

ВЛИЯНИЕ ВАРИАЦИИ ФАЗОВОГО СОСТАВА КОМПОЗИТНЫХ КЕРАМИК НА УСТОЙЧИВОСТЬ К ДЕСТРУКТИВНО - ИНДУЦИРОВАННОМУ РАЗУПРОЧНЕНИЮ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ

Р.Б. Елшибеков, А.Л. Козловский
*Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева,
пр. Сатпаева 2, Астана 010008, Казахстан,
e-rinat92@mail.ru, kozlovskiy.a@inp.kz*

В работе рассмотрено влияние вариации фазового состава композитных керамик, полученных путем механохимического перемалывания порошков карбида кремния (SiC) и диоксида циркония (ZrO₂) в различном соотношении компонент, на устойчивость к процессам радиационных повреждений, вызванных воздействием тяжелых ионов, выбор которых обусловлен возможностью имитации воздействия осколков деления ядерного топлива. В качестве тяжелых ионов для имитации радиационных повреждений, сравнимых с воздействием осколков деления ядерного топлива были выбраны ионы Хе²³⁺ с энергией порядка 230 МэВ, флюенсы облучения составили от 10¹¹ до 10¹⁴ ион/см², что в свою очередь позволило смоделировать эффекты формирования как одиночных структурно - деформированных изолированных поврежденных областей, так и случаи их перекрытия при высоких флюенсах облучения. Выбор в качестве основы для получения композитных керамик карбида кремния и диоксида циркония обусловлен возможностью комбинации структурных особенностей и прочностных параметров данных керамик, которые являются одними из ключевых типов материалов, используемых в качестве основы для создания инертных матриц дисперсного ядерного топлива для реакторов нового поколения. Согласно полученным данным было установлено, что вариация соотношения компонент в составе керамик приводит к инициализации процессов фазовых трансформаций, способствующих увеличению сопротивляемости к разупрочнению за счет наличия фазовых границ, сдерживающих процессы деструкции.

Ключевые слова: композитные керамики; радиационные повреждения; деградация приповерхностного слоя; разупрочнение; деструкция; межфазные границы.

INFLUENCE OF PHASE COMPOSITION VARIATION OF COMPOSITE CERAMICS ON RESISTANCE TO DESTRUCTIVELY INDUCED SOFTENING UNDER HEAVY ION IRRADIATION

R.B. Elshibekov, A.L. Kozlovskiy
*L.N. Gumilyov Eurasian National University,
2 Satpayev Ave., 010008 Astana, Kazakhstan,
e-rinat92@mail.ru, kozlovskiy.a@inp.kz*

The paper considers the effect of variation in the phase composition of composite ceramics obtained by mechanochemical milling of silicon carbide (SiC) and zirconium dioxide (ZrO₂) powders in different component ratios on resistance to radiation damage processes caused by heavy ions, the choice of which is due to the possibility of simulating the impact of nuclear fuel fission fragments. Xe²³⁺ ions with an energy of about 230 MeV were chosen as heavy ions for simulating radiation damage comparable to the impact of nuclear fuel fission fragments, the irradiation fluences were from 10¹¹ to 10¹⁴ ion/cm², which in turn made it possible to simulate the effects of the formation of both single structurally deformed isolated damaged areas and cases of their overlapping at high irradiation fluences. The choice of silicon carbide and zirconium dioxide as a basis for obtaining composite ceramics is due to the possibility of combining the structural features and strength parameters of these ceramics, which are among the key types of materials used as a basis for creating inert matrices of dispersed nuclear fuel for new-generation reactors. According to the data obtained, it was established that variation in the ratio of components in the composition of ceramics leads to the initialization of phase transformation processes that contribute to an increase in resistance to softening due to the presence of phase boundaries that restrain destruction processes. According to the obtained data, it was established that the increase in resistance to destruction processes caused by high-dose irradiation with heavy

ions is due to the combination of two materials, which leads to an increase in the probability of recombination of interstitial and vacancy defects due to heterogeneous boundaries.

Keywords: composite ceramics; radiation damage; surface layer degradation; softening; destruction; interphase boundaries.

Введение

Использование технологических решений, связанных с возможностью увеличения устойчивости конструкционных материалов к внешним воздействиям, включая радиационные повреждения, является одним из ключевых факторов развития альтернативных источников энергии, а также снижения себестоимости их производства.

Большое внимание в данном направлении исследований в последние годы уделяется оценке применимости различных композитных керамик в качестве конструкционных материалов, в частности, материалов для инертных матриц дисперсного ядерного топлива, материалов оболочек или покрытий для топлива, теплозащитных и радиационно – стойких барьерных слоев, защищающих основные узлы от негативного воздействия как высоких температур, так и радиационных повреждений [1, 2].

Основной интерес к подобным материалам обусловлен, в первую очередь, возможностью сочетания в них свойств каждого используемого компонента, что в совокупности позволяет создать композит с высокими показателями термической и радиационной стойкости, высокой сопротивляемости к воздействию агрессивных сред и связанных с их воздействием коррозионных процессов, а также механической прочностью и сопротивляемостью к внешним воздействиям, возникающим в процессе эксплуатации в экстремальных условиях. При этом, несмотря на большое количество различных научных работ в области оценки механизмов радиационных повреждений и их роли в изменении прочностных и теплофизических свойств керамических или композитных материалов [1-3], все еще остается большое количество

нерешенных задач, большая часть из которых связана с определением влияния вариации соотношения компонент в составе композитных керамик на сопротивляемость к внешним воздействиям.

