

УДК 539.171.4

О СВЯЗИ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИХ, ДИНАМИЧЕСКИХ СВОЙСТВ АКТИНИДОВ И КИНЕТИКЕ РАДИАЦИОННЫХ ДЕФЕКТОВ

© 2022 г. Е. В. Кошелева^а *, Н. И. Сельченкова^а, А. Я. Учаев^а

^аРоссийский федеральный ядерный центр – ВНИИЭФ, Саров, Нижегородская обл., 607188 Россия

*E-mail: otd@expd.vniief.ru

Поступила в редакцию 25.06.2021 г.

После доработки 25.06.2021 г.

Принята к публикации 25.06.2021 г.

Результаты фундаментальных исследований процесса динамического разрушения и диспергирования металлов в режиме импульсного объемного разогрева при воздействии проникающих излучений позволили установить универсальные синергетические признаки поведения металлов в явлении динамического разрушения, что дало возможность прогнозировать поведение неисследованных металлов, включая металлические актиниды в экстремальных условиях. Установление общих релаксационных признаков для неравновесных систем различной природы позволяет прогнозировать поведение неисследованных систем. Систематические исследования свойств металлического плутония, проведенные в последнее время (как отечественные, так и зарубежные), позволили выявить наличие процессов старения металлического плутония, приводящих к некоторому изменению его физико-механических свойств. Интенсивность этих изменений достаточно мала, и при условии стабильности процесса без изменения гомогенности, в обозримом будущем, не приведет к существенному изменению свойств. Оценки показывают, что α и осколочная активность слабо влияют на термодинамические потенциалы (энтальпия, внутренняя энергия) актинидов для нормальной и повышенной температур $T \sim 600$ К. Процессы старения металлических актинидов, связанные с α и осколочной активностью слабо влияют на динамические свойства.

Ключевые слова: процесс динамического разрушения, процесс диспергирования металлов, режим импульсного объемного разогрева, воздействие проникающих излучений, универсальные синергетические признаки поведения металлов, актиниды, кинетика радиационных дефектов

DOI: 10.56304/S2079562922010183

Введение. Результаты фундаментальных исследований процессов динамического разрушения и диспергирования металлов в режиме импульсного объемного разогрева при воздействии проникающих излучений позволили установить универсальные синергетические признаки поведения металлов в явлении динамического разрушения, что дало возможность прогнозировать поведение неисследованных металлов, включая актиниды в экстремальных условиях [1, 2].

При исследовании поведения конденсированных сред в экстремальных условиях в настоящее время применяются высокоэнергетические импульсные установки (импульсные ядерные реакторы, импульсные ускорители электронов, фемтосекундные лазеры). Мощностные возможности таких установок напрямую связаны со стойкостью элементов и узлов различной геометрии. Стойкость, например, к термомеханическому воздействию определена динамическими деструктивными процессами, возникающих при многоволновом движении сред, что может привести к локальной

кумуляции энергии. Кумуляция энергии может существенно уменьшить время сохранения функциональных свойств.

Следовательно, важно знать количественные характеристики динамических деструктивных процессов, протекающих не только в конструкционных металлах и сплавах, но и в металлических актинидах при высокоинтенсивном внешнем воздействии.

Особый интерес и большое прикладное значение имеет изучение явления самоорганизации конденсированных сред в наносекундных диапазонах неравновесных состояний при высокоинтенсивном внешнем воздействии. Установление общих релаксационных признаков для неравновесных систем различной природы позволяет прогнозировать поведение неисследованных систем. Одно общее свойство неравновесных систем – реализация будущего через последовательность бифуркаций делает эволюцию систем необратимой. Явление самоорганизации в неравновесных системах свидетельствует о том, что система достигла критического состояния, когда распределение

Таблица 1. Энергетические параметры металлов и параметры нагружения, типы симметрий решеток

Элемент	Атомный номер	$\frac{H_э + L_{пл}}{H_{субл}}$, [5]	$E_{кр}$, Дж/г при $t \sim 10^{-8}$ с [5]	$\frac{E_{кр}}{H_э + L_{пл}}$ при $t \sim 10^{-8}$ с [5]	$\frac{E_{кр}}{H_{субл}}$ при $t \sim 10^{-8}$ с	Тип решетки [6]
Al	13	0.151	—	—	—	ГЦК
Ti	22	0.16	950	0.537	0.086	ГЦК
Fe	26	0.18	754	0.585	0.105	ОЦК
Co	27	0.16	—	—	—	ГЦК
Ni	28	0.15	618	0.533	0.080	ГЦК
Cu	29	0.144	394	0.575	0.083	ГЦК
Zn	30	0.157	—	—	—	ГЦК
Mo	42	0.18	819	0.537	0.097	ОЦК
Cd	48	0.18	80	0.494	0.089	Гексагональная
Sn	50	0.12	100	0.525	0.063	Алмазная
Ta	73	0.186	379	0.495	0.092	ОЦК
W	74	0.165	522	0.570	0.094	ОЦК
Pb	82	0.116	51	0.510	0.059	ГЦК

диссипативных структур по размерам, энергиям описывается степенными соотношениями, т.е. в распределении диссипативных структур возникает масштабная инвариантность.

1. Постановка задачи и обсуждение результатов.

Процессы динамического разрушения и диспергирования конструкционных материалов являются многомасштабными иерархическими процессами, когда макро поведение неравновесной системы определяют неравновесные процессы на микро- и мезо- уровнях. Следовательно для адекватного описания динамических деструктивных процессов необходимо получить количественные характеристики диссипативных процессов и диссипативных структур на различных масштабно-временных уровнях. Результаты исследований динамических процессов с использованием, например, интегральных методик (лазерная интерферометрия) не обладают полнотой [1, 2].

И.Р. Пригожин в работе [3] пишет: “Как мы уже неоднократно подчеркивали, в природе существуют системы с обратимым поведением, допускающие полное описание в рамках законов классической или квантовой механики. Но большинство интересующих нас систем ... ориентировано во времени на макроскопическом уровне. Их ... однонаправленность во времени отражает нарушение временной симметрии на микромасштабном уровне. Необратимость существует либо на всех уровнях, либо не существует ни на одном уровне. Она не может возникнуть, словно чудо, при переходе с одного уровня на другой”.

В работе К. Вильсона [4] показана универсальность поведения систем, претерпевающих фазовые переходы: “Основные свойства системы вблизи то-

чек фазового перехода не зависят от свойств системы на микроуровне, неважно рассматриваем ли мы переход жидкость—пар, структурную перестройку в деформируемом кристалле или переход в магнитную фазу”; “когда степени свободы ведут себя взаимосвязано, поведение системы определяется ... фактом кооперативного поведения и природой самих степеней свободы. В теории критических явлений возникло понятие универсальности, что все гамильтонианы взаимодействия приводят к одинаковому критическому поведению”.

Кратко остановимся на результатах исследования, которые позволили установить универсальные признаки динамических деструктивных процессов, обусловленные эффектами самоорганизации элементов диссипативных структур на различных масштабно-временных уровнях [1, 2, 5–7].

В табл. 1 приведены табличные значения $\frac{H_э + L_{пл}}{H_{субл}}$, $\frac{E_{кр}}{H_{субл}}$, $\frac{E_{кр}}{H_э + L_{пл}}$, критическая плотность поглощенной энергии $E_{кр}$, приводящая к разрушению ряда металлов, для значения долговечности $t \sim 10^{-8}$ с [8].

