

А.В. ЗАЦ, науч. сотрудн., ННЦ «ХФТИ»,
Л.С. ГЛАЗУНОВ, вед. инж. исслед., ННЦ «ХФТИ»,
В.В. КУЗЬМЕНКО, нач. ускорителя, ННЦ «ХФТИ»,
В.В. ЛЕВЕНЕЦ, д-р физ.-мат. наук, нач. отдела, ННЦ «ХФТИ»,
Д.В. ЛЫСАН, мл. науч. сотрудн., ННЦ «ХФТИ»,
В.М. ПИСТРЯК, канд. физ.-мат. наук, нач. лаб., ННЦ «ХФТИ»,
И.В. СЕРДЮК, мл. науч. сотрудн., ННЦ «ХФТИ»,
В.А. СТОЛБОВОЙ, канд. тех. наук, науч. сотрудн., ННЦ «ХФТИ»

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ РАДИАЦИОННОГО ПОВРЕЖДЕНИЯ ПОКРЫТИЙ НА ОСНОВЕ TiN И MoN

Проведено облучение серии покрытий TiN и MoN на нержавеющей стали на аналитической ядерно-физической установке «Сокол». Показано, что экспериментальное оборудование АЯФК «Сокол» позволяет проводить широкий круг экспериментов по исследованию радиационных воздействий на материалы. Определены условия проведения облучения различными ионами с требуемым набором энергий, для оценки влияния радиационного излучения на покрытия.

Ключевые слова: покрытия, ионы, облучение, радиационное повреждение, облучательный канал, моделирование.

Введение. Целесообразность использования материалов в ядерных энергетических установках (ЯЭУ) определенного типа зависит от конструктивных особенностей ЯЭУ, используемого теплоносителя, энергетического спектра нейтронов и т.д. Нейтронное облучение материалов приводит к следующим изменениям характеристик материалов: упрочнению; низко- (НТРО) и высокотемпературному (ВТРО) радиационному охрупчиванию; радиационной ползучести; радиационному росту и радиационному распуханию; появлению наведенной активности.

Именно эти характеристики, наряду с коррозионной стойкостью, являются приоритетными при оценке и сравнении различных конструкционных материалов. При разработке новых материалов главной задачей является достижение минимального или допустимого изменения этих характеристик с целью обеспечения требуемой надежности и долговечности элементов конструкции [1].

© А.В. Зац, Л.С. Глазунов, В.В. Кузьменко, В.В. Левенец, Д.В. Лысан, В.М. Пистряк,
И.В. Сердюк, В.А. Столбовой, 2013

Исследование радиационной стойкости материалов осуществляется главным образом на исследовательских или действующих ЯЭУ, что связано с большими финансовыми трудозатратами и длительным сроком проведения работ. Некоторой альтернативой таких исследований выступает облучение материалов на ускорителях. Лидирующее положение в этом направлении занимает ИФТТМТ ННЦ ХФТИ.

Нанокристаллические материалы, в том числе в виде покрытий, находят все большее применение в промышленном производстве. Связано это с удачным сочетанием электрофизических и коррозионных свойств. Кроме этого, такого рода объекты должны обладать повышенной сопротивляемостью к радиационному воздействию. Малый размер зерен ($5 \div 100$ нм) и относительно большой объем, занимаемый их границами, создают хорошие предпосылки для аннигиляции и рекомбинации точечных дефектов, возникающих под облучением. В результате этого следует ожидать эффективное торможение негативных процессов, связанных с дефектообразованием, таких как растрескивание, охрупчивание, снижение прочности и др. [2].

Для улучшения коррозионных характеристик внутриреакторных устройств могут быть использованы различного рода покрытия. При этом они должны не ухудшать теплофизических параметров ТВЭЛов и обеспечивать возможность предотвращения ситуаций, подобных Фукусима-1. Для этого необходимо проведение широкомасштабных исследований физико-механических свойств покрытий при радиационном воздействии.

Первичные акты радиационной повреждаемости облучаемых материалов связаны с возбуждением их электронной и атомной подсистем, с протеканием ядерных реакций и со смещением атомов кристаллической решетки из первоначальных равновесных положений. Эффективность ядерных и атомных процессов при этом зависит от типа и параметров излучений и природы облучаемых материалов.

