

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2025-1-121-131>
УДК 539.213.26

ИССЛЕДОВАНИЯ ВЛИЯНИЯ ТЕМПЕРАТУРНЫХ ФАКТОРОВ НА СКОРОСТЬ НАКОПЛЕНИЯ СТРУКТУРНЫХ ПОВРЕЖДЕНИЙ В КОМПОЗИТНЫХ КЕРАМИКАХ

А. Л. Козловский^{1,2,3*}, С. Б. Азамбаев¹, М. Е. Кенжина^{2,3}, А. У. Толенова³

¹ НАО «Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева», Астана, Казахстан

² РГП «Институт ядерной физики» МЭ РК, Алматы, Казахстан

³ Satbayev University, Алматы, Казахстан

* E-mail для контактов: kozlovskiy.a@inp.kz

В работе рассмотрено влияние температуры нагрева при облучении тяжелыми ионами композитных керамик на процессы структурного разупрочнения и разупорядочения, вызванные накоплением радиационных повреждений. Вариация температуры облучения составляла от 300 до 1000 К, что позволило имитировать процессы радиационных повреждений, наиболее приближенных к реальным условиям эксплуатации. В ходе проведенных исследований была определена прямая зависимость между изменениями степени разупрочнения твердости и прочности на изгиб от величины объемно-деформационного распухания кристаллической структуры, а также вклад термических эффектов в деградацию структурных и прочностных свойств керамик. Согласно полученным данным, установлено, что увеличение концентрации аморфных включений в поврежденном слое, наличие которых имеют прямую зависимость как от флюенса облучения, так и температуры, приводит к более выраженной деградации прочностных характеристик, свидетельствующих о дестабилизации устойчивости керамик к процессам разупрочнения при высокодозном облучении. При этом степень разупрочнения имеет прямую зависимость от температуры облучения, что в случае рассмотрения применимости данных керамик в качестве материалов инертных матриц требует учета при прогнозировании сроков их эксплуатации. Определено, что увеличение температуры облучения приводит к более выраженной дестабилизации прочностных свойств, в особенности, ухудшении твердости и прочности на изгиб при флюенсах 10^{13} – 10^{14} ион/см², деградация которых превышает допустимые значения снижения в 5% от начальных значений.

Ключевые слова: композитные керамики; радиационные повреждения; температурные факторы; дефекты; разупрочнение; деградация.

ВВЕДЕНИЕ

Как известно, эксплуатация композитных керамик в качестве материалов инертных матриц дисперсного ядерного топлива подразумевает под собой не только воздействие осколков деления и нейтронного облучения, но и температурные эффекты, выраженные в высокотемпературных режимах эксплуатации при которых повышается глубина выгорания ядерного топлива, а также повышается КПД ядерных реакторов [1–3]. В данном случае поведение материалов инертных матриц к процессам накопления радиационных повреждений совмещенных с термическим нагревом является весьма важным, так как в случае высоких температур на кинетику накопления структурных повреждений, а также сами механизмы дестабилизации будут зависеть от внешних факторов, обусловленных изменениями амплитуды тепловых колебаний, ускорением процессов диффузии точечных и вакансионных дефектов, а также эффектами термического расширения кристаллической решетки [4, 5]. В случае термического воздействия, изменение амплитуды тепловых колебаний атомов в узлах кристаллической решетки может привести к увеличению подвижности структурных дефектов, а также ускорению их миграции в поврежденном слое. Диффузия вакансионных и точечных дефектов при высоких температурах может привести не только к

более выраженной агломерации дефектов в поврежденном слое, но и уширению глубины поврежденного слоя за счет миграции дефектов вглубь образца, тем самым увеличивая толщину поврежденного слоя [6, 7]. Совокупность этих факторов может привести к ускорению процессов дестабилизации поврежденного слоя, выражающегося в его охрупчивании и разупрочнении, при гораздо меньших флюенсах, чем при облучении при комнатной температуре. В виду этого для уточнения потенциала применимости композитных керамик в качестве материалов инертных матриц, работающих в экстремальных условиях, включающих высокие температуры и большие дозы облучения, необходимы эксперименты, связанные с высокотемпературным облучением образцов, результаты которых позволят определить различия в кинетике деградации приповерхностного слоя, а также определить влияние температурных эффектов на механизмы разупрочнения и дестабилизации прочностных характеристик [8–12].

Основная цель представленного в данной работе исследования заключается в определении роли температуры облучения на изменение структурных и прочностных параметров композитных Si_3N_4 – Al_2O_3 керамик, подверженных облучению тяжелыми ионами Xe^{23+} при вариации флюенса облучения. Основной упор в исследовании направлен на выявление

влияния температурных факторов на скорость деградации приповерхностного слоя, выражающуюся в изменении структурных параметров, связанных с объемным расширением кристаллической решетки, а также деградации прочностных свойств (твердости и прочности на изгиб). Новизна данного исследования включает в себя проведение тестовых испытаний, направленных на выявление влияния температуры облучения на степень деструкции приповерхностного слоя керамик, а также его разупрочнения, возникающего в результате диффузии дефектов в поврежденном слое. При этом подбор температурных режимов воздействия при облучении подбирался с учетом возможности имитации воздействия осколков деления ядерного топлива на материал керамик максимально приближенных к реальным условиям эксплуатации.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В качестве объектов для исследования определения влияния температурных эффектов на скорость деструкции приповерхностного слоя керамик были выбраны композитные керамики на основе соединений $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ с соотношением компонент 0,4 М Si_3N_4 и 0,6 М Al_2O_3 , для которых характерно наличие четырех фаз в составе: доминирующих фаз $\text{Al}_2(\text{SiO}_4)\text{O} - \text{Al}_2\text{O}_3$ с весовыми вкладами 43,4 вес.% и 40,8 вес.% соответственно, а также включений в виде фаз Si_3N_4 и SiO_2 с весовыми вкладами 9,0 и 6,8 вес.% соответственно [13]. Данная комбинация фаз позволила получить высокопрочные керамики, для которых значение твердости составляет порядка 1452 МПа, а устойчивость к растрескиванию при трехточечном изгибе 935 МПа. Выбор данного соотношения компонент обусловлен наиболее высокими показателями устойчивости к радиационно-стимулированным процессам деструкции приповерхностного слоя, вызванных облучением тяжелыми ионами Xe^{23+} при температуре 300 К [14].