Отношение $\frac{E_{кр}}{H_{субл}}$ при $t \sim 10^{-8}$ с и отношение

$\frac{H_э + L_{пл}}{H_{субл}}$ для приведенных в табл. 1 металлов имеют близкие значения, что свидетельствует о подобии поведения металлов в явлениях динамического разрушения и диспергирования.

Определены кинетические характеристики процесса динамического разрушения — скорость

накопления центров разрушения $N(t)$ и скорость центрообразования $J(t)$, которые имеют вид

$$N(t) = A_1 \exp\left(\frac{t/t_2}{A_2}\right)^{0.2} (1 - t/t_p)^{-1.2},$$

$$J(t) = A_3 \exp\left(\frac{t/t_1}{A_2}\right)^{0.4} (1 - t/t_p)^{-2.2},$$

где A_1, A_2, A_3 – коэффициенты, t_p – время разрушения (долговечность), t – текущее время [1].

На рис. 1 приведен вид скорости центрообразования в приведенных координатах ряда металлов ($J_{\max}(t)$ – максимальная скорость центрообразования, t_p – время действия отрицательного давления). Вид функции скорости центрообразования в приведенных координатах $J(t)/J_{\max}$, t/t_p показывает, что максимальная скорость центрообразования реализуется на масштабе времени $t \sim (0.9-1) t_p$, а интервал времени $t \sim (0-0.9) t_p$ является инкубационным временем, на масштабе которого неравновесная система сохраняет свои функциональные свойства. Процессы, протекающие в неравновесных системах, когда определяющая процесс функция ведет подобно функции $J_{\text{об}} = J(t)/J_{\max}$ называются процессами (режимами) с обострением.

В работах [1, 2, 6, 7, 9] показано, что каскад центров разрушения является фрактальным кластером, а на пороге макроразрушения, когда возникает связность в системе центров разрушения – перколяционным кластером.

На рис. 2 приведен внешний вид шлифа медного образца после воздействия релятивистских электронных пучков. С использованием интерактивной системы анализа изображений получена фрактальная размерность центров разрушения (рис. 2а).

В работе [1] показано, что шероховатость поверхности разрушения (макроуровень) и шероховатость внутренней поверхности центра разрушения являются фрактальными кластерами (наноуровень).

На рис. 3а приведено СТМ-изображение Cu образца, подвергнутого импульсному воздействию релятивистских электронных пучков (наноуровень). Результаты обработки шероховатости внутренней поверхности центра разрушения с помощью интерактивной системы анализа изображений приведены на рис. 3б; фрактальная размерность внутренней поверхности центра разрушения $d_f \sim 1.67$.

На рис. 4а приведен вид оцифрованной поверхности разрушенного образца из Cu после воздействия релятивистских электронных пучков ускорителя РИУС-5.

Приведенные примеры (см. рис. 2, 5) относятся к деструктивным процессам, возникающим при одномерном волновом движении среды [1, 2, 5]. При интерференции волн сжатия и разрежения, вслед-

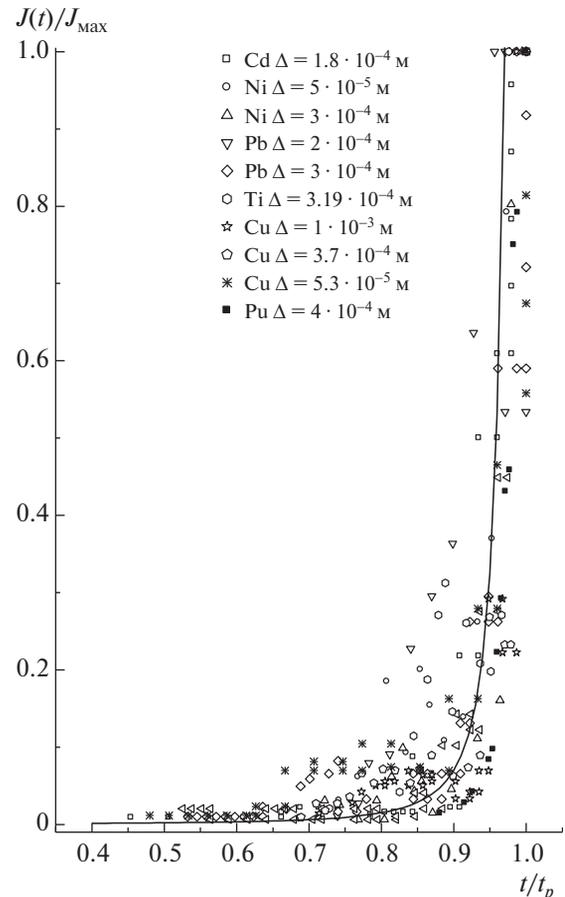


Рис. 1. Скорость центрообразования в приведенных координатах t/t_p , $J(t)/J_{\max}(t)$ [1]; Δ – толщина образца.

ствие отражения от границ исследуемых образцов, как правило, плоских, в среде возникает отрицательное давление, которое приводит к деструктивным процессам.

Для получения количественных характеристик диссипативных структур, возникающих в неравновесных средах при многоволновом движении среды был проведен цикл исследований по импульсному нагружению образцов различных металлов с нанесенными возмущениями в виде пирамидок [1, 6, 7, 9].

В зависимости от угла раствора нанесенных возмущений в виде пирамидок происходит смена механизма релаксационных процессов в нагруженных образцах, когда происходит кинетический фазовый переход от кинетики диспергирования конструкционных материалов к кинетике откольного разрушения (переход от фрагментации к поврежденности) [9].

Многоволновое движение среды приводит к движению элементов среды в пирамидке по схеме “трансляция (сдвиг) + поворот”. При указанной

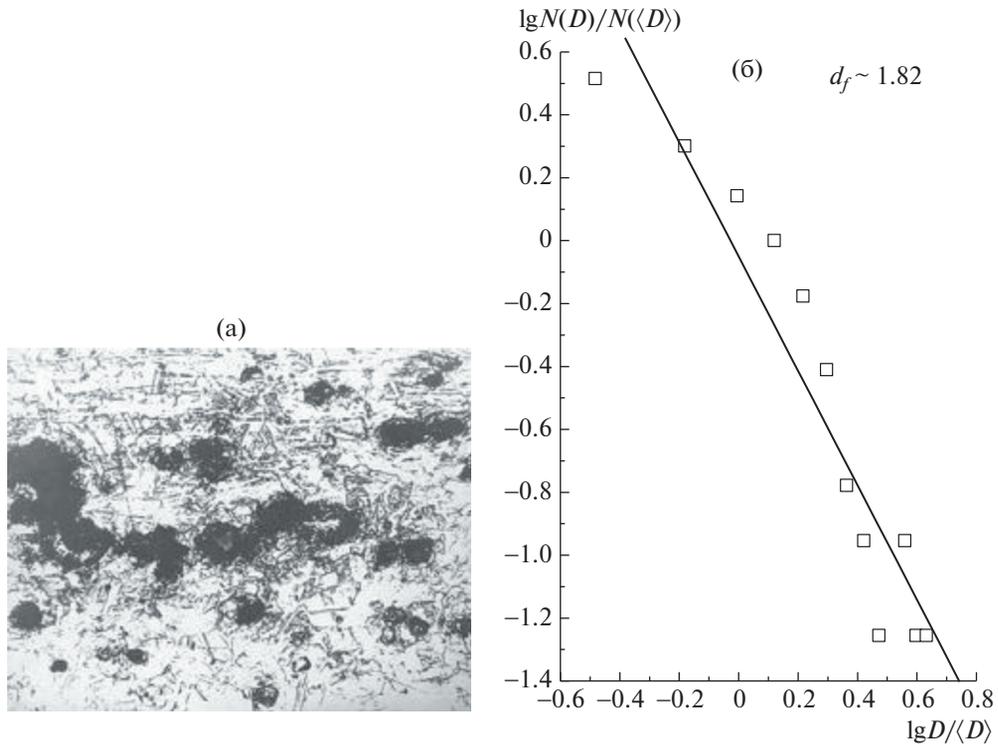


Рис. 2. Шлиф Cu образца после воздействия РЭП и результаты математической обработки: (а) шлиф медного образца ($\Delta \sim 0.2$ мм; $\times 500$), перпендикулярный поверхности разрушения, после воздействия релятивистских электронных пучков; (б) фрактальная размерность центров разрушения медного образца.

