

На правах рукописи



Чакин Владимир Павлович

**ЭВОЛЮЦИЯ МИКРОСТРУКТУРЫ И ФИЗИКО-МЕХАНИЧЕСКИХ СВОЙСТВ
БЕРИЛЛИЯ ПРИ ВЫСОКОДОЗНОМ НЕЙТРОННОМ ОБЛУЧЕНИИ**

Специальность 01.04.07

Физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени

доктора физико-математических наук

Уфа – 2017

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном образовательном учреждении высшего образования «Ульяновский государственный университет».

Научный консультант:

Голованов Виктор Николаевич, доктор физико-математических наук, профессор, проректор УлГУ по науке и информационным технологиям

Официальные оппоненты:

Рязанов Александр Иванович, доктор физико-математических наук, профессор, Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», руководитель отделения

Рогожкин Сергей Васильевич, доктор физико-математических наук, профессор, Национальный исследовательский ядерный университет МИФИ

Овчинников Владимир Владимирович, доктор физико-математических наук, профессор, Институт электрофизики УрО РАН, заведующий лабораторией

Ведущая организация:

Акционерное общество «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара»

Защита состоится «26» января 2017 г. в 14.00 часов на заседании диссертационного совета Д 002.080.03 при Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте проблем сверхпластичности металлов РАН (450001, г. Уфа, ул. Ст. Халтурина, 39).

Отзывы на автореферат в 2-х экземплярах, заверенных печатью, просим высылать по адресу: 450001, Республика Башкортостан, г. Уфа, ул. Ст. Халтурина, 39, ученому секретарю диссертационного совета. Факс: +7 (347) 282-37-59.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на официальном сайте ИПСМ РАН по адресу: <http://www.imsp.ru/>

Автореферат разослан «___» _____ 2016 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета,

доктор физико-математических наук

Имаев Марсель Фаниревич

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность проблемы

Бериллий, обладая уникальными ядерно-физическими свойствами, в настоящее время широко используется в качестве материала блоков отражателя и замедлителя нейтронов исследовательских ядерных реакторов. Прекрасную перспективу имеет бериллий также в термоядерной энергетике, где в первом Международном термоядерном реакторе ITER бериллий будет использован как материал первой стенки (компонент реактора, обращенный непосредственно к плазме) и нейтронный размножитель (компонент бридерного blankets, позволяющий увеличить количество нейтронов для ядерных реакций с изотопом литий-6 для наработки трития, который используется в качестве топлива ТЯР). В термоядерном реакторе второго поколения DEMO бериллий также планируется использовать в качестве нейтронного размножителя.

Мировой опыт эксплуатации бериллиевых блоков замедлителя и отражателя нейтронов в исследовательских реакторах, а также выполненные исследования ведущих российских ученых по радиационному повреждению бериллия (Г.А. Серняев, З.И. Четкина) показывают, что нейтронное облучение приводит к значительным изменениям микроструктуры и физико-механических свойств бериллия. В исследовательских реакторах, где используется бериллий (например, реактор СМ), температуры облучения достаточно низки и составляют область 323-473 К. Поскольку в качестве теплоносителя здесь используется вода, температура на поверхности блока не превышает 323-343 К. В массиве бериллиевого блока вследствие радиационного разогрева температура может подниматься до 473 К.

При облучении бериллия в области температур 323-473 К обнаружены такие эффекты и явления как распухание, радиационное упрочнение или разупрочнение, радиационное охрупчивание и т.д. Эти негативные факторы сокращают ресурс бериллиевых блоков при их эксплуатации в ядерном реакторе. Поиск закономерностей радиационного повреждения бериллия позволит выработать пути модернизации его микроструктуры для улучшения физико-механических свойств и, соответственно, увеличения ресурса эксплуатации бериллиевых блоков в ядерном реакторе.

Термоядерные реакторы ITER и DEMO будут включать бериллий как материал, размножающий нейтроны в бридерном blankets. Это предполагает высокую стойкость бериллия к радиационному повреждению при облучении термоядерными нейтронами высоких энергий (14 МэВ). Одна из Европейских концепций бридерного blankets включает использование в качестве нейтронного размножителя засыпки бериллиевых минисфер диаметром 1 мм. В условиях, когда отсутствуют достаточно мощные источники нейтронов с энергией 14 МэВ, бериллиевые минисферы, предполагаемые к использованию в ТЯР, проходят испытания в исследовательских ядерных реакторах, где их облучение проводят при параметрах близких к параметрам эксплуатации в термоядерном реакторе. При этом возможно воспроизвести многие условия ТЯР, за исключением энергии нейтронов 14 МэВ, которыми проводится облучение. В частности, в исследовательском ядерном реакторе энергия нейтронов достаточной интенсивности для накопления значительной дозы облучения не превышает 1 МэВ. Температуры облучения бериллия должны находиться в области 573-923 К, что является предполагаемым интервалом рабочих температур бериллиевого нейтронного размножителя в ТЯР. Таким образом, можно заметить, что облучение бериллия в термоядерном реакторе синтеза происходит при сравнительно более высоких температурах, чем в ядерном реакторе деления.

В основе негативных изменений (деградации) физико-механических свойств бериллия лежат радиационные повреждения микроструктуры такие, как смещение собственных атомов с образованием каскадов атом-атомных соударений и последующей эволюцией скоплений вакансий и междоузельных атомов в дислокационные петли и

поры, а также образование газовых атомов, таких как тритий и гелий, посредством ядерных реакций бериллия с нейтронами. Образующиеся тритий и гелий в процессе облучения постепенно эволюционируют в газовые пузырьки. В связи с этим, важнейшей задачей является установление закономерностей эволюции микроструктуры бериллия при нейтронном облучении. Следующий шаг – установление закономерностей вызванных облучением изменений основных физико-механических свойств бериллия и зависимости этих изменений от характеристик формирующейся под облучением микроструктуры.

Необходимо отметить, что к началу выполнения данной работы экспериментальных данных по радиационной повреждаемости бериллия было недостаточно. Опыт эксплуатации бериллиевых блоков в исследовательских реакторах, накопленный в 60-90-х годах двадцатого века, показал наличие серьезных проблем, связанных с деградацией механических характеристик бериллия под облучением, в частности, его интенсивного радиационного охрупчивания, приводящего к образованию трещин в облученных бериллиевых блоках и, соответственно, сокращению ресурса эксплуатации блоков в реакторе. Имеющиеся на тот момент экспериментальные результаты по влиянию нейтронного облучения на микроструктуру и свойства бериллия были обобщены в монографиях В.П. Гольцева и Г.А. Серняева. Однако рассмотрение этих работ показывает их явную ограниченность и недостаточность в свете современных вызовов и требований. В частности, можно выделить следующие актуальные проблемные задачи, которые не нашли отражения в работах по радиационному материаловедению бериллия, опубликованных к началу третьего тысячелетия:

- исследование состояния бериллия после облучения до максимально высоких нейтронных доз, поскольку это имеет принципиальное значение для обоснования ресурса эксплуатации бериллиевых компонентов как в ядерных, так и термоядерных реакторах;
- исследование радиационной эволюции микроструктуры и свойств современных марок бериллия, которые значительно превосходят старые марки по качеству изготовления и степени оптимизации химического состава;
- исследование микроструктуры и свойств бериллия на современном уровне, что требует значительного расширения и углубления исследовательского поля за счет привлечения дополнительных или усовершенствованных экспериментальных методов, таких как трансмиссионная электронная микроскопия (ТЭМ) высокого разрешения, термодесорбционная масс-спектрометрия, измерение теплопроводности импульсным методом и других.

Построение и содержание диссертации основаны на принципах всестороннего учета фактора упомянутых выше проблемных задач и включения их разрешения в объем настоящей работы, что свидетельствует о значительной актуальности выполненных исследований радиационного повреждения бериллия. Различные аспекты исследований облученного бериллия, наблюдаемых в нем радиационных эффектов и явлений отнесены к числу принципиальных задач и актуальных фундаментальных и прикладных исследований, которые включены в российские и европейские программы.

Основой, которая предопределила успешное выполнение работы, послужили труды отечественных и зарубежных ученых в области радиационного материаловедения бериллия и радиационной физики конденсированных сред: Г.А. Серняева, В.П. Гольцева, З.И. Чететкиной, В.А. Цыканова, А.В. Клинова, З.Е. Островского, И.Б. Куприянова, E. Rabaglino, M. Dalle Donne, F. Scaffidi-Argentina, H. Kawamura, G.R. Longhurst и других российских и зарубежных ученых.

Целью диссертационной работы является выявление физических закономерностей эволюции микроструктуры и изменений физико-механических свойств бериллия в результате воздействия нейтронного облучения при температурах 323-1006 К до флюенсов нейтронов $(0,3-17) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) для прогнозирования состояния и ресурса бериллиевых конструкций и увеличения его радиационной стойкости.

Для достижения данной цели решались следующие **задачи**:

1. Уточнение и систематизация закономерностей радиационного изменения микроструктуры бериллия при нейтронном облучении в области низких и высоких температур.
2. Установление закономерностей термической десорбции трития и гелия из облученного нейтронами бериллия в зависимости от температуры облучения, флюенса нейтронов и микроструктуры исходного материала.
3. Уточнение температурно-дозных зависимостей набухания бериллия, разработка модели анизотропного набухания и радиационного роста бериллия в низкотемпературной области.
4. Установление закономерностей радиационного изменения теплопроводности бериллия в зависимости от температуры облучения и флюенса нейтронов, разработка модели радиационного изменения теплопроводности бериллия.
5. Установление закономерностей радиационного изменения механических свойств бериллия в зависимости от температуры облучения и флюенса нейтронов, разработка модели деградации механических свойств бериллия при высокодозном нейтронном облучении.
6. Проведение анализа характера радиационного повреждения бериллия и предложение путей увеличения его радиационной стойкости.

Научная новизна представленных результатов заключается в том, что впервые проведены подробные и систематические исследования микроструктуры и ряда физико-механических свойств бериллия после нейтронного облучения в широких интервалах температур и флюенсов нейтронов. В частности, впервые получены следующие результаты:

1. Получены закономерности изменения микроструктуры бериллия в зависимости от параметров облучения и послерадиационного отжига. Впервые обнаружено отклонение от линейной зависимости содержания трансмутированного гелия в бериллии, облученном при температуре 343 К, при флюенсах нейтронов, превышающих $6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$). Впервые установлена вакансионная природа дислокационных петель, образующихся в базисной плоскости (0001), и междоузельная природа петель в призматических плоскостях кристаллической решетки бериллия при облучении в температурной области 343-473 К. Обнаружены плоские шестигранные газовые поры после нейтронного облучения при температурах 673-968 К и впервые определены кристаллографические плоскости залегания дислокационных петель и газовых пор, образующихся в бериллии при нейтронном облучении.
2. Установлены закономерности термической десорбции трития и гелия и построена модель газовой выделенности из облученного бериллия. Впервые установлено, что тритий из облученного бериллия выходит при более низких температурах испытания, чем гелий. Впервые обнаружено, что в процессе облучения в реакторе при повышенных температурах происходит самопроизвольный выход трития из бериллия, достигающий нескольких десятков процентов. Впервые установлено положительное влияние деформации бериллия до облучения на ускорение выхода трития из бериллия. Впервые показано, что снижение размера зерна и присутствие исходной пористости облегчает выход трития из бериллия.
3. Получены новые экспериментальные данные по набуханию бериллия в зависимости от температуры облучения и флюенса нейтронов и после высокотемпературного послерадиационного отжига. Впервые обнаружена трехзональная неравномерность скорости набухания в зависимости от флюенса нейтронов. Впервые обнаружена неравномерность набухания по сечению облученного образца бериллия: набухание в центре значительно выше, чем на поверхности, при этом впервые зафиксировано набухание порядка 190 % в центре образца после послерадиационного отжига, это рекордное набухание для бериллия.

4. Впервые обнаружено явление радиационного роста бериллия, ранее известное только для циркония. Радиационный рост наряду с анизотропным распуханием вносит свой вклад в изменение геометрических размеров бериллиевых образцов при низкотемпературном нейтронном облучении.

5. Впервые получены зависимости изменения теплопроводности бериллия от температуры облучения и флюенса нейтронов. Показано, что уже до флюенсов $(2-3) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ происходит резкое падение теплопроводности с последующей стабилизацией значений при максимальных флюенсах нейтронов $(10-11,4) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$.

6. Впервые получен комплекс результатов по изменению микротвердости, механических свойств на растяжение и сжатие в зависимости от флюенса нейтронов в широкой области температур облучения. Показано, что в исследованной области температур и флюенсов нейтронов по результатам измерений микротвердости наблюдается радиационное упрочнение бериллия, по результатам механических испытаний на растяжение и сжатие – его разупрочнение при абсолютно хрупком разрушении. Показано, что с увеличением температуры облучения величина радиационного упрочнения снижается. Впервые обнаружена трехзональность радиационного разупрочнения бериллия в зависимости от флюенса нейтронов, при которой на первой стадии происходит резкое падение прочности с последующей стабилизацией при максимальных флюенсах нейтронов. Впервые установлено влияние текстурных особенностей бериллия на механические свойства до и после облучения, в частности, показано, что предел прочности при испытаниях на растяжение сравнительно выше для образцов, вырезанных вдоль оси выдавливания, при испытаниях на сжатие – выше для образцов, вырезанных поперек оси.

7. Впервые проведены длительные механические испытания на сжатие облученных бериллиевых минисфер диаметром 1 и 2 мм, по результатам которых установлено, что для температур испытания 698 К и 798 К наблюдается радиационное упрочнение, для температур 923 К и 1023 К – разупрочнение. Показано, что скорость деформации всегда превышает скорость распухания облученных минисфер из бериллия.

8. Впервые предложены способы увеличения ресурса бериллиевых изделий в ядерном реакторе, которые заключаются в разделении массивного бериллиевого изделия на несколько частей (составное изделие) или размещении бериллиевого компонента в чехол из конструкционного материала, обладающего сравнительно более высокой радиационной стойкостью, или периодической термообработке блока в области промежуточных температур ($\sim 773 \text{ K}$) в процессе эксплуатации в реакторе. Новизна предложенных технических решений подтверждена тремя патентами на изобретение Российской Федерации.

Достоверность результатов диссертации обусловлена использованием нескольких независимых методов исследования микроструктуры облученного бериллия таких как оптическая металлография, сканирующая растровая и трансмиссионная электронная микроскопия, проведением исследования каждым из этих методов не менее трех образцов каждой марки бериллия, облученной в ядерном реакторе при одних и тех же температурах и флюенсах нейтронов. Каждое термодесорбционное испытание включало навеску из не менее десяти бериллиевых минисфер диаметром 1 мм и не менее сотни минисфер диаметром 0,5 мм, что обеспечивало полную воспроизводимость каждого испытания, подтвержденная несколькими проверочными тестами. Исследования распухания включали измерения геометрических размеров и плотности не менее десяти бериллиевых образцов на каждый этаж облучательных ампул с определенной температурой облучения и флюенсом нейтронов, что обеспечило возможность получения тенденции поведения распухания бериллия в зависимости от параметров нейтронного облучения. Измерения температуропроводности проводили на одном образце на каждое состояние после облучения, но с периодическим включением измерений дополнительных образцов для проверки полученных результатов. Микротвердость рассчитывали по результатам не менее пятнадцати наколов алмазной пирамидкой каждого исследуемого

образца с последующим расчетом среднего значения. Кратковременные и длительные механические испытания на растяжение и сжатие проводили из расчета не менее двух-трех образцов на каждое состояние после облучения исследуемой марки бериллия. Все использованное экспериментальное оборудование было аттестовано соответствующими российскими и германскими метрологическими организациями. Анализ полученных экспериментальных результатов выполнен на основе современных представлений в области радиационного материаловедения и физики радиационных повреждений твердого тела.

Практическая значимость. Обнаруженные в работе закономерности радиационного повреждения бериллия имеют значительную практическую ценность, в частности, имеется ввиду следующее:

1. Предложены пути увеличения ресурса бериллиевых изделий исследовательских реакторов: термическая обработка облученного бериллия в области промежуточных температур, использование составного блока или блока в чехле из конструкционного материала. Внедрение этих разработок позволит получить высокий экономический эффект за счет снижения затрат на закупку новых бериллиевых изделий для эксплуатации в ядерном реакторе.
2. Проведено всестороннее обоснование Европейской концепции охлаждаемого гелием бериллиевого размножителя нейтронов бриджерного бланкета термоядерного реактора путем облучения бериллиевых минисфер диаметром 1 мм в ядерном реакторе и последующих послерадиационных материаловедческих исследований облученных минисфер.
3. Полученные уникальные экспериментальные результаты по влиянию нейтронного облучения на микроструктуру и физико-механические свойства бериллия в области высоких нейтронных флюенсов вошли в научные базы данных радиационного материаловедения и физики радиационного повреждения бериллия и могут быть востребованы при разработке новых экспериментальных аппаратов, где бериллий будет использован в качестве материала компонента, находящегося в поле нейтронного облучения. Примером такого аппарата может служить разрабатываемый в настоящее время Европой и Японией высокопоточный источник нейтронов с энергией 14 МэВ нейтронов.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Закономерности влияния температуры облучения и флюенса нейтронов характерных для условий эксплуатации бериллиевых изделий в ядерном и термоядерном реакторах на параметры микроструктуры бериллия при нейтронном облучении в реакторах CM, BOR-60, HFR, BR2 при температурах 323-1006 К до флюенсов нейтронов $(0,3-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$), в частности, температурно-дозовые области существования дислокационных петель и газовых пор и пузырьков, тип и параметры образующихся дислокационных петель (вакансионные и междоузельные), параметры и морфология газовых пор и пузырьков, кристаллографические плоскости их залегания.
2. Комплекс исследований термодесорбции трития и гелия из бериллия после нейтронного облучения либо после насыщения водородно-тритиевой газовой смесью и закономерности влияния параметров исходной микроструктуры, параметров облучения или газового насыщения, параметров термодесорбционных испытаний на скорость выхода, накопление и удержание трития и гелия в облученном или насыщенном водородом/тритием бериллии.
3. Результаты исследований и закономерности влияния на распухание бериллия температуры облучения в области температур 323-973 К, флюенса нейтронов в области флюенсов $(0,3-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) и параметров послерадиационного отжига в течение 1 часа в области температур 473-1273 К.

4. Результаты исследований и закономерности нового явления радиационного роста бериллия и анизотропного набухания зерен, их влияния на удержание гелия в облученном бериллии, изменение геометрических размеров бериллиевых образцов, дозные зависимости набухания и механических свойств на растяжение и сжатие при низкотемпературном нейтронном облучении.

5. Результаты исследований и закономерности влияния температуры облучения, флюенса нейтронов, температуры испытания, параметров кристаллической структуры и радиационных дефектов на теплопроводность бериллия при нейтронном облучении в области температур 343-673 К и флюенсов нейтронов $(0,3-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$), модель снижения теплопроводности бериллия при воздействии нейтронного облучения.

6. Результаты исследований и закономерности влияния температуры облучения и флюенса нейтронов на изменение микротвердости, кратковременных механических свойств на растяжение и сжатие бериллия и длительных механических свойств на сжатие (ползучести) бериллиевых минисфер, модель радиационного охрупчивания и разупрочнения бериллия и самопроизвольного растрескивания бериллиевых изделий при облучении.

7. Результаты исследований закономерностей и взаимосвязей радиационных явлений термодесорбции трития и гелия, набухания, снижения теплопроводности, охрупчивания и разупрочнения бериллия с эволюцией микроструктуры при нейтронном облучении бериллия, легшими в основу технических предложений по увеличению ресурса бериллиевых изделий в ядерном реакторе и безопасной эксплуатации засыпки бериллиевых минисфер в blankets термоядерного реактора.

Личный вклад соискателя.

В период с 1997 по 2016 г.г. автор являлся ответственным исполнителем и руководителем нескольких российских и европейских научных тем по исследованию радиационного повреждения бериллии после нейтронного облучения в исследовательских ядерных реакторах SM, БОР-60, BR2, HFR. Непосредственно автором осуществлялась постановка задач на осуществление экспериментов по облучению бериллиевых образцов, послерадиационные материаловедческие исследования облученных бериллиевых образцов, обработка, анализ и обобщение полученных результатов, предложение и развитие моделей и концепций, положенных в основу обоснования путей увеличения ресурса бериллиевых изделий в исследовательских ядерных и термоядерных реакторах.

Премия памяти профессора Марио Далле Донне (Prof. Mario Dalle Donne Memorial Award (MDDMA)) основана в 2013 на Международной конференции по бериллиевой технологии № 11 в Барселоне, Испания для награждения научных специалистов за крупные достижения в работах по бериллиевой тематике. Премия памяти профессора Марио Далле Донне была вручена Чакину В.П. в 2015 во время Международной конференции по бериллиевой технологии № 12 в Дежу, Республика Корея. Таким образом, соискатель стал вторым лауреатом престижной премии (первым был Dr. Masaru Nakamichi, Япония, 2013).