С целью определения влияния наличия межфазных границ в керамиках на сдерживание механизмов разупорядочения, а также выявление влияния температурных эффектов, приводящих к ускорению процессов деформационного искажения кристаллической структуры, и как следствие, изменений прочностных и теплофизических параметров была проведена серия экспериментальных работ, включающих в себя облучения выбранных образцов керамик тяжелыми ионами Xe^{23+} с энергией 230 МэВ при трех различных температурах 300, 700 и 1000 К. Варьирование флюенсов облучения осуществлялось в диапазоне от 10^{11} до 10^{14} ион/см², который охватывает область формирования одиночных изолированных дефектных областей при малых флюенсах, а также их перекрытия в случае больших флюенсов, при которых усиливается эффект структурных искажений за счет увеличения плотности дефектных областей и их наложения друг на друга в процессе облучения.

Определение влияния вариация условий облучения на структурные изменения приповерхностного

слоя в керамиках было проведено с применением метода рентгеноструктурного анализа. Съемка рентгеновских дифрактограмм была осуществлена с применением порошкового дифрактометра D8 Advance ESO (Bruker, Германия). Дифрактограммы были получены с применением метода Брегг – Брентано, съемка дифрактограмм осуществлялась в диапазоне $2\theta = 15-90^\circ$, время набора спектра составляло 1 сек, шаг съемки $0,03^\circ$. При выборе типа ионов и их энергии длина пробега ионов в материале составляет порядка 15–20 мкм. При этом подбор режимов рентгенографирования был осуществлен с учетом длины пробега ионов, так чтобы измерения осуществлялись только с поврежденной области, отражающей структурные изменения.

Величина объемного распухания была определена путем сравнения изменений величин объемов кристаллической решетки в исходном состоянии и после облучения, что позволило определить изменения вызванные накоплением структурных деформаций и повреждений при облучении, а также определить роль температуры воздействия на процессы деформационного распухания.

Определение изменений твердости приповерхностного слоя, значения которой отражают степень деструкции, вызванной накоплением структурных дефектов при изменении условий облучения, было осуществлено с применением метода индентирования, реализованного с помощью микротвердомера LM 700 (LECO, Святой Иосиф, США). Индентирование осуществлялось при постоянной нагрузке на индентер в 100 Н, время воздействия индентера на образец составляло порядка 30 сек. Прочность на изгиб измерялась с применением метода трехточечного изгиба реализованного с помощью испытательной машины LFM-L 10 kN (Walter + Bai AG, Лёнинген, Швейцария). Измерения осуществлялись путем воздействия на образец с идентификацией момента, при котором фиксируется появление трещин в образце.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Термические эффекты, связанные с изменением температуры тепловых колебаний атомов в кристаллической решетке, увеличивающей ее подвижность, в результате чего происходит тепловое расширение кристаллической структуры, могут оказать негативное влияние на изменение кинетики накопления структурных повреждений в керамиках при увеличении плотности дефектных областей, возникающих при увеличении флюенса облучения [15–17]. Термическое расширение в свою очередь может также способствовать ускорению процессов миграции точечных и вакансионных дефектов, которые под действием температуры способны диффундировать на большую глубину, что может привести к уширению толщины поврежденного слоя, изменение которой негативно сказывается на прочностных характеристиках, а также сроках эксплуатации керамик. В данном случае увеличение подвижности точечных и вакансион-

ных дефектов в результате воздействия высоких температур может привести к более выраженным структурным изменениям, связанным как с накоплением деформационных искажений кристаллической решетки, так и накоплением метастабильных включений, связанных с образованием сильноразупорядоченных аморфноподобных областей, накопление которых может привести к дестабилизации приповерхностного слоя. Для оценки структурных изменений в результате вариации условий облучения тяжелыми ионами, а также выявления механизмов структурного разупорядочения поврежденного слоя в зависимости от флюенса облучения (в пересчете на величину атомных смещений) был применен метод рентгеноструктурного анализа. На рисунках 1–3 приведены результаты рентгеноструктурного анализа исследуемых образцов керамик в зависимости от вариации флюенса облучения в случае трех различных температур облучения, вариация которых позволила смоделировать различные режимы, приближенные к реальным условиям эксплуатации.

Общий вид представленных рентгеновских дифрактограмм в зависимости от флюенса облучения отражают эффекты структурной деградации, выражающиеся в накоплении структурных повреждений в виде деформационных искажений кристаллической структуры (смещений положения дифракционных максимумов в область малых углов, а также искажениями формы рефлексов), и накоплением аморфноподобных метастабильных включений в поврежденном слое (выражающиеся в изменении интенсивности дифракционных рефлексов в сравнении с исходным образцом). Следует отметить, что изменений фа-

зового состава в исследуемых образцах керамик при увеличении флюенса облучения не установлено, что свидетельствует о стабильности фазового состава к процессам фазовых полиморфных превращений или процессам рекристаллизации, при которых может происходить формирование новых фаз в составе образцов. При этом наиболее выраженные изменения дифрактограмм исследуемых образцов в зависимости от флюенса облучения наблюдаются при флюенсах выше 10^{12} ион/см², для которых характерно увеличение плотности структурно-деформированных включений, а также возникновения эффекта их перекрытия при увеличении флюенса облучения. В данном случае наблюдаемые изменения свидетельствуют о накопительном эффекте структурных искажений, вызванных облучением, а также связанных с ними увеличением плотности деформационных напряжений растягивающего типа, о наличии которых свидетельствует смещение дифракционных рефлексов.

Для образцов $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ керамик, облученных при температурах 700 и 1000 К появление новых дифракционных рефлексов также не наблюдалось, однако изменение интенсивностей снижения дифракционных рефлексов более выражены, чем в случае облучения образцов при температуре 300 К. Подобный характер изменений свидетельствует о том, что характер и скорость накопления структурных искажений в случае увеличения температуры облучения становится более выраженным, чем в случае облучения при комнатной температуре (300 К), что в свою очередь также свидетельствует о снижении сопротивляемости керамик к процессам разупорочения и устойчивости к накоплению радиационных дефектов.