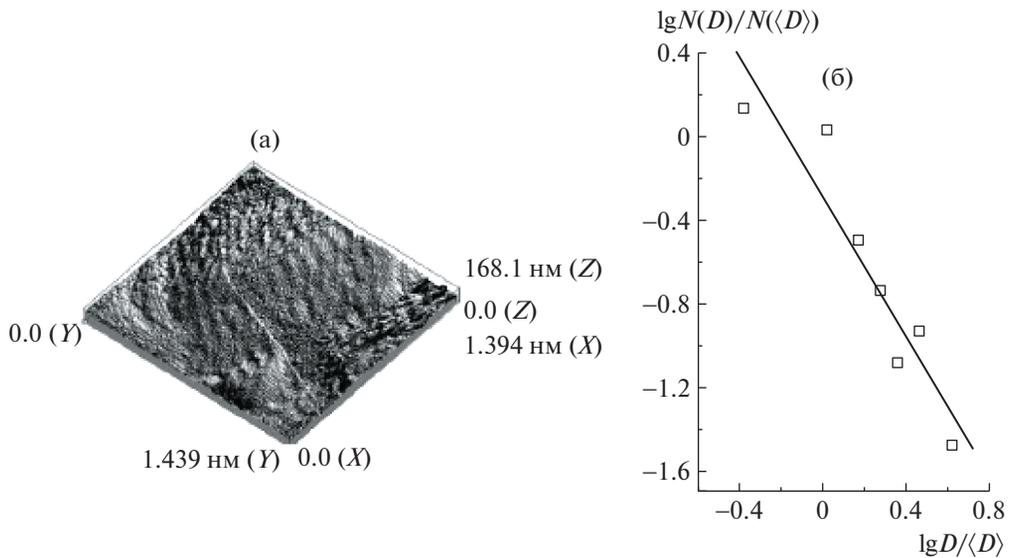


Рис. 3. СТМ-изображение Cu образца ($\Delta \sim 1$ мм), подвергнутого импульсному воздействию релятивистских электронных пучков (а); фрактальная размерность шероховатости внутренней поверхности центра разрушения Cu образца (б) [1].

постановке исследований процесса диспергирования металлических образцов, после возникновения откольного разрушения происходит кумуляция энергии ударной волны при ее отражении от боковых граней.

На рис. 5а приведен вид разрушенной медной пирамидки после воздействия РЭП, на рис. 5б — продукты диспергирования на преграде и вид частиц диспергированного металла на преграде после воздействия РЭП [8].

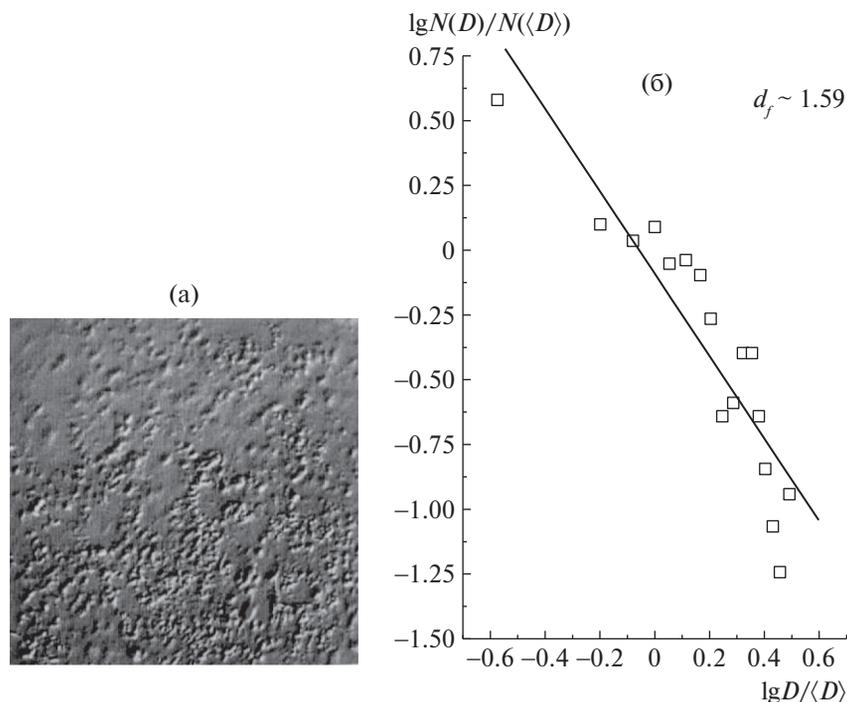


Рис. 4. Вид поверхности разрушения образца Cu после воздействия релятивистских электронных пучков и результаты математической обработки: (а) оцифрованный вид поверхности разрушения образца Cu ($\Delta \sim 0.2$ мм); (б) фрактальная размерность шероховатости.

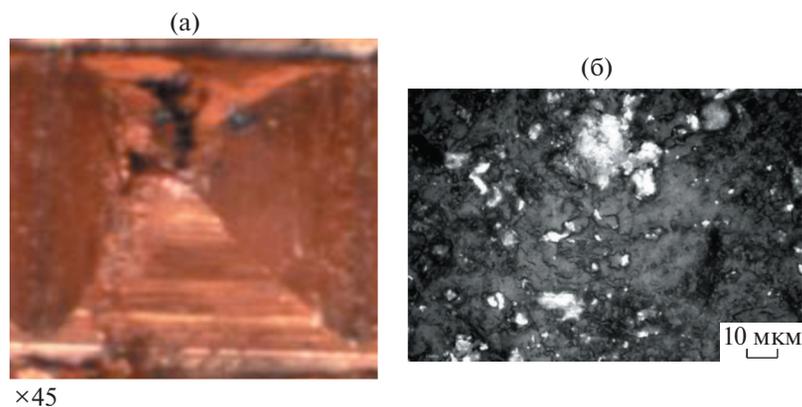


Рис. 5. Вид разрушенной медной пирамидки (а); вид частиц диспергированного металла на преграде (б) [8].

На рис. 6а приведен вид шлифа грани медной пирамидки после нагружения и количественные характеристики гидродинамических мод в нижней и в верхней частях пирамидки: фрактальная размерность полос скольжения d_f (рис. 6б).