Совокупность полученных в работе результатов, а также сформулированное на их основе заключение можно квалифицировать как решение научной проблемы, имеющей важное народнохозяйственное значение (увеличение ресурса бериллиевых блоков в ядерном реакторе).

Апробация работы.

Основные результаты работы были представлены автором в виде устных или стендовых докладов на следующих научных конференциях:

4-12-ой Международных рабочих группах по бериллиевой технологии (BeWS) (1999, Карлсруэ, Германия; 2001, Москва, Россия; 2003, Миядзаки, Япония; 2005, Санта

Барбара, США; 2007, Лиссабон, Португалия; 2009, Алмата, Казахстан; 2012, Карлсруэ, Германия; 2013, Барселона, Испания; 2015, Чеджу, Республика Корея);

8-17-ой Международных конференциях по материалам ТЯР (ICFRM) (1997, Сендай, Япония; 1999, Колорадо Спрингс, США; 2001, Баден-Баден, Германия; 2003, Киото, Япония; 2005, Санта Барбара, США; 2007, Ницца, Франция; 2009, Саппоро, Япония; 2011, Чарльстон, США; 2013, Пекин, Китай; 2015, Аахен, Германия);

21, 22, 25-28-м Симпозиумах по термоядерной технологии (SOFT) (2000, Мадрид, Испания; 2002, Хельсинки, Финляндия; 2008, Росток, Германия; 2010, Порту, Португалия; 2012, Льеж, Бельгия; 2014, Сан Себастьян, Испания);

12-м Международном симпозиуме по термоядерной технологии (ISFNT), 2015, Чеджу, Республика Корея;

12, 13-ой Международных рабочих группах по материалам и компонентам ТЯР, обращенным к плазме (PFMC) (2010, Аахен, Германия; 2011, Розенхайм, Германия);

6-8-ой Российских конференциях по реакторному материаловедению (2000, 2003, 2007, Дмитровград, Россия); 12-ой Конференции Ядерного Общества России «Исследовательские реакторы: наука и высокие технологии», 2001, Дмитровград, Россия; 6, 7, 10-м Международном Уральском Семинаре по Радиационной физике металлов и сплавов (2005, 2007, 2013, Снежинск, Россия); Научной конференции по новым материалам для инновационного развития ядерной энергетики (2014, Дмитровград, Россия); Открытой школе-конференции стран СНГ «Ультрамелкозернистые и наноструктурные материалы» (УМЗН-2014, УМЗН-2016) (2014, 2016, Уфа, Россия).

Публикации. Всего по теме диссертации опубликовано 46 статей, в которых изложено основное содержание диссертации, в том числе, получено 4 патента Российской Федерации. Список опубликованных работ приведен в конце автореферата.

Структура и объем работы. Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения и списка литературы из 207 наименований. Работа изложена на 271 страницах машинописного текста, содержит 12 таблиц и 112 рисунков.

Благодарности. Автор выражает глубокую признательность и безграничную благодарность научному консультанту диссертации В.Н. Голованову за плодотворные обсуждения полученных научных результатов и всестороннюю помощь на всех этапах выполнения и подготовки работы к защите, а также ведущим научным специалистам в области радиационного материаловедения и организации реакторных экспериментов В.А. Цыканову, В.А. Казакову, Р.Р. Мельдеру, И.Б. Куприянову, П.В. Владимирову, М. Клименкову, А. Moeslang, С. Dorn за интересные научные дискуссии, способствующие углубленному пониманию проблем бериллиевой тематики и поиску путей их разрешения.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во **введении** обоснована актуальность выбранной темы диссертации, сформулированы цель и задачи работы, научная новизна и практическая значимость, обоснована достоверность полученных результатов и приведены основные положения, выносимые на защиту.

ГЛАВА 1. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКИ ЭКСПЕРИМЕНТОВ И ИССЛЕДОВАНИЙ

В данной главе обоснован выбор марок бериллия для исследований, приведен способ производства и элементный состав (таблица 1), конструкция и геометрические размеры бериллиевых образцов.

Таблица 1. Перечень исследуемых бериллиевых материалов.

| Марка | Метод производства | Габариты образцов, мм | Размер зерна, мкм |
|------------------------------|------------------------------------|--------------------------------|-------------------|
| ТВ-56 | Горячее выдавливание | Ø (3; 6) x(0,3; 3; 7-9; 30) | <56 |
| ТВ-400 | Горячее прессование | Ø 10x100 | <400 |
| S-200-E | Горячее прессование | ~3 | 10-13 |
| I-220-H | Горячее изостатическое прессование | Ø 4x2 | 5,5 |
| O-30-H | | | 7,8 |
| S-65-H | | | 8,8 |
| Фрагменты неправильной формы | Метод дробления | 1-2 | 10-30 |
| | | | 30-60 |
| | | | >100 |
| Минисферы | REM (метод вращающегося электрода) | Ø 0,5 | 200-500 |
| | | Ø 1/ Ø 1 (поры) | |
| | | Ø 2 | |
| | FRM (метод снижения флюоридов) | Ø 1 | 200-500 |
| Ø 2 | | | |
| Монокристалл | Зонная плавка | 5x5x5 | нет зерен |

Приведены данные об условиях облучения данных образцов и изделий из бериллия в исследовательских реакторах CM, БОР-60, BR2, HFR при температурах от 323 К до 1006 К в области флюенсов нейтронов $(0,4-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$), описание конструкций облучательных устройств для облучения образцов в ядерных реакторах. Описаны методы и методики послерадиационных исследований микроструктуры и физико-механических свойств облученного бериллия, которые включали оптическую микроскопию, растровую сканирующую и трансмиссионную электронную микроскопию, испытания на термическую десорбцию трития и гелия из облученного или предварительно насыщенного смесью трития и водорода бериллия, измерение

геометрических размеров и гидростатическое взвешивание образцов до и после облучения для определения распухания, измерение температуропроводности импульсным методом, кратковременные механические испытания на растяжение и сжатие, длительные испытания на сжатие при постоянной нагрузке. Использование такого широкого комплекса методов и методик исследований микроструктуры и физико-механических свойств облученного бериллия позволяет говорить о достаточной обоснованности сделанных основных выводов о характере и степени радиационной повреждаемости бериллия в условиях воздействия нейтронного облучения в широких интервалах температур и флюенсов нейтронов.

ГЛАВА 2. ЭВОЛЮЦИЯ МИКРОСТРУКТУРЫ БЕРИЛЛИЯ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ

При нейтронном облучении бериллия вследствие прохождения ядерных реакций на нейтронах происходит накопление трития и гелия, что в значительной степени определяет радиационную эволюцию микроструктуры и изменения физико-механических свойств. Основной вклад в накопление гелия при нейтронном облучении бериллия вносят пороговые ядерные реакции, протекающие на быстрых нейтронах. Тритий, в основном, нарабатывается по реакции, в которой участвуют тепловые нейтроны. Накопление гелия при облучении возрастает линейно с увеличением флюенса нейтронов до $6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, причем в этой области экспериментальные значения хорошо коррелируют с расчетом. В области флюенсов, превышающих $6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, наблюдается отклонение экспериментальных значений от расчетных в сторону снижения количества гелия, содержащегося в облученном бериллии. Это связано с возможным выходом гелия из материала по формирующейся сети микротрещин вследствие низкотемпературного анизотропного распухания зерен и последующего зернограничного растрескивания.

В исходном состоянии бериллий содержит примеси, присутствие которых обусловлено технологией изготовления металла. При нейтронном облучении происходят ядерные трансмутации примесей с образованием радиоактивных изотопов. Проведены расчеты возможных трансмутаций с образованием α -, β - и γ -активных изотопов, предложен способ очистки от них облученного бериллия, который заключается в его химической переработке с получением конечного продукта с остаточной активностью 5 % от первоначальной. На данный способ очистки бериллия от радиоактивных примесей получен патент РФ.

При низкотемпературном (323-473 К) нейтронном облучении в бериллии происходит образование дислокационных петель, расположенных в базисных (0001) и призматических ((10 $\bar{1}$ 0) и (11 $\bar{2}$ 0)) плоскостях. Впервые показано в данной работе, что дислокационные петли, лежащие в базисных плоскостях, относятся к вакансионному типу (рисунок 1 а), а петли, лежащие в призматических плоскостях, – междуузельному (рисунок 1 б). При температуре облучения 343 К в бериллии практически не образуются газовые пузырьки из-за низкой диффузионной подвижности гелия. Повышение температуры облучения бериллия до 473 К также ведет к образованию дислокационных петель, но, главное, резко интенсифицируется образование мелких газовых пузырьков. Размер пузырьков в теле зерна не превышает 2 нм при объемной плотности $>10^{23} \text{ м}^{-3}$. Вдоль границ зерен пузырьки имеют большие размеры (до 4 нм) и расположены в виде протяженных цепочек.

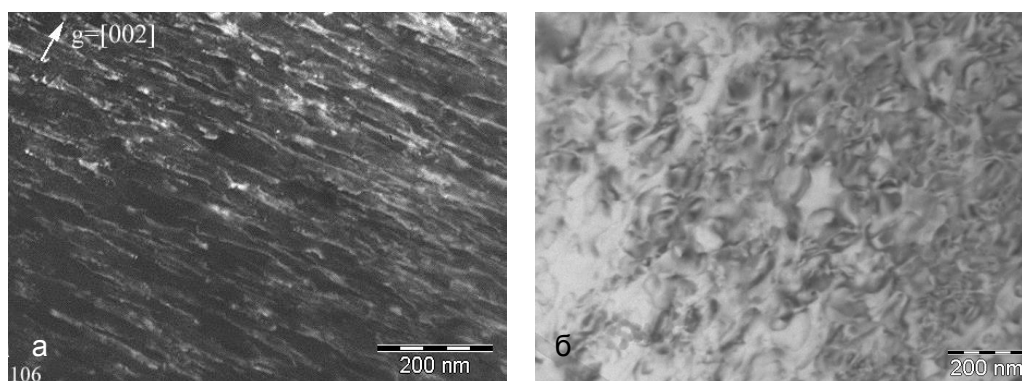


Рисунок 1. Дислокационные петли в облученном бериллии:
 а) базисные вакансионные петли; $T_{\text{обл}} = 343 \text{ K}$, $F = 13,3 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$.
 б) призматические междуузельные петли; $T_{\text{обл}} = 343 \text{ K}$, $F = 6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$.

Высокотемпературные одночасовые отжиги бериллия, облученного при температуре 343 К, приводят к значительному увеличению размера дислокационных петель – до сотен нанометров и значительному снижению их объемной плотности. При температуре отжига 773 К большинство дислокационных петель эволюционирует в дислокационную сетку или распадается на отдельные дислокации (рисунок 2 а). В то же время при этой температуре отжига появляются первые мельчайшие газовые пузырьки разрешаемые методом ТЭМ (~1 нм) (рисунок 2 б). При дальнейшем увеличении температуры отжига от 873 К до 1273 К газовые пузырьки увеличиваются в размерах до десятков и сотен нанометров со значительным снижением плотности распределения в объеме образца.

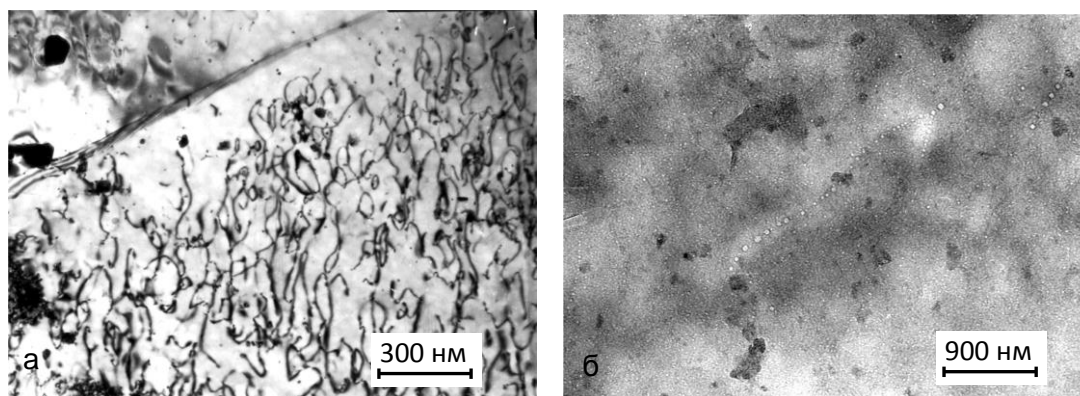


Рисунок 2. Дислокационная сетка (а) и мелкие газовые пузырьки (б) в бериллии после облучения при температуре 343 К до флюенса нейтронов $2,5 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ и последующего отжига при 773 К в течение 1 часа.

Облучение бериллия при температуре 673 К до флюенса нейтронов $16 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ приводит к образованию плоских газовых пор (дисков), имеющих шестиугольную форму в базисной плоскости (0001) (рисунок 3 а) и практически плоского прямоугольника в перпендикулярном направлении (рисунок 3 б). Диаметр пор внутри зерна достигает 50 нм при высоте 5-10 нм и плотности $8,5 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$. На границах присутствуют крупные газовые пузырьки, размер которых достигает 400 нм. Дальнейшее увеличение температуры облучения с 686 К до 968 К не изменяет принципиальным образом морфологию газовых пор, изменяется лишь диаметр и высота пор, а также соотношение этих размеров. В частности, газовые поры в бериллии, облученном при температурах 686 К и 753 К, имеют

сравнительно малые диаметры (5-20 нм), которые изменяются в узком интервале. При более высоких температурах облучения 861 К и 968 К размер пор имеет в несколько раз большую величину (40-140 нм) с широкой областью распределения по размерам. Используя ТЭМ-исследования в высоком разрешении, определена кристаллографическая ориентация граней шестигранной поры (рисунок 4).

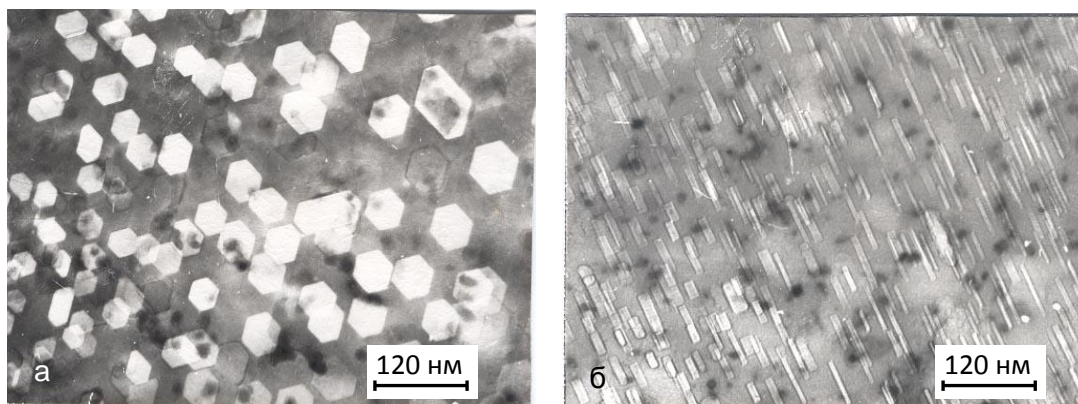


Рисунок 3. Микроструктура бериллия после облучения при температуре 673 К до флюенса нейтронов $16 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$: а) шестигранные плоские поры в теле зерна, вид в направлении [0001]; б) шестигранные плоские поры, вид в плоскости базиса (0001).

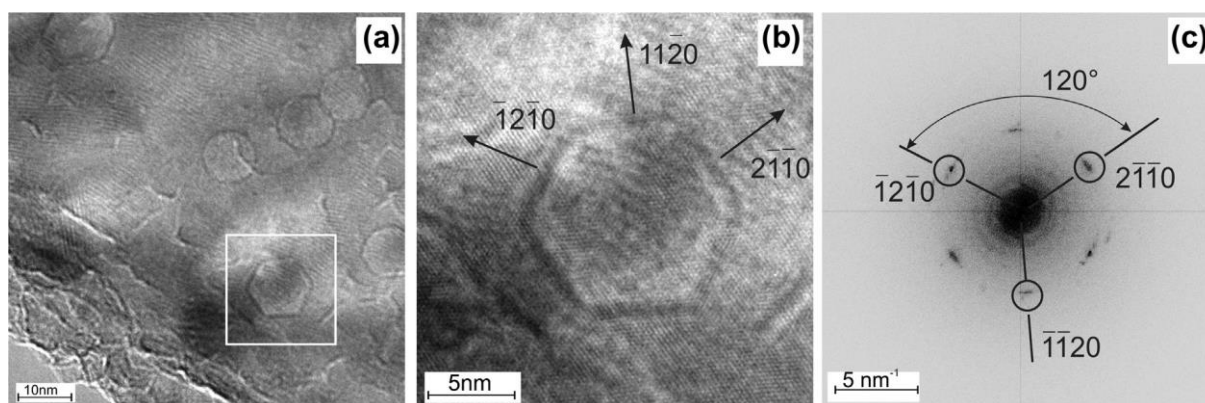


Рисунок 4. Изображение высокого разрешения шестигранной поры диаметром 8 нм в базисной плоскости (0001) в бериллии, облученном при температуре 686 К до флюенса нейтронов $6,5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$: а) общий вид выбранной поры; б) кристаллографическая ориентация граней поры; в) изображение Фурье-преобразования данной кристаллографической ориентации.

Отношение диаметра к высоте шестигранной поры не остается постоянным, а несколько изменяется в зависимости от температуры облучения. Для температур 686 К и 753 К это отношение находится в области от 2 до 3, для температуры 861 К оно возрастает до 4,7. Это означает, что при температуре 861 К размер пор вдоль базисной плоскости (0001) возрастает значительно быстрее, чем в перпендикулярном направлении [0001]. Соответственно, можно предположить, что ускоренная диффузия гелия в бериллии в области температур 770-830 К начинается в первую очередь вдоль базисной плоскости, что отражается в сравнительно большем росте диаметра пор, чем их высоты. Дальнейшее увеличение температуры облучения до 968 К ведет к снижению отношения $D_{\text{ср}}$ к $H_{\text{ср}}$ опять до значения между 2 и 3, что свидетельствует об ускорении диффузии гелия вдоль направления [0001], то есть о выравнивании диффузионной подвижности гелия в бериллии в различных кристаллографических направлениях. Сравнение

полученного в работе отношения диаметра к высоте пор (2-3) с теоретическим отношением D/H для ГПУ-решетки бериллия (1,3) показывает, что для пор это отношение значительно выше. Это может означать, что базисная плоскость в бериллии является наиболее предпочтительной для конденсации трансмутированных атомов гелия в процессе облучения, в результате чего морфология поры отклоняется от теоретической геометрии ГПУ-решетки бериллия.

Металлический бериллий в большинстве случаев изготавливается методами порошковой металлургии (горячее прессование или выдавливание) из бериллиевого порошка, поэтому в отличие от литого металла в структуре бериллия на границах всегда присутствуют несплошности или поры. В нашем случае бериллий изготовлен методом горячего выдавливания. Такой бериллий характеризуется значительной кристаллической анизотропией зеренной структуры относительно оси выдавливания, в частности, зерна вытянуты в направлении вдоль оси. Размер пор составляет 1-2 мкм при размере зерна до 56 мкм. Высокодозное нейтронное облучение при температуре 343 К приводит к увеличению размера пор до 3-5 мкм, а также их количества на границах. К значительному большему увеличению размера пор (до 10-15 мкм) приводит облучение бериллия при более высокой температуре 473 К. При этом характер распределения пор в структуре по сравнению с исходным состоянием и облучением при 343 К принципиально не меняется.

ГЛАВА 3. ОСОБЕННОСТИ ТЕРМИЧЕСКОЙ ДЕСОРБЦИИ ТРИТИЯ И ГЕЛИЯ ИЗ ОБЛУЧЕННОГО БЕРИЛЛИЯ

Нейтронное облучение бериллия приводит к образованию в его структуре радиоактивного трития, который вместе с дейтерием является топливом для термоядерного реактора. Нарботка трития происходит в бриддерном бланкете, для чего используется литиевая керамика с высоким содержанием изотопа ${}^6\text{Li}$, служащего исходным материалом для реакции с нейтронами для накопления трития. Роль бериллия в ТЯР - размножение нейтронов, что повышает скорость наработки трития в литиевой керамике. Задача удаления образовавшегося трития из облученного бериллия заключается в необходимости очистки бериллиевых отходов к концу эксплуатации ТЯР от радиоактивного трития с точки зрения безопасного обращения при перегрузке, выгрузке, длительном хранении и других операциях с компонентами бланкета, содержащими бериллий. Термодесорбционные эксперименты, проводимые с бериллием, облученном в ядерном реакторе при параметрах, сопоставимых с эксплуатационными параметрами термоядерного реактора, позволяют выявить основные черты и закономерности поведения трития в бериллии.

