію $\mu(\tau) = dt/x^2 dx$.

З аналізу рівнянь (4.39) і (4.44), який здійснено в роботі [144], слідує, що для достатньо великих значень часу τ

$$\mu(\tau) = \mu_0 \left(1 - 3/4\tau^{-2}\right), \quad \mu_0 = 27/4 \quad (4.45)$$

і відповідно

$$x^3(t) = \frac{4}{9} t \left[1 + \frac{3}{4(\ln t)^2} \right]. \quad (4.46)$$

Перепишемо рівняння (4.46) для розмірного критичного радіусу виділення $R^*(t)$ та розмірного часу t

$$R^{*3} = \frac{4}{9} \mathfrak{B} \Gamma_B t \left\{ 1 + \frac{3}{4 \left[\ln(\mathfrak{B} \Gamma_B t / R_0^{*3}) \right]^2} \right\}. \quad (4.47)$$

З формул (4.45), (4.47) слідує, що наближення $\mu(\tau) = \mu_0$ та відповідно

$$R^{*3} = \frac{4}{9} \mathfrak{B} \Gamma_B t = \frac{4}{9} \beta_B \Gamma_B n_{B\infty} \omega \delta t \quad (4.48)$$

справедливе, коли $\frac{3}{4 \left[\ln(\mathfrak{B} \Gamma_B t / R_0^{*3}) \right]^2} \ll 1$, тобто

$$\left[\ln(\mathfrak{B} \Gamma_B t / R_0^{*3}) \right]^2 \gg 1. \quad (4.49)$$

Вираз для пересичення твердого розчину атомів домішки в ММ асимптотично (при $t \rightarrow \infty$) має вигляд

$$\Delta_B(t) = \left(\frac{18 \Gamma_B^2}{\mathfrak{B}} \right)^{1/3} t^{-1/3} = \left(\frac{18 \Gamma_B^2}{\beta_B n_{B\infty} \omega \delta} \right)^{1/3} t^{-1/3}. \quad (4.50)$$

Відмітимо, що з виразів (4.37) і (4.48) випливає залежність $\tau = \tau(t)$:

$$\tau(t) = 3 \ln \left(\frac{4 \mathfrak{B} \Gamma_B}{9 R_0^{*3}} t \right) = 3 \ln \left(\frac{4 \beta_B \Gamma_B n_{B\infty} \omega \delta}{9 R_0^{*3}} t \right). \quad (4.51)$$

4.2.2. Асимптотики функції розподілу виділень нової фази за розмірами та густини виділень

Функція розподілу виділень нової фази за розмірами (в змінних u, τ) $\phi(u, \tau)$ асимптотично (при $\tau \rightarrow \infty$) має вигляд:

$$\phi(u, \tau) = A \exp(-\tau) P(u), \quad (4.52)$$

де

$$P(u) = \frac{3^4 e}{2^{5/3}} \frac{u^2 \exp\left[-1/(1-2u/3)\right]}{(u+3)^{7/3} (3/2-u)^{11/3}}, \quad u \in [0; 3/2), \quad (4.53)$$

$$P(u) = 0, \quad u \in [3/2; +\infty). \quad (4.54)$$

$P(u)du$ – ймовірність, що виділення має розмір між u та $u + du$. Зазначимо, що густину ймовірності $P(u)$ у вигляді (4.53), (4.54) одержано в роботі [144]. Графік функції $P(u)$ наведено на рис. 4.2 (крива 1).

Константу A в виразі (4.52) можна визначити з закону збереження речовини

$$A = \left(\lambda \overline{u^3} \right)^{-1}, \quad (4.55)$$

де

$$\overline{u^3} = \int_0^{3/2} u^3 P(u) du \approx 1.1296. \quad (4.56)$$

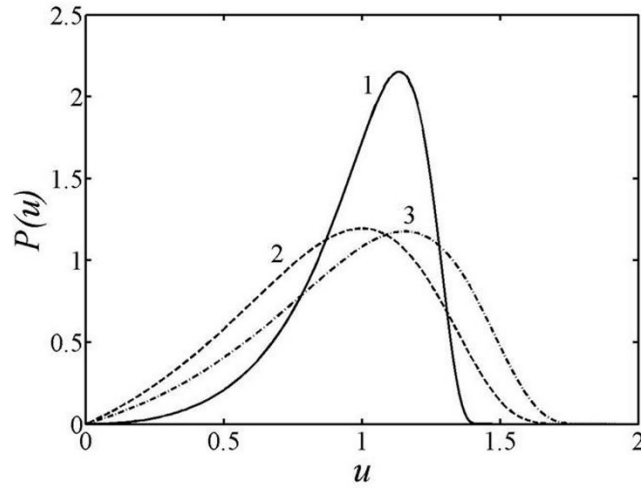


Рис. 4.2. Деякі функції $P(u)$, які отримані в теорії ВО: 1 – робота Ліфшиця та Сльозова [144] і дана робота, 2 – робота Вагнера [145], 3 – роботи [156, 176].

Як слідує з виразів (4.27), (4.52) при $\tau \rightarrow \infty$ густину виділень запишемо у вигляді

$$N = \int_0^{\infty} f(\rho, t) d\rho = \int_0^{\infty} \phi(u, \tau) du = A \exp(-\tau). \quad (4.57)$$

Враховуючи вирази (4.37) та (4.48) формула (4.57) набуде вигляду

$$N(t) = A \left(\frac{R_0^*}{R^*(t)} \right)^3 = \frac{9}{4} \frac{AR_0^{*3}}{\beta_B \Gamma_B n_{B\infty} \omega \delta t}. \quad (4.58)$$

В формулі (4.58), як слідує з виразів (4.34) і (4.55),

$$AR_0^{*3} = \frac{R_0^{*3}}{\lambda u^3} = \frac{3n_{B\infty} Q \omega (\delta + Cd)}{4\pi u^3}, \quad (4.59)$$

тобто асимптотично (при $t \rightarrow \infty$) вираз для густини виділень $N(t)$ не залежить від початкового критичного радіуса R_0^* .

З роботи [144] слідує, що

$$\bar{u} = \int_0^{3/2} uP(u)du = 1, \quad (4.60)$$

де $P(u)$ – густина ймовірності виду (4.53), (4.54). Враховуючи, що середнє значення $\bar{u} = \bar{R}/R^*$, $\bar{R}(t) = \bar{u}R^*(t)$, де $\bar{R} = \bar{R}(t)$ – середній радіус виділення, то асимптотично (при $t \rightarrow \infty$)

$$\bar{R}(t) = R^*(t), \quad (4.61)$$

тобто, середній радіус виділення дорівнює критичному.

Запишемо функцію розподілу виділень нової фази за розмірами у змінних R та t при $t \rightarrow \infty$ у вигляді:

$$f(R, t) = \frac{N(t)}{R^*(t)} P\left(\frac{R}{R^*(t)}\right) = \frac{N(t)}{\bar{R}(t)} P\left(\frac{R}{\bar{R}(t)}\right). \quad (4.62)$$

З виразу (4.62) видно, що асимптотично (при $t \rightarrow \infty$) функція розподілу виділень за розмірами $f(R, t)$ не залежить від початкової функції розподілу $f_0(R)$, що відповідає роботі [144]. Це зауваження, справедливе і для функцій розподілу, які записані через інші змінні, а саме $\phi(u, \tau)$ (формули (4.52)-(4.56)), $f(\rho, t)$.

4.2.3. Асимптотики коефіцієнта заповнення міжзеренної ММ та повного числа атомів домішки у виділеннях

Розрахуємо коефіцієнт заповнення ММ виділеннями $Z(t)$ [148, 149, 176]. Саме $Z(t)$ є площею, яка покривається виділеннями на одиницю площі ММ:

$$Z(t) = \pi \int_0^{\infty} R^2 f(R, t) dR = \pi R_0^{*2} \int_0^{\infty} \rho^2 f(\rho, t) d\rho. \quad (4.63)$$

Враховуючи вирази (4.36), (4.52) і (4.57) асимптотично (при $t \rightarrow \infty$) $Z(t)$ представимо у вигляді

$$Z(t) = \pi [R^*(t)]^2 \int_0^{3/2} u^2 \phi(u, \tau) du = \pi [R^*(t)]^2 N(t) \overline{u^2}, \quad (4.64)$$

де

$$\overline{u^2} = \int_0^{3/2} u^2 P(u) du \approx 1.0463. \quad (4.65)$$

Оскільки $N(t) = A [R_0^*/R^*(t)]^3$ (див. (4.58)), маємо

$$Z(t) = \frac{\pi A R_0^{*3} \overline{u^2}}{R^*(t)}. \quad (4.66)$$

Враховуючи вирази (4.48) та (4.59), остаточно одержимо

$$Z(t) = \left(\frac{3}{2}\right)^{2/3} \frac{\pi R_0^{*3} \overline{u^2}}{\lambda u^3} (\mathfrak{B} \Gamma_{Bt})^{-1/3}. \quad (4.67)$$

Асимптотичний (при $t \rightarrow \infty$) вираз повного числа атомів домішки у виділеннях всіх розмірів на одиницю площі ММ $N_i(t)$ запишемо у вигляді

$$N_i(t) = \frac{4\pi}{3\omega} [R^*(t)]^3 \int_0^{3/2} u^3 \phi(u, \tau) du = \frac{4\pi}{3\omega} [R^*(t)]^3 N(t) \overline{u^3}, \quad (4.68)$$

де $\overline{u^3}$ задається виразом (4.56). З врахуванням виразів (4.58) і (4.59)

$$N_i = \frac{4\pi R_0^{*3}}{3\lambda\omega} = n_{B\infty} Q(\delta + Cd). \quad (4.69)$$

Відмітимо, що асимптотична формула повного числа атомів домішки у виділеннях всіх розмірів на одиницю площі ММ $N_i(t)$ (4.69) можна отримати з закону збереження. Враховуючи, що $x(\tau) \rightarrow \infty$ при $\tau \rightarrow \infty$, з закону збереження речовини в вигляді (4.43) отримаємо, що $N_i(\tau) \rightarrow 4\pi R_0^{*3}/3\lambda\omega$ при $\tau \rightarrow \infty$. Подамо вираз закону збереження речовини (4.31) з врахуванням (4.32) та (4.41) наступним чином

$$Q = \Delta_{B0} + \frac{N_{i0}}{n_{B\infty}(\delta + Cd)} = \Delta_B(t) + \frac{N_i(t)}{n_{B\infty}(\delta + Cd)}, \quad (4.70)$$

де $N_{i0} \equiv N_i(t)|_{t=0}$. Оскільки $\Delta_B(t) \rightarrow 0$ при $t \rightarrow \infty$, з рівності (4.70) слідує, що $N_i(t) \rightarrow n_{B\infty} Q(\delta + Cd)$ при $t \rightarrow \infty$.