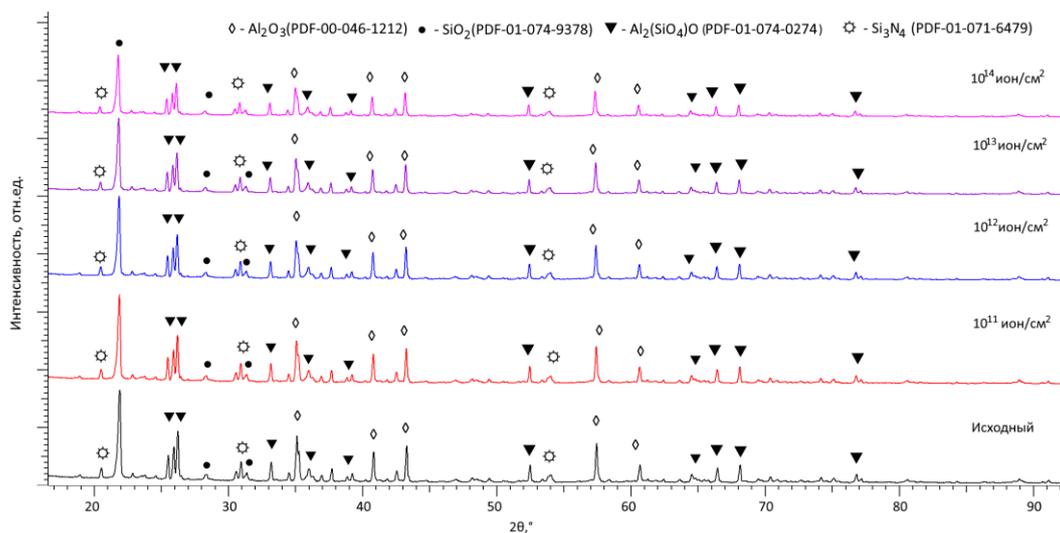


Рисунок 1. Результаты исследований рентгеноструктурного анализа $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ керамик, подверженных облучению тяжелыми ионами Xe^{23+} при температуре 300 К

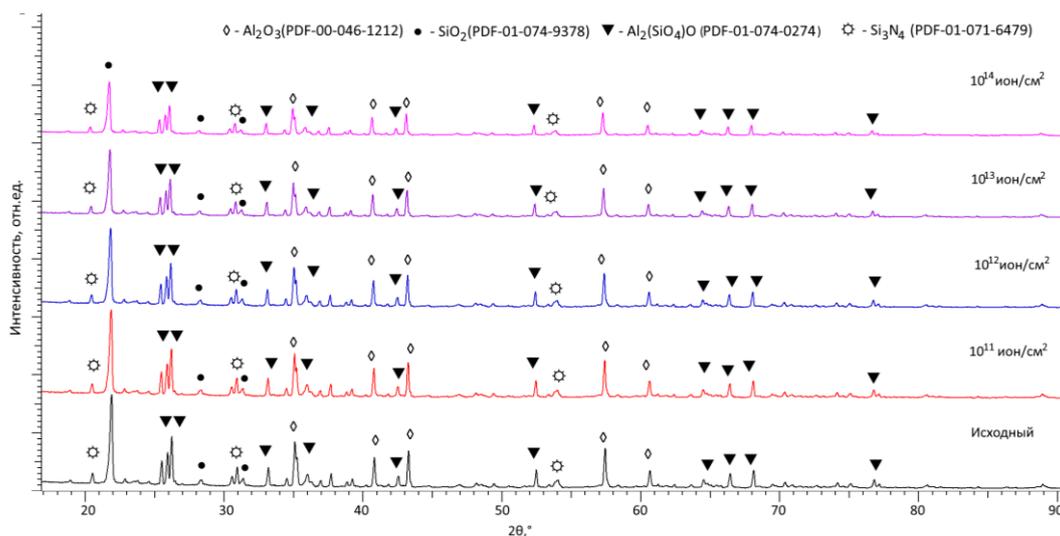


Рисунок 2. Результаты исследований рентгеноструктурного анализа $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ керамик, подверженных облучению тяжелыми ионами Xe^{23+} при температуре 700 K

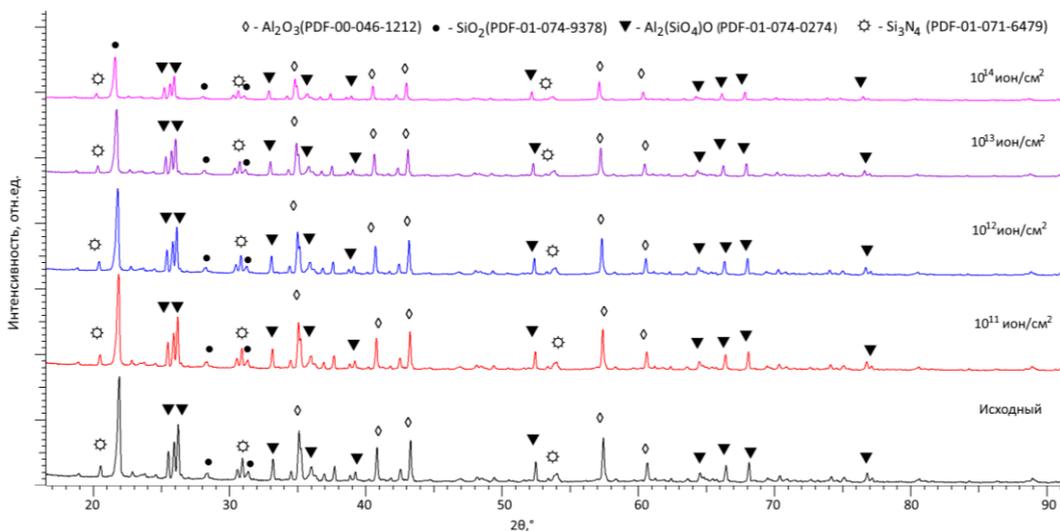


Рисунок 3. Результаты исследований рентгеноструктурного анализа $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ керамик, подверженных облучению тяжелыми ионами Xe^{23+} при температуре 1000 K

На рисунке 4 приведены результаты сравнительного анализа изменений формы и положений наиболее интенсивных рефлексов, наглядно характеризующих деформационные искажения и накопление метастабильных аморфноподобных включений в составе керамик. Данные представлены в виде изменений основных рефлексов, с вычитанием фона, чтобы отразить влияние температурных факторов на изменение структурных параметров, выражающихся в изменении интенсивности дифракционных рефлексов, а также их смещении, свидетельствующим о деформационных искажениях.