В ННЦ ХФТИ на протяжении нескольких десятилетий проводится большой комплекс имитационных исследований по влиянию облучения на механические свойства различных металлов и сплавов. В основном задача заключается в адекватной замене нейтронного облучения, характерного для реакторов, облучением частицами (тяжелыми ионами, протонами, электронами, гамма-квантами) с помощью ускорителей заряженных частиц. При этом возникает вопрос о степени соответствия радиационных повреждений материалов при облучении частицами разной природы и о критериях подоб-

ности процессов, протекающих в материале при облучении. Эти вопросы решаются путем проведения сравнительных корреляционных экспериментов по облучению хорошо известных материалов частицами разной природы. Это позволило с помощью облучения на ускорителях исследовать явления, связанные с созданием и развитием радиационных дефектов в материале [3].

Целью настоящего исследования было проведение модельных экспериментов по облучению покрытий на основе TiN и MoN с помощью электростатического ускорителя.

Экспериментальное оборудование. Эксперимент проводили на аналитическом ядерно-физическом комплексе (АЯФК) «Сокол», который состоит из следующих основных элементов:

- электростатического ускорителя горизонтального типа с выходными устройствами;
- экспериментальных камер для применения набора ядерно-физических методов анализа;
- измерительно-вычислительного оборудования, позволяющего управлять работой комплекса и автоматизировать обработку результатов эксперимента.

Высокочастотный источник ионов, используемый на ускорителе, может обеспечить пучки ионов практически всех газов. Канал облучения материалов позволяет транспортировать ионы с энергией в диапазоне $0,2 \div 2$ МэВ с массами вплоть до ксенона.

Схема канала облучения показана на рис. 1 [4].

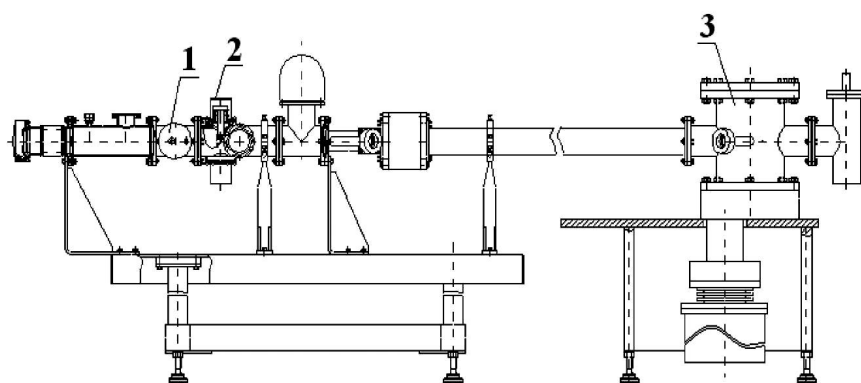


Рис. 1 – Схема канала облучения

Он состоит из следующих основных узлов: щелевого прибора (1); системы развертки (2); камеры облучения (3); системы вакуумной откачки; участков ионопровода; подставок с системами юстировки.

Щелевой прибор выполняет две функции – он является выходной щелью масс-анализатора и одновременно элементом системы стабилизации энергии ускоренных ионов. Электростатическая система развертки обеспечивает одинаковое отклонение ионов пучка независимо от массы.

Система сканирования отвечает следующим требованиям:

диапазон энергий пучка ионов..... 0,2 – 2 МэВ;
 ток пучка ионов..... 0,01 – 5 мкА;
 расстояние между сканирующим устройством и мишенью..... 1800 мм;
 непостоянство дозы облучения по «кадру»..... ~ 10% ($\pm 5\%$);
 размер сканируемой области мишени по осям X и Y..... $\pm 2 - \pm 20$ мм;
 диаметр пучка ионов..... ~ 2 мм;
 метод отклонения пучка..... электростатический;
 частота развертки пучка по оси «X»..... 700 Гц;
 частота развертки пучка по оси «Y»..... 80 Гц;

Такая система позволяет реализовать следующие режимы облучения: облучение всей поверхности образца; облучение любой половины поверхности образца; облучение любой четверти поверхности образца. Схема крепления образцов приведена на рис. 2.

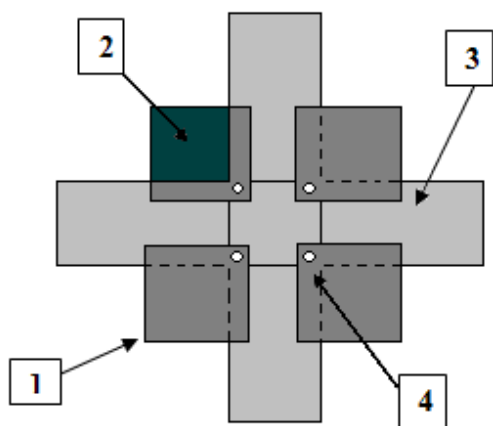


Рис. 2 – Схема крепления образцов:
 1 – исследуемый образец; 2 – область облучения; 3 – держатели для образцов;
 4 – отверстие для крепления образцов.