Відмітимо також, що наведені асимптотичні вирази справедливі за умови

$$\tau^2 = (\ln x^3)^2 = 9 \left[\ln \left(\frac{R^*(t)}{R_0^*} \right) \right]^2 \gg 1. \quad (4.71)$$

Зазначимо, що отримані в даному розділі вирази з певними змінами можна використовувати при описанні ВО сферичних виділень нової фази на ММ достатньо великого радіуса ($R \gg L_B$) при довільних значеннях D_B/β_B . Для зазначеного випадку виразом для швидкості росту виділення dR/dt є (4.14). Вираз (4.14) формально отримано з виразу (4.13) при заміні в (4.13) β_B на $\overline{D_B}/L_B$, а інші

кінетичні рівняння процесу ВО, а саме рівняння (4.28) та (4.35) залишаються справедливими. Тоді є справедливими і всі отримані асимптотичні формули після заміни β_B на $\overline{D_B}/L_B$ в виразах (4.47) – (4.51), (4.58), (4.67).

4.3. Оцінка розміру виділень нової α' -фази, збагаченої Cr, на ММ в сплавi Fe-Cr (стадія визрівання Оствальда)

В опромінених зразках сплавів Fe-Cr при концентраціях Cr ≥ 8 ат% спостерігається утворення збагаченої Cr фази α' (див. наприклад [198]). Фазову діаграму для двокомпонентних сплавів Fe-Cr наведено на рис. 4.3.

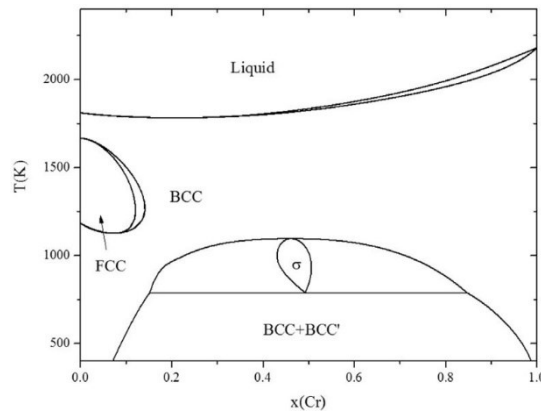


Рис. 4.3. Фазова діаграма для Fe-Cr. Рисунок взятий з роботи [199].

Наведемо оцінки середнього розміру виділень збагаченої Cr α' -фази на ММ в сплавi Fe-10Cr та пересичення атомів Cr в ММ при $T = 500$ °C (стадія визрівання Оствальда). Порядки значень параметрів для таких оцінок, з урахуванням таблиці 2.1, беремо наступними: $D_V \approx d_v C_v^{eq} \sim 10^{-17}$ м²/с, $D_B \sim 10^{-20}$ м²/с [88], $\omega \sim 10^{-30}$ м³, $\delta \sim 10^{-9}$ м, $d \sim 10^{-7}$ м, $\sigma_B \sim 10^{-1}$ Дж/м², $\Gamma_B \sim 10^{-11}$ м, $n_{B\infty} \sim \overline{n_B} \sim 10^{27}$ м⁻³, $L_B \sim \left(\frac{D_B}{D_V} d \delta \right)^{1/2} \sim 10^{-10}$ м, $\beta_B \sim \frac{D_B}{L_B} \sim 10^{-10}$ м/с. Тоді середній радіус виділення $\overline{R} = R^* \sim 10^{-11} t^{1/3}$ м та пересичення атомів Cr в ММ $\Delta_B(t) \sim t^{-1/3}$. Відмітимо, що оскільки дана теорія працює при достатньо великих значеннях t , тоді значення

середнього радіуса виділення $\bar{R} \sim 10^{-9}$ м, що відповідає експериментальним даним (див. наприклад [198]). Оцінка для пересичення атомів Cr в ММ наступна $\Delta_B(t) \sim 10^{-2} \ll 1$.

Висновки до розділу 4

1. Проведено теоретичний аналіз ВО сферичних виділень нової фази на ММ, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою вбудови атомів домішки в виділення. При аналізі враховувалися дифузійні потоки атомів домішки з тіла зерна до ММ. Встановлено, що зазначений ріст відбувається за умови $(D_B/\beta_B L_B) K_1(R/L_B) \gg K_0(R/L_B)$. В даному випадку вираз для швидкості росту виділення dR/dt за умови малого пересичення твердого розчину атомами домішки в ММ ($\Delta_B(t) \ll 1$) набуває вигляду (4.19), (4.20), (4.24).

2. У випадку ВО сферичних виділень нової фази, які розташовані на ММ, проведено асимптотичний аналіз Ліфшиця-Сльозова, а саме при $t \rightarrow \infty$ знайдено: критичний радіус виділення $R^*(t)$ (вирази (4.46)-(4.49)), пересичення твердого розчину $\Delta_B(t)$ (вираз (4.50)), густину виділень $N(t)$ (вираз (4.58)), функцію розподілу виділень за розмірами $f(R, t)$ (вираз (4.62)), коефіцієнт заповнення ММ виділеннями Z (вираз (4.67)), повне число атомів домішки в виділеннях на одиницю площі ММ N_i (вираз (4.69)).

3. Встановлено, що при $t \rightarrow \infty$ середній та критичний радіуси виділень дорівнюють одне одному ($\bar{R}(t) = R^*(t)$), а функція розподілу виділень за розмірами $f(R, t)$ не залежить від початкової функції розподілу $f_0(R)$. Стисло обговорені межі використання даного розгляду (нерівності (4.49), (4.71)).

4. Показано, що отримані вирази з певними змінами можна використовувати при описанні ВО сферичних виділень нової фази на ММ достатньо великого радіуса ($R \gg L_B$) при довільних значеннях D_B/β_B . А саме всі одержані

асимптотичні розв'язки залишаються справедливими при заміні β_B на $\overline{D}_B/L_B$ в формулах (4.47)-(4.51), (4.58), (4.67).

5. Здійснено оцінки середнього радіуса виділень збагаченої Cr α' -фази на ММ в сплавi Fe-Cr та пересичення атомів Cr в ММ.

Основні результати, що представлені у цьому розділі, опубліковано в роботах [2, 17].

ВИСНОВКИ

До основних результатів, отриманих у дисертаційній роботі, можна віднести наступні:

1. Проведено числове дослідження системи рівнянь, яка описує радіаційно-індуковану сегрегацію в сплавах Fe-9Cr та Fe-20Cr-8Ni. Розраховано визначальні кількісні характеристики радіаційно-індукованої сегрегації для таких сплавів за різних швидкостей продукування точкових дефектів, набраних доз опромінення і температур та проаналізовано залежності визначальних кількісних характеристик від названих умов опромінення.

2. Проведено дослідження впливу дислокаційної підсистеми сплаву на ефекти радіаційно-індукованої сегрегації для сплавів Fe-9Cr та Fe-20Cr-8Ni. Показано, що за однакових умов опромінення збільшення густини дислокацій призводить до зменшення концентрації точкових дефектів та значень поверхневого збагачення/збіднення і сегрегаційної площі компонентів сплавів. Це пояснюється тим, що дислокаційна підсистема, яка є ефективним стоком точкових дефектів, поглинає нерівноважні точкові дефекти та зменшує потоки точкових дефектів і пов'язані з ними потоки компонентів сплаву, внаслідок чого ефекти радіаційно-індукованої сегрегації слабшають.

3. Вперше методами числового моделювання показано, що при радіаційно-індукованій сегрегації вплив збільшення швидкості продукування точкових дефектів на профілі концентрації компонентів сплаву з достатньо високою точністю можна компенсувати відносно невеликим підвищенням температури. Цей ефект пояснюється конкуренцією двох механізмів: 1) збільшення опромінення сплаву призводить до звуження профілів концентрації; 2) підвищення температури призводить до розширення («розмивання») профілів концентрації.

4. Вперше теоретично проаналізовано кінетику пізньої стадії сегрегації домішки (визрівання Оствальда) на міжзеренній межі у випадку утворення сферичних виділень нової фази, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою вбудови атомів домішки в виділення. В розгляді враховуються дифузійні потоки

атомів домішки з тіла зерна. Проведено асимптотичний аналіз Ліфшиця-Сльозова та знайдено асимптотичні (при $t \rightarrow \infty$) характеристики ансамблю сферичних виділень нової фази (див. вирази (4.46)-(4.50), (4.52)-(4.56), (4.58), (4.62), (4.67), (4.69)).