С использованием разработанного математического пакета программ интерактивной системы анализа изображений определены количественные характеристики (спектр распределения по размерам) ряда диссипативных структур (плотность гидродинамических мод, спектр продуктов диспергирования, спектр шероховатости центров раз-

рушения). Математическая обработка спектров по размерам позволила определить фрактальную размерность и показатель Херста [1].

Фрактальные размерности диссипативных структур, возникающих в процессе динамического разрушения конструкционных материалов, на четырех масштабных уровнях при воздействии релятивистских электронных пучков приведены в табл. 2.

Результаты проведенных исследований показали, что металлы в явлении динамического разрушения и диспергирования проявляют универсаль-

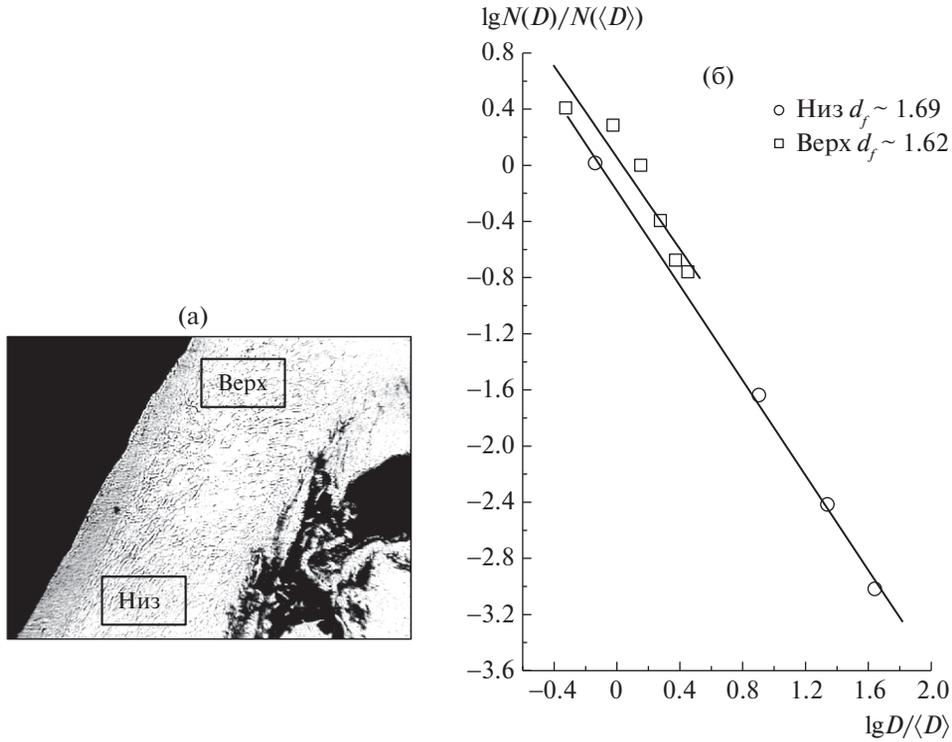


Рис. 6. Внешний вид грани медной пирамидки ($\times 200$) (а); фрактальная размерность полос скольжения (б).

ные признаки, обусловленные эффектами самоорганизации каскада диссипативных структур, возникающих на различных масштабных уровнях.

Переход неравновесной системы разрушаемого, диспергируемого тела с одного масштабно-временного уровня на следующий подчиняется концентрационному критерию, когда концентрация элементов диссипативных структур на любом масштабно-временном уровне достигает критического значения. Концентрационный критерий выражает масштабно-инвариантную природу диссипативных структур. Необходимо отметить, что каскады диссипативных структур на различных масштабно-временных уровнях являются фрактальными кластерами.

Из вышеизложенного следует, что масштабно-инвариантный концентрационный критерий укрупнения элементов диссипативных структур действует в масштабно-инвариантном ансамбле (кластере) элементов диссипативных структур. В рамках масштабно-инвариантного распределения элементов диссипативных структур в неравновесной системе и масштабно-инвариантного концентрационного критерия элементов диссипативных структур происходит катастрофическое развитие необратимых деструктивных процессов. Именно масштабная инвариантность каскада диссипативных структур на различных масштабно-временных уровнях является признаком критического состояния неравновесной системы. Подобно переходу жидкость–газ, ферромагнит-

Таблица 2. Фрактальные размерности диссипативных структур на четырех различных масштабных уровнях при воздействии релятивистских электронных пучков

Вид воздействия	Уровень исследований			
	Наночуровень (шероховатость внутренних поверхностей центров разрушений)	микроуровень		Макроуровень (шероховатость поверхности разрушения)
		мезоуровень I (каскад полос скольжения кристаллической решетки)	мезоуровень II (каскад центров разрушения)	
Релятивистские электронные пучки	1.565 ± 0.097	1.684 ± 0.126	1.496 ± 0.113	1.486 ± 0.074

ному переходу, переходу порядок–беспорядок в сплавах в критических точках, поведение, например, плотностной переменной описывается степенной зависимостью.

Самоорганизация системы в критическое состояние, когда существуют взаимодействия между элементами системы, распространяется на всю систему. При эволюции системы каждый масштабно-временной уровень достигает критического состояния. Результаты исследований, приведенные в работах [1, 8, 9] показали, что эффекты самоорганизации сильно неравновесных систем могут происходить на масштабах от десятков нанометров до долей миллиметров и временных интервалах доли-десятки наносекунд.

Установление универсальных релаксационных признаков, общих для неравновесных систем различной природы позволяет прогнозировать поведение неисследованных конденсированных сред в экстремальных условиях.

На рис. 7 приведена зависимость среднего расстояния $r = N^{-1/3}$ между элементами диссипативных структур от их среднего размера $\langle D \rangle$ для: каскад центров разрушения (воздействие релятивистских электронных пучков), Cu ($\Delta = 0.37$ мм), бронза ($\Delta = 0.3$ мм), Fe ($\Delta = 0.5$ мм) – мезоуровень II; микротрещины: полимеры – мезоуровень I; каскад полос скольжения (ударно-волновое нагружение) Ti; шероховатость на поверхности (мезоуровень I) Cu; шероховатость на поверхности (наноуровень): Au, Cu; полосы скольжения в грани Cu пирамидки (в верхней и нижней частях) [1, 8, 9].

Данные, представленные на рис. 7, показывают, что процесс укрупнения элементов диссипативных структур (переход с одного масштабно-временного уровня на другой) при различных амплитудно-временных характеристиках внешнего воздействия подчиняется концентрационному критерию.

Согласно принципу Ле Шателье Брауна термодинамическая система при внешнем воздействии ведет себя так, чтобы уменьшить внешнее воздействие; количественной характеристикой названного принципом обобщенной восприимчивости. Для механических систем роль восприимчивости играет сжимаемость χ , связанная с плотностной переменной – плотностью центров разрушения [1].