Как видно из представленных данных сравнительного анализа, в случае образцов $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ керамик, облученных при температуре 300 K, в случае флюенсов облучения $10^{11} - 10^{12}$ ион/см² изменение интенсивности, формы и положения максимумов имеет минимальные отклонения от значений для ис-

ходного образца, что свидетельствует о достаточно высокой устойчивости керамик к процессам структурного разупорядочения, вызванных формированием структурно-деформированных включений в результате взаимодействия тяжелых ионов с кристаллической структурой. В случае увеличения флюенса облучения, наблюдаются более выраженные изменения дифракционных рефлексов, которые свидетельствуют о проявлении в структуре накопительного эффекта, связанного с увеличением плотности перекрытия структурно-деформированных включений, накопительный эффект которых, как видно из представленных данных, приводит к снижению интенсивности дифракционных рефлексов, изменение которых свидетельствует о процессах накопления структурно-разупорядоченных включений и частичной аморфизации (сильного структурного разупорядочения). В свою очередь увеличение температуры облучения

с 300 до 700 и 1000 К приводит к увеличению интенсивности наблюдаемых изменений дифракционных рефлексов, согласно которым можно сделать вывод об увеличении подвижности точечных и вакансионных дефектов, что в свою очередь приводит к ускорению дестабилизации поврежденного слоя. Следует отметить, что в случае $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ керамик, облученных при температурах 700 и 1000 К, снижение интенсивности дифракционных рефлексов наблюдается при флюенсе 10^{12} ион/см², а сам характер и тренд снижения имеет явно выраженную зависимость от температуры облучения. Подобные изменения свидетельствуют о том, что при одних и тех же плотностях структурно-деформированных включений, возникающих в результате взаимодействия налетающих ионов с кристаллической структурой, но оказывающих различный вклад в изменения структурных параметров, выражающийся в более выраженных изменениях интенсивности дифракционных рефлексов, а также их смещении в область малых углов, свидетельствующее об увеличении деформационных растягивающих напряжений в структуре, ключевую роль в изменениях оказывают тепловые эффекты. Тепловые эффекты, в данном случае заключаются в изменении амплитуды колебаний атомов в узлах кристаллической решетки, что в совокупности с ионизационными эффектами приводит к усилению их подвижности, а также более интенсивному выбиванию из узлов, с последующей диффузией. При этом термически стимулированная диффузия точечных и вакансионных дефектов приводит к более выраженной дестабилизации кристаллической структуры, выражающейся в увеличении деформационных искажений, а также аморфизации (сильному разупорядочению) поврежденного слоя при высоких флюенсах облучения (10^{13} – 10^{14} ион/см²). При увеличении температуры, возникающий эффект термического расширения, оказывает негативное влияние на устойчивость кристаллической структуры к процессам деформационных искажений, результатом которых является более выраженные эффекты структурной дегградации, выражающиеся как в объемно-деформационном распухании за счет накопления растягивающих микронапряжений и искажений кристаллической структуры, так и увеличением концентрации структурно-разупорядоченных метастабильных включений в поврежденном слое. При этом сравнивая изменения интенсивностей и положения дифракционных рефлексов при максимальном флюенсе облучения можно сделать вывод о том, что при температуре облучения 1000 К наблюдается максимальная степень дегградации поврежденного слоя, выражающаяся как в увеличении деформационного искажения за счет сильно выраженных растягивающих напряжений, так и большой плотности метастабильных структурно-разупорядоченных областей.

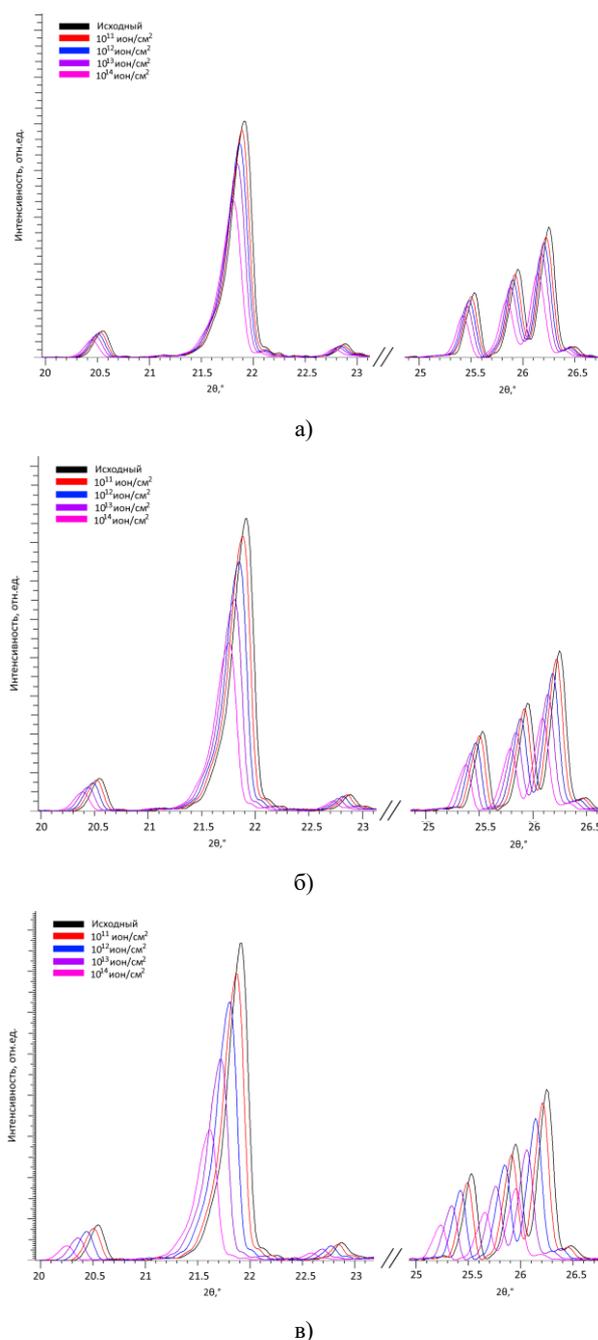


Рисунок 4. Результаты сравнительного анализа изменений интенсивности и положения дифракционных рефлексов в зависимости от флюенса облучения при вариации температуры облучения: 300 К (а); 700 К (б); 1000 К (в)

На основе оценки структурных параметров была определена величина объемного распухания кристаллической структуры поврежденного слоя, связанная с изменением объемов кристаллической решетки при деформационных искажениях, накопление которых происходит в поврежденном слое при увеличении флюенса облучения. Результаты оценки представлены на рисунке 5 в виде зависимостей изменений величины ΔV от величины атомных смеще-

ний, рассчитанной на основе изменений величины флюенса облучения тяжелыми ионами и величин вакансионных дефектов, образующихся в результате взаимодействия налетающих ионов с кристаллической структурой. Как видно из представленных данных, изменение величины объемного распухания в случае образцов, облученных при температуре 300 К, наиболее проявлено только при максимальном флюенсе облучения (10^{14} ион/см²), из чего можно сделать вывод о том, что в случае облучения при данном температурном режиме, доминирующими процессами в механизмах структурной деградации являются процессы, связанные с накоплением деформационных напряжений, которые сдерживаются наличием межфазных границ, что приводит к малым изменениям объемного распухания. При этом изолированность структурно-деформированных включений при малых флюенсах, а также при их наложении друг на друга при флюенсах 10^{12} – 10^{13} ион/см², не оказывает существенного влияния на деформацию кристаллической структуры, за счет сдерживания миграционных процессов наличием межфазных границ. При высоких флюенсах облучения (10^{14} ион/см²) ключевую роль в изменении структурных параметров начинает играть накопление метастабильных включений, концентрация которых выражается в изменении интенсивности дифракционных максимумов и их уширении.