Таким чином, мета дисертаційної роботи досягнута, поставлені завдання повністю розв'язані.

ПОДЯКИ

Автор висловлює щирі подяки науковому керівнику, старшому науковому співробітнику лабораторії №41, кандидату фізико-математичних наук, доценту Коропову Олександру Володимировичу за наукове керівництво та допомогу в ході роботи над дисертацією.

Автор також висловлює подяку старшому науковому співробітнику лабораторії №31 кандидату фізико-математичних наук, доценту Денисенку Віталію Леонідовичу та завідувачу сектору №33, кандидату фізико-математичних наук Бугаю Олександру Миколайовичу за допомогу при виконанні певних етапів роботи.

Автор вдячний провідному науковому співробітнику відділу (52-00) ННЦ ХФТІ НАН України, доктору фізико-математичних наук Туркіну Анатолію Аркадійовичу за корисне обговорення частини даної роботи.

Роботи по дослідженню радіаційно-індукованої сегрегації в Інституті прикладної фізики НАН України почалися за ініціативи академіка НАН України, професора Сторіжка Володимира Юхимовича, якому автор висловлює щирі подяки.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

- [1] Р.В. Скороход, О.М. Бугай, В.М. Білик, В.Л. Денисенко та О.В. Коропов, «Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в бінарних сплавах», *Східно-європейський фізичний журнал*, том 5, № 1, с. 61–69, 2018.
- [2] О.В. Коропов та Р.В. Скороход, «Визрівання Оствальда сферичних виділень на міжзеренній межі, яке лімітується поверхневою кінетикою», *Східно-європейський фізичний журнал*, № 1, с. 75–85, 2019.
- [3] Р.В. Скороход та О.В. Коропов, «Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в стопі Fe–9 ат.% Cr з урахуванням дислокаційної підсистеми стопу», *Металофіз. новітні технол.*, том 44, № 6, с. 691–711, 2022.
- [4] Р.В. Скороход, «Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в тонких плівках Fe-Cr», у *IV Всеукраїнській науково-практичній конференції молодих учених «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики»*, Суми, 24-25 квітня 2018 р. Суми, 2018, с. 53-54.
- [5] Р.В. Скороход, В.Л. Денисенко та О.В. Коропов, «Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в тонких плівках Fe-Cr-Ni», у *XIV Міжнародній науково-технічній конференції молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики»*, Харків, 14-16 листопада 2018 р. Харків, 2018 с. 46-47.
- [6] Р.В. Скороход, О.В. Коропов, В.Л. Денисенко та В.Ю. Сторіжко, «Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в сплавах Fe-Cr-Ni під дією іонного опромінення», у *XVII Конференції з фізики високих енергій та ядерної фізики*, Харків, 26-29 березня 2019 р. Харків, 2019, с.78.
- [7] Р.В. Скороход, «Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в потрійних концентрованих металевих сплавах», у *V Всеукраїнській науково-практичній конференції молодих учених «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики»*, Суми, 22-24 квітня 2019 р. Суми, 2019, с. 70-71.

- [8] Р.В. Скороход та О.В. Коропов, «Математична модель радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих металевих сплавах Fe-Cr-Ni», у *VIII Міжнародній науково-практичній конференції «Математика в сучасному технічному університеті»*, Київ, 27–28 грудня 2019 р. Вінниця: Видавець ФОП Кушнір Ю. В., 2020, с. 153-160.
- [9] Р.В. Скороход та О.В. Коропов, «Розрахунки визначальних кількісних характеристик радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих металевих сплавах Fe-Cr-Ni», у *VI Всеукраїнській науково-практичній конференції молодих учених «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики»*, Суми, 13-15 квітня 2020 р. Суми, 2020, с. 45-48.
- [10] О.В. Коропов та Р.В. Скороход, «Диференціальні рівняння радіаційно-індукованої сегрегації в N-компонентних концентрованих металевих стопах», у *IX Міжнародній науково-практичній конференції «Математика в сучасному технічному університеті»*, Київ, 28–29 грудня 2020 р. Вінниця: Видавець ФОП Кушнір Ю. В., 2021, с. 80-89.
- [11] Р.В. Скороход та О.В. Коропов, «Моделювання впливу дислокаційної підсистеми на ефекти радіаційно-індукованої сегрегації в трикомпонентному сплаві Fe-20%Cr-8%Ni», у *VII Всеукраїнській науково-практичній конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики»*, Суми, 12-14 квітня 2021 р. Суми, 2021, с. 76-77.
- [12] R. Skorokhod and O. Koropov, “The governing quantitative characteristics of radiation-induced segregation in Fe-Cr-Ni alloy”, in *Proceedings of XII Conference of Young Scientists “Problems of Theoretical Physics”*, Kyiv, December 21 – 22, 2021. Kyiv, 2021, p. 9-10.
- [13] Р.В. Скороход та О.В. Коропов, «Вплив енергій міграцій вакансій компонентів сплаву на ефекти радіаційно-індукованої сегрегації в аустенітних сплавах Fe-Cr-Ni», у *VIII Всеукраїнській науково-практичній конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної,*

теоретичної фізики та методики навчання фізики», Суми, 24-26 жовтня 2022 р. Суми, 2022, с. 71-73.

- [14] Р.В. Скороход та О.В. Коропов, «Дослідження впливу швидкості продукування точкових дефектів та температури на радіаційно-індуковану сегрегацію в сплавах Fe-Cr-Ni методом комп'ютерного моделювання», у *IX Всеукраїнській науково-практичній конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики»*, Суми, 10-12 квітня 2023 р. Суми, 2023, с. 78-80.
- [15] Р.В. Скороход та О.В. Коропов, «Розрахунки визначальних кількісних характеристик радіаційно-індукованої сегрегації в сплавах Fe-20Cr-8Ni за різних умов опромінення» у *XXIII Всеукраїнській школі-семінарі молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини*, Львів, 26-27 жовтня 2023 р. Львів, 2023, с. 28.
- [16] R. Skorokhod and O. Koropov, "The Mutual Influence of Production Rate of Point Defects and Temperature on the Effects of Radiation-Induced Segregation in the Fe-20Cr-8Ni Alloy" in *XIV Conference of Young Scientists "Problems of Theoretical Physics"*, Kyiv, January 16 – 17, 2024. Kyiv, 2024, p. 12.
- [17] О.В. Коропов та Р.В. Скороход, «Пізня стадія сегрегації домішки на міжзеренній межі у випадку утворення сферичних виділень нової фази, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою», у *X Всеукраїнській науково-практичній конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики»*, Суми, 15-17 квітня 2024 р. Суми, 2024, с. 85-86.
- [18] C. English and J. Hyde, "Radiation Damage of Reactor Pressure Vessel Steels", *Comprehensive Nuclear Materials*, vol. 4, pp. 151-180, 2012.
- [19] G. S. Was, *Fundamentals of Radiation Materials Science. Metals and Alloys* (2nd ed.), New York: Springer, 2017.
- [20] В.Н. Воеводин и И.М. Неклюдов, *Эволюция структурно-фазового состояния и радиационная стойкость конструкционных материалов*, Київ: Наукова думка, 2006.

- [21] K. Nordlund, S.J. Zinkle, A.E. Sand, F. Granberg, R.S. Averback, R.E. Stoller, T. Suzudo, L. Malerba, F. Banhart, W.J. Weber, F. Willaime, S.L. Dudarev and D. Simeone, “Primary radiation damage: A review of current understanding and models”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 512, pp. 450-479, 2018.
- [22] A. Aitkaliyeva, L. He, H. Wen, B. Miller, X.M. Bai and T. Allen, “Irradiation effects in Generation IV nuclear reactor materials”, in Woodhead Publishing Series in Energy: N.106. Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors (Ed. P. Yvon), Amsterdam, Elsevier, 2017, pp. 253-283.
- [23] M. Matijasevic and A. Almazouzi, “Effect of Cr on the mechanical properties and microstructure of Fe–Cr model alloys after n-irradiation”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 377, no. 1, pp. 147-154, 2008.
- [24] O.S. Bakai, V.M. Boriskin, A.M. Dovbnya, S.V. Dyuldyia and D.A. Guzonas, “Combined Effect of Irradiation, Temperature, and Water Coolant Flow on Corrosion of Zr-, Ni–Cr-, and Fe–Cr-Based Alloys”, ASME. *ASME J of Nuclear Rad Sci*, vol. 2, no 2, p. 021007, 2016.
- [25] Y.-R. Lin, A. Bhattacharya and S.J. Zinkle, “The effect of helium on cavity swelling in dual-ion irradiated Fe and Fe-10Cr ferritic alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 569, p. 153907, 2022.
- [26] Y.-R. Lin, A. Bhattacharya, D. Chen, J.-J. Kai, J. Henry and S.J. Zinkle, “Temperature-dependent cavity swelling in dual-ion irradiated Fe and Fe-Cr ferritic alloys”, *Acta Mater.*, vol. 207, p. 116660, 2021.
- [27] W. Wen, A. Kohnert, M. Arul Kumar, L. Capolungo and C.N. Tomé, “Mechanism-based modeling of thermal and irradiation creep behavior: An application to ferritic/martensitic HT9 steel”, *International Journal of Plasticity*, vol. 126, p. 102633, 2020.
- [28] F.A. Garner, M.B. Toloczko and B.H. Sencer, “Comparison of swelling and irradiation creep behavior of fcc-austenitic and bcc-ferritic/martensitic alloys at high neutron exposure”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 276, no. 1–3, pp. 123-142, 2000.
- [29] D. Bhattacharyya, T. Yamamoto, P. Wells, E. Marquis, M. Bachhav, Y. Wu, J. Davis, A. Xu and G.R. Odette, “Microstructural changes and their effect on