Термодесорбционные эксперименты проведены на бериллиевых минисферах диаметром 0,5 мм и 1 мм, изготовленных методом вращающегося электрода и облученных в реакторе HFR при температурах 686-968 К до флюенсов нейтронов $(5,7-9,2) \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ ($E > 1 \text{ МэВ}$), что соответствует повреждающей дозе 11-19 сна и накоплению гелия и трития 1890-2950 аррт и 142-230 аррт, соответственно. Использовали две скорости нагрева образцов 0,017 К/с и 0,117 К/с. При каждом испытании проявляется только один пик выхода трития (Рисунок 5), и один – гелия (рисунок 6). Всегда гелиевый пик расположен при сравнительно более высокой температуре относительно пика выхода трития (рисунок 7). Оба пика имеют достаточно острую вершину, что свидетельствует о резком (скачкообразном) выходе обоих газов из бериллия.

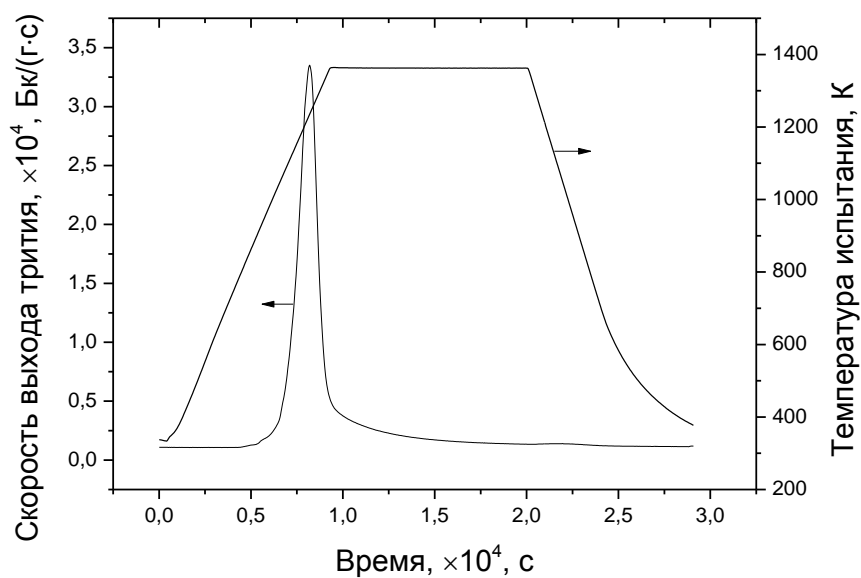


Рисунок 5. Скорость выхода трития из бериллиевых минисфер диаметром 0,5 мм, облученных при температуре 753 К до нейтронного флюенса $7,3 \cdot 10^{21}$ см⁻² (2300 аррм ⁴He, 172 аррм ³H).

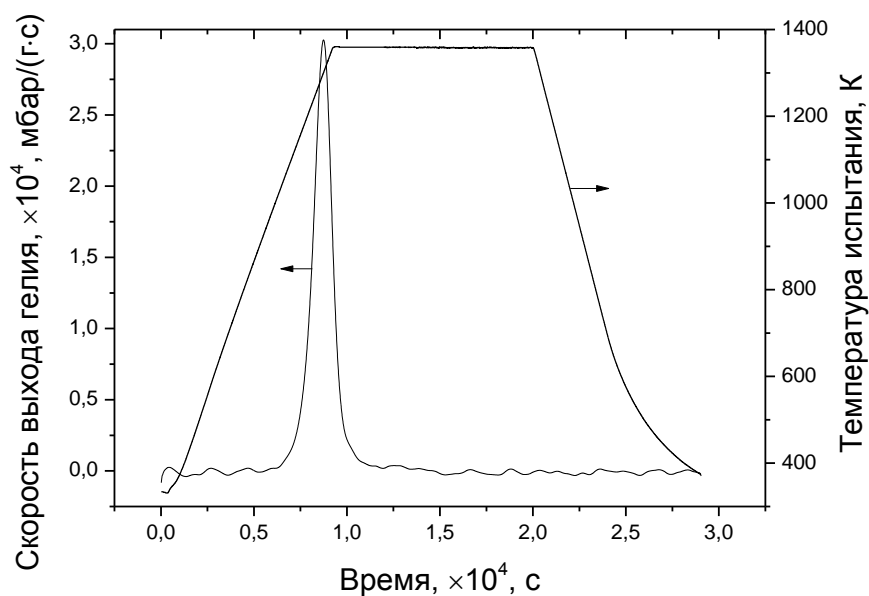


Рисунок 6. Скорость выхода гелия из бериллиевых минисфер диаметром 0,5 мм, облученных при температуре 753 К до нейтронного флюенса $7,3 \cdot 10^{21}$ см⁻² (2300 аррм ⁴He, 172 аррм ³H).

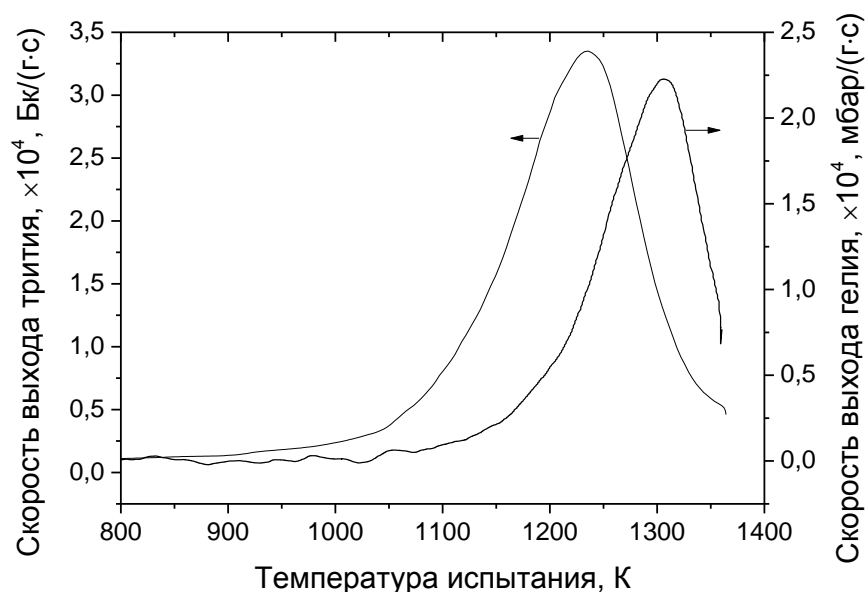


Рисунок 7. Скорость выхода трития и гелия из бериллиевых минисфер диаметром 0,5 мм, облученных при температуре 753 К до нейтронного флюенса $7,3 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ (2300 аррм ^4He , 172 аррм ^3H), в координатах „скорость десорбции-температура“.

Предварительно деформированные (до облучения) минисферы по сравнению с их свободной засыпкой при одинаковых параметрах облучения всегда показывают сравнительно более высокую скорость выхода трития, что выражается в более низких температурах тритиевых пиков (рисунок 8).

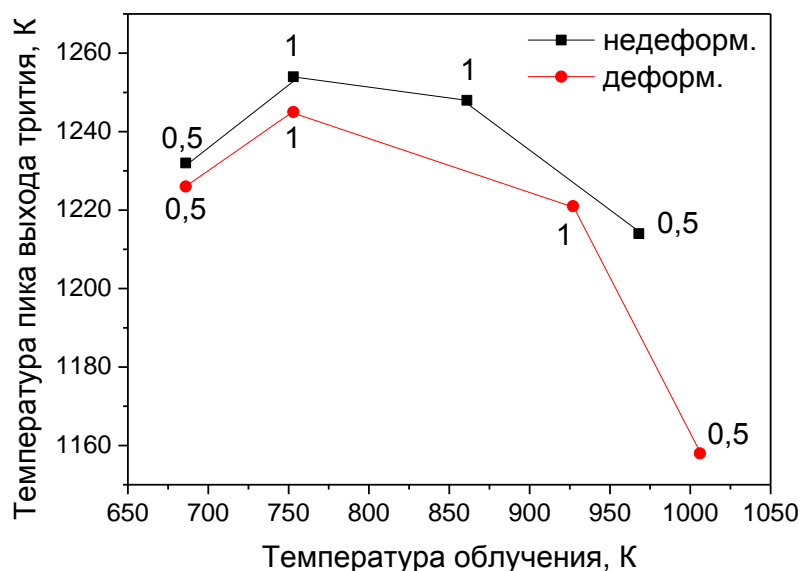


Рисунок 8. Температура пика выхода трития из облученных бериллиевых минисфер в зависимости от температуры облучения. Диаметры минисфер показаны цифрами 0,5 и 1, что означает, соответственно, диаметры 0,5 мм и 1 мм.

Экспериментально измеренный полный выход трития из минисфер существенным образом снижается с увеличением температуры облучения независимо от диаметра

минисфер (рисунок 9). Это означает, что в процессе облучения, начиная с температур 800-850 К, примерно половина образующегося трития уходит из минисфер, не задерживаясь в них. При максимальных температурах облучения (920-1010 К) в бериллиевых минисферах содержится только 5-35 % от расчетного количества образующегося в них трития при данных параметрах облучения. Причем в предварительно деформированных минисферах остаточное содержание трития значительно ниже, чем в недеформированных. Это означает, что образовавшиеся при деформировании субграницы играют положительную роль, облегчая самопроизвольный выход трансмутированного трития из бериллиевых минисфер в процессе облучения.

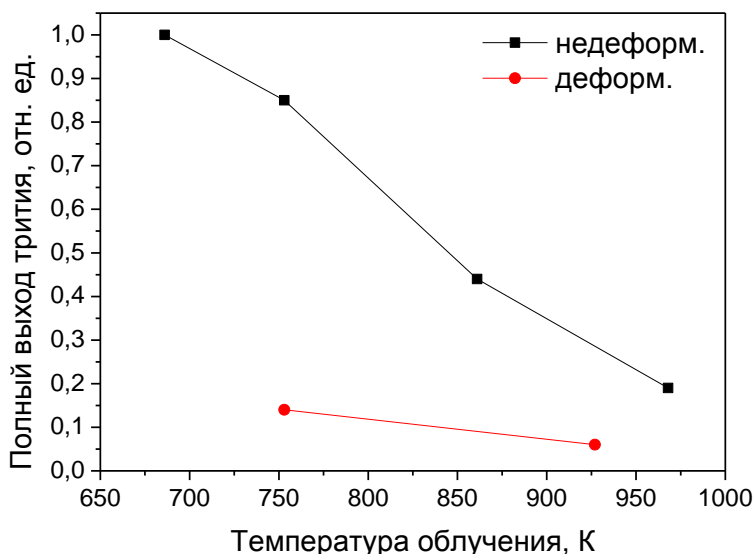


Рисунок 9. Полный выход трития из облученных бериллиевых минисфер диаметром 1 мм в зависимости от температуры облучения

Структура бериллиевых минисфер диаметром 0,5 мм после облучения при 968 К в недеформированном (рисунок 10 а) и при 1006 К – в деформированном (рисунок 10 б) состояниях значительно различаются, несмотря на близкие параметры облучения. В недеформированных минисферах видны крупные поры (~40 мкм), которые образуются, в основном, по границам зерен. В деформированных минисферах поры расположены более равномерно и имеют значительно меньшие размеры (<10 мкм). В структуре деформированных минисфер присутствуют многочисленные объемно-связанные каналы открытые к наружной поверхности. Формирование так называемой „сети открытой пористости“ полностью завершается при температурах облучения 960-1010 К. Эта сеть открытых пор существенно ускоряет выход трития из бериллия, что наблюдается на полученных зависимостях термодесорбции.

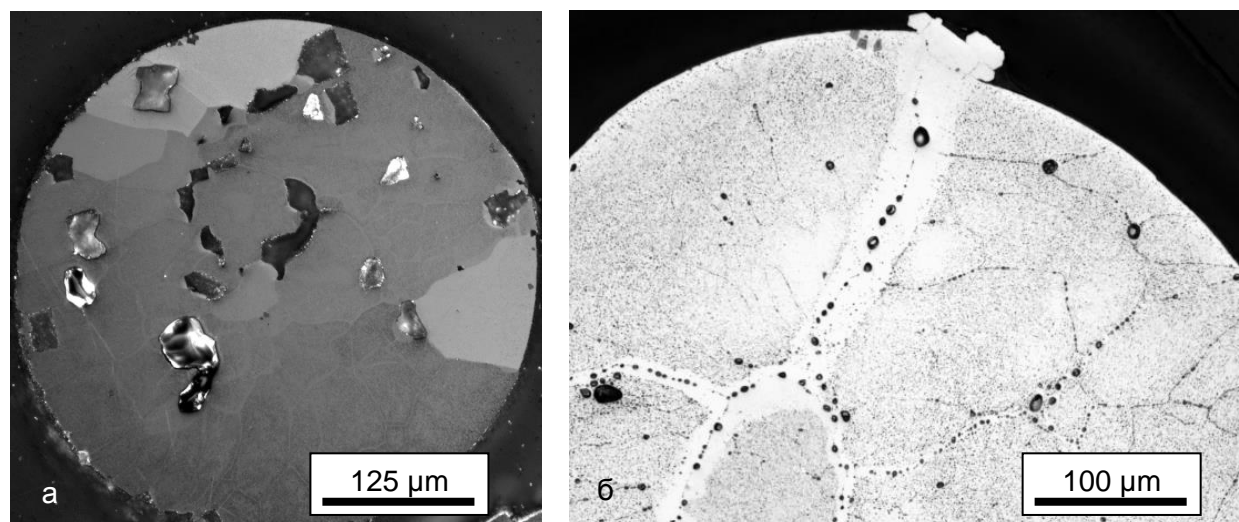


Рисунок 10. Структура бериллиевых минисфер диаметром 0,5 мм, облученных при температуре 968 К в недеформированном (а) и при 1006 К в деформированном (б) состояниях, соответственно.

Redhead в 1962 году предложил новый подход к описанию процесса термической десорбции газов. Позднее этот метод был развит в приложении к различным материалам. В рамках предложенного подхода скорость десорбции $N(t)$ может быть записана в виде:

$$N(t) = -d\sigma/dt = v_n \cdot \sigma^n \cdot \exp(-E_{des}/kT) \quad (1),$$

где v_n – постоянная скорости десорбции или частотный фактор, сек^{-1} ; σ – полный выход газа-десорбента, отн. ед.; n – порядок реакции десорбции; E_{des} – энергия активации десорбции, эВ; $k = 8,617 \cdot 10^{-5}$ эВ/К – постоянная Больцмана; t – время, сек; T – температура, К.

Рассмотрим линейный режим увеличения температуры T при термодесорбционных испытаниях:

$$T = T_0 + \beta t \quad (2),$$

где T_0 - начальная температура испытаний, К; t – время, сек; β – скорость нагрева, К/сек.

Если предположить, что E_{des} не зависит от σ (что чаще всего встречается на практике), то уравнение (1) можно продифференцировать относительно T , чтобы выделить T_m , температуру, при которой скорость десорбции максимальна, то есть температуру пика термодесорбции. Предполагая также, что для изотопов водорода (включая тритий) $n = 1$, то есть это реакция первого порядка, получаем:

$$E_{des}/kT_m^2 = (v/\beta) \cdot \exp(-E_{des}/kT_m) \quad (3).$$

Взяв натуральный логарифм от (3), получаем:

$$\ln(\beta/T_m^2) = \ln(v/\beta) - E_{des}/kT_m \quad (4).$$

Используя уравнение (4), можно определить E_{des} по рассчитанному тангенсу угла наклона прямой к оси X , варьируя β и построив зависимость $\ln(\beta/T_m^2)$ от $1/T_m$. Этот метод впервые был применен для расчета энергии активации десорбции трития из облученного бериллия в диссертационной работе.

На рисунке 11 представлена зависимость скорости выхода трития из бериллиевых минисфер диаметром 0,5 мм, облученных при температуре 753 К, от температуры испытания. Тритиевый пик образца, испытанного при более высокой скорости нагрева 0,117 К/сек, лежит правее пика образца с меньшей скоростью нагрева 0,017 К/сек. Разница между температурами этих пиков составляет примерно 100 К. Аналогичный вид имеют подобные зависимости скорости выхода трития и гелия для всех испытанных облученных бериллиевых минисфер диаметром 0,5 мм и 1 мм. Для данных термодесорбционных экспериментов были использованы бериллиевые минисферы диаметром 0,5 мм и 1 мм, облученные в реакторе HFR при температурах 686, 753, 861, 968 К до накопления 1890, 2300, 2680, 2950 аррт гелия и 142, 172, 203, 230 аррт трития, соответственно. Как отмечено выше, для определения энергии активации десорбции трития из бериллия использовались две скорости нагрева, 0,017 К/сек и 0,117 К/сек.

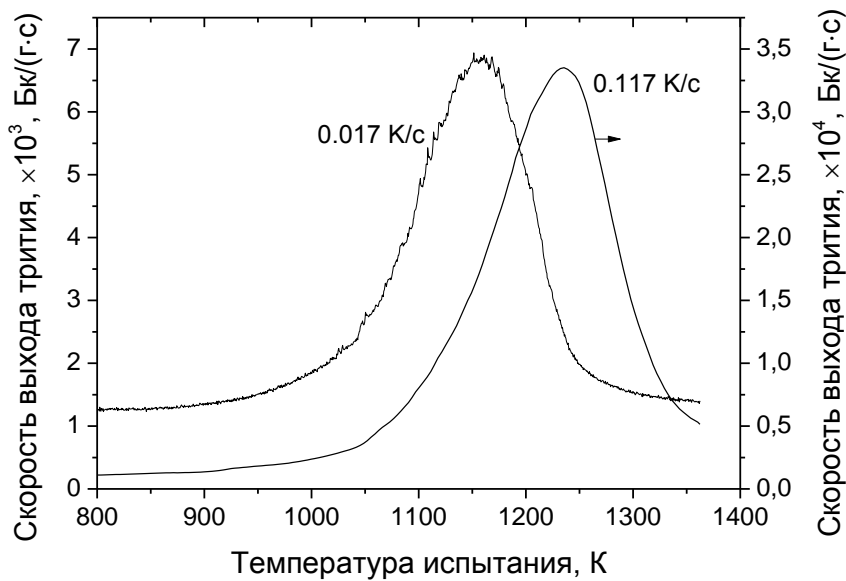


Рисунок 11. Скорость выхода трития из бериллиевых минисфер диаметром 0,5 мм, облученных при температуре $T_{\text{обл}} = 753$ К (2300 аррт ^4He , 172 аррт ^3H) в зависимости от температуры испытания.

Используя две скорости термодесорбции по положению пиков трития была рассчитана энергия активации десорбции трития из облученных бериллиевых минисфер диаметром 0,5 мм и 1 мм. Предполагая, что структурные ловушки для трития в минисферах обоих диаметров одни и те же (газовые пузырьки и поры), получено, что энергия активации десорбции трития из облученных бериллиевых минисфер составляет 2,7 эВ. По-видимому, эффективная энергия активации десорбции трития близка энергии отрыва трития от структурной ловушки. Основной химической формой состояния трития в облученном бериллии является молекула $^3\text{H}_2$. Это означает, что тритий в молекулярной форме заполняет газовые пузырьки и исходные крупные поры. На рисунке 12 представлена энергетическая диаграмма трития в облученном бериллии, из которой следует, что для того, чтобы покинуть пузырек или пору, молекула трития должна диссоциировать на два атома, поскольку тритий в молекулярной форме не может диффундировать в материале. Энергия диссоциации молекулы водорода, приходящаяся на один атом, в объеме материала составляет 2,25 эВ. Однако, согласно недавним теоретическим оценкам, диссоциация молекулы $^1\text{H}_2$ (или $^3\text{H}_2$, если не учитывать изотопный эффект) на поверхности бериллия может происходить с меньшей активационной энергией $E_{\text{diss}}=0,8$ эВ. После диссоциации, для того чтобы покинуть

пузырек или пору, атом трития должен преодолеть энергетический барьер E_A равный примерно 2,3 эВ. Это значение должно превышать энергию растворения трития в бериллии E_S , которая оценивается как 1 эВ, а также энергию миграции трития в бериллии ($E_m=0,2-0,4$ эВ). Наконец, для того чтобы покинуть минисферу, тритий должен преодолеть барьер $E_D = 0,8$ эВ (тот же самый барьер, что и для диссоциации молекулы трития при адсорбции, но на этот раз в обратную сторону). В дальнейшем тритий на поверхности минисферы, взаимодействуя с водородом, входящим в состав проточного газа, покидает поверхность в виде молекулы $^1\text{H}^3\text{H}$. Сравнивая значение E_A , взятое из энергетической диаграммы (2,3 эВ), со значением, полученным по результатам термодесорбционных испытаний (2,7 эВ), видим, что эти значения достаточно близки, что подтверждает правильность сделанных допущений при построении энергетической диаграммы трития в бериллии.