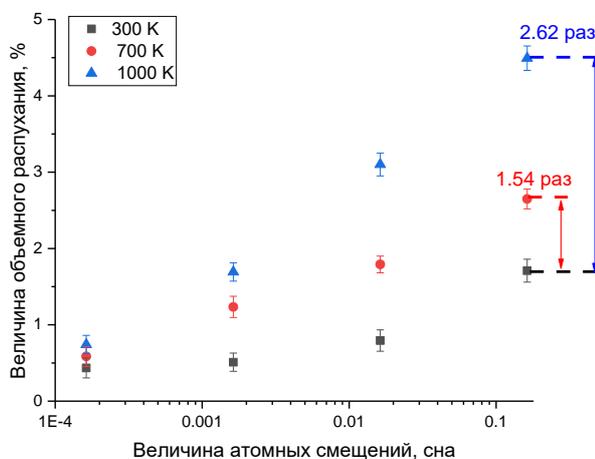


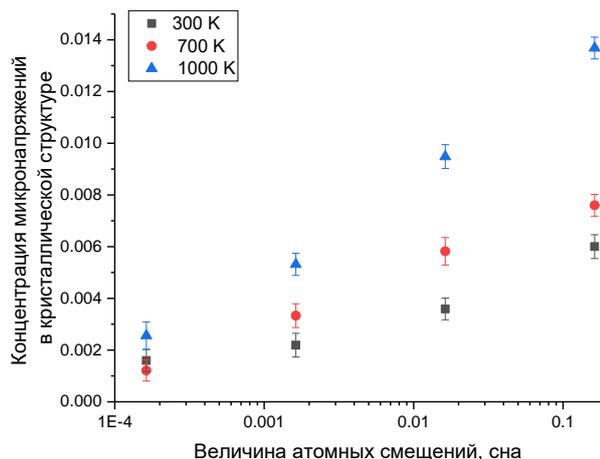
Рисунок 5. Результаты оценки изменений величины объемного распухания кристаллической структуры поврежденного слоя в $Si_3N_4 - Al_2O_3$ керамиках в зависимости от величины атомных смещений, рассчитанной на основе результатов моделирования ионизационных потерь

В данном случае увеличение эффекта дестабилизации повреждений, вызванных облучением, обусловлено эффектом перекрытия дефектных областей, возникающих при увеличении плотности повреждений в случае высоких флюенсов. Наложение дефектных областей, образующихся вдоль траектории движения ионов в материале приводит к агломерации дефектов, что создает в структуре поврежденного слоя

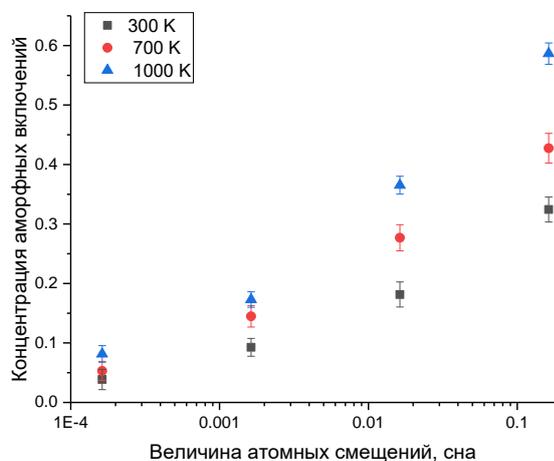
метастабильные области, плотность которых возрастает. В случае высокотемпературного облучения при температурах 700 и 1000 К, вклад изменений концентрации метастабильных включений в составе поврежденного слоя более выражен, чем в случае образцов, подвергнутых облучению при температуре 300 К, что в свою очередь подтверждает наблюдаемые изменения увеличения величины объемного распухания для данных режимов облучения, приведенных на рисунке 5. Роль термических эффектов в степень объемного распухания можно оценить путем сравнения величин объемного распухания при максимальных флюенсах, анализ которых показал, что в случае увеличения температуры облучения с 300 К до 700 К, величина объемного распухания при флюенсе 10^{14} ион/см² составит более чем 2,4%, что в 1,54 раза выше величины объемного распухания образцов, облученных при температуре 300 К. При увеличении температуры с 300 К до 1000 К разница в величинах объемного распухания составляет порядка 2,6 раз, что свидетельствует о достаточно явно выраженной деструкции поврежденного слоя керамики, связанного с процессами аморфизации и дестабилизации кристаллической структуры.

На рисунках 6а и 6б приведены результаты оценки величин микронапряжений и концентрации метастабильных аморфноподобных включений в поврежденном слое, определенных на основе изменений формы и интенсивности дифракционных рефлексов в зависимости от флюенса и температуры облучения. Оценка микронапряжений осуществлялась путем измерений разницы величин межплоскостных расстояний для наблюдаемых рентгеновских дифракционных рефлексов при их смещении в область малых углов, отражающих искажения кристаллической структуры в результате накопления деформационных напряжений растягивающего типа. Определение величины концентрации аморфных включений проводилось путем сравнительного анализа изменений величины интенсивностей дифракционных рефлексов, с учетом изменений величины FWHM дифракционных максимумов, увеличение которой в совокупности с изменениями интенсивности дифракционных рефлексов свидетельствует о формировании в структуре метастабильных включений, имеющих сильно разупорядоченную структуру, близкую к аморфной. Данные представлены в виде изменений величины от 0 до 1, где 0 – в структуре нет аморфноподобных включений, 1 – структура полностью аморфизовалась в результате внешних воздействий.

Результаты изменений величин деформационных факторов свидетельствуют о том, что процессы накопления микронапряжений и аморфных (сильно разупорядоченных) включений в поврежденном слое при увеличении флюенса облучения имеет равновероятный характер, который в особенности проявляется для образцов облученных при температурах 700 К и 1000 К.



