## С. В. Широков, М. П. Вышемирский

Национальный технический университет Украины «Киевский политехнический институт», г. Киев

# Использование тяжелых ионов для моделирования радиационного повреждения металлов

Дан обзор существующих методов решения проблемы моделирования радиационного повреждения металлов с использованием тяжелых ионов, а также анализ полученных в ходе исследования результатов. Показано, что облучение металлов тяжелыми ионами может имитировать нейтронное облучение эквивалентной дозы с достаточной точностью, предоставляя возможность детально изучить радиационное повреждение металлов.

Ключевые слова: радиационные дефекты, флюенс, вакансии, тяжелые ионы, время жизни позитронов, отжиг.

### С. В. Широков, М. П. Вишемирський

#### Застосування важких іонів для моделювання радіаційного пошкодження металів

Наведено огляд наявних методів вирішення проблеми моделювання радіаційного пошкодження металів із застосуванням важких іонів, а також аналіз отриманих у ході дослідження результатів. Показано, що опромінення металів важкими іонами може імітувати нейтронне опромінення еквівалентної дози з достатньою точністю, уможливлюючи детальне вивчення радіаційного пошкодження металів.

Ключові слова: радіаційні дефекти, флюенс, вакансії, важкі іони, час життя позитронів, відпал.

© С. В. Широков, М. П. Вышемирский, 2011

Ядерна та радіаційна безпека 3(51).2011

атериалы, используемые в быстром реакторе, а также перспективных установках ADS, ITER, подвержены высоким дозам облучения нейтронами. Облучения материалов нейтронами приводит к изменению их физических и механических свойств и поэтому существенно влияет на работоспособность конструкций ядерных реакторов. Основным фактором, определяющим эти изменения, являются нарушения кристаллической решетки, характеризирующиеся числом смещений атомов в кристаллической решетке за время облучения (число смещений на атом, англ. — displacements per atom, dpa). Это излучение вызывает серьезное радиационное повреждение материалов, что приводит к разрушению оборудования [1]. Исследование радиационных повреждений, обусловленных облучением большими дозами, весьма актуально и важно. Однако это исследование замедляется из-за отсутствия нейтронных и протонных источников, имеющих высокие плотности потоков частиц. Моделирование с использованием облучения тяжелыми ионами представляет эффективный путь такого исследования [2].

Научно-исследовательским институтом Японии на реакторной установке JJR-2 проведено облучение монокристаллических образцов  $Al_2O_3$  нейтронами с энергией  $E_n > 1$  МэВ, при этом флюенс составлял 3 10<sup>20</sup> см<sup>-2</sup> [3]. Облучение аналогичных образцов тяжелыми ионами <sup>19</sup>F выполнено Китайским институтом атомной энергии на ускорителе HI-13. Энергия ионов соответствовала 85 МэВ при флюенсе 5,28·10<sup>16</sup> см<sup>-2</sup>, что эквивалентно  $E_n > 1$  МэВ при флюенсе 3·10<sup>20</sup> см<sup>-2</sup>. После облучения проводился отжиг в атмосфере азота в течение 40 мин при температуре от 100 до 1050 °C с шагом 50 °С. Радиационные дефекты (вакансии и пустоты) выявлялись при дальнейшем облучении образцов позитронами при комнатной температуре методом измерения времени жизни последних. Для этого использовался спектрометр на основе BaF<sub>2</sub> с раздельной способностью 210 пс. Два идентичных образца располагались «сендвичем», источник позитронов мощностью 0,8 МБк находился в центре между образцами. Каждый спектр жизней позитронов содержал 1,5.10<sup>6</sup> взаимодействий, которые были проанализированы с помощью LT-программы. Спектр жизней позитронов хорошо описывался двумя компонентами —  $\tau_1$  и  $\tau_2$  — при температуре ниже 450 °C, и третьей долгоживущей компонентой — т<sub>3</sub> — при температуре выше 450 °C. Из рис. 1 видно, что все параметры аннигиляции позитронов (такие, как время жизни и интенсивность) при облучении образцов тяжелыми ионами хорошо согласуются с результатами, полученными при облучении таких же образцов нейтронами эквивалентной дозы. Таким образом, можно сделать вывод, что облучение тяжелыми ионами может имитировать нейтронное облучение эквивалентной дозы и открывает путь к надежному исследованию радиационных дефектов, возникающих в металлах при проведении опытов в лабораторных условиях за минимальный период времени.