- hardening in neutron irradiated Fe-Cr alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 519, pp. 274-286, 2019.
- [30] H. Kayano, A. Kimura, M. Narui, Y. Sasaki, Y. Suzuki and S. Ohta, “Irradiation embrittlement of neutron-irradiated low activation ferritic steels”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 155–157, part 2, pp. 978-981, 1988.
- [31] S. Pantousa, K. Mergia, A. Ionescu, E. Manios, S. Dellis, C. Kinane, S. Langridge, A. Caruana, U. Kentsch and S. Messoloras, “Fe⁺ ion irradiation effects in Fe-10at%Cr films irradiated at 300 °C”, *Nuclear Materials and Energy*, vol. 30, p. 101147, 2022.
- [32] J.-L. Séran and M. Le Flem, “Irradiation-resistant austenitic steels as core materials for Generation IV nuclear reactors”, in Woodhead Publishing Series in Energy: N.106. Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors (Ed. P. Yvon), Amsterdam, Elsevier, 2017, pp. 285-328.
- [33] J. Henry and S.A. Maloy, “Irradiation-resistant ferritic and martensitic steels as core materials for Generation IV nuclear reactors”, in Woodhead Publishing Series in Energy: N.106. Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors (Ed. P. Yvon), Amsterdam, Elsevier, 2017, pp. 329-355.
- [34] S. Ukai, S. Ohtsuka, T. Kaito, Y. de Carlan, J. Ribis and J. Malaplate, “Oxide dispersion-strengthened/ferrite-martensite steels as core materials for Generation IV nuclear reactors”, in Woodhead Publishing Series in Energy: N.106. Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors (Ed. P. Yvon), Amsterdam, Elsevier, 2017, pp. 356-414.
- [35] S.J. Zinkle, “Advanced irradiation-resistant materials for Generation IV nuclear reactors”, in Woodhead Publishing Series in Energy: N.106. Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors (Ed. P. Yvon), Amsterdam, Elsevier, 2017, pp. 569-594.
- [36] M.J. Norgett, M.T. Robinson and I.M. Torrens, “A proposed method of calculating displacement dose rates”, *Nucl. Eng. Des.*, vol. 33, no. 1, pp. 50-54, 1975.
- [37] C.H.M. Broeders and A.Yu. Konobeyev, “Defect production efficiency in metals under neutron irradiation”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 328, no. 2–3, pp. 197-214, 2004.

- [38] T. Shi, W. Liu, Z. Su, X. Yan, C. Lu and D. Yun, “Effect of Carbon on Dislocation Loops Formation during Self-Ion Irradiation in Fe-Cr Alloys at High Temperatures”, *Materials*, vol. 15, no. 6, p. 2211, 2022.
- [39] Y. Zhang, Z. Xiao and X.-M. Bai, “Effect of Cr Concentration on $\frac{1}{2}\langle 111 \rangle$ to $\langle 100 \rangle$ Dislocation Loop Transformation in Fe-Cr alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 543, p. 152592, 2021.
- [40] X. Wang, K. Jin, C.Y. Wong, D. Chen, H. Bei, Y. Wang, M. Ziatdinov, W.J. Weber, Y. Zhang, J. Poplawsky and K.L. More, “Understanding effects of chemical complexity on helium bubble formation in Ni-based concentrated solid solution alloys based on elemental segregation measurements”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 569, p. 153902, 2022.
- [41] Z. Fan, T. Yang, B. Kombaiah, X. Wang, P.D. Edmondson, Y.N. Osetsky, K. Jin, C. Lu, H. Bei, L. Wang, K.L. More, W.J. Weber and Y. Zhang, “From suppressed void growth to significant void swelling in NiCoFeCr complex concentrated solid-solution alloy”, *Materialia*, vol. 9, p. 100603, 2020.
- [42] N. Almirall, P.B. Wells, T. Yamamoto, K. Yabuuchi, A. Kimura and G.R. Odette, “On the use of charged particles to characterize precipitation in irradiated reactor pressure vessel steels with a wide range of compositions”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 536, p. 152173, 2020.
- [43] J.-H. Ke and B.W. Spencer, “Cluster dynamics modeling of Mn-Ni-Si precipitates coupled with radiation-induced segregation in low-Cu reactor pressure vessel steels”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 569, p. 153910, 2022.
- [44] В.Б. Москаленко, О.М. Бугай та В.Л. Денисенко, «Отримання багатозарядних іонів заліза ^{56}Fe з енергією 0,64 – 7,92 МеВ для опромінення конструкційних матеріалів», *Ядерна фізика та енергетика*, т. 21, № 2, с. 147-151, 2020.
- [45] Y. Guérin, G.S. Was and S.J. Zinkle, “Materials Challenges for Advanced Nuclear Energy Systems”, *MRS Bulletin*, vol. 34, no. 1, p. 10–19, 2009.
- [46] S.J. Zinkle and G.S. Was, “Materials challenges in nuclear energy”, *Acta Mater.*, vol. 61, no. 3, pp. 735-758, 2013.

- [47] S.M. Bruemmer, E.P. Simonen, P.M. Scott, P.L. Andresen, G.S. Was and J.L. Nelson, "Radiation-induced material changes and susceptibility to intergranular failure of light-water-reactor core internals", *J. Nucl. Mater.*, vol. 274, no. 3, pp. 299-314, 1999.
- [48] J.H. Westbrook and K.T. Aust, "Solute hardening at interfaces in high-purity lead – I Grain and twin boundaries", *Acta Met.*, vol. 11, no. 10, pp. 1151-1163, 1963.
- [49] K.T. Aust, A.J. Peat and J.H. Westbrook, "Quench-hardening gradients near vacancy sinks in crystals of zone refined lead", *Acta Met.*, vol. 14, no. 11, pp. 1469-1478, 1966.
- [50] K.T. Aust, R.E. Hanneman, P. Niessen and J.H. Westbrook, "Solute induced hardening near grain boundaries in zone refined metals", *Acta Met.*, vol. 16, no. 3, pp. 291-302, 1968.
- [51] R.E. Howard and A.B. Lidiard, "The annealing of vacancies in dilute alloys", *Philosophical Magazine*, vol. 11, no. 114, pp. 1179-1187, 1965.
- [52] T.R. Anthony and R.E. Hanneman, "Non-equilibrium segregation of impurities in quenched dilute alloys", *Scripta Met.*, vol. 2, no. 11, pp. 611-614, 1968.
- [53] T.R. Anthony, "Solute segregation in vacancy gradients generated by sintering and temperature changes", *Acta Met.*, vol. 17, no. 5, pp. 603-609, 1969.
- [54] T.R. Anthony, "Segregation of Zinc to Vacancy Sinks in Aluminum", *Journal of Applied Physics*, vol. 41, no. 10, pp. 3969-3976, 1970.
- [55] T.R. Anthony, "Solute segregation and stresses generated around growing voids in metals», in *Radiation-induced voids in metals*, vol. 15, 1972, p. 630–646.
- [56] P.R. Okamoto and H. Wiedersich, "Segregation of alloying elements to free surfaces during irradiation", *J. Nucl. Mater.*, vol. 53, pp. 336-345, 1974.
- [57] R.A. Johnson and N.Q. Lam, "Solute segregation in metals under irradiation", *Phys. Rev. B*, vol. 13, no. 10, pp. 4364-4375, 1976.
- [58] R.G. Faulkner, "Radiation-induced grain boundary segregation in nuclear reactor steels", *J. Nucl. Mater.*, vol. 251, pp. 269-275, 1997.

- [59] R. G. Faulkner, R.B. Jones, Z. Lu and P.E.J. Flewitt, “Grain boundary impurity segregation and neutron irradiation effects in ferritic alloys”, *Philosophical Magazine*, vol. 85, no. 19, p. 2065–2099, 2005.
- [60] R. G. Faulkner, S. Song and P. E.J. Flewitt, “A model describing neutron irradiation-induced segregation to grain boundaries in dilute alloys”, *Metallurgical and Materials Transactions A*, vol. 27, no. 11, p. 3381–3390, 1996.
- [61] R. G. Faulkner, S. Song and P. E.J. Flewitt, “Radiation-induced inter-granular segregation in first wall fusion reactor materials”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 283–287, part 1, pp. 147-151, 2000.
- [62] R. G. Faulkner, S. Song, P. E.J. Flewitt, M. Victoria and P. Marmy, “Grain boundary segregation under neutron irradiation in dilute alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 255, no. 2–3, p. 189-209, 1998.
- [63] R. G. Faulkner, N.C. Waite, E.A. Little and T.S. Morgan, “Radiation-induced grain boundary segregation in dilute alloys”, *Materials Science and Engineering: A*, vol. 171, no 1–2, pp. 241-248, 1993.
- [64] Z. Lu, R. G. Faulkner, N. Sakaguchi, H. Kinoshita, H. Takahashi and P. E.J. Flewitt, “Effect of hafnium on radiation-induced inter-granular segregation in ferritic steel”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 351, no. 1–3, pp. 155-161, 2006.
- [65] A.D. Marwick, “Segregation in irradiated alloys: The inverse Kirkendall effect and the effect of constitution on void swelling”, *J. Phys. F: Metal Phys.*, vol. 8, no. 9, pp. 1849-1861, 1978.
- [66] P.G. Shewmon, “Surface Diffusion from a Point Source”, *Journal of Applied Physics*, vol. 34, no. 4, pp. 755-757, 1963.
- [67] H. Wiedersich, P. R. Okamoto and N. Q. Lam, “A theory of radiation-induced segregation in concentrated alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 83, no. 1, pp. 98-108, 1979.
- [68] N.Q. Lam, A. Kumar and H. Wiedersich, “Kinetics of radiation-induced segregation in ternary alloys”, in *Effects of Radiation on Materials: Eleventh Conference*, vol. 15, p. 985–1007, 1982.