а)



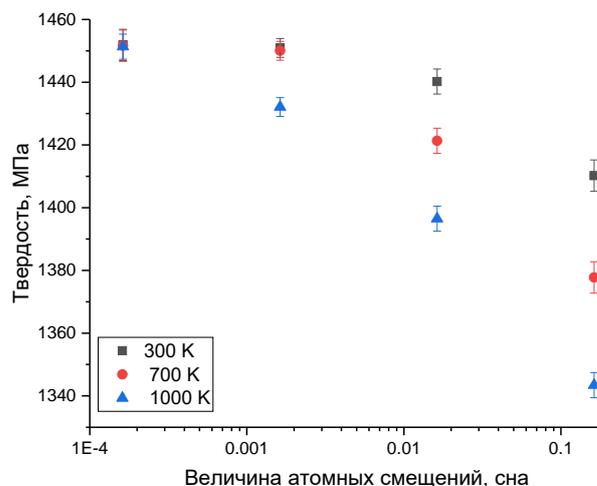
б)

Рисунок 6. Результаты оценки деформационных факторов в поврежденном слое при изменении условий облучения: изменение концентрации микронапряжений в кристаллической структуре при накоплении атомных смещений (а); изменение концентрации аморфных включений в поврежденном слое, связанное с разупорядочением кристаллической структуры при увеличении флюенса облучения (б)

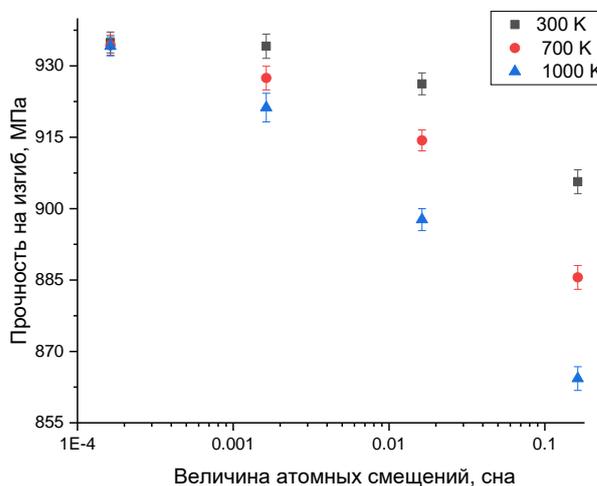
При этом следует отметить, что накопление деформационных микронапряжений растягивающего типа в зависимости от флюенса облучения имеет более выраженный тренд на увеличение для образцов, облученных при температуре 1000 К, из чего следует, что термические эффекты, связанные с изменением амплитуды тепловых колебаний, а также увеличением подвижности точечных и вакансионных дефектов имеют прямую корреляцию с температурой, при которой происходит их формирование, а также вся последующая эволюция, приводящая к более выраженной дестабилизации поврежденного слоя, а также его разупорядочению, связанному с накоплением метастабильных аморфноподобных включений. Термические эффекты, в данном случае способствуют ускорению процессов деструкции поврежденного слоя,

что приводит к более выраженным изменениям, порядок величин которых достигается при более меньших флюенсах, чем в случае облучения керамик при температурах 300 К и 700 К. Данный эффект наглядно проявлен в изменениях величин деформационных микронапряжений при сравнении трендов изменений в зависимости от величин атомных смещений (флюенса облучения).

На рисунке 7 приведены результаты изменений прочностных характеристик в виде зависимостей изменения твердости (см. данные на рисунке 4а) и прочности на изгиб (см. данные на рисунке 4б) исследуемых $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ керамик в зависимости от величины атомных смещений.



а)



б)

Рисунок 7. Результаты оценки деградации прочностных характеристик исследуемых $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ керамик: изменение твердости (а) и прочности на изгиб (б) в зависимости от величины атомных смещений

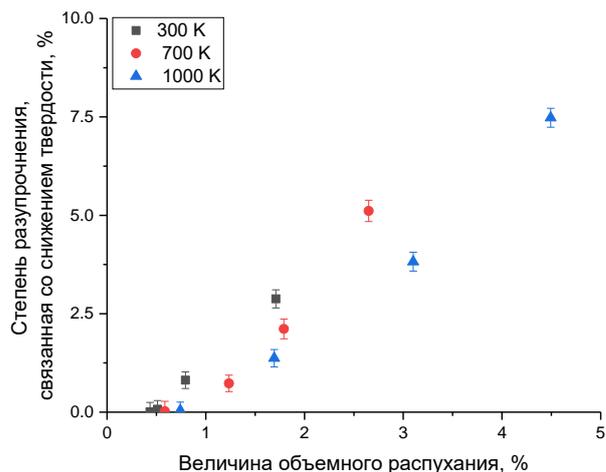
Данные представлены в виде сравнительных графиков, выражающих деградацию прочностных свойств как в случае увеличения флюенса облучения, так и при изменении температуры облучения, увели-

чение которой, как было установлено из изменений структурных характеристик, приводит к более выраженным изменениям, связанным с термическими эффектами.

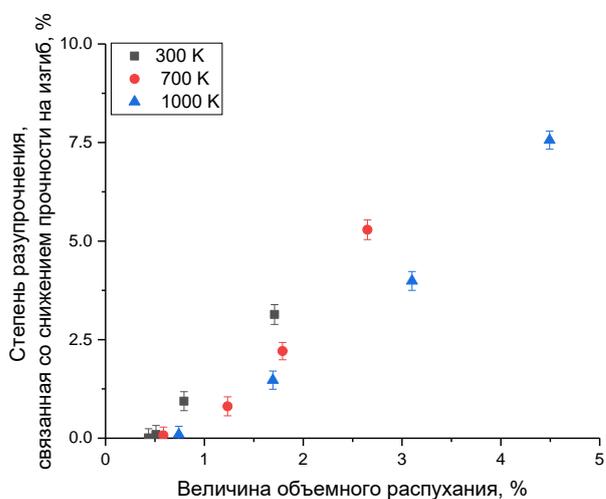
Как видно из представленных данных, ухудшение прочностных характеристик (твердости и прочности на изгиб) имеют аналогичные тренды изменений в зависимости от флюенса и температуры облучения, из чего следует, что данные снижения обусловлены одними и теми же механизмами, связанными с деградацией кристаллической структуры, и как следствие, накоплением структурно-деформированных включений и напряжений в поврежденном слое. При этом изменение температуры облучения наглядно демонстрирует негативное влияние, выражающееся в более интенсивных снижениях твердости и прочности на изгиб, что в свою очередь, свидетельствует о более выраженной дестабилизации прочностных параметров, имеющих прямую корреляцию с результатами изменений величин объемно-деформированного распухания, концентрации аморфных включений, а также концентрации микронапряжений в поврежденном слое – параметров, свидетельствующих о деградации кристаллической структуры в процессе облучения. Анализ наблюдаемых изменений прочностных параметров показал, что увеличение температуры облучения приводит к более выраженной дестабилизации твердости и прочности на изгиб, снижение которых свидетельствует о деградации прочностных свойств керамик, а также снижении их устойчивости к внешним механическим воздействиям.