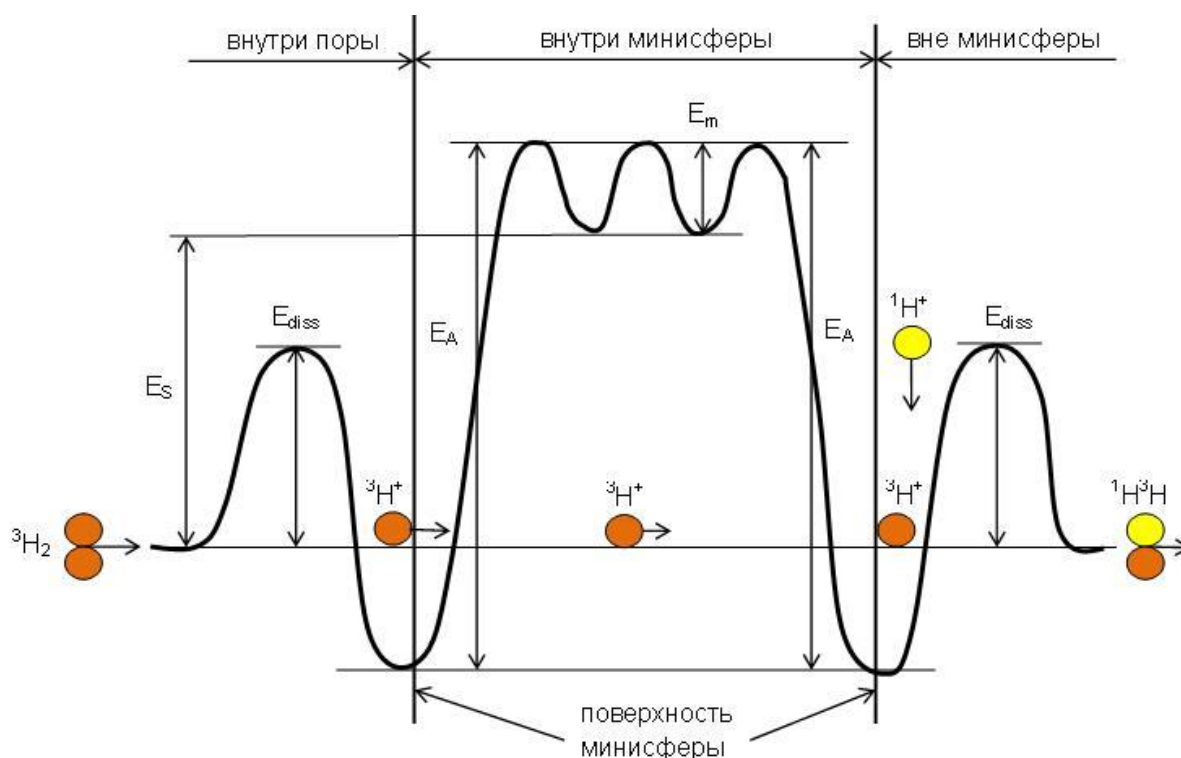


Рисунок 12. Энергетическая диаграмма трития в облученном бериллии.

Знание коэффициента диффузии трития в бериллии имеет большое практическое значение, поскольку позволяет оценить время пробега трития в металле до выхода на поверхность и последующего ухода из материала. Литературные данные о величине коэффициента диффузии трития в бериллии значительно разнятся по величине. Для определения коэффициента диффузии в нашем случае был использован метод, предложенный ранее А. Vitins, но с некоторой модернизацией. Известно, что температурная зависимость коэффициента диффузии в общем виде записывается так:

$$D = D_0 \cdot \exp(-E_D/kT) \quad (5),$$

где D_0 – предэкспоненциальный множитель, E_D – энергия активации диффузии, k – постоянная Больцмана, T – температура.

Решение диффузионного уравнения для сферы выглядит следующим образом:

$$f = 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} e^{-n^2 \pi^2 D t / r^2} \quad (6),$$

где f – доля трития, ушедшая из образца, D – коэффициент диффузии, t – время испытания, r – радиус сферы.

Для $n = 1$ и после логарифмирования соотношение (6) принимает вид:

$$\ln(1 - f) = \frac{\pi^2 D t}{r^2} - \ln \frac{\pi^2}{6} \quad (7).$$

Рассмотрим минисферы, в которых $r = 0,5$ мм. Подставляя все численные значения в (7), получаем:

$$D = \frac{\ln_1(1-f) - \ln_2(1-f)}{3,9438 \cdot 10^7 (t_2 - t_1)} \quad (8),$$

где точки (1) и (2) на зависимости скорости ухода трития от времени испытания выбираются таким образом, чтобы на этом отрезке был установившийся поток атомов трития при постоянной температуре. Такая ситуация при традиционном способе испытаний (при одной скорости нагрева в течение всего испытания) реализуется только при максимальной температуре 1373 К, когда происходит выдержка в течение 3-х часов). Поэтому был предложен новый метод термодесорбционных испытаний, а именно, метод ступенчатого нагрева, который позволяет получить коэффициент диффузии трития в бериллии во всем исследуемом температурном интервале от 373 К до 1373 К. Этот метод заключается в следующем: нагрев на 50 К со скоростью нагрева 0,117 К/сек, затем выдержка при достигнутой температуре в течение 1 часа, затем снова нагрев на 50 К, затем выдержка 1 час и т.д. до максимальной температуры 1373 К. При таком режиме нагрева на каждом уровне температур в области от 373 К до 1373 К на участке выдержки в течение 1 часа реализуется условие равномерности потока трития из образца, то есть возможна аппроксимация скорости выхода трития из бериллия линейной зависимостью. Обработка каждой из девятнадцати ступенек позволила получить зависимости коэффициента диффузии трития в бериллиевых минисферах $\varnothing 1$ мм от температуры в области 373-1373 К, которые несколько различаются в зависимости от выбранного температурного интервала.

В области температур 373-1373 К для бериллиевых минисфер $\varnothing 1$ мм, изготовленных методом REM, температурные зависимости коэффициента диффузии трития в бериллии выглядят следующим образом:

$$T = 466-572 \text{ К}, \quad D = 1,67 \cdot 10^{-12} \exp(-0,08 \text{ эВ/кТ}) \quad (9),$$

$$T = 881-984 \text{ К}, \quad D = 1,41 \cdot 10^{-11} \exp(-0,26 \text{ эВ/кТ}) \quad (10),$$

$$T = 1183-1329 \text{ К}, \quad D = 2,13 \cdot 10^{-11} \exp(-0,33 \text{ эВ/кТ}) \quad (11).$$

Сравнение полученных результатов с имеющимися литературными данными показывает в целом их хорошее соответствие.

Проведены исследования выхода трития из нескольких перспективных марок бериллия и минисфер, различающихся размером зерна и пористостью. Образцы этих материалов насыщали газовой смесью $\text{H}_2 + 500 \text{ атм } \text{T}_2$ при температуре 873 К в течение 15 часов при давлении 4 бар. После насыщения проводили термодесорбцию при скорости нагрева 0,117 К/с до температуры 1373 К с последующей выдержкой при максимальной температуре в течение 3-х часов. Анализ полученных данных показал

положительную роль границ зерен и исходной пористости в ускорении выхода трития из материала. Это связано с облегченной диффузией трития вдоль границ зерен и по полостям, каковыми являются поры.

Рассмотрим модель насыщения бериллиевых образцов тритием и последующего его ухода при термодесорбции (рисунок 13). Насыщение бериллиевого образца, например, минисферы происходит через ее наружную поверхность (рисунок 13 а). Очевидно, что подвижность трития на пути внутрь минисферы вдоль границ зерен, выходящих на поверхность, существенно выше, чем по телу прилегающих к поверхности зерен. Понятно, что тритий попадает в материал в ионизированном состоянии уже после диссоциации молекулы трития на поверхности. Таким образом, в первые минуты процесса насыщения образца тритий проникает вдоль границ через весь объем минисферы (или образца другой геометрии) и потом начинает диффундировать от границ внутрь зерен. Внутри зерен происходит захват трития структурными ловушками, такими как газовакансионные субмикроскопические комплексы или мелкие газовые пузырьки. Предполагая, что внутри зерна бериллий имеет приблизительно одинаковую способность к образованию структурных ловушек для захвата трития, общее количество поглощенного трития будет напрямую зависеть от размера зерна: чем мельче зерно, тем большая длина границ зерен, соответственно, задействована большая площадь границ для начала диффузии вглубь зерен. В этом случае, то есть в образце с минимальным размером зерна итоговое содержание трития в минисфере будет наибольшим. Обратная ситуация реализуется при термодесорбционном испытании. Здесь тритию, захваченному структурной ловушкой, предстоит обратный путь из глубины образца к поверхности. На этом пути рассмотрим две возможности (рисунок 13 б). Первая возможность – это путь напрямую к поверхности, игнорируя попадающиеся на пути границы (r_2 на рисунке 13 б). В этом случае ключевым параметром является $r_2 \sim D_{\text{образец}}/2$, где $D_{\text{образец}}$ – диаметр минисферы или другой характерный размер бериллиевого образца. Вторая возможность – достичь ближайшей границы, преодолев расстояние $r_1 \sim D_{\text{зерно}}/2$ ($D_{\text{зерно}}$ - средний размер зерна), а затем, двигаясь вдоль границ, выйти из образца. Таким образом, параметры r_1 и r_2 определяют способность образца к удержанию трития. Поэтому необходимо выяснить, какой из этих параметров (размер образца или размер зерна) более значим с точки зрения способности удержания трития конкретным образцом и маркой бериллия. Рассматривая полученные экспериментальные результаты по насыщению тритием различных образцов и марок бериллия, можно в целом заключить, что более важным является размер зерна, хотя в случае минисфер различного диаметра, изготовленных методом REM, размер минисфер также важен. Положительная роль повышенной пористости в удержании трития заключается в том, что поры – это отсутствие материала, поэтому проникновение трития сквозь пористый материал очевидно происходит легче, чем сквозь сплошной, поскольку расстояние от поры до поры меньше, чем то же самое расстояние в материале без пор.

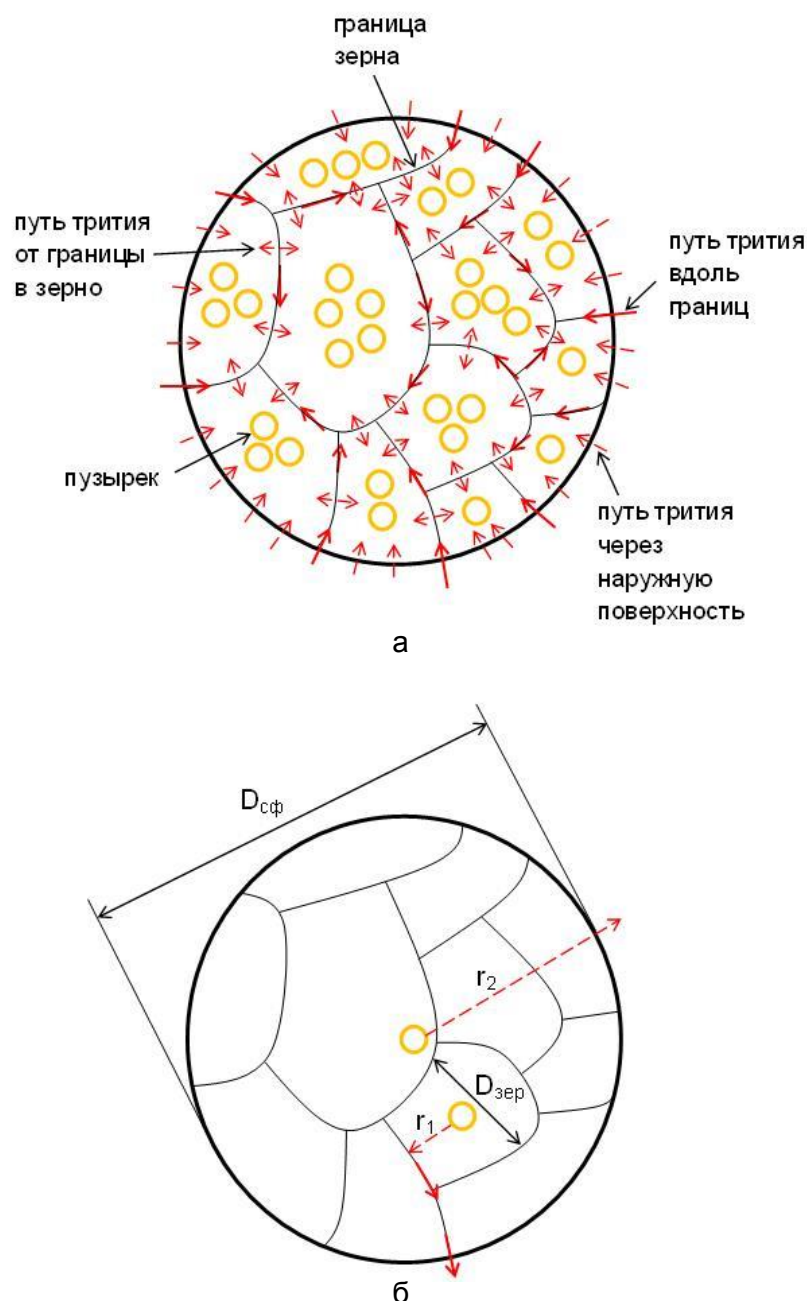


Рисунок. 13. Возможные пути трития в бериллиевую минисферу при насыщении газовой смесью трития и водорода (а) и из минисферы при термодесорбции (б).

ГЛАВА 4. ОСОБЕННОСТИ РАСПУХАНИЯ БЕРИЛЛИЯ

Радиационное распухание – это явление, заключающееся в увеличении объема материала в процессе нейтронного облучения. Понятно, что распухание приводит к проблемам в работе реакторных установок, поскольку изменение размеров компонентов активной зоны может стать критичным и нарушить технологический процесс эксплуатации облучаемых изделий. Например, распухание бериллиевых блоков отражателя или замедлителя может привести к заклиниванию блока в реакторе из-за исчерпания компенсирующих зазоров между блоками и дистанционирующими деталями. Явление распухания различных металлов и сплавов известно достаточно давно (вероятно, с середины 50-х годов 20 века), в том числе на облученном бериллии, однако до

сегодняшнего дня точное понимание структурных механизмов, лежащих в основе этого явления отсутствует.

На рисунке 14 представлена зависимость распухания бериллия от флюенса нейтронов для температуры 343 К. Распухание возрастает с увеличением флюенса нейтронов, но с различной скоростью в зависимости от величины флюенса. В области 1, до флюенса примерно $4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ распухание возрастает с максимальной скоростью и достигает максимальной величины 1,5 %. В области 2, до флюенса $10 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ скорость увеличения распухания значительно ниже; здесь максимальное распухание составляет 1,8 %. В области 3, примерно до флюенса нейтронов $15 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ скорость распухания опять возрастает до максимальной величины, максимальное распухание здесь 2,8 %. Впервые обнаруженная неравномерность скорости увеличения распухания с ростом флюенса нейтронов для различных интервалов флюенсов нейтронов требует специального обсуждения.

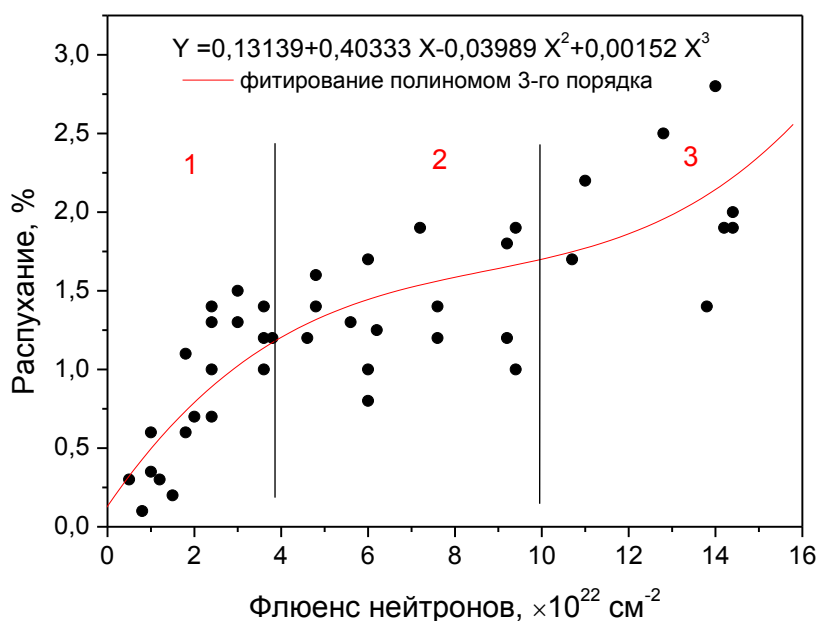


Рисунок 14. Зависимость распухания бериллия, облученного при температуре 343 К, от флюенса нейтронов.

Г.А. Серняев температуры 333-343 К относит к низкотемпературному облучению, для которого он экспериментальным путем получил следующую зависимость распухания $\Delta V/V$ от флюенса нейтронов Φ :

$$\Delta V/V = 8,2 \cdot 10^{-25} \Phi \quad (12),$$

которая носит линейный характер. Сравнение результатов, представленных в диссертации и рассчитанных по соотношению (12), показывает, что для высоких флюенсов нейтронов от $10 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1$ МэВ) и выше расчетное распухание значительно превышает полученное в нашей работе. Кроме того, следует обратить внимание, что зависимость распухания от флюенса нейтронов, приведенная в монографии Серняева, почему-то фитирована линейной зависимостью. Однако можно заметить, что для флюенсов от $1,5 \cdot 10^{22}$ до $3 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E \geq 0,85$ МэВ) (что примерно соответствует области флюенсов $(3-6) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1$ МэВ), поскольку последние превышают первые примерно в два раза) линейное фитирование некорректно, поскольку

наблюдается явное отклонение от линейности, свидетельствующее о замедлении скорости увеличения распухания. После флюенса $6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) опять возобновляется высокая скорость роста распухания. Качественно это наблюдение совпадает с полученной в настоящей работе дозой зависимостью распухания с ее разбиением на три области флюенсов нейтронов, различающихся различной скоростью роста распухания. Различие в граничных флюенсах объясняется большим разбросом результатов измерения распухания, приведенных в диссертации (что собственно всегда бывает при измерениях методом гидростатического взвешивания), а также некоторым недостатком экспериментальных точек в монографии Серняева.

Рассмотрим модель распухания бериллия, связанную с неравномерностью распухания в зависимости от дозы. Распухание бериллия при низкотемпературном облучении обычно связывается с накоплением трансмутированного гелия, который может занимать освободившиеся узлы кристаллической решетки. Поскольку из одного атома бериллия образуется примерно 2,2 атома гелия, происходит соответствующее пропорциональное увеличение объема за счет появления в решетке дополнительного атома гелия. Это так называемое «твердое» распухание бериллия. Однако в настоящей работе экспериментально обнаружено отклонение от пропорциональности накопления гелия в облучаемом бериллии, начинающееся в материале примерно с флюенса нейтронов $6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. Этому отклонению и соответствует замедление роста распухания бериллия, начинающееся при достижении флюенса $(4-6) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. В чем же причина сначала замедления, а затем вновь возрастания роста распухания на шкале нейтронных флюенсов? Г.А. Серняев в своей монографии сообщает об обнаружении микротрещин в бериллии, облученном до флюенса $(4-6) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$). Эти трещины образуются самопроизвольно, то есть безо всякого внешнего нагружения. Налицо как бы удивительное совпадение: при достижении уровня флюенса из области $(4-6) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ для нейтронов с энергией $E > 0,1 \text{ МэВ}$, во-первых, замедляется рост распухания, во-вторых, начинается отклонение от пропорциональности увеличения содержания гелия в бериллии, в-третьих, начинают образовываться в структуре многочисленные межзеренные и внутризеренные (по базисным плоскостям) микротрещины. Логичным представляется увязать между собой эти три эффекта, в частности, гелий может начать уходить из материала через развивающуюся сеть микротрещин, в результате чего начинает замедляться рост распухания. С дальнейшим увеличением флюенса нейтронов, начиная примерно с флюенса $10 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, значительный рост распухания возобновляется за счет начала лавинообразного распространения зернограничных трещин (причиной чего служит радиационный рост и анизотропное распухание отдельных зерен, приводящее к ослаблению границ. То есть при максимальных флюенсах нейтронов влияние продолжающегося накапливаться гелия на увеличении распухания бериллия проявляется опосредованно: через увеличение анизотропного распухания зерен, которое инициирует образование, раскрытие и распространение трещин по границам зерен, что и приводит к увеличению объема материала. Необходимо также отметить, что наблюдающееся значительное различие абсолютных величин распухания бериллия при высоких флюенсах нейтронов в монографии Серняева [6] и настоящей работе объясняется значительным прогрессом в развитии технологии производства бериллия в 60-х и 90-х годах двадцатого столетия. Несмотря на то, что технология производства и в прошлом, и даже в настоящее время основана на методах порошковой металлургии, качество самого бериллиевого порошка и методика его компактования существенно улучшились. Это отражается в более высокой чистоте конечного продукта, в частности, меньшем содержании хрупких частиц окиси бериллия BeO , и, соответственно, большей прочности границ зерен. Поэтому, несмотря на то, что эффекты облучения те же (накопление гелия, анизотропное распухание зерен, зернограничное растрескивание), итоговое распухание старых марок за счет лавинообразного распространения по объему

материала сети зернограничных трещин значительно выше, чем новых марок, поскольку границы в них существенно слабее и поэтому менее способны сопротивляться распространению трещин.