- [69] J.M. Perks, A.D. Marwick and C.A. English, “A Computer Code to Calculate Radiation-Induced Segregation in Concentrated Ternary Alloys”, in *Materials Development Division*, Harwell Laboratory, AERE-R 12121, 1986.
- [70] J.M. Perks and S.M. Murphy, “Modelling the major element radiation-induced segregation in concentrated Fe-Cr-Ni alloys”, *Materials for Nuclear Reactor Core Applications*, Vol. 1, Bristol, UK, pp. 165–169, 1987.
- [71] G.S. Was and T. Allen, “Radiation-induced segregation in multicomponent alloys: Effect of particle type”, *Materials Characterization*, vol. 32, no. 4, pp. 239-255, 1994.
- [72] S. Watanabe, N. Sakaguchi, N. Hashimoto and H. Takahashi, “Quantitative studies of irradiation-induced segregation and grain boundary migration in Fe-Cr-Ni alloy”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 224, no. 2, pp. 158-168, 1995.
- [73] K. Fukuya and K. Fujii, “A Multicomponent Model of Radiation-induced Segregation for Commercial Stainless Steels”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 46, no. 7, pp. 744-752, 2009.
- [74] T. R. Allen and G. S. Was, “Modeling radiation-induced segregation in austenitic Fe–Cr–Ni alloys”, *Acta Mater.*, vol. 46, no. 10, pp. 3679-3691, 1998.
- [75] S. Watanabe and H. Takahashi, “Discriminant of RIS in multi-component alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 208, no. 1–2, pp. 191-194, 1994.
- [76] N. Sakaguchi, S. Watanabe and H. Takahashi, “Effect of additional minor element on radiation-induced grain boundary segregation in austenitic stainless steel under electron irradiation”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 153, no. 1–4, pp. 142-146, 1999.
- [77] M.J. Hackett, J.T. Busby and G.S. Was, “The Mechanism of Zr and Hf in Reducing Radiation-Induced Segregation in 316 Stainless Steel”, *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 39, p. 218–224, 2008.
- [78] M.J. Hackett, R. Najafabadi and G.S. Was, “Modeling solute-vacancy trapping at oversized solutes and its effect on radiation-induced segregation in Fe–Cr–Ni alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 389, no. 2, pp. 279-287, 2009.

- [79] N. Sakaguchi, H. Takahashi and H. Ichinose, “Influence of Silicon and Phosphorus on Radiation-Induced Segregation of Chromium and Nickel in Austenitic Model Alloys”, *Materials Trans.*, vol. 46, no. 3, pp. 440-444, 2005.
- [80] J. P. Wharry, Z. Jiao and G. S. Was, “Application of the inverse Kirkendall model of radiation-induced segregation to ferritic–martensitic alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 425, no. 1–3, pp. 117-124, 2012.
- [81] J. P. Wharry and G. S. Was, “The mechanism of radiation-induced segregation in ferritic–martensitic alloys”, *Acta Mater.*, vol. 65, pp. 42-55, 2014.
- [82] K. Vörtler, M. Mamivand, L. Barnard, I. Szlufarska, F. Garner and D. Morgan, «Simulated spatial and temporal dependence of chromium concentration in pure Fe and Fe single bond 14%Cr under high dpa ion irradiation,» *J. Nucl. Mater.*, vol. 479, pp. 23-35, 2016.
- [83] T.S. Duh, J.J. Kai, F.R. Chen and L.H. Wang, “Numerical simulation modeling on the effects of grain boundary misorientation on radiation-induced solute segregation in 304 austenitic stainless steels”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 294, no. 3, pp. 267-273, 2001.
- [84] K.G. Field, Y. Yang, T.R. Allen and J.T. Busby, “Defect sink characteristics of specific grain boundary types in 304 stainless steels under high dose neutron environments”, *Acta Mater.*, vol. 89, pp. 438-449, 2015.
- [85] G.-G. Lee, H.-H. Jin, Y.-B. Lee and J. Kwon, “Observation and rate theory modeling of grain boundary segregation in $\Sigma 3$ twin boundaries in ion-irradiated stainless steel 316”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 449, no. 1–3, pp. 234-241, 2014.
- [86] L.D. Xia, Y.Z. Ji, W.B. Liu, H. Chen, Z.G. Yang, C. Zhang and L.-Q. Chen, “Radiation induced grain boundary segregation in ferritic/martensitic steels”, *Nuclear Engineering and Technology*, vol. 52, no. 1, pp. 148-154, 2020.
- [87] J. Gao, F. Chen, X. Tang, G. Ge, J. Lin and S. Shen, “Effects of grain boundary structures on primary radiation damage and radiation-induced segregation in austenitic stainless steel”, *J. Appl. Phys.*, vol. 128, no. 10, p. 105304, 2020.
- [88] K.G. Field, L.M. Barnard, C.M. Parish, J.T. Busby, D. Morgan and T.R. Allen, “Dependence on grain boundary structure of radiation induced segregation in a 9

- wt.% Cr model ferritic/martensitic steel”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 435, no. 1-3, pp. 172-180, 2013.
- [89] A.A. Rezwan, D. Schwen and Y. Zhang, “Effect of concurrent grain growth on radiation-induced segregation in nanocrystalline Fe–Cr–Ni alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 563, p. 153614, 2022.
- [90] Y. Yang, K.G. Field, T.R. Allen and J.T. Busby, “Roles of vacancy/interstitial diffusion and segregation in the microchemistry at grain boundaries of irradiated Fe–Cr–Ni alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 473, pp. 35-53, 2016.
- [91] А.А. Туркин, «Теория фазовых превращений в неупорядоченных сплавах замещения под облучением,» в *Проблемы теоретической и математической физики. Научные труды, Вып. 3* (под общей редакцией А. Г. Загороднего, Н. Ф. Шульги, ред. вып. В. В. Яновский.), Харьков, ХНУ имени В. Н. Каразина, 2019, с. 58-199.
- [92] А.А. Туркин и А.С. Бакай, «Модель эффективной поглощающей среды для бинарного сплава замещения под облучением,» *Вопросы атомной науки и техники*, № 4(89), с. 47-51, 2006.
- [93] T. Schuler, M. Nastar and F. Soisson, “Towards the modeling of the interplay between radiation induced segregation and sink microstructure”, *J. Appl. Phys.*, vol. 132, p. 080903, 2022.
- [94] L. Thuinet, M. Nastar, E. Martinez, G.F. Bouobda Moladje, A. Legris and F. Soisson, “Multiscale modeling of Radiation Induced Segregation in iron based alloys”, *Computational Materials Science*, vol. 149, pp. 324-335, 2018.
- [95] J.B. Piochaud, M. Nastar, F. Soisson, L. Thuinet and A. Legris, “Atomic-based phase-field method for the modeling of radiation induced segregation in Fe–Cr”, *Computational Materials Science*, vol. 122, pp. 249-262, 2016.
- [96] S. Hu, Y. Li, D. Burkes and D.J. Senior, “Microstructure-Dependent Rate Theory Model of Radiation-Induced Segregation in Binary Alloys”, *Front. Mater.*, vol. 8, p. 682686, 2021.
- [97] D. Vizoso, C. Deo and R. Dingreville, “The effects of dose, dose rate, and irradiation type and their equivalence on radiation-induced segregation in binary

- alloy systems via phase-field simulations”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 569, p. 153924, 2022.
- [98] G.F. Bouobda Moladje, L. Thuinet, C.S. Becquart and A. Legris, “Radiation induced segregation near dislocations and symmetric tilt grain boundaries in Fe-Cr alloys: A phase-field study”, *Acta Mater.*, vol. 225, p. 117523, 2022.
- [99] F. Soisson, “Kinetic Monte Carlo simulations of radiation induced segregation and precipitation”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 349, no. 3, pp. 235-250, 2006.
- [100] O. Senninger, F. Soisson, E. Martínez, M. Nastar, C.-C. Fu and Y. Bréchet, “Modeling radiation induced segregation in iron–chromium alloys”, *Acta Mater.*, vol. 103, pp. 1-11, 2016.
- [101] B. Li, S. Hu, C. Li, Q. Li, J. Chen, G. Shu, C. Jr, Y. Weng, B. Xu and W. Liu, “Simulations of irradiated-enhanced segregation and phase separation in Fe–Cu–Mn alloys”, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.*, vol. 25, p. 065007, 2017.
- [102] C. Nellis and C. Hin, “Radiation induced segregation in quaternary Fe-Ti-Y-O alloy”, *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 701, pp. 82-93, 2017.
- [103] S. Dubey and A. El-Azab, “A defect-based model of radiation-induced segregation to free surfaces in binary alloys”, *Computational Materials Science*, vol. 106, pp. 111-122, 2015.
- [104] E. Toijer, L. Messina, C. Domain, J. Vidal, C.S. Becquart and P. Olsson, “Solute-point defect interactions, coupled diffusion, and radiation-induced segregation in fcc nickel”, *Phys. Rev. Materials*, vol. 5, p. 013602, 2021.
- [105] L. Barnard, J.D. Tucker, S. Choudhury, T.R. Allen and D. Morgan, “Modeling radiation induced segregation in Ni–Cr model alloys from first principles”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 425, no. 1–3, pp. 8-15, 2012.
- [106] T.R. Allen, J.T. Busby, G.S. Was and E.A. Kenik, “On the mechanism of radiation-induced segregation in austenitic Fe–Cr–Ni alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 255, no. 1, pp. 44-58, 1998.
- [107] F. Kano, K. Fukuya, S. Hamada and Y. Miwa, “Effect of carbon and nitrogen on grain boundary segregation in irradiated stainless steels”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 258–263, part 2, pp. 1713-1717, 1998.