Определение влияния температурных факторов и связанных с ними эффектов объемного распухания на изменение прочностных свойств было рассмотрено в виде зависимостей величин степени структурного разупрочнения от величины объемного распухания. Результаты представлены на рисунке 8. Расчеты величин степени разупрочнения были проведены путем сравнительного анализа изменений величин твердости и прочности на изгиб облученных образцов с результатами данных величин в исходном состоянии, нормировка на 100% позволила определить степень деградации прочностных характеристик в зависимости от условий облучения.

В данном случае представленные зависимости отражают прямую взаимосвязь между изменениями структурных параметров, связанных с накоплением повреждений, а также влиянием диффузионных механизмов на разупорядочение, обусловленное ускорением миграции дефектов в поврежденном слое и деградацией прочностных параметров. При этом следует отметить, что изменение фазового состава керамик за счет вариации соотношения компонент приводит к повышению сопротивляемости к радиационным повреждениям и термическому расширению.



а)



б)

Рисунок 8. Результаты сравнительного анализа взаимосвязи между объемным распуханием и деградацией прочностных свойств керамик: твердости (а) и прочности на изгиб (б)

Как видно из представленных данных, тренд изменений величин степени разупрочнения (снижения твердости и прочности на изгиб) имеет прямую (линейную) корреляцию с изменениями величины атомных смещений, изменение которой связано с термическими эффектами, обуславливающими увеличение интенсивности распухания за счет термического расширения и увеличением диффузионной подвижности точечных и вакансионных дефектов. При этом наблюдаемые тренды изменений свидетельствуют о том, что при температуре облучения 1000 К увеличение флюенса облучения приводит к тому, что порядок изменения величин степени разупрочнения при флюенсах 10^{13} ион/см² сопоставим со степенью деградации прочностных параметров образцов керамик, облученных при температуре 300 К при флюенсе 10^{14} ион/см², из чего можно сделать вывод о том, что термические эффекты приводят к более интен-

сивной деградации прочностных свойств, при гораздо меньших флюенсах, что необходимо учитывать при прогнозировании потенциала использования данного типа керамик в качестве материалов инертных матриц. Таким образом, можно сделать вывод о том, что термическое воздействие при облучении в случае высоких флюенсов приводит к ускорению процессов дестабилизации поврежденного слоя, выражающейся в объемно-деформационном распухании и снижении прочностных характеристик выше допустимых значений (более 5% от начальных значений твердости и прочности на изгиб).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представлены результаты экспериментальных работ, связанных с изучением влияния температурных факторов на скорость деградации приповерхностного слоя $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ керамик в случае облучения тяжелыми ионами Xe^{23+} с энергией 230 МэВ. В ходе проведенных экспериментальных работ было установлено, что наиболее выраженные структурные изменения наблюдаются при достижении флюенсов облучения выше 10^{12} ион/см², при которых наблюдается увеличение плотности структурно-деформированных включений и их перекрытие, результатом которого является усиление процессов структурного разупорядочения, связанного с накоплением растягивающих микронапряжений и метастабильных аморфноподобных включений. В ходе проведенных исследований было установлено, что вне зависимости от вариации температуры облучения, основные структурные изменения обусловлены формированием в поврежденном слое деформационных напряжений растягивающего типа, а также накоплением концентрации метастабильных аморфноподобных включений, возникающих в случае сильного разупорядочения кристаллической решетки за счет деформационных искажений. При этом эффектов, связанных с образованием новых примесных фаз, в результате процессов полиморфных трансформаций или процессов рекристаллизации установлено не было, из чего можно сделать вывод о высокой стабильности кристаллической структуры $\text{Si}_3\text{N}_4 - \text{Al}_2\text{O}_3$ керамик к процессам фазовых трансформаций вне зависимости от температуры облучения.

Установлено, что увеличение температуры облучения ионами Xe^{23+} с 300 до 700 и 1000 К при флюенсе облучения $10^{13}-10^{14}$ ион/см² приводит к увеличению степени деградации структурных параметров, связанных с объемно-деформационным распуханием более чем в 1,5–2,6 раза, что в свою очередь свидетельствует о негативном влиянии термического расширения и диффузионных механизмах, способствующих ускорению процессов деструкции.

Дальнейшие планы исследований будут заключаться в определении эффективности применения предлагаемых типов композитных керамик в качестве материалов инертных матриц, а также проведении серийных испытаний на определение термостойко-

сти керамик и влияния концентрации радиационных повреждений на устойчивость к термическому воздействию.

Исследование финансируется Комитетом науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (No. BR21882237).

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

1. Wang Y. et al. Micro and macro damage defects in heavy-ion irradiated MgO-Nd₂Zr₂O₇ composite ceramics used for inert matrix fuel // Journal of the European Ceramic Society. – 2024. – Vol. 44, No. 7. – P. 4804–4815.
2. Luzzi L. et al. Performance analysis and helium behaviour of Am-bearing fuel pins for irradiation in the MYRRHA reactor // Nuclear Engineering and Design. – 2024. – Vol. 420. – P. 113048.
3. Parveen R. et al. Investigation of radiation tolerance of yttria stabilized zirconia in the ballistic collision regime: Effect of grain size and environmental temperature // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2024. – Vol. 551. – P. 165344.
4. Ichinomiya T. et al. Temperature accelerated dynamics study of migration process of oxygen defects in UO₂ // Journal of nuclear materials. – 2009. – Vol. 384, No. 3. – P. 315–321.
5. He L. et al. Bubble evolution in Kr-irradiated UO₂ during annealing // Journal of Nuclear Materials. – 2017. – Vol. 496. – P. 242–250.
6. Onofri C. et al. Evolution of extended defects in polycrystalline UO₂ under heavy ion irradiation: combined TEM, XRD and Raman study // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2016. – Vol. 374. – P. 51–57.
7. Hung C. Y. et al. Evolution of extended defects in UO₂ during high temperature annealing // Journal of Nuclear Materials. – 2024. – Vol. 593. – P. 154997.
8. Charatsidou E. et al. Proton irradiation-induced cracking and microstructural defects in UN and (U, Zr) N composite fuels // Journal of Materiomics. – 2024. – Vol. 10, No. 4. – P. 906–918.
9. Banerjee R. H. et al. Radiation stability testing of hydrated and heat-treated magnesium potassium phosphates for back end nuclear fuel cycle applications // Ceramics International. – 2024. – Vol. 50, No. 1. – P. 2405–2414.
10. He J. et al. Influence of ion-induced lattice stress and phase transition on the irradiation resistance of high-entropy ceramics // Journal of the American Ceramic Society. – 2024. – Vol. 107, No. 1. – P. 615–623.
11. Koyanagi T. et al. Mechanical degradation of duplex SiC-fiber reinforced SiC matrix composite tubes under a controlled high-temperature steam environment // Ceramics International. – 2024. – P. 1–10.
12. He J. et al. Secondary phase evolution of high-entropy ceramics under heavy-ion irradiation in high-temperature coupling-induced environment // Scripta Materialia. – 2024. – Vol. 248. – P. 116145.
13. Borgekov D. B. et al. The effect of oxygen vacancies on the optical and thermophysical properties of (1-x) Si₃N₄-xAl₂O₃ ceramics // Optical Materials. – 2024. – Vol. 157. – P. 116056.