Увеличение температуры облучения до 473 К не изменяет качественно характера зависимости распухания бериллия от флюенса нейтронов.

На рисунке 15 представлено распухание бериллия в зависимости от температуры облучения бериллия из области от 343 К до 673 К после облучения до высоких флюенсов нейтронов. Необходимо отметить, что структурные механизмы, приводящие к распуханию бериллия при минимальной и максимальной температурах облучения здесь различны: при 343 К за распухание, в основном, отвечает раскрытие трещин по границам, при 673 К – объемное образование газовых пузырьков и пор. Промежуточная температура 473 К, вероятно, как раз и занимает промежуточное положение, когда раскрытие зернограничных трещин соседствует с массовым образованием газовых пузырьков в теле зерна.

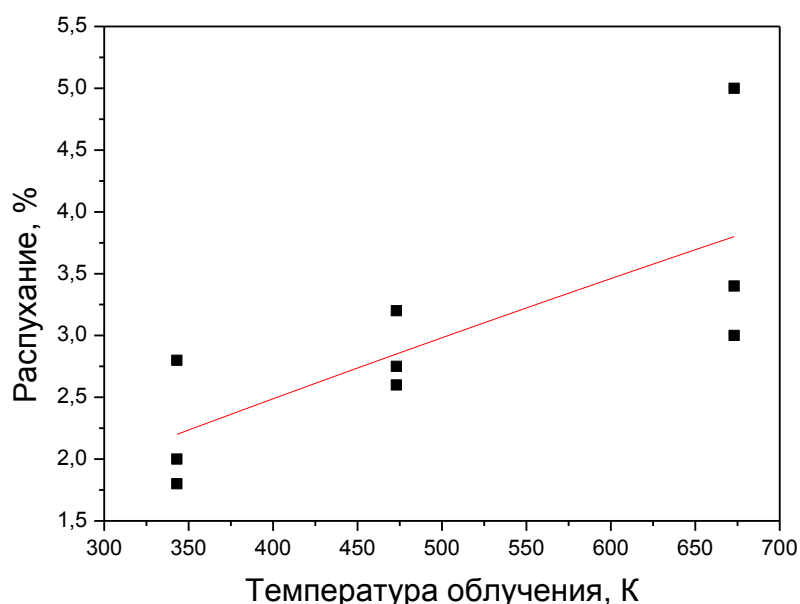


Рисунок 15. Зависимость распухания бериллия от температуры облучения в области 343-673 К для флюенсов нейтронов $(10-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$.

На рисунке 16 представлена зависимость распухания от температуры облучения бериллия, облученного до низких флюенсов нейтронов, не превышающих значения $2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. До температур 800-850 К распухание бериллия не превышает 2 %. Дальнейшее увеличение температуры облучения приводит к резкому росту распухания, которое в области 900-1000 К достигает 18 %. Здесь же нанесены точки величин распухания, полученные в диссертации. Как видно, данные точки удовлетворительно ложатся на кривую распухания, построенную по литературным данным.

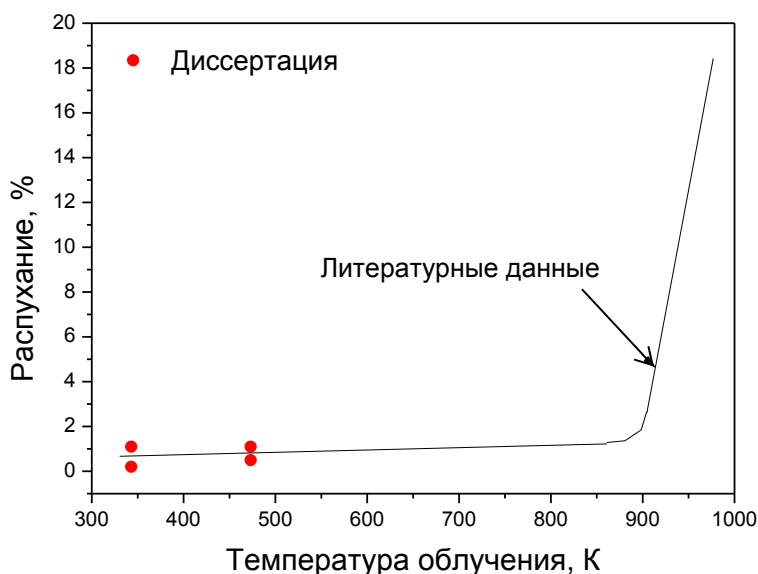


Рисунок 16. Зависимость распухания бериллия от температуры облучения в области температур 343-1073 К и флюенсов нейтронов до $2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$.

Одним из способов исследования и моделирования распухания и изменения других свойств бериллия при высоких температурах является использование высокотемпературных отжига бериллия, облученного при низкой температуре (поскольку низкотемпературное облучение образцов бериллия и других металлов сравнительно проще организовать технически). Влияние высокотемпературного отжига на распухание бериллия, облученного при температуре 343 К в реакторе СМ, представлено на рисунке 17. До температур отжига 800-900 К распухание бериллия находится в районе 2 %. Дальнейшее увеличение температуры отжига ведет к резкому возрастанию распухания 800-900 К, достигающего 22 % при максимальной температуре отжига 1273 К. Полученные результаты соответствуют литературным данным по распуханию облученного при низкой температуре бериллия и потом отожженного при высокой температуре. Очевидно, что полученная зависимость очень похожа на зависимость распухания от температуры облучения, представленная на рисунке 16. В частности, практически при одних температурах (800-900 К) начинается резкое увеличение распухания. Несколько более высокое распухание при низких температурах облучения и низких и высоких температурах отжига объясняется сравнительно более высоким нейтронным флюенсом и, соответственно, большим накоплением гелия в отожженных после низкотемпературного облучения образцах бериллия (по сравнению с высокотемпературным облучением). При этом необходимо отметить, что эти две ситуации достаточно схожи, несмотря на принципиальное различие в длительности высокотемпературных отжига и облучения: если отжиг проводился в течение одного часа, то длительность облучения, например, до флюенса $2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ составляла примерно один год. Из этого можно заключить, что температура как облучения, так и отжига является более значимым фактором, влияющим на распухание бериллия, чем длительность этих видов испытаний. С точки зрения эволюции микроструктуры, начиная с температуры отжига 750 К, в бериллии существенно возрастает диффузионная подвижность точечных дефектов, в том числе, гелиевых атомов. В результате атомы гелия получают возможность перемещаться в решетке на значительные расстояния, сопоставимые с размером зерна. В результате происходит коалесценция и значительный рост газовых пузырьков за счет потока вакансий от внешней поверхности образца и границ зерен.

Итоговый высокий уровень распухания после отжига при температурах выше 800-900 К обеспечивается как зернограничными пузырьками, так и внутризерненными, имеющими размеры, часто превышающие десятки и даже сотни нанометров.

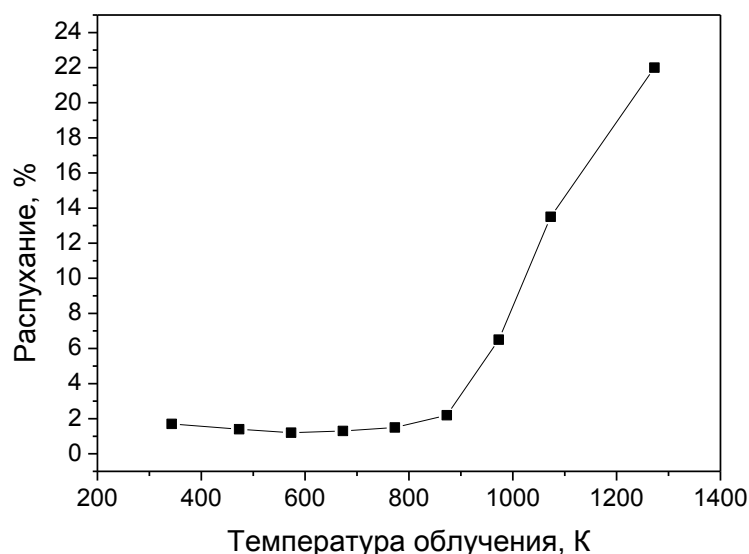


Рисунок 17. Зависимость распухания от температуры одночасового отжига бериллия, облученного при температуре 343 К до флюенса нейтронов $5,7 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$.

В процессе исследований бериллия, облученного в реакторе BR2, был обнаружен эффект различной скорости образования гелиевых пор или пузырьков в областях у поверхности отжигаемых образцов и в их глубине (например, в центре образца). Например, в состоянии после облучения пор в структуре мало, но последующий отжиг при температуре 1123 К в течение 0,5 часа (рисунок 4.8 б) приводит к значительному увеличению их количества, но лишь у поверхности образца. Увеличение длительности отжига до 10 часов при той же температуре 1123 К ведет к еще более значительному увеличению количества пор, но теперь уже в глубине образца пор значительно больше, чем вблизи поверхности. То есть увеличение длительности отжига при той же температуре 1123 К приводит к смене тенденции ускоренного накопления пор близ поверхности на ускоренное накопление в глубине образца. Этот эффект может быть объяснен влиянием поверхности образца, заключающемся в ускоренной диффузии гелия к поверхности в потоке встречных вакансий (обратный эффект Киркендалла). То есть поток вакансий с внешней поверхности достигает центральных областей образца лишь после длительности отжига 10 часов при температуре 1123 К. Увеличение температуры отжига до 1273 К приводит к общему значительному повышению размера и плотности газонаполненных пор в глубине образца.

Теория распухания реакторных материалов была предложена в 50-х годах, позднее развита и для бериллия. Из этой теории следует, что параметры гелиевых пор определяют распухание бериллия. Как правило, для измерения распухания облученных материалов используют методы измерения геометрических размеров образцов до- и после облучения для последующего расчета увеличения их объема или гидростатического взвешивания для измерения уменьшения плотности, что затем легко пересчитывается на увеличение объема. Однако эти измерения дают усредненную величину распухания на весь объем исследуемого образца. Однако, как следует из наших результатов, количество и плотность газовых пор, а следовательно и распухание различных областей бериллиевого образца, в частности, у поверхности и в глубине

может существенно различаться. В таблице 2 представлено расчетное распухание бериллия, облученного в реакторе BR2, и затем отожженного при высоких температурах, откуда следует, что распухание отожженного бериллия может достигать значительных величин порядка десятков процентов как вблизи поверхности образца (~20 % после отжига при 1123 К в течение 1 ч), так и в его глубине (при более высоких температурах и длительностях отжига). В частности, максимальное распухание 193,9 % зафиксировано при максимальных параметрах отжига (1273 К, 10 ч), достигнутых в работе. При этом распухание в поверхностных слоях составляет только 23,3 %. Необходимо отметить, что в литературе информация о таком высоком распухании бериллия и других металлов отсутствует.

Таблица 2. Расчетное распухание бериллия, облученного в реакторе BR2 при температуре 323 К до флюенса нейтронов $4,67 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 1 \text{ МэВ}$), и послерадиационных отжигов.

| Характеристика образца | Распухание, % | |
|---------------------------|---------------|---------------|
| | в глубине | у поверхности |
| после облучения | 2,2 | 2,2 |
| обл. + отж. 1123 К, 0,5 ч | 2,8 | 8,9 |
| обл. + отж. 1123 К, 1 ч | 2,1 | 20,0 |
| обл. + отж. 1123 К, 5 ч | 8,8 | 11,0 |
| обл. + отж. 1123 К, 10 ч | 52,0 | 12,2 |
| обл. + отж. 1273 К, 0,5 ч | 36,3 | 4,6 |
| обл. + отж. 1273 К, 1 ч | 71,2 | 6,6 |
| обл. + отж. 1273 К, 5 ч | 77,3 | 21,2 |
| обл. + отж. 1273 К, 10 ч | 193,9 | 23,3 |

В процессе горячего выдавливания бериллия формируется анизотропная кристаллическая текстура в виде вытянутых вдоль оси выдавливания зерен. При этом в деформированном зерне кристаллографические ячейки переориентируются таким образом, что базисные плоскости (0001) выстраиваются преимущественно параллельно оси выдавливания, а ось «с» и призматические плоскости, соответственно, - перпендикулярно ей. Это приводит к анизотропному изменению размеров облученных бериллиевых образцов, вырезанных вдоль и поперек оси, причиной чего является различное распухание бериллия в разных кристаллографических направлениях. Проведя аналогии с поведением циркония под облучением и принимая во внимание, что цирконий также имеет анизотропную решетку ГПУ, можно предположить, что в бериллии так же, как и в цирконии, в данном случае наблюдается явление радиационного роста. В пользу этого предположения свидетельствует факт образования в бериллии дислокационных петель вакансионного типа в базисной плоскости, междоузельных петель – в призматических плоскостях, что наблюдалось ранее в цирконии. Собственно, формирование в цирконии под облучением дислокационных петель различного типа в базисной (вакансионные петли) и призматических (междоузельные петли) плоскостях признано сегодня основной причиной явления радиационного роста циркония. Принципиальное различие циркония и бериллия в том, что в бериллии, в отличие от циркония, под облучением образуется большое количество газовых атомов (гелия и

третия), поэтому в бериллии радиационный рост не может проявиться в чистом виде (когда изменяются только размеры образца без увеличения его объема). Здесь наблюдается суперпозиция двух явлений – радиационного распухания и роста, причем и распухание является анизотропным при анизотропной конденсации газовых атомов на различных кристаллографических плоскостях.

ГЛАВА 5. ИЗМЕНЕНИЕ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ БЕРИЛЛИЯ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ

К началу наших исследований в литературе отсутствовали данные по влиянию облучения на теплопроводность металлического бериллия. Это достаточно странно, поскольку к концу девяностых годов двадцатого века бериллий уже не менее тридцати лет использовался в исследовательских ядерных реакторах в качестве материала отражателя или замедлителя нейтронов. Возможно, отсутствие таких данных по бериллию связано с тем, что поначалу в исследовательских реакторах в этом качестве вместо металлического бериллия использовалась окись бериллия BeO , к тому же имеющая в необлученном состоянии аномально высокую для неметаллов теплопроводность (при 343 К $170\text{-}220 \text{ Вт}/(\text{м}\cdot\text{К})$, что примерно равно теплопроводности металлического бериллия). Вероятно, при подобных входных данных представлялось нецелесообразным проводить дорогостоящие исследования теплопроводности облученных окиси бериллия и металлического бериллия, поскольку запас величины теплопроводности до облучения велик и казалось маловероятным его значительное снижение под облучением.

Теплопроводность является важным физическим свойством бериллия, которое может влиять на работоспособность бериллиевого блока при эксплуатации в ядерном реакторе. В частности, от величины теплопроводности зависит температура во внутренних областях блока, отдаленных от наружной поверхности, омываемой водяным теплоносителем. Вследствие радиационного энерговыделения при затрудненном теплоотводе (что произойдет при снижении теплопроводности) температура внутренних областей возрастет. Это приведет как к изменению характера радиационного повреждения микроструктуры бериллия из-за общего повышения диффузионной подвижности компонентов микроструктуры, так и к появлению дополнительных внутренних термических напряжений из-за разности температур между поверхностью и внутренними областями блока. Очевидно, что высокие внутренние напряжения способствуют облегченному зарождению и распространению трещин, которые в конечном итоге могут привести к разрушению бериллиевого блока. Собственно говоря, именно обнаруженное самопроизвольное растрескивание бериллиевых блоков отражателя и замедлителя исследовательских реакторов СМ и МИР привело к началу реализации в конце девяностых годов обширной российской программы исследований облученного бериллия.

Основным эффектом облучения как для образцов, вырезанных вдоль, так и поперек оси выдавливания, является значительное снижение теплопроводности во всем интервале температур измерений. Особенно велик эффект падения теплопроводности для образцов вдоль оси (рисунок 18), где уже после облучения до минимального флюенса нейтронов $0,5 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ теплопроводность снижается в среднем в 1,5-1,7 раз. Рост флюенса нейтронов приводит к дальнейшему снижению теплопроводности бериллия. Аналогичные тенденции прослеживаются и для образцов поперек оси, для которых, однако, снижение теплопроводности с ростом флюенса нейтронов происходит сравнительно медленнее до флюенсов примерно $(3\text{-}6) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, настигая образцы вдоль оси к флюенсу $8 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. Таким образом, кристаллически анизотропный бериллий

демонстрирует anomальное поведение величины теплопроводности для образцов, вырезанных вдоль и поперек оси выдавливания. В исходном состоянии образцы поперек оси имеют сравнительно более низкую теплопроводность, причем разница достигает 35 % для температуры измерений 353 К. Облучение до минимальных флюенсов $(0,5-1) \cdot 10^{22}$ см⁻² ведет к исчезновению этой разницы, а для более высоких флюенсов вплоть до $8 \cdot 10^{22}$ см⁻² образцы поперек оси имеют более высокую остаточную теплопроводность. Лишь при максимальных флюенсах теплопроводность обоих типов образцов опять становится близкой по величине. Таким образом, с увеличением флюенса нейтронов до максимальных в данной работе значений $(10-11,4) \cdot 10^{22}$ см⁻² наблюдается значительное снижение теплопроводности до величин 35-50 Вт/(м·К), то есть практически в 4-5 раз в зависимости от направления вырезки образцов. Однако положительным аспектом здесь все-таки является некоторая стабилизация величины остаточной теплопроводности при максимальных флюенсах нейтронов. При этом необходимо отметить, что наиболее существенное, резкое снижение теплопроводности бериллия происходит на начальном этапе облучения, то есть в интервале флюенсов от нуля до $(2-3) \cdot 10^{22}$ см⁻². При дальнейшем увеличении флюенса нейтронов происходит замедление накопления гелия, а также стабилизация плотности дислокационных петель, что и приводит к стабилизации теплопроводности при высоких флюенсах нейтронов.

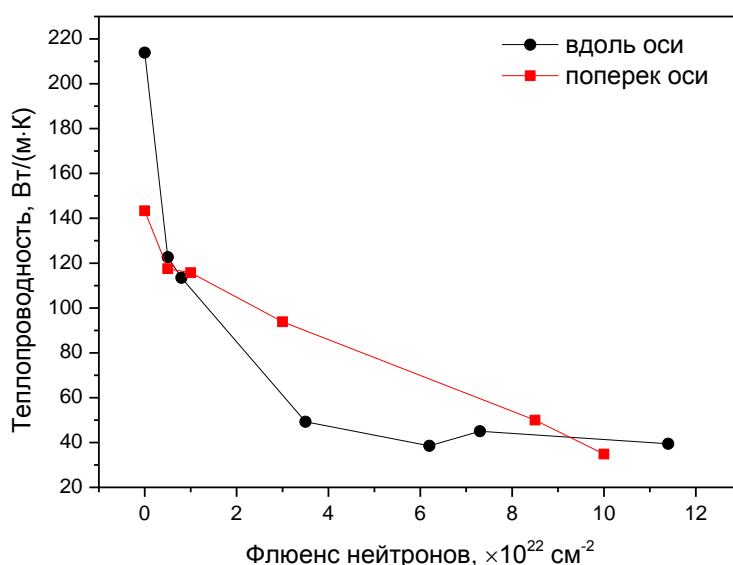


Рисунок 18. Зависимость теплопроводности образцов бериллия, вырезанных вдоль и поперек оси выдавливания, от флюенса нейтронов для температуры измерений 353 К (близкой температуре облучения 343 К).

На рисунке 19 представлена зависимость теплопроводности бериллия от температуры облучения, из которой следует, что максимальную теплопроводность бериллий имеет при максимальной температуре облучения 673 К. В исходном же состоянии, наоборот, при максимальной температуре измерений бериллий имеет минимальную теплопроводность. Таким образом, с увеличением температуры облучения с 343 К до 673 К наблюдается снижение эффекта влияния облучения на теплопроводность бериллия.

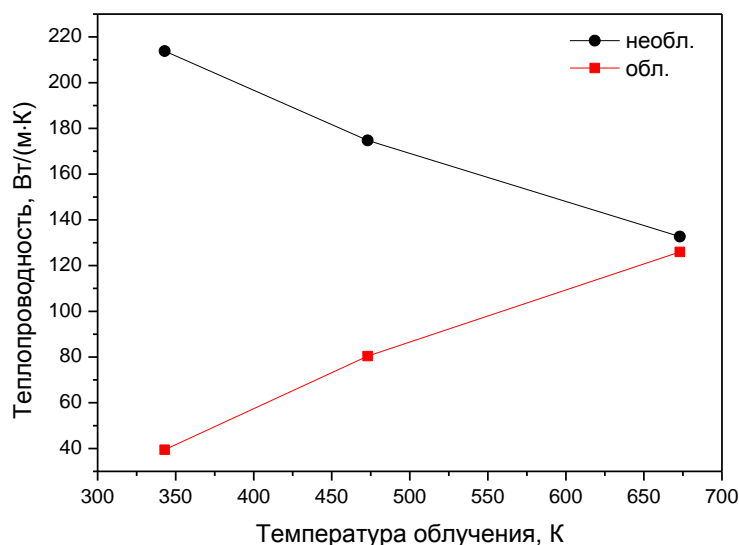


Рисунок 19. Зависимость теплопроводности необлученного бериллия для температур измерений равных соответствующим температурам облучения и облученного бериллия от температуры облучения для флюенсов нейтронов $(10-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ (измерения образцов бериллия, облученных при 673 K, проведены при температуре 473 K).