сов.

Покрyтия TiN и MoN наносились на нержавеющую сталь типа 12X18H9T ($C \leq 0,12$; $Si \leq 0,8$; $Mn \leq 2,0$; $S < 0,020$; $P < 0,035$; $Cr - 17,0-19,0$; $Ni - 8,0-9,5$; $Ti - 0,6-0,8$; $Cu \leq 0,30$).

Камера образцов создана на базе универсального вакуумного поста ВУП-4 и позволяет при облучении использовать его стандартное оснащение (нагреватель, охладитель, системы крепления образцов и др.).

Остаточное давление газа в камере во время облучения поддерживается на уровне $5 \cdot 10^{-4}$ Па.

Условия облучения. Облучению была подвергнута серия образцов, полученных на модифицированной установке БУЛАТ-6, снабженной дополнительно генератором высоковольтных импульсов.

На подложку стали подавали постоянный отрицательный потенциал – 200 В. Наряду с ним подавали импульсы отрицательного потенциала амплитудой 2 кВ, длительностью 10 мкс и частотой следования 7 кГц. Ток дугового разряда в испарителе составлял $100 \div 110$ А, давление азота 0,66 Па.

Канал облучения АЯФК «Сокол» был использован для облучения ионами серии образцов с покрытиями, которые отличались материалом и технологией нанесения. Выбраны типы ионов – H^+ , He^+ и Ar^+ , которые по проникающей способности перекрывают всю толщину покрытия (таблица). Дозы облучения равнялись 10^{16} ион/см². Размеры образцов составляли 20×20 мм, для сканирования была выбрана область 15×15 мм. Равномерность облучения по поверхности составила ~ 5 %.

Энергия пучка ионов подбиралась таким образом, чтобы глубина проникновения была несколько микрон, и основное повреждение наносилось покрытию, а не подложке. Подбор тока пучка осуществлялся так, чтобы получить оптимальную статистику при измерениях, а также учитывая температуру исследуемых образцов.

Таблица — Параметры облучения образцов в общем случае

Тип ионов	Энергия, кэВ	Ток, мкА
H^+	150	1,8
H^+	400	6
He^+	400	2,7
He^+	600	4,4
Ar^+	1000	3
Ar^+	1800	3

С помощью программы TRIM были рассчитаны радиационные повреждения, нанесенные исследуемым покрытиям (рис. 3, 4).

Данная программа использует квантово-механическую обработку ион-атомных столкновений в твердом теле, основываясь на статистическом распределении Монте-Карло [5].

Из рисунков видно, что ионы аргона с энергией 1 МэВ локально наносят больше повреждения, а ионы с энергией 1,8 МэВ обладают большей проникающей способностью и в сумме сильнее повреждают исследуемый образец. Максимальная концентрация внедренных ионов аргона в процессе облучения соответствует максимальному радиационному повреждению, а также наибольшему энерговыделению, которое находится в пределах толщины покрытия. Аналогичная тенденция наблюдается и для ионов гелия и водорода.