После удачного эксперимента с алюминиевыми пластинами был проведен опыт с образцами нержавеющей стали аустенитного класса. MSS-316 (Modified Stainless Steel) имеет следующий состав, %: Cr — 15,05, Ni — 14,76; Ti — 0,32; P — 0,007; S — 0,007; Mn — 1,78; Si — 0,52; C — 0,048; Fe — 67,515 (Fe подбирался в остатке по массе). Образцы стали (их толщина составляла 0,5 мм) поддавались механическому наклепу для улучшения механических свойств, а далее полировались до зеркального вида. Облучение проводилось при переменной температуре (меняющейся



от комнатной до 802 °C, точность измерения температуры  $\pm 5$  °C) ионами  $^{12}$ C с энергией 70 МэВ на ускорителе HI-13.

Интенсивность повреждений составляла 2,1 dpa·ч<sup>-1</sup> для двух доз — 21 и 33 dpa. Время жизни позитронов измерялось в облученных и необлученных образцах одной и той же стали. Время жизни свободных позитронов в нержавеющей стали Stainless Steel составляет  $\tau_f$ =110 пс, а время жизни позитронов, попавших в моно-, ди-вакансии и дислокации, составляет соответственно  $\tau_{1B}$ =1,3 $\tau_f$ ,  $\tau_{2B}$ =1,5 $\tau_f$  и  $\tau_{дис}$ =1,3 $\tau_f$ . Для необлученного образца MSS-316  $\tau_{1B}$ =147 пс,  $\tau_{2B}$ =271 пс: это средневзвешенное время аннигиляции позитронов в образце. Зависимость  $\tau_{1B}$  и  $\tau_{2B}$  от температуры отжига получена сначала для необлученной стали MSS-316. Таким образом, было определено, что с ростом температуры отжига  $\tau_{1B}$  уменьшается и достигает 110 пс, а  $\tau_{2B}$ =255 пс при 800 °C.

Для облученных образцов MSS-316 зависимость  $\tau_{1B}$  и  $\tau_{2B}$  от температуры облучения представлена на рис. 2 (для



Рис. 1. Зависимость времени жизни позитронов  $\tau_1, \tau_2, \tau_3$  и их интенсивности  $I_2$  и  $I_3$  в образце  $Al_2O_3$  от температуры отжига при их облучении нейтронами и ионами <sup>19</sup>F эквивалентной энергии

21 dpa). Из рисунка видно, что при комнатной температуре время жизни позитронов, попавших в ди-вакансию ( $\tau_{2p}$ ) почти такое же, как и в необлученных образцах, тогда как время жизни позитронов, попавших в моно-вакансию,  $\tau_{1B}\!=\!155,3$ пс. Оба параметра  $\tau_{1B}$  и  $\tau_{2B}$  достигают своих пиковых значений 157,4 пс и 373,0 пс при 580 °С. При температуре 802 °C  $\tau_{1B}$ =128,2 пс и  $\tau_{2B}$ =301,7 пс: в данном случае время жизни позитронов больше соответствующих значений  $\tau_{1B}$  и  $\tau_{2B}$  в необлученных образцах, отожженных при 800 °С. Доли моно- и ди-вакансий и дислокаций уменьшаются с ростом температуры облучения, кроме 580 °C, что можно интерпретировать как факт, что т<sub>1в</sub> представляет собой средневзвешенное время жизни свободных позитронов и позитронов, захваченных на возникших дефектах. Время жизни позитронов т<sub>1</sub> дает пик при 580 °C. Конкуренция между сочетанием дефектов теплового движения и дефектов термического отжига приводит к увеличению доли дивакансий, что в свою очередь приводит к пику при этой



Рис. 2. Сравнение времени жизни позитронов облученной и необлученной стали MSS-316

температуре. Самые большие пустоты или кластеры, характеризующиеся  $\tau_2$ , наблюдались также при 580 °C.

Из температурной зависимости времени жизни позитронов  $\tau_2$  в стали MSS-316 (рис. 3), полученной для 33 dpa, пик наблюдается так же при 580 °С. Видно, что ниже температуры пика время жизни позитронов  $\tau_2$  увеличивается с температурой облучения; следовательно, радиационные дефекты более чувствительны к температуре, чем к дозе облучения.