Дифференциал энергии тела имеет вид [10]

$$dE = TdS - PdV. \quad (1)$$

Если после воздействия импульса проникающих излучений тело не взаимодействует со средой, то $dE = 0$,

$$\frac{dS}{P} = \frac{dV}{T}. \quad (2)$$

Согласно этому выражению при $P < 0$ тело стремилось бы сжаться, $dV < 0$. Причем в выраже-

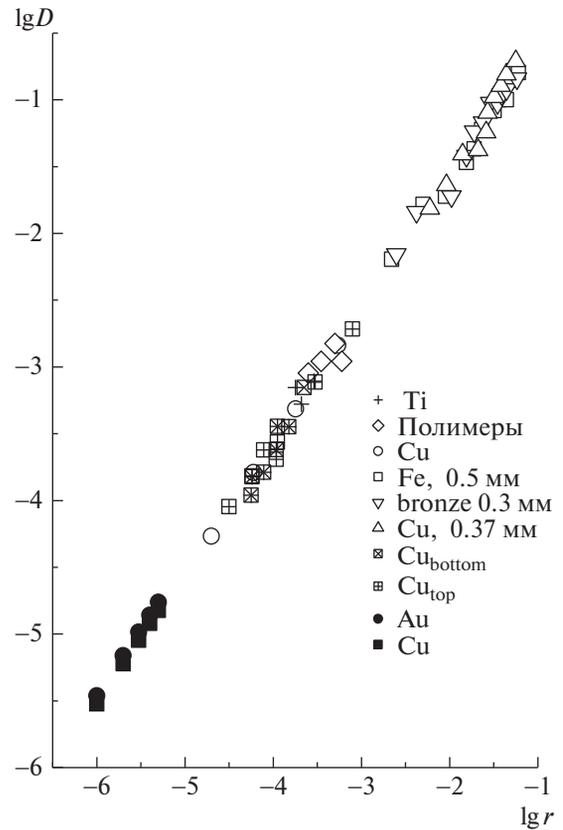


Рис. 7. Зависимость среднего расстояния $r = N^{-1/3}$ между элементами диссипативных структур от их среднего размера $\langle D \rangle$. Размеры r и $\langle D \rangle$ приведены в см.

нии (1), (2) не входят потенциалы межатомного взаимодействия. Эти выражения справедливы для всех тел. Это дает право прогнозировать поведение образцов актинидов в экстремальных условиях.

Параметры системы, отнесенные к их значениям в критическом состоянии называются приведенными параметрами. Например, в явлении динамического разрушения для параметра P (за $P_{кр}$ можно взять величину $P_{кр} = \Gamma\rho(H + L_m)$, H – энтальпия, L_m – теплота плавления, Γ – коэффициент Грюнайзена, ρ – плотность). Значения $P_{об} = P(t)/P_{кр}$ будут иметь одинаковое значение для различных металлов для одинакового значения [11]. Эта величина является максимальным значением энергии кристаллической решетки, когда она теряет дальний порядок. Величину $P_{об}$ ранее мы называли динамическим инвариантом $I(t) = P(t)/P_{кр}$. Именно с использованием инварианта $I(t)$, была построена иерархическая модель процесса динамического разрушения, с помощью которой были описаны опыты по динамическому разрушению ряда конструкционных металлов при различных видах высокоинтенсивного внеш-

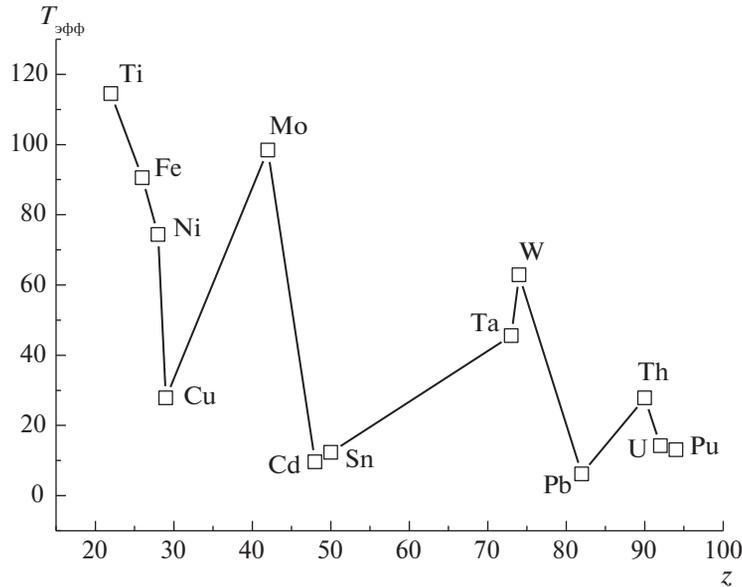


Рис. 8. Зависимость $T_{эфф}$ ряда металлов [5, 11] и легких актинидов Th, U, Pu [13, 14] от z для долговечности $t \sim 10^{-8}$ с.

него воздействия (ударно-волновое воздействие, воздействие релятивистских электронных пучков и коротких импульсов лазерного излучения) в диапазоне неравновесных состояний $t \sim 10^{-6} - 10^{-10}$ с.

2. Результаты и обсуждения. Значение физических параметров, при которых происходит фазовый переход, называется точкой перехода. Понятие температуры применяется для характеристик равновесных и неравновесных систем. В статистической физике температура T пропорциональна средней кинетической энергии элементов системы.

Как было показано [5, 11], для определенного значения долговечности t существует определенное значение давления P , которые связаны соотношением $P^{\gamma}t = \text{const}$, $\gamma \approx 3.8$.

Следовательно, с учетом вышеизложенного, возможно приписать эффективную температуру $T_{эфф}(t)$ топологическому фазовому переходу, меняющему связность тела (явлению динамического разрушения) и установить ее связь с другими термодинамическими параметрами кристалла. Будем рассматривать не термодинамическую температуру $T \sim E/c_p$, E — плотность поглощенной энергии, например, принадлежащих излучений, c_p — теплоемкость, а кинетическую температуру атома кристалла при волновом движении среды.

Из уравнения движения атома в кристалле [12]

$$m \frac{d^2 u_i}{dt_r^2} + \sum_j \frac{\partial^2 V}{\partial u_i \partial u_j} = 0 \quad (3)$$

u — смещение атома, V — потенциал.

Частота колебания атома

$$\omega = 2 \left(\frac{c}{m} \right)^{1/2} \sin \frac{qa}{2} \quad (4)$$

c — скорость звука, a — параметр решетки, q — волновой вектор.

В длинноволновом приближении (малые q), $\omega = qa \left(\frac{c}{m} \right)^{1/2}$.

Определяя ω из плотности поглощенной энергии $E(t)$, приводящей к разрушению на временах t , имеем $T_{эфф} = h\omega/k$, k — постоянная Больцмана.

На рис. 8 приведен график $T_{эфф}$ металлов Ti, Fe, Ni, Cu, Mo, Cd, Sn, Ta, W, Pb для долговечности $t \sim 10^{-8}$ с [5, 11], и легких актинидов Th, U, Pu с учетом справочных данных [13, 14].

На рис. 9 приведен график $E_{кр}$ металлов Ti, Fe, Ni, Cu, Mo, Cd, Sn, Ta, W, Pb [5, 11], и легких актинидов Th, U, Pu с учетом справочных данных

[13, 14] в зависимости от z . Отметим, что $\frac{E_{кр}}{H_3 + L_{пл}}$ при $t \sim 10^{-8}$ с для Th — 0.55; U — 0.56; Pu — 0.51.

На рис. 10 приведен график величины $(H_3 + L_{пл})$ металлов Ti, Fe, Ni, Cu, Mo, Cd, Sn, Ta, W, Pb [5, 11], и легких актинидов Th, U, Pu с учетом справочных данных [13, 14] в зависимости от z .

На рис. 11 приведены данные по зависимости $T_{пл}$ от z ряда металлов [5, 11] и легких актинидов Th, U, Pu [13, 14].