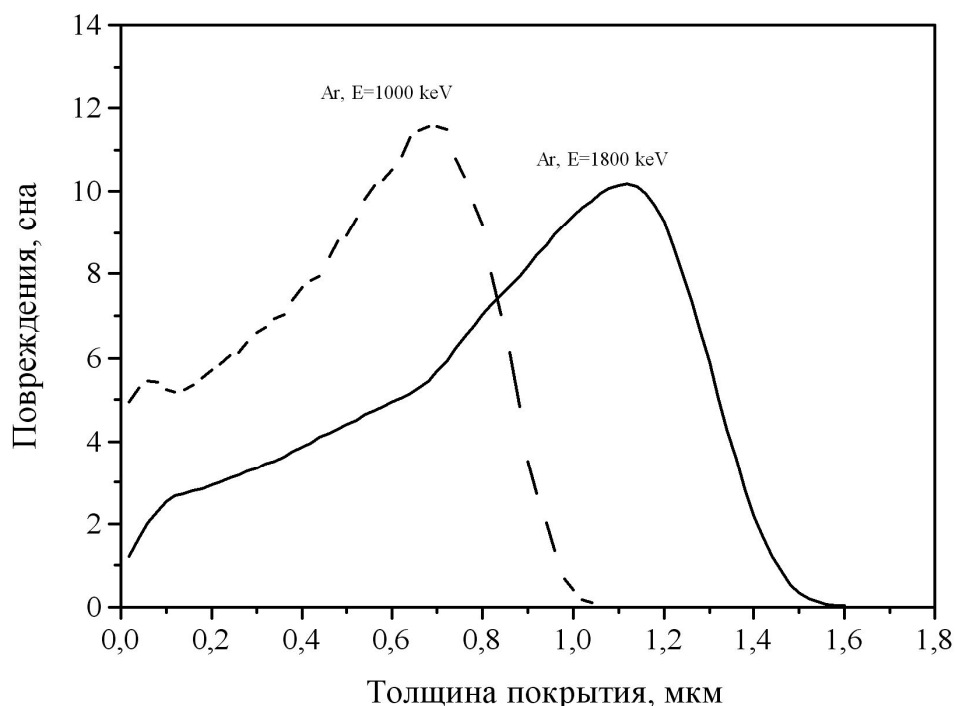


Рис. 3 – Радиационные повреждения, созданные ионами аргона в покрытии TiN

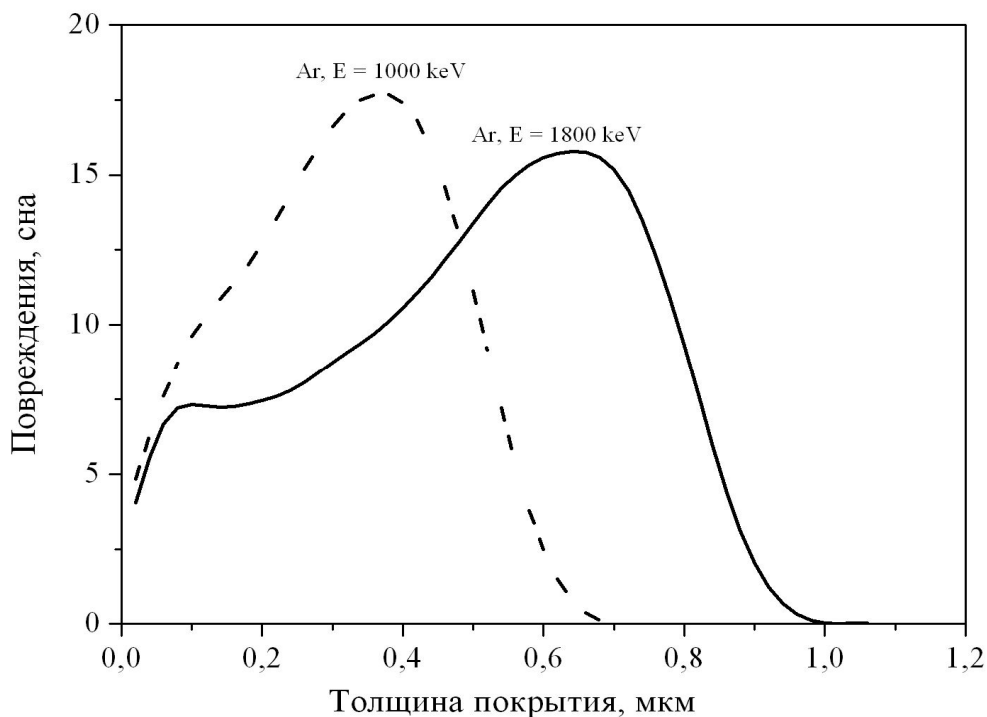


Рис. 4 – Радиационные повреждения, созданные ионами аргона в покрытии MoN

Температурный режим. Конструкционные материалы под действием облучения испытывают структурные превращения, оказывающие отрицательное влияние в первую очередь на механические свойства и коррозионную стойкость.

Кроме флюенса, на свойства материалов оказывает влияние температура, при которой проходит облучение.

Наиболее резко охрупчивание аустенитных сталей проявляется после облучения в температурном интервале 250 – 350 °С [6].

Действие низкотемпературного облучения на свойства металла связано преимущественно с образованием точечных дефектов. В условиях облучения выше температуры рекристаллизации (высокотемпературное облучение) роль точечных радиационных дефектов снижается. Вакансии и межузельные атомы частично аннигилируют друг с другом, частично взаимодействуют с примесями, дислокациями, границами раздела. Оставшиеся межузельные атомы и вакансии объединяются в кластеры, которые в свою очередь могут превращаться соответственно в дислокационные петли межузельного или вакансионного типа.