- [108] I.M. Neklyudov and V.N. Voyevodin, “Features of structure-phase transformations and segregation processes under irradiation of austenitic and ferritic-martensitic steels”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 212–215, pp. 39-44, 1994.
- [109] T.R. Allen, J.I. Cole, J. Ohta, K. Dohi, H. Kusanagi and E.A. Kenik, “Radiation-Induced Segregation in 316 and 304 Stainless Steels Irradiated at Low Dose Rate”, *MRS Online Proceedings Library*, vol. 650, no. 24, 2000.
- [110] Z. Jiao and G.S. Was, “Novel features of radiation-induced segregation and radiation-induced precipitation in austenitic stainless steels”, *Acta Mater.*, vol. 59, no. 3, pp. 1220-1238, 2011.
- [111] C.M. Barr, G.A. Vetterick, K.A. Unocic, K. Hattar, X.-M. Bai and M.L. Taheri, “Anisotropic radiation-induced segregation in 316L austenitic stainless steel with grain boundary character”, *Acta Mater.*, vol. 67, pp. 145-155, 2014.
- [112] T.G. Lach, M.J. Olszta, S.D. Taylor, K.H. Yano, D.J. Edwards, T.S. Byun, P.H. Chou and D.K. Schreiber, “Correlative STEM-APT characterization of radiation-induced segregation and precipitation of in-service BWR 304 stainless steel”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 549, p. 152894, 2021.
- [113] W. Kesternich and A. Garcia-Borquez, “Inversion of the radiation-induced segregation behaviour at grain boundaries in austenitic steel”, *Scripta Materialia*, vol. 36, no. 10, pp. 1127-1132, 1997.
- [114] H.-H. Jin, S.S. Hwang, M.J. Choi, G.-G. Lee and J. Kwon, “Proton irradiation for radiation-induced changes in microstructures and mechanical properties of austenitic stainless steel”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 513, pp. 271-281, 2019.
- [115] C. Dai, P. Saidi, B. Langelier, Q. Wang, C.D. Judge, M.R. Daymond and M. Mattucci, “Radiation-induced segregation on dislocation loops in austenitic Fe-Cr-Ni alloys”, *Phys. Rev. Materials*, vol. 6, no. 5, p. 053606, 2022.
- [116] B. Kombaiah, P.D. Edmondson, Y. Wang, L.A. Boatner and Y. Zhang, “Mechanisms of radiation-induced segregation around He bubbles in a Fe-Cr-Ni crystal”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 514, pp. 139-147, 2019.

- [117] T.R. Allen, L. Tan, G.S. Was and E.A. Kenik, «Thermal and radiation-induced segregation in model Ni-base alloys,» *J. Nucl. Mater.*, vol. 361, № 2–3, pp. 174–183, 2007.
- [118] E.A. Little, T.S. Morgan and R.G. Faulkner, “Microchemistry of Neutron Irradiated 12%CrMoVNb Martensitic Steel”, *Materials Science Forum*, vol. 97–99, pp. 323–328, 1992.
- [119] P.V. Patki, T.J. Pownell, Y. Bazarbayev, D. Zhang, K.G. Field and J.P. Wharry, “Systematic study of radiation-induced segregation in neutron-irradiated FeCrAl alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 574, p. 154205, 2023.
- [120] K. Wang, C.M. Parish, K.G. Field, L. Tan and Y. Katoh, “Segregation behavior and phase instability of Eurofer97 after neutron irradiation to 72 dpa”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 547, p. 152834, 2021.
- [121] R.E. Clausing, L. Heatherly, R.G. Faulkner, A.F. Rowcliffe and K. Farrell, “Radiation-induced segregation in HT-9 martensitic steel”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 141–143, pp. 978–981, 1986.
- [122] H. Yan, X. Liu, L. He and J. Stubbins, “Phase stability and microstructural evolution in neutron-irradiated ferritic-martensitic steel HT9”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 557, p. 153252, 2021.
- [123] H. Yan, X. Liu, L. He and J. Stubbins, “Early-stage microstructural evolution and phase stability in neutron-irradiated ferritic-martensitic steel T91”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 557, p. 153207, 2021.
- [124] T. Kato, H. Takahashi, S. Ohnuki, K. Nakata and J. Kuniya, “The effect of solute content on grain boundary segregation in electron-irradiated Fe-Cr-Mn alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 179–181, p. 623–625, 1991.
- [125] G. Gupta, Z. Jiao, A.N. Ham, J.T. Busby and G.S. Was, “Microstructural evolution of proton irradiated T91”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 351, no. 1–3, pp. 162–173, 2006.
- [126] J.P. Wharry, Z. Jiao, V. Shankar, J.T. Busby and G.S. Was, “Radiation-induced segregation and phase stability in ferritic–martensitic alloy T 91”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 417, no. 1–3, pp. 140–144, 2011.

- [127] T.R. Allen, L. Tan, J.D. Tucker, J. Gan, G.S. Was, S. Shutthanandan and S. Thevuthasan, “Radiation resistance of advanced ferritic-martensitic steel HCM12A”, *Journal of ASTM International*, vol. 2, no. 8, pp. 1-13, 2005.
- [128] L. Xia, H. Chen, Z. Yang and C. Zhang, “Experimental and theoretical analysis of equilibrium segregation and radiation-induced segregation of Cr at grain boundaries in a reduced activation ferritic/martensitic (RAFM) steel”, *J. Iron Steel Res. Int.*, vol. 28, p. 445–452, 2021.
- [129] K. Mergia, E.O. Tsompopoulou, S. Dellis, C.H. Marrows, I. Michelakaki, C. Kinane, A. Caruana, S. Langridge, A.P. Douvalis and C. Cabet, “Phase stability of Fe-5at%Cr and Fe-10at%Cr films under Fe⁺ ion irradiation”, *J. Phys.: Condens. Matter*, vol. 32, no. 18, p. 185702, 2020.
- [130] H. Takahashi, S. Ohnuki and T. Takeyama, “Radiation-induced segregation at internal sinks in electron irradiated binary alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 104, pp. 1415-1419, 1981.
- [131] R. Schäublin, P. Spätig and M. Victoria, “Chemical segregation behavior of the low activation ferritic/martensitic steel F82H”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 258–263, pp. 1350-1355, 1998.
- [132] C. Zheng, M.A. Auger, M.P. Moody and D. Kaoumi, “Radiation induced segregation and precipitation behavior in self-ion irradiated Ferritic/Martensitic HT9 steel”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 491, pp. 162-176, 2017.
- [133] C. Zheng and D. Kaoumi, “Radiation-induced swelling and radiation-induced segregation & precipitation in dual beam irradiated Ferritic/Martensitic HT9 steel”, *Mater. Charact.*, vol. 134, pp. 152-162, 2017.
- [134] S. Ohnuki, H. Takahashi and T. Takeyama, “Void swelling and segregation of solute in ion-irradiated ferritic steels”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 104, pp. 1121-1125, 1981.
- [135] E.A. Marquis, S. Lozano-Perez and V. de Castro, “Effects of heavy-ion irradiation on the grain boundary chemistry of an oxide-dispersion strengthened Fe–12 wt.% Cr alloy”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 417, no. 1–3, pp. 257-261, 2011.