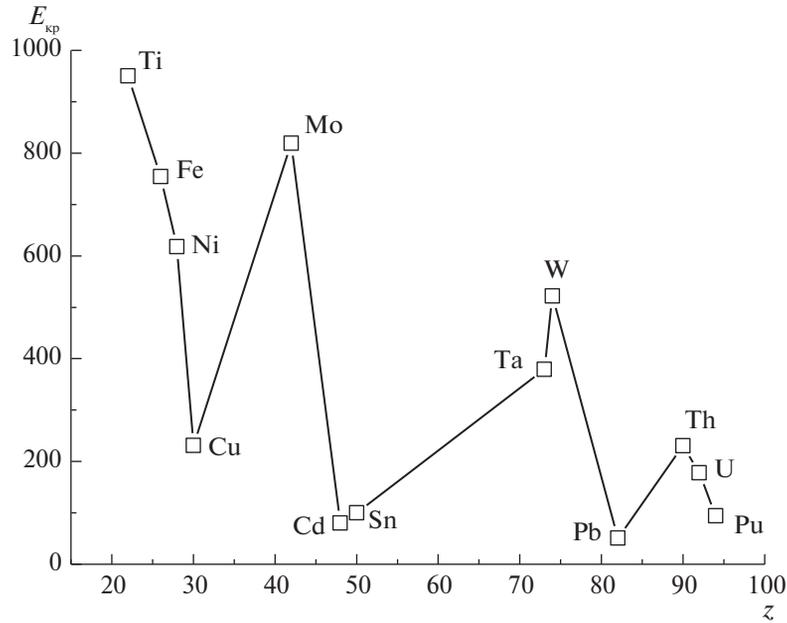


Рис. 9. Зависимость значения $E_{кр}$, приводящей к разрушению, ряда металлов [5, 11] и легких актинидов Th, U, Pu [13, 14] от z .

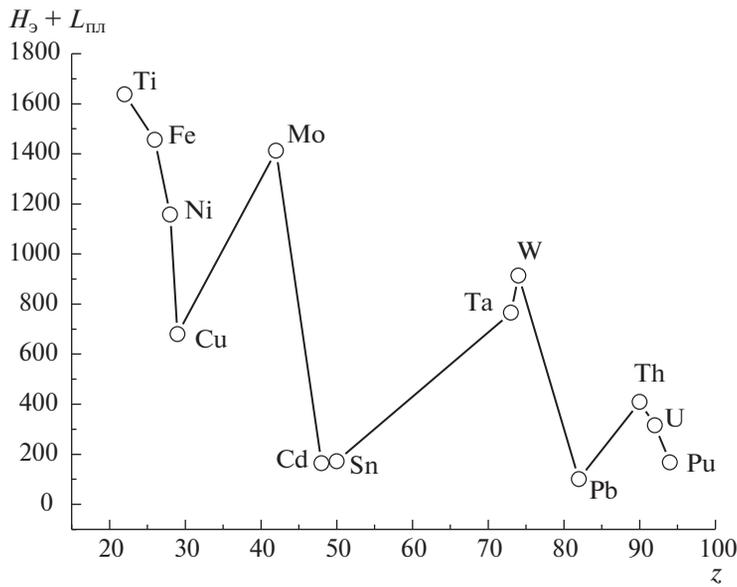


Рис. 10. Зависимость величины ($H_э + L_{пл}$) ряда металлов [5, 11] и легких актинидов Th, U, Pu [13, 14] от z .

Данные, приведенные на рис. 8–11 показывают коррелированное поведение величин $T_{эфф}$, $E_{кр}$, ($H_э + L_{пл}$), $T_{пл}$.

Ранее было показано [1, 2, 5], что процесс динамического разрушения при отрицательном давлении протекает в рамках одного механизма — уменьшения объема путем образования каскада центров разрушения. Показана возможность [1,

2, 5] (на основе установленных релаксационных скейлинговых соотношений) прогнозирования поведения неисследованных металлов.

С использованием установленного инварианта I [1, 2, 5] спрогнозировано значение критической плотности поглощенной энергии $E_{кр}$ ($t \sim 10^{-8}$) для металлических актинидов. Значение $E_{кр}$ находится

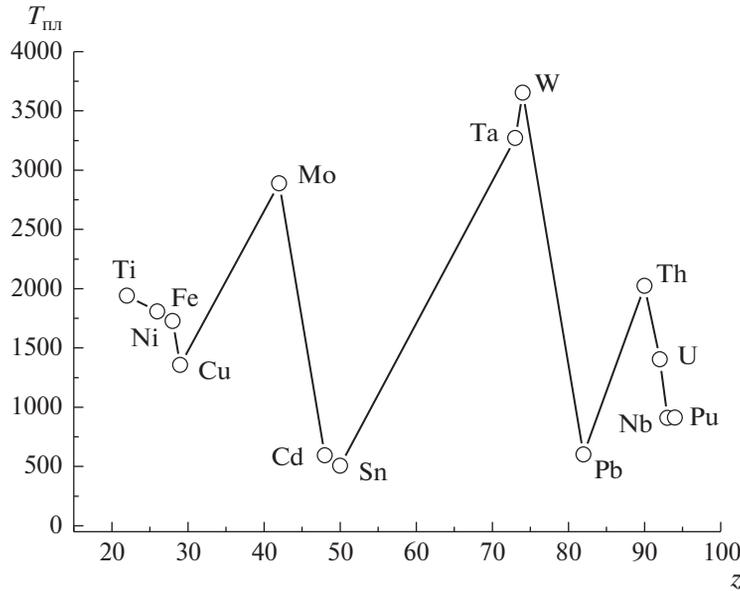


Рис. 11. Зависимость $T_{пл}$ ряда металлов [5, 11] и легких актинидов Th, U, Pu [13, 14] от z .

в хорошем согласии с другими металлами с различным z , также как поведение $T_{эфф}$, $T_{кр}$, $(H_3 + L_{пл})$ (см. рис. 8–11).

Систематические исследования свойств металлических актинидов, проведенные в последнее время (как отечественные, так и зарубежные) [15–18], позволили выявить наличие процессов их старения, приводящих к некоторому изменению физико-механических свойств. Интенсивность этих изменений достаточно мала, и при условии стабильности процесса без изменения гомогенности, в обозримом будущем не приведет к существенному изменению свойств.

В любом термодинамически равновесном твердом теле присутствует спектр дефектов, характеризующийся вероятностью образования, временем жизни (Дебаевские времена), определенным временем релаксации. В слабо открытой системе, примером которой является ^{239}Pu , происходит процесс самооблучения, характеризующийся образованием и накоплением радиогенного гелия.

В работе [19] впервые представлены систематизированные экспериментальные данные о свойствах металлического ^{238}Pu и высказаны предположения о механизме изменения физико-механических свойств в связи с высокой радиоактивностью материала.

Небольшие периодические изменения размеров образцов ^{238}Pu , обнаруженные при их длительной выдержке (рис. 12), по-видимому, как-то связаны с накоплением и выходом радиогенного гелия, образующегося при интенсивном α -распаде.

Данные, приведенные на рис. 12, свидетельствуют о том, что увеличение линейных размеров

образца прекращается по достижению пороговой (критической концентрации) радиогенного гелия. Так же данные, приведенные на рис. 12, показывают, что увеличение концентрации изотопа ^{238}Pu приводит к увеличению скорости циклического изменения линейного размера образца. Это дает возможность говорить о том, что процесс изменения физико-механических свойств (процесс старения), связанный с накоплением радиогенного гелия, можно ускорить с помощью увеличения концентрации ^{238}Pu в сплаве ^{239}Pu .