Теплопроводность бериллия для температур ниже температуры Дебая $T < Q_D$ определяется суммой вкладов фоновой и электронной составляющей:

$$\lambda = \lambda_e + \lambda_g \quad (13),$$

где λ_e , λ_g – электронная и фоновая составляющая теплопроводности, соответственно. Поэтому необходимо проанализировать относительный вклад эффекта облучения на эти две составляющие. Несмотря на то, что бериллий является типичным металлом, из-за аномально высокой температуры Дебая вклад фоновой (решеточной) составляющей в теплопроводность также аномально высок. Перенос тепла с позиций фоновой теории можно представить как распространение энергии посредством движения фронта упругой тепловой волны смещения, который распространяется в твердом теле со скоростью звука. То есть в твердом теле существует газ фононов, представляющих собой некие квазиупругие частицы, которые движутся в виде упругих волн или колебаний кристаллической решетки. Из кинетической теории газов (к газу можно условно отнести и газ фононов) известно соотношение для λ_g :

$$\lambda_g = 1/3 \cdot d_{ph} \cdot c_{ph} \cdot v_{зв} \cdot l_{ph} \quad (14),$$

где d_{ph} – плотность фоновый газа, c_{ph} – теплоемкость фоновый газа, $v_{зв}$ – скорость звука в веществе, l_{ph} – средняя длина свободного пробега фононов. Из соотношения (14) следует, что величина фоновой теплопроводности прямо зависит от длины свободного пробега фононов l_{ph} , то есть от расстояния между центрами рассеяния в кристаллической решетке бериллия.

Если же рассмотреть электронную теплопроводность λ_e , типичную для металлов, то выражение (14) принимает несколько иной вид:

$$\lambda_e = 1/3 \cdot d_e \cdot c_e \cdot l_e \cdot V_T \quad (15),$$

где d_e - плотность электронного газа, c_e – теплоемкость электронного газа, l_e – средняя длина свободного пробега электрона, $V_T=(3kT/m_e)^{1/2}$ – тепловая скорость, включающая постоянную Больцмана k , температуру T , массу электрона m_e . Как следует из (15), и здесь ключевой является величина свободного пробега l_e , на этот раз электрона.

Нейтронное облучение сильно повреждает структуру бериллия, то есть вносит в нее радиационные дефекты. В рассматриваемой области температур облучения от 343 К до 673 К это междоузельные и вакансионные кластеры, дислокационные петли, комплексы газовых атомов гелия и трития, газовые поры, пузырьки и т.д. Эти дефекты являются радиационно-индуцированными центрами рассеяния, появляющимися в структуре бериллия при облучении. Среднее расстояние между этими дефектами (или объемная плотность дефектов) может быть условно принято за длину свободного пробега как фона, так и электрона. При этом необходимо понимать, что подобные рассуждения являются лишь качественными, достаточно утрированными соображениями, которые могут помочь только в принципиальном понимании роли радиационных дефектов в изменении теплопроводности бериллия под облучением. Принципиальное понимание же заключается в том, что объемная плотность образующихся радиационных дефектов в бериллии (как собственно и в других металлах) обратно пропорциональна температуре, то есть с увеличением температуры облучения объемная плотность снижается. В частности, для бериллия с увеличением температуры облучения от 343 К до 673 К резко падает объемная плотность дислокационных петель (которые видны методом ТЭМ) и снижается плотность мельчайших газовакансионных кластеров, которые эволюционируют в газовые пузырьки, увеличивая с ростом температуры свой размер до уровня разрешения методом ТЭМ (~1 нм). Поэтому увеличение температуры с 343 К до 673 К приводит к снижению эффекта влияния облучения на теплопроводность бериллия. Предположительно данное заключение верно для температур облучения $T_{обл} < Q_D$, хотя безусловно это требует прямой экспериментальной проверки. При этом необходимо понимать, что в реальном кристалле механизмы рассеяния для фононной и электронной теплопроводности в соответствии с соотношениями (14, 15) взаимосвязаны, и четкое разделение влияния различных факторов на каждую составляющую теплопроводности, а в конечном итоге на интегральную величину теплопроводности бериллия в рамках сложившихся в настоящее время теоретических воззрений затруднительно.

Из литературы известно соотношение для фононной теплопроводности металлов и сплавов при температурах выше комнатной, которое в первом приближении носит универсальный характер:

$$\lambda_g = 572 \cdot 10^{-8} \cdot M \cdot Q_D^8 \cdot V^{1/2} / (\gamma^2 T) \quad (16),$$

где $M = 9,012$ г/моль – атомная масса бериллия, $Q_D = 1160$ К – температура Дебая для бериллия, $V = 4,89 \cdot 10^{-6}$ м³/моль – атомный объем бериллия, $\gamma \approx 2$ – параметр несоответствия, который для большинства металлов имеет эту величину, T - температура измерений. После подстановки имеющихся значений параметров для бериллия в (16) получаем соотношение

$$\lambda_g = 285/T \text{ [Вт/(м·К)]} \quad (17),$$

которое позволяет сделать некоторые количественные оценки величины фононной теплопроводности бериллия. В частности, для комнатной температуры $\lambda_g = 97$ Вт/(м·К), что составляет 44 % от полной теплопроводности бериллия при этой температуре (220 Вт/(м·К)). Для температуры $T = 473$ К $\lambda_g = 60$ Вт/(м·К), что составляет 34 % от полной теплопроводности бериллия (175 Вт/(м·К)). Эти оценки подтверждают высказанные выше соображения о значительности относительного вклада фононов в величину теплопроводности бериллия. Такой значительный вклад фононной теплопроводности (30-

50 %) в общую теплопроводность бериллия не типичен для металлов и является следствием аномально высокой температуры Дебая. К слову сказать, для большинства металлов электронная часть теплопроводности близка к 100 % общей теплопроводности.

Известно следующее универсальное соотношение для теплопроводности корпусных сталей (легированных небольшими добавками Mn, Mo, Ni) в исходном состоянии и после нейтронного облучения, которое применимо для качественных оценок и для других металлических материалов:

$$\lambda = \lambda_e + \lambda_g = \frac{1}{A+BТ} + \frac{(\frac{\pi^2}{3})((k/e)^2)Т}{\rho+\alpha T} \quad (18),$$

где k , e – постоянная Больцмана и заряд электрона, соответственно, ρ – электрическое сопротивление при 0 К, α – коэффициент пропорциональности в температурной зависимости электрического сопротивления, A – сопротивление фоновой проводимости, которое вызвано примесями, вакансиями и другими несовершенствами решетки, $BТ$ – сопротивление фоновой проводимости, вызванное фонон-фононным рассеянием, T – температура.

Облучение при криогенных температурах должно увеличивать A и ρ в выражении (18) за счет появления точечных дефектов вакансий и междоузлий в каскадах радиационных повреждений. Однако с повышением температуры облучения происходит отжиг первичных дефектов имеющих высокую объемную плотность, с формированием структуры более крупных дефектов меньшей объемной плотности, термодинамически более выгодной и, соответственно, стабильной для данной температуры облучения (например, дислокационные петли в бериллии при 343 К). Можно отметить также, что увеличение температуры в формуле (18) снижает относительный вклад фоновой части теплопроводности, при этом электронная часть теплопроводности стремится к постоянной величине. Суперпозиция этих тенденций и определяет итоговый эффект воздействия нейтронного облучения на теплопроводность бериллия. В частности, резкое падение теплопроводности на начальной стадии облучения (до флюенсов нейтронов от нуля до $(2-3) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ вероятнее всего связано с появлением в структуре большого числа радиационно-индуцированных центров рассеяния (радиационных дефектов), что приводит к росту знаменателя в обоих слагаемых выражения (18) и, соответственно, снижению λ . Здесь центрами рассеяния являются, видимо, мельчайшие, не разрешимые методом ТЭМ скопления радиационно-индуцированных атомов гелия и трития, а также дислокационные петли. Постепенная стабилизация величины теплопроводности при дальнейшем увеличении флюенса выше $(2-3) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ связана с замедлением появления в структуре новых центров рассеяния. Поскольку накопление гелия при облучении бериллия прямо пропорционально флюенсу нейтронов вплоть до примерно $6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, то наиболее вероятно, что значимыми центрами рассеяния в облученном бериллии являются дислокационные петли. Из теории и практики физики радиационных повреждений кристаллов известна схема эволюции скоплений междоузельных атомов (или вакансий) в дислокационные петли, которая происходит по истечении некоего инкубационного периода. По истечении инкубационного периода вновь возникающие смещенные атомы в основном расходуются на образование новых дислокационных петель и только часть – на их рост. При дальнейшем увеличении флюенса нейтронов образование новых петель практически прекращается (выходит на насыщение) и основная часть смещенных атомов идет уже на рост ранее образовавшихся петель. Дозовые границы инкубационного периода, интервала роста количества петель и дальнейшего их роста со стабилизацией количества могут варьироваться от материала к материалу, но схема является универсальной, которая, вероятно, применима и к бериллию. Из этого следует понимание эффекта стабилизации уровня теплопроводности

в области высоких флюенсов нейтронов, который заключается в допущении, что основными центрами рассеяния в бериллии, облученном при низких температурах ~ 343 К являются дислокационные петли, рост количества которых постепенно выходит на насыщение с ростом флюенса. Зависимость теплопроводности от флюенса нейтронов коррелирует с этой тенденцией. При более высоких температурах облучения 473 К роль аналогичную дислокационным петлям играют уже газовые пузырьки, замедление увеличения объемной плотности которых вероятно происходит по схожей схеме.

Бериллий марки ТВ-56 изготовлен по технологии горячего выдавливания, что априори предполагает кристаллическую анизотропию относительно оси выдавливания. Образцы, вырезанные вдоль и поперек оси выдавливания, имеют не только различную величину теплопроводности в исходном состоянии (поперек оси – теплопроводность значительно ниже), но и после облучения. В частности, после облучения при температуре 473 К теплопроводность поперек оси во всем исследованном интервале флюенсов нейтронов остается ниже теплопроводности образцов вдоль оси. Более сложная картина наблюдается после облучения при 343 К, когда в значительной области нейтронных флюенсов (примерно от $2 \cdot 10^{22}$ см⁻² до $8 \cdot 10^{22}$ см⁻²) теплопроводность поперек оси превышает теплопроводность вдоль оси. Безусловно, в поликристаллическом бериллии границы зерен с находящимися на них частицами окиси бериллия BeO (которые всегда присутствуют в бериллии, изготовленном одним из методов порошковой металлургии, каковым является горячее выдавливание) могут являться дополнительными центрами рассеяния для фононов. Исходя из этой логики, теплопроводность поперек оси должна быть всегда ниже теплопроводности вдоль оси. Однако нельзя сбрасывать со счетов и электронную составляющую теплопроводности, на которую также могут влиять границы зерен, поскольку, являясь источником вакансий, границы могут способствовать образованию в окружающих зернах газо-вакансионных субмикроскопических комплексов, которые также являются центрами рассеяния как для электронного газа, так и для фононов. Дополнительную лепту в эту сложную картину формирования центров рассеяния в бериллии вносит нейтронное облучение, поскольку помимо внесения дополнительных центров рассеяния в виде радиационных дефектов, оно увеличивает диффузионную подвижность всех компонентов структуры и способствует установлению термодинамического равновесия в новых условиях. По-видимому, после облучения при 343 К в интервале флюенсов $(2-8) \cdot 10^{22}$ см⁻² общая эффективность центров рассеяния фононов и электронов в образцах поперек оси выдавливания ниже, чем в образцах вдоль оси. Это может быть связано со сравнительно более низкой эффективностью как центров рассеяния субмикроскопических газовакансионных комплексов, образующихся при этой температуре. Повышение температуры облучения до 473 К приводит к росту этих комплексов до уровня газовых пузырьков, разрешимых методом ТЭМ (~ 1 нм), что увеличивает их эффективность как центров рассеяния. Поэтому при этой сравнительно более высокой температуре теплопроводность поперек оси становится ниже теплопроводности вдоль оси.

Интересен и практически значим эффект частичного восстановления теплопроводности при использовании послерадиационного отжига при температуре, превышающей температуру облучения, обнаруженный в данной работе. Послерадиационный отжиг приводит к увеличению размера и снижению объемной плотности дислокационных петель и газовакансионных комплексов, то есть к снижению количества центров рассеяния для фононов и электронов. Обнаруженный эффект влияния отжига на восстановление теплопроводности облученного бериллия был использован при обосновании Патента РФ, реализация которого позволит повысить ресурс бериллиевых блоков замедлителя или отражателя при их эксплуатации в ядерном реакторе за счет проведения периодических отжигов для восстановления

теплопроводности и механических свойств бериллия. Иной путь увеличения ресурса бериллиевого блока отражателя или замедлителя ядерного реактора был предложен в другом Патенте РФ, который заключается в изменении конструкции бериллиевого блока путем разбиения его бериллиевого компонента на несколько частей с целью снижения перепада температур по сечению блока, что снизит, соответственно, внутренние термические напряжения, величина которых прямо зависит как от теплопроводности материала, так и разницы температур между мониторируемыми точками. Дополнительный вклад в увеличение ресурса блока вносит также возможность периодической замены наиболее повреждаемой при облучении центральной части блока на свежую.

ГЛАВА 6. ИЗМЕНЕНИЕ МЕХАНИЧЕСКИХ СВОЙСТВ БЕРИЛЛИЯ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ

С увеличением флюенса нейтронов микротвердость облученного бериллия возрастает, однако скорость возрастания зависит от температуры облучения (рисунок 20). На начальном этапе облучения, до флюенсов нейтронов из области $(1,5-6) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ микротвердость растет сравнительно с более высокой скоростью, чем при больших флюенсах. При этом даже здесь, на начальном этапе скорость увеличения микротвердости для температур облучения 343 К и 473 К значительно выше, чем для температуры 673 К. При флюенсах же превышающих $6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ это различие усиливается. Для температур 343 К и 473 К микротвердость продолжает увеличиваться с ростом флюенса нейтронов, пусть и с меньшей скоростью, для температуры же 673 К – значение микротвердости вообще выходит на насыщение и сохраняет примерно одну величину вплоть до флюенса нейтронов $16 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$.

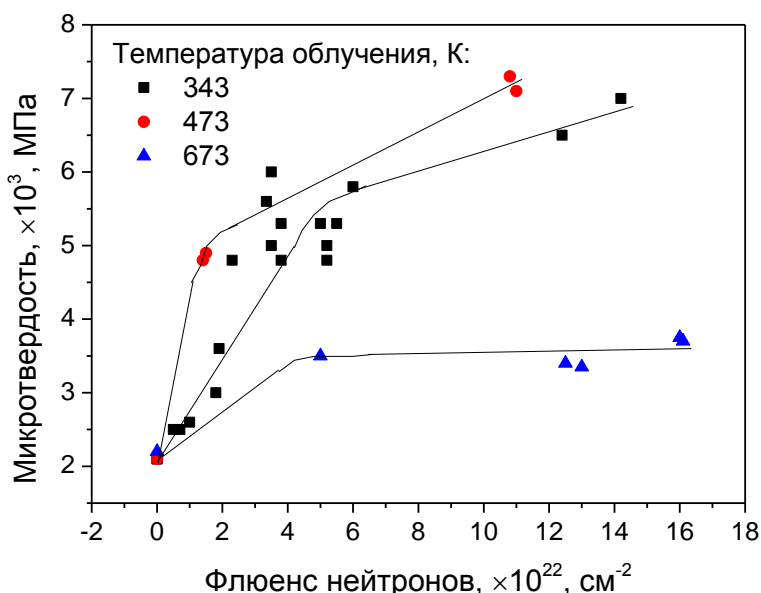


Рисунок 20. Зависимость микротвердости бериллия от флюенса нейтронов для различных температур облучения из области 343-673 К.

Увеличение прочностных свойств материала в результате воздействия облучения называется радиационным упрочнением. Соответственно, бериллий, судя по результатам на рисунке 20, радиационно упрочняется. В целом, это соответствует

данным Г.А. Серняева, представленным в его монографии, где говорится о радиационном упрочнении бериллия марки ДШГ-200, облученном при температуре 323 К до сравнительно небольших флюенсов нейтронов $(0,8-1,2) \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ ($E \geq 1,15 \text{ МэВ}$) и девяти экспериментальных марок бериллия, облученных при температурах 603-623 К до флюенса $7 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ ($E \geq 0,1 \text{ МэВ}$). Правда, прочностные свойства в этой работе определялись по результатам кратковременных механических испытаний на растяжение, что, однако, не отменяет факта присутствия радиационного упрочнения в этих данных, полученных на бериллии. Г.А. Серняев не приводит дозной зависимости радиационного упрочнения бериллия, но по литературным данным систематические исследования радиационного упрочнения на никеле и меди, облученных высокоэнергетическими протонами и α -частицами при комнатной температуре 293 К, показали, что также наблюдается ускоренный рост микротвердости на начальном этапе облучения примерно до $2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$, после чего происходит замедление роста, однако насыщение не достигается вплоть до максимальных флюенсов $2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$. В этой же работе приводится аналогичная зависимость предела текучести тех же материалов, которая качественно повторяет поведение микротвердости никеля и меди при имитационном облучении. Стоит отметить, что до настоящей работы данные о дозной зависимости микротвердости бериллия при нейтронном облучении в литературе отсутствовали.

Механизмы радиационного упрочнения в значительной степени зависят от рассматриваемого металла и его кристаллической решетки. Однако в самом общем плане сегодня уже ясно, что радиационное упрочнение является следствием образования под облучением радиационных дефектов, которые являются структурными барьерами для движущихся дислокаций. Также в некоторых материалах иногда реализуются ситуации, когда облучение приводит к сдерживанию (снижению эффективности) дислокационных источников. Можно предположить, что для облученного бериллия структурными барьерами для дислокаций, движущихся при деформации по его основным плоскостям скольжения (0001), (11-22), (10-11), (10-10) являются газовакансионные кластеры, дислокационные петли, газовые пузырьки. При испытаниях на микротвердость по Виккерсу происходит накол материала четырехгранной алмазной пирамидкой. В процессе накола происходит деформация материала (которая сопровождается движением дислокаций), в результате чего в нем образуется квадратный отпечаток, размер которого с помощью табличных коэффициентов пересчитывается на величину микротвердости. Таким образом, измерение микротвердости – это определение прочности в конкретной локальной области материала, в отличие от механических испытаний на растяжение или сжатие, когда испытывают нагрузку и деформируются макрообласти образца, включающие много зерен. Это обстоятельство важно для понимания приведенных ниже результатов кратковременных механических испытаний на растяжение и сжатие облученного бериллия.

Анализируя рисунок 20, можно заметить, что на асимптоту дозная зависимость выходит только для максимальной температуры облучения 673 К. Это может означать, что радиационное упрочнение бериллия, во-первых, снижается при увеличении температуры облучения, во-вторых, быстрее достигает насыщения с увеличением флюенса нейтронов при сравнительно более высокой температуре облучения. Последнее обстоятельство может быть связано с тем фактом, что размер газовых пузырьков возрастает с увеличением температуры облучения, объемная же плотность – падает. Это снижает эффективность пузырьков как барьеров для движущихся дислокаций в случае, если объемная плотность радиационных дефектов снижается быстрее, чем возрастает их размер:

$$\Delta\sigma_T = M\alpha\mu b(Nd)^{1/2} \quad (19),$$

где M – коэффициент Тейлора (для ОЦК и ГЦК металлов равен 3,06, для ГПУ – неизвестен), α – прочность структурного барьера, вызывающего упрочнение (дислокационные петли и газовые пузырьки или поры относятся к наиболее сильным барьерам), μ – модуль сдвига, b – вектор Бюргерса, N – плотность радиационных дефектов, d – диаметр дефектов.

До рассмотрения результатов кратковременных механических испытаний бериллиевых образцов необходимо отметить, что до облучения образцы демонстрировали от 2 до 5 % общего относительного удлинения до разрушения по результатам испытаний на растяжение и 10-20 % - при испытаниях на сжатие. После облучения все испытанные образцы разрушались абсолютно хрупко, то есть в упругой области диаграммы деформирования. Зависимость предела прочности от флюенса нейтронов по результатам испытаний на растяжение бериллиевых образцов, облученных при температуре 343 К, представлена на рисунке 21. Можно выделить три зоны, в которых предел прочности облученного бериллия ведет себя по-разному. Эти зоны существуют как для образцов, вырезанных вдоль оси, так и поперек оси выдавливания, причем для всех исследованных флюенсов нейтронов прочность образцов вдоль оси выше, чем образцов – поперек оси. Первая зона – до флюенса $(2-3) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, в которой прочность облученного бериллия резко снижается (в 2-2,5 раза); вторая зона – до флюенсов $(8-9) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, где снижение прочности замедляется; третья зона – до $(12-14) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$, то есть до максимальных нейтронных флюенсов, достигнутых в работе, где дальнейшего снижения прочности уже не происходит, то есть наблюдается стабилизация значений предела прочности на уровне 50-100 МПа.