- [136] G.S. Was, J.P. Wharry, B. Frisbie, B.D. Wirth, D. Morgan, J.D. Tucker and T.R Allen, “Assessment of radiation-induced segregation mechanisms in austenitic and ferritic–martensitic alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 411, no. 1–3, pp. 41-50, 2011.
- [137] J.P. Wharry and G.S. Was, «A systematic study of radiation-induced segregation in ferritic–martensitic alloys», *J. Nucl. Mater.*, vol. 442, no. 1-3, pp. 7-16, 2013.
- [138] D. McLean, *Grain Boundaries in Metals*, Oxford: Clarendon Press, 1957, p. 346.
- [139] V.V. Slezov, *Kinetics of First Order Phase Transitions*, Weinheim, Germany: Wiley-VCH, 2009, p. 429.
- [140] W. Ostwald, “Über die vermeintliche Isomerie des roten und gelben Quecksilberoxyds und die Oberflächenspannung fester Körper”, *Zs. Phys. Chem.*, vol. 34, pp. 495-503, 1900.
- [141] R.D. Vengrenovitch, «On the ostwald ripening theory», *Acta Metall.*, vol. 30, no. 6, pp. 1079-1086, 1982.
- [142] К.В. Чуистов, *Упорядочение и распад в пересыщенных твердых растворах*, Киев: РИО ИМФ, 1999.
- [143] К.В. Чуистов, *Старение металлических сплавов*, 2-е изд. доп. и перераб., Киев: Академперіодика, 2003.
- [144] I.M. Lifshitz and V.V. Slyozov, “The kinetics of precipitation from supersaturated solid solutions”, *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 19, no. 1–2, pp. 35-50, 1961.
- [145] C. Wagner, “Theorie der alterung von niederschlägen durch umlösen (Ostwald-reifung)”, *Zs. Elektrochem.*, vol. 65, no. 7–8, pp. 581-591, 1961.
- [146] S.K. Bhattacharyya and K.C. Russell, “Activation energies for the coarsening of compound precipitates”, *Metall. Trans.*, vol. 3, no. 8, pp. 2195-2199, 1972.
- [147] А.В. Коропов и В.В. Сагалович, «Диффузионный рост островковых пленок в среде инертного газа», *Поверхность. Физика, химия, механика*, № 6, с. 50-55, 1987.
- [148] А.В. Коропов и В.В. Сагалович, «Диффузионный рост островковых пленок в среде инертного газа с источниками атомов», *Поверхность. Физика, химия, механика*, № 5, с. 55-63, 1989.

- [149] А.В. Коропов и В.В. Сагалович, «Рост островковых структур и критерии образования сплошных пленок,» *Поверхность. Физика, химия, механика*, № 2, с. 17-26, 1990.
- [150] R.D. Vangrenovych, B.V. Ivanskiy and A.V. Moskalyuk, “To the Lifshitsa-Slozova-Vagnera Theory”, *Physics and Chemistry of Solid State*, vol. 10, no. 1, pp. 19-30, 2009.
- [151] A.A. Chernov, “Crystallization Processes”, in *Modern Crystallography III. Crystal Growth*, edited by M. Cardona et al., Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo, Springer-Verlag, 1984, pp. 1-297.
- [152] A.M. Gusak and G.V. Lutsenko, “Ripening with noise”, *Phil. Mag.*, vol. 85, no. 12, pp. 1323-1331, 2005.
- [153] A.M. Gusak, G.V. Lutsenko and K.N. Tu, “Ostwald ripening with non-equilibrium vacancies”, *Acta Mater.*, vol. 54, no. 3, pp. 785-791, 2006.
- [154] B.V. Ivanskii, R.D. Vengrenovich, V.I. Kryvetskyi and Yu.M. Kushnir, “Ostwald Ripening of the InAsSbP/InAs(100) Quantum Dots in the Framework of the Modified LSW Theory”, *J. Nano- Electron. Phys.*, vol. 9, no. 2, p. 02025, 2017.
- [155] О.В. Коропов, «Дифузійний ріст і морфологічна стійкість двовимірного виділення нової фази, розташованого на міжзеренній границі,» *Ж. нано-електрон. фіз.*, т. 2, № 4, с. 31-46, 2010.
- [156] О.В. Коропов, «Контрольоване поверхневою кінетикою визрівання Оствальда плоских включень на межі зерен,» *Ж. Нано-електрон. фіз.*, т. 6, № 1, с. 01025, 2014.
- [157] V.V. Slezov, “Formation of the universal distribution function in the dimension space for new-phase particles in the diffusive decomposition of the supersaturated solid solution”, *J. Phys. Chem. Solids.*, vol. 39, no. 4, pp. 367-374, 1978.
- [158] J.A. Marqusee and J. Ross, “Theory of Ostwald ripening: Competitive growth and its dependence on volume fraction”, *J. Chem. Phys.*, vol. 80, no. 1, pp. 536-543, 1984.

- [159] B. Giron, B. Meerson and P.V. Sasorov, “Weak selection and stability of localized distributions in Ostwald ripening”, *Phys Rev E.*, vol. 58, no. 4, pp. 4213-4216, 1998.
- [160] V.V. Slezov and J. Schmelzer, “Kinetics of formation of a phase with an arbitrary stoichiometric composition in a multicomponent solid solution”, *Phys Rev E.*, vol. 65, p. 031506, 2002.
- [161] V.V. Slezov, “Gas bubbles in viscous liquids and melts”, *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 255, no. 2, pp. 274-292, 2002.
- [162] A. Onuki, *Phase Transition Dynamics*, Cambridge: Cambridge University Press, 2004, p. 724.
- [163] А.С. Ширинян и Н.П. Кудин, «Эффект самонасыщения в кинетике распада пересыщенного бинарного сплава», *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, т. 29, № 11, с. 1537-1553, 2007.
- [164] A.S. Shirinyan and M.P. Kudin, “The effect of self-saturation in an alloy as a criterion of the beginning of the coalescence stage”, *Ukr. J. Phys.*, vol. 53, no. 1, pp. 50-60, 2008.
- [165] Р.Д. Венгреневич, Б.В. Іванський та М.О. Стасик, «До розподілу за розмірами нанокластерів у гетеросистемах», *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, т. 32, № 8, с. 1085-1104, 2010.
- [166] Y. Reyes, S. Hamzehlou and Jose Ramon Leiza, “Ostwald ripening in nano/miniemulsions in the presence of two costabilizers as revealed by molecular dynamics simulations”, *Journal of Molecular Liquids*, vol. 335, p. 116152, 2021.
- [167] T. van Westen and R.D. Groot, “Effect of Temperature Cycling on Ostwald Ripening”, *Cryst. Growth Des.*, vol. 18, no. 9, p. 4952–4962, 2018.
- [168] M.J. Blunt, “Ostwald ripening and gravitational equilibrium: Implications for long-term subsurface gas storage”, *Phys. Rev. E*, vol. 106, p. 045103, 2022.
- [169] P.C. Bressloff, “Active suppression of Ostwald ripening: Beyond mean-field theory”, *Phys. Rev. E*, vol. 101, p. 042804, 2020.

- [170] Y. Mehmani and K. Xu, "Pore-network modeling of Ostwald ripening in porous media: How do trapped bubbles equilibrate?", *Journal of Computational Physics*, vol. 457, p. 111041, 2022.
- [171] A.J. Ardell, "On the coarsening of grain boundary precipitates", *Acta Metall.*, vol. 20, no. 4, pp. 601-609, 1972.
- [172] R.D. Vengrenovich, A.V. Moskalyuk and S.V. Yarema, "Ostwald ripening under conditions of mixed-type diffusion", *Phys. Solid State.*, vol. 49, no. 1, pp. 11-17, 2007.
- [173] R.D. Vengrenovich, B.V. Ivanskii, M.O. Stasyk, S.V. Yarema, A.V. Moskaliuk, I.I. Panko, V.I. Kryvetskyi and I.V. Fesiv, "Ostwald Ripening of Nanodispersed Phases in Metal Alloys (review)", *Physics and Chemistry of Solid State*, vol. 20, no. 2, pp. 101-119, 2019.
- [174] H.O.K. Kirchner, "Coarsening of grain-boundary precipitates", *Metall. Trans.*, vol. 2, no. 10, pp. 2861-2864, 1971.
- [175] J.W. Martin, R.D. Doherty and B. Cantor, *Stability of Microstructure in Metallic Systems (Second Edition)*, Cambridge: Cambridge University Press, 1997.
- [176] О. Коропов, «Математична модель пізньої стадії сегрегації домішки на міжзеренній межі у випадку утворення плоских виділень нової фази», в *Сімнадцятій міжнародній науковій конференції ім. академіка Михайла Кравчука*, 9-20 травня 2016, Київ. Київ: НТУУ «КПІ»: 2016, т. 1, с. 161.
- [177] I. Kaur, Y. Mishin and W. Gust, *Fundamentals of Grain and Interphase Boundary Diffusion*, 3rd Revised and Enlarged Edition, New York: John Wiley & Sons Ltd., 1995.
- [178] A.J. Ardell and P. Bellon, "Radiation-induced solute segregation in metallic alloys", *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, vol. 20, no. 3, pp. 115-139, 2016.
- [179] О. В. Коропов, «Диференціальні рівняння радіаційно-індукованої сегрегації в п'ятикомпонентних концентрованих металевих стопах», в *Вісімнадцята міжнародна наукова конференція ім. академіка Михайла Кравчука*, 7-10 жовтня 2017, Київ. Київ: НТУУ «КПІ»: 2017, т. 1, с.85-90.