На рис. 13 приведены зависимости влияния температуры на скорость образования, миграции и самодиффузии вакансий.

Данные, приведенные на рис. 13, показывают, что повышение температуры Pu-Al сплава на 42 градуса, приводит к увеличению скорости образования вакансий в 10 раз, увеличению скорости миграции вакансий в 60 раз, а скорости самодиффузии – на 2 порядка.

Если в ^{239}Pu попытаться ввести ^{238}Pu для ускорения процесса старения за счет увеличения скорости образования радиогенного гелия, то необходимо увеличить энергию образования дефектов кристаллической решетки. Чтобы ускорить процесс образования дефектов надо увеличить температуру образца. Так энергия образования вакансий ~ 0.5 эВ, что потребует увеличения температуры на 50°C , энергия образования дивакансии ~ 1 эВ, что потребует увеличения температуры на $100\text{--}200^\circ\text{C}$. Но в одном образце невозможно создать спектр температур, поэтому на наш взгляд является проблематичным ускорение процесса старения ^{239}Pu введением изотопа ^{238}Pu .

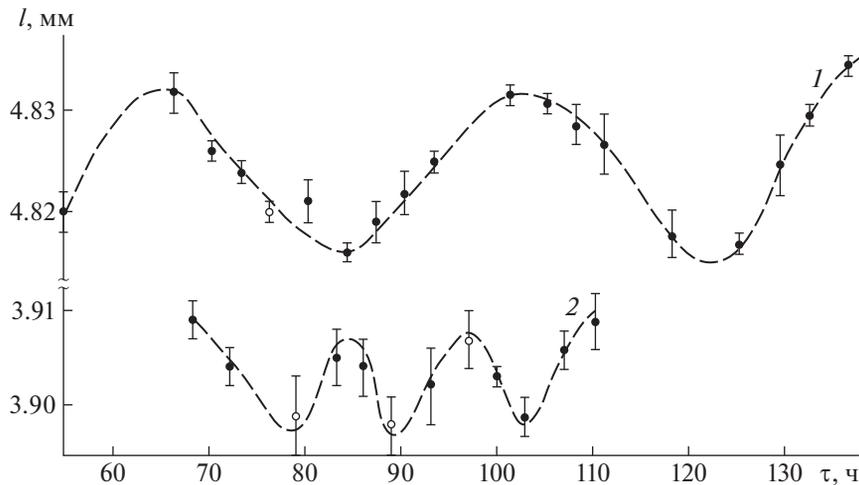


Рис. 12. Цикличность в изменении длины цилиндрических образцов при длительном хранении с момента изготовления образцов в вакууме: 1 – 7.3% ²³⁸Pu, 2 – 80% ²³⁸Pu [19].

Следовательно, проведение процесса ускорения старения металлического Pu путем увеличения концентрации изотопа ²³⁸Pu является неоднозначным.

Проанализируем зависимость температуры плавления ($T_{пл}$) и энергии образования вакансий от давления (P). Линейная зависимость температуры плавления от внешнего давления в диапазоне умеренных давлений ($P \sim 1-10$ ГПа для Cu) имеет вид:

$$T_{пл}(P) = T_0(1 + aP), \quad (5)$$

где a – постоянная [20].

При значениях давления $P \leq 10$ ГПа эта зависимость линейна. Связь температуры плавления с энергией образования вакансий определяется формулой

$$T_{пл} = (3/4\pi)^{2/3} (10\pi^2/(9k)) X_m^2 E_v = \text{const} E_v, \quad (6)$$

где k – постоянная Больцмана, X_m – параметр Линдемана, E_v – энергия образования вакансий.

Учитывая зависимость температуры плавления от давления (5) и зависимость температуры плавления от энергии образования вакансий (6), получаем, что энергия образования вакансий зависит от величины приложенного давления.

Возрастания числа вакансий влияют на изменение потенциала кристалла, когда учитывается конфигурационная часть термодинамического потенциала кристалла. Конфигурационная энтропия вакансий равна [12]

$$S_v^c = kN_v \left[1 + \frac{G_v^f}{kT} \right], \quad (7)$$

G_v – потенциал образования вакансии.

Полная энтропия в этом случае определяется как

$$S = S^0 + S_v^c + N_v S_v^f, \quad S_v^f = - \left(\frac{\partial G_v^f}{\partial T} \right)_p, \quad (8)$$

здесь S_v^f – энтропия образования вакансии, S^0 – энтропия кристалла без вакансий.

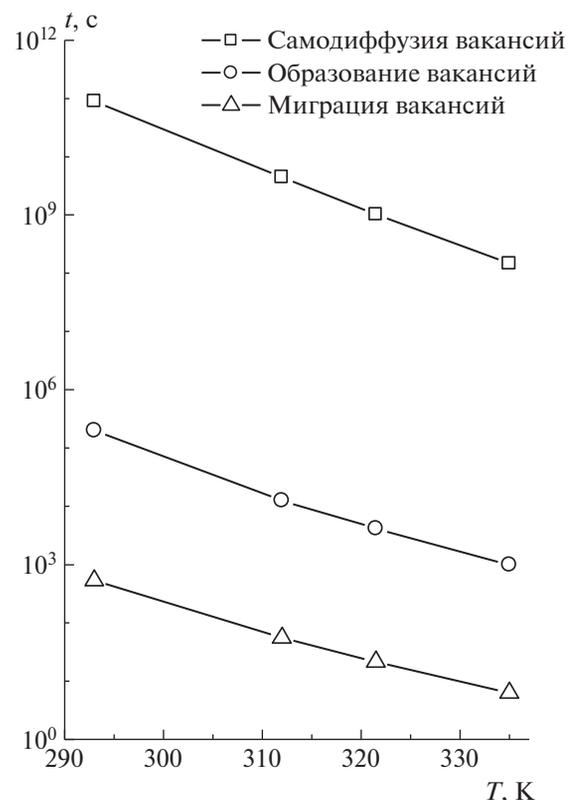


Рис. 13. Зависимость времени активации процессов: самодиффузии вакансий, разделения вакансионных кластеров и миграции вакансий от эффективной температуры.

Учитывая (8) и стандартные формулы термодинамики, можно найти вклад ансамбля вакансий.

Так для объема имеем

$$V = V^0 + N_v V_v^f.$$

Для $C_p = C_p^o + N_v \left[(C_v)_p + \frac{(H_v^f)^2}{kT^2} \right]$, H_v – энтальпия вакансий.

Коэффициент теплового расширения

$$\alpha = \alpha^0 + \frac{N_v V_v^f}{V^0} \left[\alpha_v^f - \alpha^0 + \frac{H_v^f}{kT^2} \right].$$

Коэффициент сжимаемости

$$\beta = \beta^0 + \frac{N_v V_v^f}{V^0} \left[\beta_v^f - \beta^0 + \frac{V_v^f}{kT} \right].$$

Отметить, что, например, в выражении для внутренней энергии и энтальпии влияние вакансий точечных дефектов можно учесть с помощью аддитивного вклада соответствующей величины, характеризующей образование вакансий.