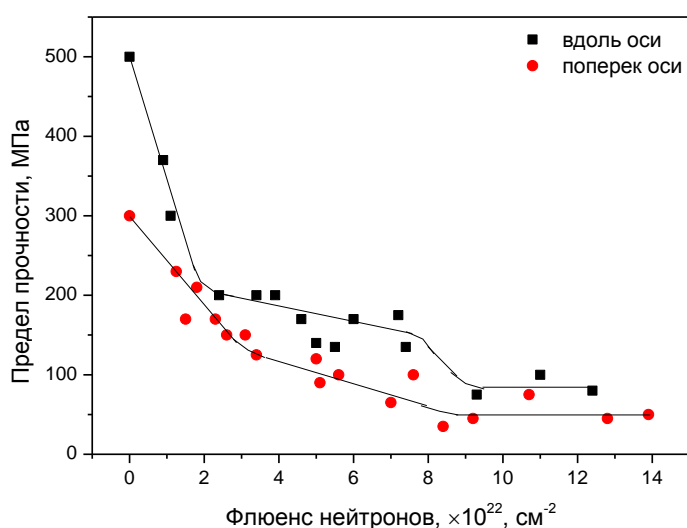


Рисунок 21. Зависимость предела прочности бериллия от флюенса нейтронов для температуры облучения 343 К при испытаниях на растяжение при комнатной температуре.

Эти результаты достаточно необычны и требуют специального обсуждения, поскольку они расходятся с большинством известных данных по влиянию нейтронного облучения на механические свойства различных металлов и сплавов. Как правило, облучение приводит к радиационному упрочнению, что, в частности, наблюдалось и при исследованиях микротвердости облученного бериллия. Здесь же наблюдается снижение прочности, то есть разупрочнение. И это происходит несмотря на то, что в бериллии под облучением образуются дислокационные петли, газовые пузырьки и другие

радиационные дефекты, которые являются эффективными барьерами для движущихся дислокаций. В чем же тут дело?

Г.А.Серняев в монографии «Радиационная повреждаемость бериллия» после проведения исследований широкого круга марок бериллия, облученных нейтронами при криогенных (80 К и 323 К) и низких (333 К) температурах, разделяет полученную дозную зависимость предела прочности бериллия на две принципиально различающиеся области в зависимости от величины накопленного флюенса нейтронов. В частности, после облучения при температуре 333 К в области флюенсов до $6,9 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-2}$ ($E \geq 0,85$ МэВ) происходит радиационное упрочнение бериллия, которое традиционно связано с торможением и закреплением дислокаций генерируемыми под облучением радиационными дефектами. Нейтронно-физический перерасчет показывает, что этот пороговый флюенс для нейтронов с энергией $E \geq 0,85$ МэВ примерно соответствует флюенсу $1,3 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ для энергий нейтронов $E > 0,1$ МэВ (каковые рассматриваются в настоящей работе без указания энергий нейтронов). При превышении этого нейтронного флюенса уже происходит разупрочнение бериллия. Это разупрочнение Г.А.Серняев связывает с явлением так называемой «радиационно-свеллинговой» анизотропии, которое заключается в анизотропном распухании отдельных зерен поликристаллического бериллия, приводящем к ослаблению границ и, соответственно, образованию и распространению зернограничных трещин. Минимальный флюенс нейтронов, при котором получены значения предела прочности бериллия на рисунке 21, составляет $(3-5) \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$. Понятно, что этот флюенс в три-четыре раза превышает величину порогового флюенса $1,3 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$, до которого в бериллии происходит радиационное упрочнение. Поэтому в нашей работе и наблюдается разупрочнение бериллия, которое постепенно нарастает с увеличением флюенса нейтронов, выходя на стабилизацию при максимальных флюенсах. Отличие с результатами, полученными Г.А. Серняевым, лишь в том, что он прогнозировал полное разупрочнение бериллия уже при достижении некоего предельного флюенса нейтронов $1,56 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E \geq 0,85$ МэВ) или в перерасчете примерно $3,1 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ для нейтронов с энергией $E > 0,1$ МэВ. Как видим, его оценки оказались чересчур пессимистичными, и предел прочности бериллия после низкотемпературного облучения бериллия даже по достижении сверхвысоких флюенсов нейтронов порядка $(12-14) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1$ МэВ) не снижается до нуля, а даже стабилизируется на уровне 50-100 МПа. Вероятно, это расхождение объясняется более высоким качеством современного бериллия по сравнению со старыми марками, исследованными Г.А. Серняевым в прошлом. Полученный результат имеет важное практическое значение с точки зрения обоснования предельного ресурса эксплуатации бериллиевых блоков в ядерном реакторе. В настоящее время ресурс блоков по технологическому регламенту составляет $6 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1$ МэВ). Как следует из представленных результатов, механические свойства на растяжение облученного бериллия не ограничивают возможное увеличение ресурса бериллиевых блоков по флюенсу нейтронов по крайней мере в два раза. При этом, различия в пределе прочности бериллиевых образцов, вырезанных вдоль и поперек оси выдавливания, сохраняющиеся и после облучения, объясняются следующим образом. В процессе изготовления бериллия методом горячего выдавливания базисные (0001) плоскости зерен преимущественно выстраиваются параллельно оси выдавливания. Это означает, что образцы, вырезанные вдоль оси, при испытаниях на растяжение склонны к деформации в основном по механизму облегченного базисного скольжения дислокаций, поскольку как раз базисная плоскость является в бериллии основной плоскостью скольжения, в которой напряжения Пайерлса-Набарро минимальны. Для образцов, вырезанных поперек оси, деформация происходит вдоль оси «с», то есть параллельно базисной плоскости. В этом случае базисное скольжение подавляется, а начинает активироваться скольжение по призматическим плоскостям $\{10-10\}$. Эта система плоскостей скольжения является для бериллия

вторичной и термически активируемой. В частности, в области комнатной температуры критическое напряжение сдвига по призматическим плоскостям ($\tau_{(10-10)}=90 \text{ МН/м}^2$) почти на порядок превышает напряжение сдвига по базисной плоскости ($\tau_{(0001)}=1,38 \text{ МН/м}^2$). Появление в структуре радиационных дефектов приводит к снижению разницы между напряжением разрушения для образцов вдоль и поперек оси, однако вплоть до максимальных нейтронных флюенсов напряжения разрушения остаются выше для образцов, вырезанных вдоль оси выдавливания.

Поверхность разрушения бериллиевых образцов после механических испытаний на растяжение носит смешанный характер. Наблюдаются как открытые границы зерен, что свидетельствует о хрупком зернограницном разрушении, так и сколы по телу зерен, то есть присутствует также хрупкое транскристаллитное или внутризеренное разрушение. На границах видны поры, в которых часто находятся частицы окиси бериллия BeO . Таким образом, разрушение облученного бериллия может происходить как по телу зерна, а именно по базисной плоскости, так и по границам, где вследствие анизотропного набухания или радиационного роста зерен друг относительно друга образуются поры, служащие зародышем зернограницных трещин. Усугубляют ситуацию частицы окиси бериллия BeO , всегда присутствующие по границам зерен в бериллии, изготовленном методом порошковой металлургии. Эти частицы обладают высокой хрупкостью и способствуют ослаблению границ и распространению по ним трещин.

Кратковременные механические испытания на сжатие бериллия, облученного при температуре 343 К, также демонстрируют его разупрочнение с увеличением флюенса нейтронов, правда на уровне значительно более высокой прочности (рисунок 22) по сравнению с испытаниями на растяжение.

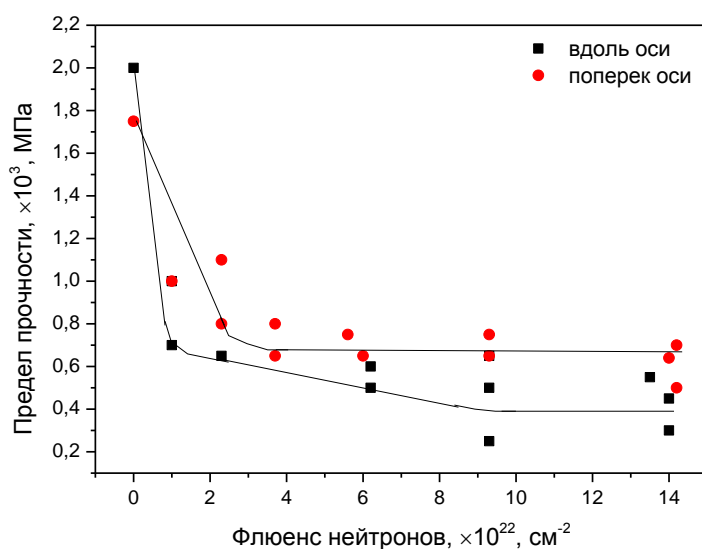


Рисунок 22. Зависимость предела прочности бериллия от флюенса нейтронов для температуры облучения 343 К при испытаниях на сжатие.

Здесь уже сложно выделить три зоны разупрочнения, скорее после резкого падения на начальном этапе наблюдается тенденция последующего монотонного снижения остаточной прочности с увеличением флюенса нейтронов от $1 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ до $14 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. Обращает на себя внимание обратная в сравнении с испытаниями на растяжение ситуация со значениями предела прочности для образцов, вырезанных вдоль и поперек оси выдавливания. При испытаниях на сжатие при комнатной температуре

образцы поперек оси после облучения всегда имеют прочность выше образцов, вырезанных вдоль оси (за исключением состояния до облучения), но также всегда разрушаются абсолютно хрупко (в необлученном состоянии имеют порядка 20 % общего относительного удлинения). При испытаниях на сжатие при ориентации испытываемого образца вдоль оси «с» (случай образца, вырезанного поперек оси выдавливания) базисное и призматическое скольжение затруднено, но инициируется скольжение дислокаций вдоль пирамидальных плоскостей (то есть промежуточных между базисной и призматическими плоскостями по углу наклона между осью «с» и базисной плоскостью) и двойникование в системе $\{10\bar{1}2\}\langle 10\bar{1}1\rangle$. Это в совокупности дает значительно более высокое критическое напряжение сдвига. При комнатной температуре τ составляет примерно 1500 МН/м^2 , что на два порядка превышает напряжение сдвига по призматическим плоскостям при испытаниях на растяжение. Вероятно, при ориентации образца вдоль оси выдавливания остается вклад в скольжение базисной и призматических плоскостей, что дает в итоге сравнительно более низкое напряжение разрушения.

При увеличении температуры облучения от 343 К до 473 К как при кратковременных испытаниях на растяжение, так и на сжатие, эффект разупрочнения бериллия сохраняется.

Бериллиевые минисферы диаметром 1 мм предполагается использовать в виде засыпки в бланкете термоядерных реакторов ITER и DEMO. В условиях ТЯР минисферы, ограниченные со всех сторон стальными стенками нейтронного умножителя, будут испытывать напряжения на сжатие вследствие термического расширения и радиационного распухания с увеличением нейтронного флюенса. Поэтому целесообразным является проведение длительных испытаний минисфер на сжатие, моделирующих условия эксплуатации в бланкете. Диаметр отпечатка от воздействия верхней и нижней деформирующих плоскостей измерятся после проведения испытания; он нужен для расчета напряжения, приложенного к минисфере в процессе испытания.

На рисунке 23 представлен пример испытания на сжатие необлученных и облученных минисфер при температуре 923 К. В зависимости от состояния (необлученное или облученное) и величины приложенной нагрузки кривые, нарисованные в координатах «деформация - время», имеют различный вид. Однако всегда кривая деформации состоит из двух частей. Первая часть ограничивается первыми тремя часами испытаний. В начале образец нагревается до температуры испытаний, затем к минисфере прикладывается требуемая нагрузка. Минисфера начинает деформироваться с высокой скоростью, в результате чего с противоположных сторон минисферы в местах контакта с подвижным штоком и основанием испытательной машины на минисфере образуются отпечатки. Далее, во второй части до достижения общей длительности испытаний 80 часов последующая деформация происходит уже с гораздо меньшей скоростью. Измеряемым параметром здесь является установившаяся скорость деформации минисферы на второй стадии испытания. Результаты длительных испытаний на сжатие минисфер диаметром 1 мм в зависимости от температуры испытаний и приложенного напряжения (полученного расчетным путем путем измерения диаметра отпечатка на испытанной минисфере) приведены на рисунке 24. Результаты существенно различаются для сравнительно более низких (698 и 798 К) и более высоких (923 и 1023 К) температур испытаний. Для низких температур деформация происходит при значительно более высоких напряжениях, чем для высоких температур. При этом облучение приводит к ярко выраженному радиационному упрочнению, что выражается в значительном увеличении напряжений и соответствующем снижении скорости деформации облученных минисфер по сравнению с необлученными. Для высоких температур напряжения деформации ниже и, соответственно, облучение не снижает

скорость деформации, а, наоборот, облученные минисферы деформируются с более высокой скоростью.

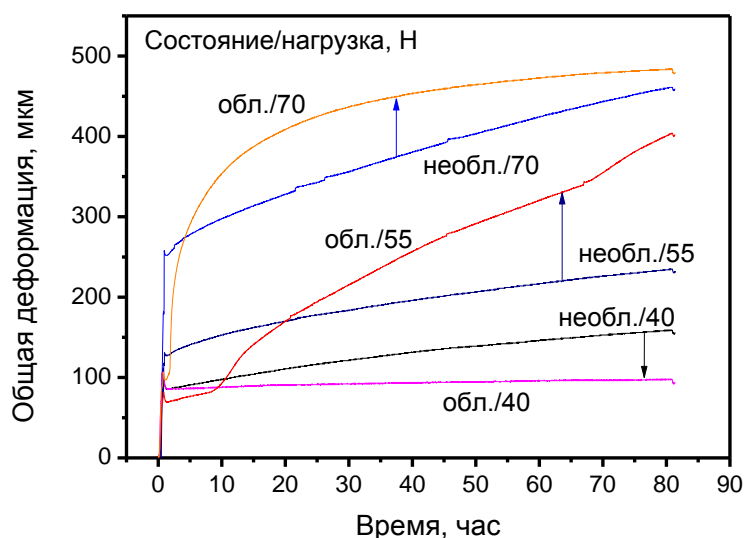


Рисунок 23. Зависимость полной деформации бериллиевых минисфер диаметром 1 мм в исходном состоянии и после облучения от длительности испытаний при температуре 923 К и различной приложенной нагрузке по испытаниям на сжатие.

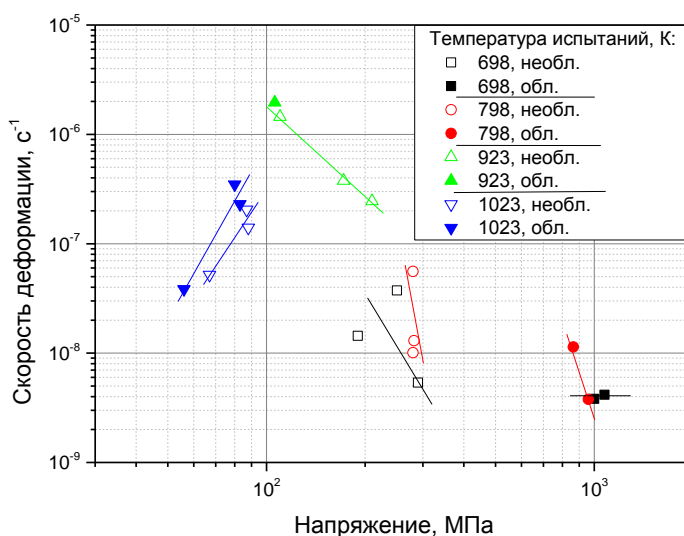


Рисунок 24. Зависимость скорости деформации необлученных и облученных бериллиевых минисфер диаметром 1 мм от приложенного напряжения при длительных испытаниях на сжатие.

Скорость распухания бериллия в данной работе составляет в зависимости от температуры облучения величину от $1,3 \cdot 10^{-10} \text{ с}^{-1}$ до $5,4 \cdot 10^{-10} \text{ с}^{-1}$. Очевидно, что для компенсации этого увеличения объема облучаемых минисфер необходима соответствующая их деформация, поскольку засыпка минисфер ограничена стальными стенками нейтронного умножителя. Из результатов длительных испытания минисфер на сжатие следует, что независимо от температур облучения и испытания скорость равномерной деформации находится в области от $2 \cdot 10^{-6} \text{ с}^{-1}$ до $2 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$. Эти величины

значительно превышают скорость распухания. Таким образом, облучаемые минисферы способны компенсировать свое распухание собственной деформацией, поскольку под облучением происходит релаксация внутренних напряжений, вызванных распуханием за счет деформации.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполненный комплекс исследований эволюции микроструктуры и физико-механических свойств бериллия, облученного при температурах 323-1006 К в области флюенсов нейтронов $(0,3-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) позволяет сделать следующее заключение:

1. Установлены закономерности влияния температуры облучения и флюенса нейтронов характерных для условий эксплуатации бериллиевых изделий в ядерном и термоядерном реакторах на параметры микроструктуры бериллия при нейтронном облучении в реакторах СМ, БОР-60, НFR, BR2 при температурах 323-1006 К до флюенсов нейтронов $(0,3-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$). Вызванная облучением эволюция микроструктуры бериллия включает радиационное накопление трития и гелия и образование дислокационных петель и газовых пор или пузырьков. Установлены температурные границы существования дислокационных петель и газовых пор в облученном бериллии. В частности, облучение бериллия при температурах 323-473 К приводит к образованию дислокационных петель двух типов: вакансионных - в базисной плоскости (0001) и междоузельных - в призматических плоскостях. Начиная с температуры облучения 473 К, в микроструктуре бериллия также происходит образование мельчайших (1-2 нм) газовых пузырьков. При более высоких температурах облучения происходит образование только газовых пор в виде шестигранных дисков, имеющих форму правильного шестиугольника в базисной плоскости (0001). Начиная с температуры 673 К и выше размеры газовых пор возрастают, плотность - снижается.

2. Впервые установлены закономерности влияния параметров исходной микроструктуры, параметров облучения или газового насыщения, параметров термодесорбционных испытаний на скорость выхода, накопление и удержание трития и гелия в облученном или насыщенном водородом/тритием бериллии. В частности, впервые обнаружены следующие закономерности:

- пики выхода трития и гелия из облученных бериллиевых минисфер взаимосвязаны; для температур облучения 686-968 К эти пики расположены в узкой температурной области 1210-1310 К, причем пик трития – всегда при более низкой температуре, чем пик гелия; тритий и гелий покидают облученный бериллий по образовавшимся объемно-связанным каналам, которые открыты к наружной поверхности;

- самопроизвольный выход трития из бериллиевых минисфер происходит уже в процессе облучения при температурах, превышающих 860 К; в результате остаточное содержание трития в минисферах к концу облучения составляет 20-40 % от расчетного, что имеет большое практическое значение с точки зрения последующего обращения с радиоактивными отходами бериллия после окончания эксплуатации ТЯР;

- деформирование бериллиевых минисфер до облучения приводит к ускорению термической десорбции трития в процессе облучения за счет формирования дополнительных открытых каналов вдоль формирующихся субграниц.

Построена модель термической десорбции газов из облученного бериллия и рассчитана энергия активации десорбции трития из бериллия. Предложен ступенчатый метод нагрева при проведении термодесорбционных испытаний, который позволяет рассчитать коэффициент диффузии трития в бериллии. Полученные значения энергии активации десорбции и коэффициенты диффузии трития в бериллии соответствуют литературным данным. Показана положительная роль границ зерен и исходной пористости в ускорении выхода водорода и трития из бериллия, насыщенного их газовой смесью, что связано с облегченной диффузией изотопов водорода по границам и порам.

3. Получены новые результаты и уточнены закономерности влияния на набухание бериллия температуры облучения в области температур 323-973 К и флюенса нейтронов в области флюенсов $(0,3-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$). Установлено, что набухание бериллия вызывается радиационным накоплением гелия, способствующим образованию в микроструктуре газовых пор. Впервые показано, что набухание бериллия при температурах облучения 343 К и 473 К и флюенсах нейтронов до $15 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ происходит с различной скоростью в зависимости от флюенса нейтронов: для температуры облучения 343 К и флюенсах нейтронов до $4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ набухание возрастает до 1,5 %; в области от $4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ до $10 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ набухание возрастает до 1,8 % со значительно меньшей скоростью; в области от $10 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ до $15 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ скорость набухания опять возрастает и абсолютное значение достигает 2,8 %. Установлено, что с увеличением температуры облучения до 673 К в области флюенсов нейтронов $(10-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ набухание достигает 5 %.