Высокотемпературное облучение активизирует диффузионные процессы и способствует распаду пересыщенных твердых растворов – старению. Этим объясняется высокотемпературная хрупкость аустенитных хромоникелевых сталей. Активизацией диффузионных процессов также объясняется снижение длительной прочности при облучении [6]. Температура облучения – один из основных параметров, определяющих вероятность образования стабильных радиационных дефектов, их форму, скорость зарождения и роста. Исходя из этого, в эксперименте использовались такие токи пучков ионов, чтобы температура образцов не превышала 300 °С.

Выводы.

В данном эксперименте проведена оценка условий облучения покрытий. Выбраны типы ионов и необходимые параметры облучения. Настоящий эксперимент позволяет, используя ускоренные заряженные частицы, моделировать процессы, происходящие при радиационном воздействии в активных зонах реакторов. А в силу малой проникающей способности ионов облучения, позволяет определить влияние радиационного излучения на покрытия.

Проведенное облучение серии образцов на облучательном канале АЯФК «Сокол» дает возможность инициировать радиационное повреждение материалов. Одним из преимуществ этой установки является то, что облучение можно проводить различными ионами. В качестве исследуемых материалов можно использовать любые твердые образцы. Проводить эксперимент можно одновременно с несколькими образцами, что значительно сокращает время

исследования. Кроме того, АЯФК «Сокол» оснащенный таким составом экспериментального оборудования, что позволяет смотреть локальное распределение примесей, состав исследуемых образцов, что, в свою очередь, решает широкий круг аналитических задач не только в области материаловедения, но и экологии, биологии, медицины.

Список литературы: 1. *Воеводин В.Н.* Конструкционные материалы ядерной энергетики – вызов 21 века / *В.Н. Воеводин* // ВАНТ. – 2007. – № 2. – (Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение). – С. 10 – 22. 2. *Василенко Р.Л.* Радиационная повреждаемость нанокристаллических CrN-покрытий / *Р.Л. Василенко, А.Г. Гузля, М.Л. Литвиненко* // ВАНТ. – 2005. – № 5. – (Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение). – С. 201 – 204. 3. *Неклюдов И.М.* Изменение механических свойств и параметров деформационного упрочнения металлов и сплавов при облучении / *И.М. Неклюдов, Л.С. Ожигов, А.Г. Руденко* // Збірник наукових праць СНУЯЕтаП. – 2010. – Вип. 2 (34). – (Серія: Загальнонаукові і спеціальні дослідження). – С. 155 – 161. 4. *Бондаренко В.Н.* Аналитический ядерно-физический комплекс ННЦ ХФТИ «Сокол» / [*В.Н. Бондаренко, Л.С. Глазунов, А.В. Гончаров и др.*] // Current Problems in Nuclear Physics and Atomic Energy: International conf., 29 May – 03 June, 2006 у.: transaction. – Kyiv (Ukraine), 2006. – P. 852 – 857. 5. Particle interaction with matter [Электронный ресурс]. – режим доступа: <http://www.srim.org>. 6. *Зборщик А.М.* Новые материалы в металлургии: конспект лекций. – Донецк: ГВУЗ «ДонНТУ», 2008. – 253 с.

Поступила в редколлегию 01.10.13

УДК 621.384.653

Моделирование процессов радиационного повреждения покрытий на основе TiN и MoN / *А.В. ЗАЦ, Л.С. ГЛАЗУНОВ, В.В. КУЗЬМЕНКО, В.В. ЛЕВЕНЕЦ, Д.В. ЛЫСАН, В.М. ПИСТРЯК, И.В. СЕРДЮК, В.А. СТОЛБОВОЙ* // Вісник НТУ «ХП». – 2013. – № 64 (1037). – (Серія: Хімія, хімічна технологія та екологія). – С. 56 – 64. – Бібліогр.: 6 назв.

Проведено опромінення серії покриттів TiN та MoN на неіржавіючій сталі на аналітичній ядерно-фізичній установці «Сокол». Показано, що експериментальне обладнання АЯФУ «Сокол» дозволяє проводити широке коло експериментів з дослідження радіаційних впливів на матеріали. Визначено умови проведення опромінення різними іонами з необхідним набором енергій, для оцінки впливу радіаційного випромінювання на покриття.

Ключові слова: покриття, іони, опромінення, радіаційне пошкодження, канал опромінення, моделювання.

A series of irradiation of TiN and MoN coatings on stainless steel on the analytical nuclear physics facilities "Sokol" is conducted. It is shown that the experimental equipment ANPF "Sokol" allows for a wide range of experiments on the effects of radiation on materials. The conditions of irradiation with different ions with the required set of energies to evaluate the effect of radiation on the surface are specified.

Keywords: coating, ions, irradiation, radiation damage, irradiation channel, modeling.