Для всех других термодинамических величин, таких как, теплоемкость, коэффициент теплового расширения, коэффициент сжимаемости, свойство аддитивности нарушается. Эти термодинамические величины имеют более сложный вид.

Вклад точечных дефектов в термодинамические свойства, например, чистой меди малы, и их нельзя обнаружить с достаточной точностью. Концентрация вакансий и дивакансий в алюминии значительно больше, чем в меди. Полная концентрация пустых узлов при температуре плавления алюминия в 10 раз превышает соответствующее значение в меди [12]. Следовательно, нельзя пренебрегать существованием в металлах точечных дефектов разного вида.

Заключение. Таким образом, повышение температуры кристалла приводит к неаддитивному поведению ряда величин, характеризующих термодинамическое поведение кристалла в отличие от аддитивного поведения α – активности при введении ^{238}Pu в кристалл ^{239}Pu .

Приведенные математические оценки для времен релаксаций различных дефектов кристаллической решетки, определяющие процесс старения металлических актиноидов сплава для различных эффективных температур, соответствующих различным скоростям накопления радиогенного гелия, показывают, что проведение процесса ускоренного старения металлического Pu путем увеличения концентрации изотопа ^{238}Pu , является неоднозначным.

В работе определены значения критической плотности поглощенной энергии, приводящей к

разрушению металлических образцов Th, U, Pu в диапазоне долговечности $t \sim 10^{-8}$ с и определены значения эффективной температуры $T_{\text{эфф}}$ топологического фазового перехода (разрушения).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Kosheleva E.V., Punin V.T., Sel'chenkova N.I., Uchaev A.Ya. Obschiye zakonomernosti hierarchy relaxatsionnykh processov v metallakh pri vozdeystvii impulsov pronikayuschikh izluchenii. [General Regularities of Hierarchy Relaxation Processes in Metals under the Action of Penetrating Radiation Pulses: Monograph]. 2015. Sarov: RFNC-VNIIEF (in Russian).
2. Il'kaev R.I., Punin V.T., Uchaev A.Ya., Novikov S.A., Kosheleva E.V., Platonova L.A., Sel'chenkova N.I., Yukina N.A. // Dokl. Akad. Nauk. 2003. V. 393 (3). P. 326–331.
3. Prigogine I., Stengers I. Order out of Chaos: Man's New Dialogue with Nature. 1984. Bantam New Age Books.
4. Wilson K., Kogut J. // Phys. Rep. 1974. V. 12. P. 75.
5. Il'kaev R.I., Uchaev A.Ya., Novikov S.A., Zavada N.I., Platonova L.A., Sel'chenkova N.I. // Dokl. Akad. Nauk. 2002. V. 384 (3). P. 328–333.
6. Kosheleva Ye.V., Selchenkova N.I., Sokolov S.S., Trunin I.R., Uchaev A.Ya. // Yad. Fiz. Inzhin. 2018. V. 9 (1). P. 81–88 (in Russian).
7. Kosheleva Ye.V., Selchenkova N.I., Sokolov S.S., Trunin I.R., Uchaev A.Ya. Proc. Int. Conf. 21st Khariton Scientific Lectures on Extreme State of Matter, Detonation and Shock Wave. 2019. Sarov: RFNC-VNIIEF. P. 161–162 (in Russian).
8. Kosheleva E.V., Sel'chenkova N.I., Sokolov S.S., Trunin I.R. and Uchaeva A.Ya. On the Similarity of Dynamic Destructive Processes in Metals of Different Geometry under the Effect of External Impacts with Various Amplitude-Time Characteristics // Phys. At Nucl. 2018. V. 81 (10). P. 1477–1483.
9. Kosheleva Ye.V., Mokhova V.V., Podurets A.M., Punin V.T., Selchenkova N.I., Til'kunov A.V., Tkachenko M.I., Trunin I.R., Uchaev A.Ya. // Fiz. Gor. Vzryva. 2017. V. 53 (2). P. 133–139 (in Russian).
10. Landau L.D., Lifshiz Ye.M. Statistic Physics. 1964. Moscow: Nauka (in Russian).
11. Uchaev A.Ya., Punin V.T., Selchenkova N.I., Kosheleva Ye.V., Kosachev V.V. // Yad. Fiz. Inzhin. 2014. V. 5 (3). P. 203–207 (in Russian).
12. Girifalco L. Statistical Mechanics of Solids. 2003. New York: Oxford Univ. Press.
13. Larikov L.N., Yurechenko Yu.F. Structure and Properties of Metals and Alloys. Thermal Properties of Metals and Alloys. Reference Book. 1985. Kiev: Naukova Dumka (in Russian).
14. Thermodynamic Properties of Individual Substances. Reference Book. Ed. by Gurvich L.V., Veitz I.V., Medvedev V.A. et al. 3rd Ed. Vol. IV. Book 2. 1982. Moscow: Nauka (in Russian).

15. Golubev V.K., Sobolev Yu.S., Trunin I.R. // Probl. Prochn. 1998 (5). P. 100–105 (in Russian).
16. Plutonium Handbook. A Guide to the Technology. VI. Ed. by Wick O.J. 1967. New York: Gordon and Breach Science. V. 1.
17. Plutonium. Fundamental Problems. Ed. by Nakykto V.A., Timofeev L.F. 2003. Sarov: RFNC-VNIIEF. V. 1. (in Russian).
18. Uchaev A.Ya., Punin V.T., Selchenkova N.I., Kosheleva Ye.V., Platonova L.A., Zhabyka L.V. Proc. 7th Int. Workshop “Fundamental Plutonium Properties”. 2007. P. 144–145 (in Russian).
19. Seleznev A.G., Kosulin N.S. // Radiokhimiya. 1995. V. 37 (6). P. 488–492.
20. Bottger H. Principles of the Theory of Lattice Dynamics. 1983. Weinheim: VCH.

On Relation between Thermodynamic and Dynamic Actinide Properties as Well as Kinetics of Radiation Defects

E. V. Kosheleva¹, *, N. I. Sel'chenkova¹, and A. Ya. Uchaev¹

¹Russian Federal Nuclear Center – VNIIEF, Sarov, Nizhniy Novgorod oblast, 607188 Russia

*e-mail: otd@expd.vniief.ru

Received June 25, 2021; revised June 25, 2021; accepted June 25, 2021

Abstract—Results of fundamental studies of the process for dynamic failure and dispersion of metals in the mode of pulsed volume heat-up under the action of penetrating rays allows the universal sinergetic attributes of metals behavior in the dynamic failure process, what supplies a capability to predict the unstudied metals behavior, involving actinide metals under extreme conditions. Determination of common relaxation attributes for non-equilibrium systems of various natures allows forecasting of non-studied systems behavior. Systematic studies of properties for plutonium metal (both native, as well as foreign ones) performed recently, allows reveal of ageing processes for plutonium metal, leading to some change of its physical-mechanical properties. The rate of these changes is rather low, and provide the process stability without a change of homogeneity, in the foreseeable future, would not result in a significant properties change. Estimates show, that α and fission-fragment activity weakly affect thermodynamic potentials (enthalpy, internal energy) of actinides for the normal and elevated temperatures $T \sim 600$ K. Actinide metals ageing processes, related to α and fission-fragment activity affect weakly the dynamic properties.

Keywords: dynamic failure process, metals dispersion process, mode of pulsed volume heating, penetrating radiation effect, universal sinergetic attributes of metals behavior, actinides, kinetics of radiation defects