14. Козловский А. Л., Азамбаев С. Б., Абшукирова А. М. Изучение влияния вариации фазового состава композитных керамик на устойчивость к радиационным повреждениям // Вестник НЯЦ РК. – 2024. – Т. 4. – С. 164–174. [Kozlovskiy A. L., Azambaev S. B., Abshukirova A. M. Study of the influence of phase composition variation of composite ceramics on resistance to radiation damage // NNC RK Bulletin. – 2024. – Vol. 4. – P. 164–174. (In Russ.)]
15. Yan F. et al. The critical influencing factors responsible for the particle cracking in UMo/Zr dispersion fuel plates during post-irradiation anneal tests // Journal of Nuclear Materials. – 2024. – Vol. 593. – P. 154993.
16. Liu D., Wang Q., Zhang T. Phase-field simulation of the effect of grain boundary on fission gas migration in UO₂ fuel // Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2024. – Vol. 2749, No. 1. – P. 012001.
17. Jiang Y. et al. Effects of grain boundaries on the evolution of radiation-induced bubbles in polycrystalline tungsten: A phase-field simulation // Journal of Nuclear Materials. – 2024. – Vol. 588. – P. 154757.

КОМПОЗИТТИ КЕРАМИКАЛАРДА ҚҰРЫЛЫМДЫҚ ЗАҚЫМДАНУ ЖЫЛДАМДЫҒЫНА ТЕМПЕРАТУРАЛЫҚ ФАКТОРЛАРДЫҢ ӘСЕРІН ЗЕРТТЕУ

А. Л. Козловский^{1,2,3*}, С. Б. Азамбаев¹, М. Е. Кенжина^{2,3}, А. У. Толенова³

¹ Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті, Астана, Қазақстан

² ҚР Энергетика министрлігі «Ядролық физика институты» РМК, Алматы, Қазақстан

³ Satbayev University, Алматы, Қазақстан

* Байланыс үшін e-mail: kozlovskiy.a@inp.kz

Бұл жұмыста композитті керамикаларда ауыр иондармен сәулелену кезінде температураның құрылымдық әлсіреу және радиациялық зақымданудан туындайтын ретсіздену процестеріне әсері қарастырылған. Сәулелену температурасы 300-ден 1000 К-ге дейін өзгерді, бұл нақты жұмыс жағдайларына ең жақын радиациялық зақымдану процестерін модельдеуге мүмкіндік берді. Зерттеулер барысында қаттылық пен иілу беріктігінің әлсіреу дәрежесінің кристалл құрылымының көлемді-деформациялық ісіну мөлшеріне тәуелділігі анықталды, сондай-ақ температуралық эффектілердің керамикалардың құрылымдық және беріктік қасиеттерінің нашарлауына әсері зерттелді. Алынған деректерге сәйкес, зақымдалған қабаттағы аморфты қоспалардың концентрациясының артуы, оның сәулелену флюенсі мен температураға тәуелділігі, беріктік сипаттамаларының айқын төмендеуіне әкеледі. Бұл керамикалардың жоғары дозалы сәулелену кезінде әлсіреу процестеріне тұрақтылығын төмендетеді. Әлсіреу дәрежесінің температураға тікелей тәуелділігі анықталды, бұл инертті матрицалар ретінде осы материалдарды қолдану мүмкіндігін қарастыру кезінде олардың пайдалану мерзімін болжауда ескеруді қажет етеді. Сәулелену температурасының артуы қаттылық пен иілу беріктігінің флюенстері 10^{13} – 10^{14} ион/см² аралығында нашарлауына, яғни бастапқы мәндерден 5%-дан астамға төмендеуге әкелетін тұрақтылықтың айқын дестабилизациясын тудырады.

Түйін сөздер: композитті керамика, радиациялық зақымдану, температуралық факторлар, ақаулар, әлсіреу, деградация.

**STUDIES OF THE INFLUENCE OF TEMPERATURE FACTORS ON THE RATE
OF STRUCTURAL DAMAGE ACCUMULATION IN COMPOSITE CERAMICS**

A. L. Kozlovskiy^{1,2,3*}, S. B. Azambayev¹, I. E. Kenzhina^{2,3}, A. U. Tolonova³

¹ *L.N. Gumilyov Eurasian National University, Astana, Kazakhstan*

² *RSE "Institute of Nuclear Physics" ME RK, Almaty, Kazakhstan*

³ *Satbayev University, Almaty, Kazakhstan*

* *E-mail for contacts: kozlovskiy.a@inp.kz*

The paper considers the influence of the temperature of heating under irradiation by heavy ions of composite ceramics on the processes of structural unstrengthening and disordering caused by the accumulation of radiation damage. The variation in irradiation temperature ranged from 300 to 1000 K, which made it possible to simulate radiation damage processes that were as close as possible to real operating conditions. The studies revealed a direct correlation between the changes in the degree of unstrengthening and bending strength disorder and the amount of volume-strain swelling of the crystal structure, as well as the contribution of thermal effects to the degradation of structural and strength properties of ceramics. According to the obtained data, it is established that the increase in the concentration of amorphous inclusions in the damaged layer, the presence of which has a direct dependence on both irradiation fluence and temperature, leads to a more expressed degradation of strength characteristics, indicating destabilization of ceramics resistance to the processes of unstrengthening at high-dose irradiation. Moreover, the degree of unstrengthening has a direct dependence on the irradiation temperature, which in case of considering the applicability of these ceramics as inert matrix materials requires consideration while predicting their operation lifetime. It was determined that the increase of irradiation temperature leads to more distinct destabilization of strength properties, in particular, decrease of hardness and bending strength at fluences of 10^{13} – 10^{14} ion/cm², the degradation of which exceeds the permissible values of 5% decrease from the initial values.

Keywords: *composite ceramics, radiation damage, temperature factors, defects, unstrengthening, degradation.*