Установлено влияние температуры послерадиационного отжига в течение 1 часа в области температур 473-1273 К на набухание бериллия, облученного при температуре 343 К. Показано, что до температур отжига 800-900 К набухание не превышает 2 %. Резкое увеличение набухания происходит лишь, начиная с этих температур. При температуре отжига 1273 К набухание достигает 22 %. Полученная зависимость схожа с зависимостью набухания бериллия от температуры облучения, где резкий рост набухания начинается при температурах 800-900 К.

Впервые обнаружена неравномерность набухания бериллия после облучения при температуре 323 К до флюенса нейтронов $4,67 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 1 \text{ МэВ}$) и последующих высокотемпературных отжигов, по глубине образца. В частности, при отжиге бериллия при температуре 1273 К в течение 10 часов набухание в центре образца составило 194 %, при этом набухание вблизи поверхности не превышало 23 %.

4. Впервые обнаружено и исследовано явление радиационного роста бериллия, ранее известное только для циркония. При радиационном росте, в отличие от набухания, объем образца не увеличивается. Однако в облученном бериллии наряду с радиационным ростом происходит и набухание, которое носит анизотропный характер в зависимости от кристаллографического направления. Экспериментально подтверждено анизотропное набухания зерен в бериллии, изготовленном методом горячего выдавливания. Кристаллическая решетка бериллия при облучении искажается таким образом, что увеличение параметра «с» происходит в большей степени, чем параметра «а» – в базисной плоскости (0001). Таким образом, итоговое изменение размеров облученного образца бериллия определяет суперпозиция двух явлений – радиационного роста и анизотропного набухания. Анизотропное набухание зерен, наблюдаемое только при низкотемпературном облучении бериллия, вызывает ослабление границ, зарождение и распространение зернограничных трещин, что приводит к ускорению общего набухания (псевдораспухание за счет сети трещин), деградации механических свойств, самопроизвольному растрескиванию бериллиевого изделия с увеличением нейтронной дозы.

5. Впервые установлены закономерности влияния температуры облучения, флюенса нейтронов, температуры испытания, параметров кристаллической структуры и радиационных дефектов на теплопроводность бериллия при нейтронном облучении в области температур 343-673 К и флюенсов нейтронов $(0,3-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) и разработана модель снижения теплопроводности бериллия при воздействии нейтронного облучения. Радиационная эволюция микроструктуры вызывает снижение теплопроводности бериллия, в частности, нейтронное облучение при температуре 343 К ведет к резкому падению теплопроводности бериллия на начальном этапе облучения до флюенсов нейтронов $(2-3) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$; рост флюенса до $(10-11,4) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ведет к дальнейшему снижению теплопроводности. При максимальных флюенсах происходит стабилизация величин теплопроводности на уровне 35-50 Вт/(м·К). Снижение теплопроводности бериллия при облучении обусловлено образованием радиационных дефектов, являющихся центрами рассеяния фононов и электронов. Увеличение температуры облучения до 473 К и 673 К приводит к относительно меньшему снижению теплопроводности, что связано со снижением эффективности дислокационных петель, газовакансионных комплексов и газовых пузырьков как центров рассеяния вследствие увеличения их размеров. Послерadiационный высокотемпературный отжиг бериллия, облученного при низких температурах, приводит к частичному восстановлению теплопроводности бериллия.

6. Установлены закономерности радиационного упрочнения бериллия по результатам измерений микротвердости, охрупчивания и разупрочнения по результатам кратковременных механических испытаний на растяжение и сжатие и длительных испытаний на сжатие (ползучести) в зависимости от температуры облучения и флюенса нейтронов и построена модель радиационного охрупчивания и разупрочнения бериллия и самопроизвольного растрескивания бериллиевых изделий при облучении. В частности, радиационное упрочнение (увеличение микротвердости) происходит после нейтронного облучения при температурах 343, 473 и 673 К в области флюенсов нейтронов $(0,4-16) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. С увеличением температуры облучения от 343 К до 673 К происходит снижение роста микротвердости. При максимальных флюенсах нейтронов рост микротвердости замедляется, а при максимальной температуре облучения 673 К значения микротвердости выходят на насыщение. С увеличением температуры облучения от 686 К до 968 К в области флюенсов нейтронов $(6,5-9,4) \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ происходит снижение микротвердости от максимальной величины при минимальной температуре до значения в необлученном состоянии при максимальной температуре облучения.

Радиационное охрупчивание и разупрочнение бериллия наблюдаются после облучения при температурах 343 К и 473 К в области флюенсов нейтронов $(0,4-14) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ при кратковременных механических испытаниях на растяжение и сжатие. Резкое падение прочности происходит на начальном этапе облучения до флюенсов нейтронов $(2-3) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$. При максимальных флюенсах нейтронов от $(8-9) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ до $(12-14) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ наблюдается стабилизация значений предела прочности на растяжение на уровне 50-100 МПа, предела прочности на сжатие – в области 300-800 МПа. Снижение хрупкой прочности бериллия вызвано анизотропным распуханием зерен, что ослабляет границы, провоцируя зернограничное разрушение как при внешней механической нагрузке, так и без нагрузки (самопроизвольное растрескивание).

По результатам длительных испытаний на сжатие при постоянной нагрузке облученных бериллиевых минисфер диаметром 1 мм и 2 мм радиационное упрочнение наблюдается при температурах испытания 698 К и 798 К близких соответствующим температурам облучения. Это выражается в снижении скорости деформации облученных минисфер по сравнению с исходными при одинаковых приложенных напряжениях. При температурах испытания 923 К и 1023 К (и соответствующих температурах облучения)

наблюдается разупрочнение, что выражается в более высокой скорости деформации облученных минисфер по сравнению с исходными при одинаковых напряжениях. Высокая деформационная способность бериллиевых минисфер при высоких температурах будет способствовать релаксации внутренних напряжений, возникающих в засыпке минисфер при их распухании в процессе эксплуатации blankets ТЯР.

7. На основе установленных закономерностей и взаимосвязей радиационных явлений термодесорбции трития и гелия, распухания, снижения теплопроводности, охрупчивания и разупрочнения бериллия с эволюцией микроструктуры при нейтронном облучении бериллия предложены технические решения по увеличению ресурса бериллиевых изделий в ядерном реакторе и безопасной эксплуатации засыпки бериллиевых минисфер в blanketе термоядерного реактора.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ ОПУБЛИКОВАНО В СЛЕДУЮЩИХ РАБОТАХ:

1. Chakin, V.P. Effects of neutron irradiation at 70–200°C in beryllium / V.P. Chakin, V.A. Kazakov, R.R. Melder, Yu.D. Goncharenko, I.B. Kupriyanov // *J. Nucl. Mater.* – 2002. - V. 307-311. - P. 647-652.
2. Chakin, V. Characterization of constrained beryllium pebble beds after neutron irradiation at HFR at high temperatures up to helium production of 3000 appm / V. Chakin, R. Rolli, A. Moeslang, P. Vladimirov, P. Kurinskiy, S. van Til, A.J. Magielsen, M. Zmitko // *Fusion Eng. Des.* – 2013. – V. 88. – P. 2309-2313.
3. Chakin, V.P. The SSC RIAR high-flux research reactors: experience and possibilities of testing materials and mock-ups for fusion / R.R. Melder, V.P. Chakin, A.S. Pokrovsky, A.N. Shchuchkin // *Fusion Eng. Des.* - 2003. – V. 69. – P. 409-417.
4. Chakin, V.P. Radiation damage of beryllium blocks of the SM reactor / V.P. Chakin // *The Physics of Metals and Metallography.* - 1999. - V. 88. - No. 2. – P. 200-204.
5. Chakin, V.P. High dose neutron irradiation damage in beryllium as blanket material / V.P. Chakin, V.A. Kazakov, A.A. Teykovtsev, V.V. Pimenov, G.A. Shimansky, Z.E. Ostrovsky, D.N. Suslov, R.N. Latypov, S.V. Belozerov, I.B. Kupriyanov // *Fusion Eng. Des.* – 2011.- V. 58–59. – P. 535–541.
6. Chakin, V. Pores and cracks in highly neutron irradiated beryllium / V. Chakin, R. Rolli, H.-C. Schneider, A. Moeslang, P. Kurinskiy, W. Van Renterghem // *J. Nucl. Mater.* – 2011. – V. 416. - Issues 1–2. – P. 3-8.
7. Chakin, V.P. Evolution of beryllium microstructure under high-dose neutron irradiation / V.P. Chakin, Z. Ye Ostrovsky // *J. Nucl. Mater.* – 2002. – V. 307-311. – P. 657-663.
8. Klimenkov, M. TEM study of beryllium pebbles after neutron irradiation up to 3000 appm helium production / M. Klimenkov, V. Chakin, A. Moeslang, R. Rolli // *J. Nucl. Mater.* – 2013. – V. 443. - Issues 1–3. – P. 409-416.
9. Chakin, V. Tritium release from highly neutron irradiated constrained and unconstrained beryllium pebbles / V. Chakin, R. Rolli, P. Vladimirov, A. Moeslang // *Fusion Eng. Des.* – 2015. – V. 95. – P. 59-66.

10. Чакин, В.П. Накопление и диффузия радиогенного гелия в бериллии / В.П. Чакин, А.О. Посевин, С.В. Белозеров // Физика Металлов и Металловедение. – 2007. – Т. 104. - Вып.3. – С. 1-8.
11. Suslov, D.N. Influence of high dose neutron irradiation on thermal conductivity of beryllium / D.N. Suslov, V.P. Chakin, R.N. Latypov // J. Nucl. Mater. - 2002. – V. 307-311. – P. 664-667.
12. Chakin, V. Mechanical compression tests of beryllium pebbles after neutron irradiation up to 3000 appm helium production / V. Chakin, R. Rolli, A. Moeslang, M. Zmitko // Fusion Eng. Des. – 2015. – V. 93. – P. 36-42.
13. Леваков, Б.И. Определение содержания радиоактивных элементов в облученном бериллии / Б.И. Леваков, Ю.П. Анохин, В.Д. Гаврилов, В.П. Чакин, А.В. Захаров, М.Н. Святкин, О.С. Белецкая, Г.В. Шишалова, А.О. Посевин, Е.В. Малинина // Радиохимия. – 2011. - Т. 53. - № 6. – С. 538-541.
14. Чакин, В.П. Способ переработки облученного бериллия / В.П. Чакин, Б.И. Леваков, М.Н. Святкин // Патент Российской Федерации № 2363060. 2007.
15. Chakin, V.P. Radiation growth of beryllium / V.P. Chakin, A.O. Posevin, A.V. Obukhov, P.P. Silantyev // J. Nucl. Mater. - 2009. – V. 386-388. – P. 206-209.
16. Chakin, V.P. Swelling, mechanical properties and microstructure of beryllium irradiated at 200 °C up to extremely high neutron doses / V.P. Chakin, A.O. Posevin, I.B. Kupriyanov // J. Nucl. Mater. – 2007. – V. 367-370. – P. 1377-1381.
17. Чакин, В.П. Способ эксплуатации бериллиевого блока ядерного реактора / В.П. Чакин, Р.Р. Мельдер, А.Н. Щучкин, М.Н. Святкин, А.Л. Петелин // Патент Российской Федерации № 2184401, 2002.
18. Klimenkov, M. TEM study of impurity segregations in beryllium pebbles / M. Klimenkov, V. Chakin, A. Moeslang, R. Rolli // J. Nucl. Mater. – 2014. – V. 455. – P. 600-664.
19. Vladimirov, P. Microstructure of out-of-pile annealed neutron irradiated beryllium studied by X-ray tomography / P. Vladimirov, C. Ferrero, V. Chakin, P. Kurinskiy, A. Moeslang, R. Pieritz, T. Weitkamp, E. Brun // Acta Materialia. 2015. – V. 88. – P. 293-301.
20. Chakin, V.P. Problems of radioactive beryllium waste disposal / V.P. Chakin // Proceedings of the 7th International Workshop on Beryllium Technology, November 29 - December 2, 2005. Santa Barbara, California, USA. P. 95-98.
21. Vladimirov, P. Current status of beryllium materials for fusion blanket applications / P. Vladimirov, D. Bachurin, V. Borodin, V. Chakin, M. Ganchenkova, A. Fedorov, M. Klimenkov, I. Kupriyanov, A. Moeslang, M. Nakamichi, T. Shibayama, S. van Til, M. Zmitko // Fusion Science and Technology. – 2014. – V. 66(1). – P. 28-37.
22. Chakin, V. Tritium release and retention properties of highly neutron-irradiated beryllium pebbles from HIDOBE-01 experiment / V. Chakin, R. Rolli, A. Moeslang, M. Klimenkov, M. Kolb, P. Vladimirov, P. Kurinskiy, H.-C. Schneider, S. van Til, A.J. Magielsen, M. Zmitko // J. Nucl. Mater. – 2013. – V. 442. – P. 483–489.
23. Chakin, V. Study of helium bubble evolution in highly neutron-irradiated beryllium by using x-ray micro-tomography and metallography methods / V. Chakin, R. Rolli, A. Moeslang, P. Kurinskiy, P. Vladimirov, C. Ferrero, R. Pieritz, W. Van Renterghem // Physica Scripta. – 2011. - T145. – 014012.

24. Chakin, V. Tritium and helium release from beryllium pebbles neutron-irradiated up to 230 appm tritium and 3000 appm helium / V. Chakin, R. Rolli, P. Vladimirov, A. Moeslang // *Fusion Materials and Energy*. – In Press. – Corrected Proof. - Available online 4 August 2016. - V. 1. – P. 1-9.
25. Kupriyanov, I.B. The effect of helium generation and irradiation temperature on tritium release from neutron irradiated beryllium / I.B Kupriyanov, V.A Gorokhov, V.V Vlasov, A.M Kovalev, V.P Chakin // *J. Nucl. Mater.* – 2004. – V. 329–333. - Part A. – P. 809-813.
26. Kupriyanov, I.B. Desorption of tritium and helium from high dose neutron irradiated beryllium / I.B. Kupriyanov, G.N. Nikolaev, V.V. Vlasov, A.M. Kovalev, V.P. Chakin // *J. Nucl. Mater.* – 2007. – V. 367–370. - Part A. – P. 511-515.
27. Chakin, V. Temperature-programmed desorption of tritium loaded into beryllium / V. Chakin; R. Rolli, P. Vladimirov, P. Kurinskiy, M. Klimenkov, A. Möslang, L. Ryczek, C. Dorn, A. Markovsky // *Physica Scripta*. – 2009. - T138. - 014035.
28. Chakin, Vladimir. Tritium release from advanced beryllium materials after loading by tritium/hydrogen gas mixture / Vladimir Chakin, Rolf Rolli, Anton Moeslang, Petr Kurinskiy, Pavel Vladimirov, Christopher Dorn, Igor Kupriyanov // *Fusion Eng. Des.* – 2016. – V. 107. – P. 75-81.
29. Chakin, V. Thermodesorption examination of beryllium pebbles with loaded tritium / V. Chakin, R. Rolli, A. Moeslang, P. Kurinskiy // *Proceedings of the 9th International Workshop on Beryllium Technology*. September 15-17, 2009. Almaty, Kazakhstan. P. 76-84.
30. Chakin, Vladimir. Comparison of Tritium Release Behavior of Different Beryllium Materials / Vladimir Chakin, Rolf Rolli, Anton Moeslang, Petr Kurinskiy, Pavel Vladimirov, Christopher Dorn, Igor Kupriyanov // *Proceedings of the 12th International Workshop on Beryllium Technology*. September 10-11, 2015. Jeju Island, Korea. P. 245-258.
31. Chakin, V. Microstructural and tritium release examination of titanium beryllides / V. Chakin, M. Klimenkov, R. Rolli, P. Kurinskiy, A. Moeslang, C. Dorn // *J. Nucl. Mat.* – 2011. – V. 417. – P. 769-774.
32. Chakin, V. Tritium permeation, retention and release properties of beryllium pebbles / V. Chakin, A. Moeslang, P. Kurinskiy, R. Rolli, H.-C. Schneider, E. Alves, L.C. Alves // *Fusion Eng. Des.* – 2011. – V. 86. - Issues 9–11. – P. 2338-2342.
33. Chakin, V. P. Radiation damage in beryllium at 70–440°C and neutron fluence $(0.3–18) \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-2}$ ($E_n > 0.1 \text{ MeV}$) / V. P. Chakin, A. O. Posevin, R. N. Latypov // *Atomic Energy*. - 2006. - V. 101. - No. 4. - P. 743-749.
34. Kurinskiy, P. Characteristics of microstructure, swelling and mechanical behavior of titanium beryllide samples after high-dose neutron irradiation at 740 and 873 K / P. Kurinskiy, A. Moeslang, V. Chakin, M. Klimenkov, R. Rolli, S. van Til, A. Goraieb // *Proceedings of the 10th International Workshop on Beryllium Technology*. September 19-21, 2012. Karlsruhe, Germany. P. 226-229.
35. Chakin, V.P. Swelling and mechanical properties of beryllium irradiated in the SM reactor at low temperature / V.P. Chakin, I.B. Kupriyanov, V.A. Tsykanov, V.A. Kazakov, R.R. Melder // *Proceedings of the 4th International Workshop on Beryllium Technology for Fusion*. September 15-17, 1999. Germany: Karlsruhe. P. 257-263.

36. Chakin, V.P. Experience of beryllium blocks operation in the SM and MIR reactors useful for fusion / V.P.Chakin, R.R. Melder, S.V. Belozerov // Proceedings of the 6th International Workshop on Beryllium Technology for Fusion. December 2-5, 2003. Miyazaki City, Japan. - JAERY-Conf. 2004-006. P. 253-261.
37. Chakin, V. Beryllium application for fission and fusion/ V. Chakin, A. Möslang, M. Svyatkin, A. Posevin, P. Vladimirov, R. Latypov // 1st International Symposium on Material Testing Reactors. Oarai, July 16-17, 2008. - Tokaimura: JAEA, 2008. JAEA-Conf. 2008-011. – P. 107-116.
38. Chakin, V.P. Swelling, mechanical and thermophysical properties of beryllium irradiated at 70-440 °C in the wide range of neutron doses / V.P.Chakin, A.O. Posevin, R.N. Latypov // Proceedings of the 7th International Workshop on Beryllium Technology. November 29 - December 2, 2005. Santa Barbara, California, USA. P. 27-35.
39. Chakin, V.P. Thermal conductivity of beryllium under low temperature high dose neutron irradiation / V.P.Chakin, D.N. Suslov, R.N. Latypov, I.B. Kupriyanov // Proceedings of the 6th International Workshop on Beryllium Technology for Fusion. December 2-5, 2003, Miyazaki City, Japan. P. 119-127.
40. Chakin, V.P. Damage of beryllium under high dose neutron irradiation / V.P.Chakin, V.A. Kazakov, R.R. Melder, G.A. Shimansky, S.V. Belozerov, D.N. Suslov, R.N. Latypov, Z.Ye. Ostrovsky, Yu.D. Goncharenko, D.V. Pevtsov, I.B. Kupriyanov // Proceedings of the 5th International Workshop on Beryllium Technology for Fusion. October 10-12, 2001. Moscow, Russia. P. 75-84.
41. Chakin, V. Thermal conductivity of highly neutron-irradiated beryllium in nuclear fusion reactors / V. Chakin, J. Reimann, A. Moeslang, R. Latypov, A. Obukhov // Progress in Nuclear Energy. – 2012. – V. 57. – P. 2-7.
42. Чакин, В.П. Отражатель нейтронов ядерного реактора / В.П. Чакин, В.А. Казаков, А.В. Клинов, Р.Р. Мельдер, В.В. Пименов, М.Н. Святкин, А.В. Туктабиев, И.Б. Куприянов // Патент Российской Федерации № 2192675, 2002.
43. Khomutov, V. Beryllium for fusion application: recent results / V. Khomutov, V. Barabash, V. Chakin, V. Chernov, D. Davydov, V. Gorokhov, H. Kawamura, B. Kolbasov, I. Kupriyanov, G. Longhurst, F. Scaffidi-Argentina, V. Shestakov // Proceedings of the 5th International Workshop on Beryllium Technology for Fusion. October 10-12, 2001. Moscow, Russia. P. 5-12.
44. Kupriyanov, I.B. Status of beryllium R&D activities in Russian Federation / I.B. Kupriyanov, A.M. Khomutov, G.N. Nikolaev, V.V. Gorlevsky, Yu..E. Markushkin, V.P.Chakin, A.A. Gervash, A.N. Kalashnikov, B.N. Kolbasov // Proceedings of the 7th International Workshop on Beryllium Technology. November 29 - December 2, 2005. Santa Barbara, California, USA. P. 8-16.
45. Khomutov, A. Beryllium for fusion application – recent results / A. Khomutov, V. Barabash, V. Chakin, V. Chernov, D. Davydov, V. Gorokhov, H. Kawamura, B. Kolbasov, I. Kupriyanov, G. Longhurst, F. Scaffidi-Argentina, V. Shestakov // J. Nucl. Mater. – 2002. – V. 307–311. - Part 1. – P. 630-637.
46. Чакин, В.П. Отражатель нейтронов ядерного реактора / В.П. Чакин, А.Л. Ижутов, А.Л. Петелин, А.О. Посевин // Патент Российской Федерации № 2344503, 2009.