Радиус образовавшихся пустот можно ориентировоч-

но оценить по зависимости  $R_v = N^{\overline{3}}R_{ws}$ , где  $R_{ws}$  — радиус Вигнера-Зейтса; N — число вакансий, содержащихся в микропустоте [2]. Результаты расчета среднего диаметра наблюдаемых пустот при различных температурах облучения (до 802 °C) на 21 и 33 dpa (рис. 3) свидетельствуют о том, что температура существенно влияет на диаметр микропустот и, таким образом, на радиационное распухание. Пик распухания нержавеющей стали варьируется в диапазоне 450—650 °C в зависимости от состава металла. При более низких температурах облучения дефекты менее подвижны и вероятность их укрупнения мала. При более высоких температурах облучения имеет место вакансионный отжиг, и распухание происходит только при определенной температуре. В данном случае пик радиационного распухания наблюдался при 580 °C, соответствующие микропустоты содержали 14 и 19 вакансий со средним диаметром 0,68 и 0,82 нм для 21 и 33 dpa соответственно. Как уже упоминалось, наклеп и добавление незначительного количества стабилизирующих элементов могут значительно уменьшить радиационное распухание в нержавеющей стали.

Хотя радиационный пик распухания и обнаружен при 580 °С, а пустоты содержали по 14 и 19 вакансий со средним диаметром 0,68 и 0,82 нм для 21 и 33 dpa соответственно, это распухание значительно меньше, чем в обычной нержавеющей стали, при исследовании которой пустота со средним диаметром 25,8 нм обнаружена при облучении с температурой 560 °С и общей дозой  $3,2 \cdot 10^{22} \text{ n} \cdot \text{см}^{-2}$ , что эквивалентно использованной в опыте дозе облучения тяжелыми ионами [3].

Изучением этой же проблемы долгие годы занимались в российском Физико-энергетическом институте им. А. И. Лейпунского. В середине 1980-х под руководством Ю. В. Конобеева были получены групповые библиотеки сечений образования дислокаций [4]. При расчетах по системе констант БНАБ до последнего времени использовалась именно оценка Ю. В. Конобеева и др. Однако данные DAMSIG-81, лежащей в основе этой библиотеки, были получены с использованием устаревших к настоящему времени нейтронных данных ENDF/B-3. Поэтому было решено создать новую версию библиотеки сечений образования дислокаций и на основании обновленных данных получить модель образования радиационных дефектов



Рис. 3. Температурная зависимость времени жизни позитронов  $\tau_2$  и среднего диаметра микродефектов в стали MSS-316, облученных до доз 21 и 33 dpa



Рис. 4. Зависимость дозы облучения от энергии образования дислокаций

в металлах. Расчет групповых сечений образования дислокаций проводился с помощью программы NJOY-91 — признанного и широко используемого в мире программного средства для обработки файлов оцененных нейтронных данных. Методика расчета DPA, принятая в NJOY-91.4, базируется на каскадной функции Робинсона, основной идеей которой является принятие минимальных значений энергии, необходимой для образования устойчивой пары Френкеля в различных материалах,  $-E_d$ . Опыт был проведен с помощью компьютерной симуляции на независимо разработанном модуле KERMA программы TERMIS в Физико-энергетическом институте им. А. И. Лейпунского. Верифицировались полученные данные сравнением их с данными 175-групповой абсолютно независимой библиотеки групповых сечений образования дислокаций RLF-1. Полученные результаты оказались вполне удовлетворительными (рис. 4), что еще раз подтверждает возможность моделирования радиационных дефектов с помощью тяжелых ионов [3].

Подводя итоги, можно сделать вывод, что облучение металлов тяжелыми ионами может имитировать нейтронное облучение эквивалентной дозы с достаточной точностью и дает возможность детально изучить радиационное повреждение металлов.

#### Список литературы

1. *Пищак, В. К.* Электронный конспект лекций для студентов специальности «Атомные станции и установки»: Конструкционные материалы ядерных энергетических установок. — К.: КПИ, 2007.

2. *Абрамович, М. Д.* Радиационное материаловедение на АЭС. — М.: Энергоатомиздат, 1984.

3. Yongnan Zheng. Heavy ion irradiation simulation of high dose irradiation induced radiation effects in materials / Yongnan Zheng, Yi Zuo and others // Вопросы атомной науки и техники. — X., 2009. — Вып. 4.

4. Забродская, С. В. Библиотека сечений образования транслокаций, H<sub>2</sub>, Не в системе константного обеспечения БНАБ-93 / С. В. Забродская, М. Н. Николаев // Всерос. ин-т науч. и техн. информации — электронный ресурс.

Надійшла до редакції 23.03.2011.