Основная цель данного исследования заключается в определении кинетики изменений свойств композитных SiC – ZrO₂ керамик к процессам радиационно - индуцированных повреждений, имитирующих воздействие осколков деления ядерного топлива. При этом основной упор в исследовании сделан на определении влияния изменения фазового состава SiC – ZrO₂ керамик на сопротивляемость к деградации при накоплении структурных повреждений за счет наличия гетерогенных границ, наличие которых обусловлено изменением фазового состава керамик.

Методика эксперимента

Синтез образцов осуществлялся путем механохимического твердофазного перемалывания исходных порошков SiC и ZrO₂ в различных стехиометрических соотношениях компонент, вариация которых позволила получить серию образцов с различным фазовым составом. После механохимического перемалывания полученные порошки подвергались термическому отжигу в муфельной печи при температуре 1500 °С в течение 5 часов с последующим остыванием вместе с печью до комнатной температуры в течение 24 часов.

Характеризация фазового состава керамик осуществлялась с применением метода рентгенофазового анализа, выполненного на рентгеновском дифрактометре D8 Advance ECO. Для определения фазового состава использовался метод сопоставления положений дифракционных пиков на дифрактограммах, полученных экспери-

ментально, с результатами из базы данных PDF-2. Весовые вклады оценивались с применением метода определения вклада всех рефлексов каждой установленной фазы в общую дифрактограмму с последующим определением ее доли относительно остальных фаз.

Облучение образцов с целью имитации воздействия осколков деления ядерного топлива на приповерхностные слои композитных керамик осуществлялось на ускорителе ДЦ – 60, базирующимся в Астанинском филиале Института ядерной физики МЭ РК. Для имитации повреждений были выбраны тяжелые ионы Xe^{23+} с энергией порядка 230 МэВ и флюенсами облучения от 10^{11} до 10^{14} ион/см².

Результаты и их обсуждение

Согласно оценке ионизационных потерь, рассчитанных с использованием программного кода SRIM Pro, было установлено, что максимальная глубина пробега ионов в данном типе композитных керамик составляет порядка 12-15 мкм.

Согласно оценке фазового состава исследуемых SiC – ZrO₂ керамик, добавление к диоксиду циркония карбида кремния приводит к образованию трех фаз в виде примесных включений: SiC фазы с гексагональным типом кристаллической структуры, SiO₂ фазы с тетрагональным типом кристаллической структуры и тетрагональной фазы ZrSiO₄, представляющей собой плотноупакованную структуру, состоящую из ZrO₈ – додекаэдров, связанных с SiO₄ – тетраэдрами. При этом наличие включений в виде SiO₂ (содержание которых составляет менее 5 % для концентраций SiC от 0.05 М до 0.3 М в составе керамик) обусловлено процессами термического окисления карбида при термическом спекании в кислородо-содержащей атмосфере.

В ходе оценки изменений структурных параметров в зависимости от дозы облучения было установлено, что наличие в со-

ставе композитных керамик включений в виде примесных фаз SiC и SiO₂ приводит к сдерживанию процессов структурной деградации, а также уменьшению величины деформационных искажений основной фазы ZrO₂ в сравнении с нестабилизированной керамикой на основе диоксида циркония, которая была выбрана для сравнения с композитными керамикami.

При оценке изменений теплофизических свойств керамик было установлено, что формирование примесных включений в виде фаз SiC и SiO₂ приводит к увеличению теплопроводности композита в сравнении с результатами, полученными для ZrO₂ керамик, однако, увеличение вклада фазы ZrSiO₄ приводит к уменьшению теплопроводности, что обусловлено более низкими значениями теплопроводности данной фазы в сравнении с теплопроводностью карбида кремния, включения которой позволяют увеличить теплопроводность ZrO₂ керамик. При этом установлено, что формирование в структуре композитных керамик фазы ZrSiO₄ с последующим увеличением ее весовой доли в структуре приводит к замедлению процессов снижения теплопроводности в сравнении с образцами ZrO₂ керамик.

Заключение

В работе представлены результаты оценки влияния вариации соотношения компонент в составе SiC – ZrO₂ керамик, полученных с применением метода механохимического твердофазного синтеза, на устойчивость к процессам деструкции, вызванных облучением тяжелыми ионами Xe^{23+} .

Получены зависимости влияния вариации фазового состава композитных керамик на сопротивляемость накоплению структурных повреждений, связанных с деструктивным разупрочнением поврежденного слоя при накоплении дефектов и их дальнейшей эволюции. Определено влияние вариации фазового состава SiC –

ZrO₂ керамик на изменение прочностных и теплоизоляционных свойств, изменение которых происходит при накоплении дефектов и образованию аморфных включений. Установлено, что формирование гетерогенных границ зерен в составе композитных керамик приводит к росту сопротивляемости структурного разупорядочения, а также снижению трендов изменения прочностных характеристик.

Библиографические ссылки

1. Devanathan R. Radiation damage evolution in ceramics. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 2009; 267(18): 3017-3021.
2. Wang X., Zhang H., Baba T., Jiang H., Liu C., Guan Y., Szlufarska, I. Radiation-induced segregation in a ceramic. *Nature Materials* 2020; 19(9): 992-998.
Men D., Patel M. K., Usov I. O., Toiammou M., Monnet I., Pivin J. C., Mecartney M. L. Radiation damage in multiphase ceramics. *Journal of nuclear materials* 2013; 443(1-3): 120-127.