- [180] В.А. Ванін, Математичні моделі та чисельні методи в задачах механіки суцільного середовища: Навчальний посібник, Харків : НТУ «ХП», 2018.
- [181] P. Olsson, C. Domain and J. Wallenius, “Ab initio study of Cr interactions with point defects in bcc Fe”, *Phys. Rev. B*, vol. 75, p. 014110, 2007.
- [182] H.-E. Schaefer, K. Maier, M. Weller, D. Herlach, A. Seeger and J. Diehl, “Vacancy formation in iron investigated by positron annihilation in thermal equilibrium”, *Scripta Metallurgica*, vol. 11, no. 9, pp. 803-809, 1977.
- [183] A.P. Selby, "Modeling Radiation-Induced Segregation in Ferritic-Martensitic Steels", Master's Thesis, University of Tennessee, 2015.
- [184] S. Choudhury, L. Barnard, J. D. Tucker, T. R. Allen, B. D. Wirth, M. Asta and D. Morgan, “Ab-initio based modeling of diffusion in dilute bcc Fe–Ni and Fe–Cr alloys and implications for radiation induced segregation”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 411, no. 1–3, pp. 1-14, 2011.
- [185] D. Buckthorpe, «Introduction to Generation IV nuclear reactors,» в Woodhead Publishing Series in Energy, Vol. 106: Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors (Ed. P. Yvon), Amsterdam, Elsevier, 2017, pp. 1-22.
- [186] S.J. Zinkle and J.T. Busby, “Structural materials for fission & fusion energy”, *Mater. Today*, vol. 12, no. 11, pp. 12-19, 2009.
- [187] D.S. Gelles, “Microstructural examination of neutron-irradiated simple ferritic alloys”, *J. Nucl. Mater.*, vol. 108-109, pp. 515-526, 1982.
- [188] W.-Y. Chen, Y. Miao, J. Gan, M.A. Okuniewski, S.A. Maloy and J.F. Stubbins, “Neutron irradiation effects in Fe and Fe-Cr at 300 °C”, *Acta Mater.*, vol. 111, pp. 407-416, 2016.
- [189] R. Bullough and R.C. Newman, “The kinetics of migration of point defects to dislocations”, *Rep. Prog. Phys.*, vol. 33, pp. 101-148, 1970.
- [190] D. Terentyev, P. Olsson, T.P.C. Klaver and L. Malerba, “On the migration and trapping of single self-interstitial atoms in dilute and concentrated Fe-Cr alloys: Atomistic study and comparison with resistivity recovery experiments”, *Computational Materials Science*, vol. 43, pp. 1183-1192, 2008.

- [191] L. Kaufman and H. Nesor, "Coupled phase diagrams and thermochemical data for transition metal binary systems-IV", *CALPHAD*, vol. 2, no. 4, pp. 295-318, 1978.
- [192] А.В. Коропов, «Рост и устойчивость островка новой фазы при осаждении вещества на поверхности кристалла,» *Вісник СумДУ. Серія "Фізика, математика, механіка"*, № 9 (93), с. 49-62, 2006.
- [193] A.V. Koropov, "Morphological stability of small islands upon deposition of a substance on the crystal surface", *Phys. Solid State*, vol. 50, no. 11, pp. 2184-2189, 2008.
- [194] A.V. Koropov, "Diffusion-induced growth and morphological stability of a two-dimensional cavity in an adatomic monolayer on the crystal surface", *J. Surf. Investig. X-Ray, Synchrotron and Neutron Techniques*, vol. 5, no. 4, pp. 780-786, 2011.
- [195] О.В. Коропов, «Диффузионный рост и морфологическая устойчивость двумерного выделения фазы, расположенного на межзеренной границе,» *Ж. нано- электрон. фіз.*, т. 2, № 4, с. 31-46, 2010.
- [196] A.V. Koropov, "Morphological stability of two-dimensional new phase precipitate located at the grain boundary", *Tech. Phys.*, vol. 56, no. 12, pp. 1781-1786, 2011.
- [197] Ed. by M. Abramowitz and S. I. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs and Mathematical Tables*, New York: Dover, 1971, p. 1046.
- [198] M.H. Mathon, Y. de Carlan, G. Geoffroy, X. Averty, A. Alamo and C.H. de Novion, "A SANS investigation of the irradiation-enhanced α - α' phases separation in 7-12 Cr martensitic steels", *J. Nucl. Mater.*, vol. 312, no. 2-3, pp. 236-248, 2003.
- [199] A. Jacob, E. Povoden-Karadeniz and E. Kozeschnik, "Revised thermodynamic description of the Fe-Cr system based on an improved sublattice model of the σ phase", *Calphad*, vol. 60, pp. 16-28, 2018.

ДОДАТОК

Список публікацій здобувача за темою дисертації

1. Наукові праці, в яких опубліковані основні наукові результати

1. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в бінарних сплавах / **Р.В. Скороход**, О.М. Бугай, В.М. Білик, В.Л. Денисенко, О.В. Коропов // Східно-європейський фізичний журнал. – 2018. – Том 5, № 1 — С. 61–69.

2. Коропов О.В. Визрівання Оствальда сферичних виділень на міжзеренній межі, яке лімітується поверхневою кінетикою / О.В. Коропов, **Р.В. Скороход** // Східно-європейський фізичний журнал. – 2019. – № 1 — С. 75–85.

3. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в стопі Fe–9 ат.% Cr з урахуванням дислокаційної підсистеми стопу / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Металофіз. новітні технол. – 2022. – Том 44, № 6.– С. 691–711.

2. Наукові праці апробаційного характеру

1. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в тонких плівках Fe-Cr. / **Р.В. Скороход** // Збірник тез IV Всеукраїнської науково-практичної конференції молодих учених «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 24-25 квітня 2018 р.). – Суми, 2018. – С. 53-54.

2. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в тонких плівках Fe-Cr-Ni. / **Р.В. Скороход**, В.Л. Денисенко, О.В. Коропов // Збірник тез XIV Міжнародної науково-технічної конференції молодих вчених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики» (Харків, 14-16 листопада 2018 р.). – Харків, 2018. – С. 46-47.

3. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в сплавах Fe-Cr-Ni під дією іонного опромінення. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов, В.Л. Денисенко, В.Ю. Сторіжко // Збірник тез XVII Конференції з фізики високих енергій та ядерної фізики (Харків, 26-29 березня 2019 р.). – Харків, 2019. – С.78.

4. **Скороход Р.В.** Моделювання радіаційно-індукованої сегрегації в потрійних концентрованих металевих сплавах. / **Р.В. Скороход** // Збірник тез V Всеукраїнської

науково-практичної конференції молодих учених «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 22-24 квітня 2019 р.). – Суми, 2019. – С. 70-71.

5. **Скориход Р.В.** Математична модель радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих металевих сплавах Fe-Cr-Ni. / **Р.В. Скориход**, О.В. Коропов // Збірник тез VIII Міжнародної науково-практичної конференції «Математика в сучасному технічному університеті» (Київ, 27–28 грудня 2019 р.). – Вінниця: Видавець ФОП Кушнір Ю. В., 2020. – С. 153-160.

6. **Скориход Р.В.** Розрахунки визначальних кількісних характеристик радіаційно-індукованої сегрегації в концентрованих металевих сплавах Fe-Cr-Ni. / **Р.В. Скориход**, О.В. Коропов // Збірник тез VI Всеукраїнської науково-практичної конференції молодих учених «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 13-15 квітня 2020 р.). – Суми, 2020. – С. 45-48.

7. Коропов О.В. Диференціальні рівняння радіаційно-індукованої сегрегації в N-компонентних концентрованих металевих стопах. / О.В. Коропов, **Р.В. Скориход** // Збірник тез IX Міжнародної науково-практичної конференції «Математика в сучасному технічному університеті» (Київ, 28–29 грудня 2020 р.). – Вінниця: Видавець ФОП Кушнір Ю. В., 2021. – С. 80-89.

8. **Скориход Р.В.** Моделювання впливу дислокаційної підсистеми на ефекти радіаційно-індукованої сегрегації в трикомпонентному сплаві Fe-20%Cr-8%Ni. / **Р.В. Скориход**, О.В. Коропов // Збірник тез VII Всеукраїнської науково-практичної конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 12-14 квітня 2021 р.). – Суми, 2021. – С. 76-77.

9. **Skorokhod R.** The governing quantitative characteristics of radiation-induced segregation in Fe-Cr-Ni alloy. / **R. Skorokhod**, O. Koropov // Proceedings of XII Conference of Young Scientists “Problems of Theoretical Physics” (Kyiv, December 21 – 22, 2021). – Kyiv, 2021. – P. 9-10.

10. **Скороход Р.В.** Вплив енергій міграцій вакансій компонентів сплаву на ефекти радіаційно-індукованої сегрегації в аустенітних сплавах Fe-Cr-Ni. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Збірник тез VIII Всеукраїнської науково-практичної конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 24-26 жовтня 2022 р.). – Суми, 2022. – С. 71-73.

11. **Скороход Р.В.** Дослідження впливу швидкості продукування точкових дефектів та температури на радіаційно-індуковану сегрегацію в сплавах Fe-Cr-Ni методом комп'ютерного моделювання. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Збірник тез IX Всеукраїнської науково-практичної конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 10-12 квітня 2023 р.). – Суми, 2023. – С. 78-80.

12. **Скороход Р.В.** Розрахунки визначальних кількісних характеристик радіаційно-індукованої сегрегації в сплавах Fe-20Cr-8Ni за різних умов опромінення. / **Р.В. Скороход**, О.В. Коропов // Збірник тез XXIII Всеукраїнської школи-семінару молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини (Львів, 26-27 жовтня 2023 р.). – Львів, 2023. – С. 28.

13. **Skorokhod R.** The Mutual Influence of Production Rate of Point Defects and Temperature on the Effects of Radiation-Induced Segregation in the Fe-20Cr-8Ni Alloy. / **R. Skorokhod**, O. Koropov // Proceedings of XIV Conference of Young Scientists "Problems of Theoretical Physics" (Kyiv, January 16 – 17, 2024). – Kyiv, 2024. – P. 12.

14. Коропов О.В. Пізня стадія сегрегації домішки на міжзеренній межі у випадку утворення сферичних виділень нової фази, ріст яких лімітується поверхневою кінетикою. / О.В. Коропов, **Р.В. Скороход** // Збірник тез X Всеукраїнської науково-практичної конференції з міжнародною участю «Сучасні проблеми експериментальної, теоретичної фізики та методики навчання фізики» (Суми, 15-17 квітня 2024 р.). – Суми, 2024. – С. 85-86.