

Міністерство освіти і науки України
Харківський національний університет імені В. Н. Каразіна

Навчально-науковий інститут «Фізико-технічний факультет»

Кафедра матеріалів реакторобудування та фізичних технологій

До захисту допущено
кафедрою матеріалів реакторобудування та фізичних технологій,
протокол № 5 / 2025-2026 від 15 грудня 2025 р.

завідувач кафедри


(підпис)

Сергій ЛИТОВЧЕНКО
(ім'я, прізвище)

«15» грудня 2025 р.

Кваліфікаційна робота
здобувача другого (магістерського) рівня вищої освіти

Радіаційна крихкість танталового покриття мішеней джерел нейтронів

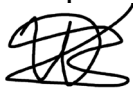
Radiation embrittlement of tantalum coating of the neutron sources targets

Спеціальність (спеціалізація) 105 – Прикладна фізика та наноматеріали

Освітня програма «Прикладна фізика»

Виконав: студент 2 курсу навчання за ОПП магістр
спеціальності 105 «Прикладна фізика та наноматеріали»
освітня програма: «Прикладна фізика»

Виконавець



Ілля ЧУЙКО

Науковий керівник

д.ф.-м.н. проф:



Олександр ПАРХОМЕНКО

Харків – 2025 рік

АНОТАЦІЯ

Представлено роботу в галузі радіаційного матеріалознавства матеріалів мішеней для джерел нейтронів на основі підкритичних збірок, керованих лінійними прискорювачами електронів або протонів, так званих систем, керованих прискорювачами – ADS систем. Наразі електроядерні ADS системи є прототипом безпечних ядерних реакторів 5-го покоління. У зв'язку з фізичним пуском установки нейтронного джерела ННЦ «ХФТІ» НАНУ, мішень якого виготовлена з порошкоподібного вольфраму, покритого танталом, розглянуто вплив випромінювання на механічні властивості Та-матеріалів мішеней. Проаналізовано ядерно-фізичні процеси радіаційного пошкодження мішені під час спільного її опромінення, як нейтронами підкритичної збірки, так і високоенергетичними (e- γ)-пучками з початковою енергією 100МеВ. Оцінено ресурси мішеней систем ADS.

ABSTRACT

The work in the field of radiation materials science of target materials of neutron sources based on the subcritical assemblies controlled by linear accelerators of electrons or protons, so-called accelerator driven systems (ADS), are presented. Now, electronuclear ADS systems are the prototype of safe nuclear reactors of the 5th generation. In connection with the physical start-up of the neutron source facility of the NSC 'KIPT' NASU, the target of which is fabricated from powdered tungsten covered with tantalum. Effect of radiation on mechanical properties of the Ta targets materials are considered. The nuclear-physical processes of radiation damage to the target during co-irradiation of it with both neutrons of a subcritical assembly and high-energy ($e-\gamma$)-beams(100 MeV), are analyzed. The target resources of ADS systems are estimated.

ЗМІСТ

ВСТУП		5
Розділ 1	Харківське Джерело нейтронів, кероване високоенергетичним електронним прискорювачем (100MeV)	6
Розділ 2	W-Ta нейтроноутворюючі мішені ADS –систем	8
Розділ 3	Методи дослідження матеріалу мішеней.	12
3.1	Визначення основних механічних властивостей.	12
3.2	Діаграма розтягнення: характерні точки	14
Розділ 4	Аналіз результатів механічних досліджень танталу, опроміненого нейтронами та протонами у широкому інтервалі доз	16
4.1	Визначення дози опромінення танталового покриття	17
4.2	Аналіз кривих деформування опроміненних зразків	19
4.3	Дозова залежність міцності опроміненого танталу	20
4.4	Дозова залежність пластичності опроміненого танталу	21
4.5	Роль домішок впровадження (кисню) у розвитку радіаційної крихкості металів 5-ї групи Періодичної системи елементів(танталу).	22
ВИСНОВКИ		24
ПЕРЕЛІК ДЖЕРЕЛ ПОСИЛАНЬ		25
Додаток (до Розділу 3)	Крива деформування, та утворення «шийки» на зразку під час деформації розтягу(анімація)	28

ВСТУП

Основні проблеми в експлуатації існуючих АЕС пов'язані з надкритичним режимом роботи реакторів, що потребує складної та надійної системи керування, та утворенням великої кількості радіоактивних відходів із тривалим терміном експлуатації. Тому створення безпечних АЕС, призначених як для виробництва електроенергії, так і для трансмутації продуктів теплових реакторів, є одним із пріоритетів світової атомної енергетики.

Вже в одній з перших пропозицій щодо створення таких установок, так званих ADS-систем, були описані всі елементи майбутніх реакторів[1]. Основою таких установок є субкритичний ядерний реактор на швидких нейтронах. В якості так званого драйвера такого реактора планувалося використовувати прискорювач протонів з енергією до 1 ГеВ і силою струму до 20 мА.

Сьогодні, через 30 років, основна структура таких систем є наступною. Прискорювач високо енергійних частинок, опромінює матеріал(мішень), в результаті цього утворюються нейтрони, які попадають на твели підкритичної збірки, після чого відбувається їх розмноження у десятки разів. Система починає працювати, як джерело нейтронів.

Більшість ADS використовує джерела нейтронів, у яких протони високої енергії бомбардують мішені з важких елементів для отримання так званих «розкольних»-Spallation нейтронів. У 1947 році термін Spallation почав використовуватися в ядерній термінології(Сіборг,Сербер). Щоб відбувся процес розколу ядра, енергія протона має бути достатньо високою. Критерієм є його довжина хвилі Де Бройля- λ . Вона повинна бути меншою за розмір ядра, що дозволить протону взаємодіяти індивідуально з нуклонами всередині ядра. ($\lambda = h/p$, де p – момент протону), та розколювати його.

Створення таких прискорювальних ядерних систем (ADS) є дуже складним і дорогим завданням. Для перевірки основних ідей цих систем також можна використовувати електронні прискорювачі. Як було показано ще в 2002 році [2], для отримання потоків менше 10^{16} н/см² нейтронів за секунду, прискорювачі електронів потребують значно менших витрат на створення таких установок. Це пояснюється тим, що фотоядерні (e, γ) процеси в цьому сенсі є кращими перед реакціями, індукованими протонами.

Одним із найважливіших напрямків експериментальної роботи в галузі розвитку ядерного матеріалознавства є дослідження радіаційного пошкодження різноманітних матеріалів, що використовуються, або призначені для використання, в елементах конструкцій ядерних реакторів (ЯР), та ADS систем.

Два типи мішеней, що продукують нейтрони, розглядаються для застосування в майбутніх керованих прискорювачами безпечних ядерних енергетичних системах (ADS) – рідко- і твердометалеві. Серед останніх, велику увагу дослідників привертають вольфрам, тантал, і сплави на їхній основі.

Метою роботи є аналіз радіаційних пошкоджень, та зміни(деградації) фізико-механічних властивостей танталу після опромінення в активній зоні підкритичної збірки, як конструкційного матеріалу(покриття) «вольфрамової» мішені джерела нейтронів ННЦ ХФТІ.

Розділ 1 Харківське Джерело нейтронів, кероване високоенергетичним електронним прискорювачем (100MeV)

У 2021 році в ННЦ ХФТІ спільно з Аргоннською національною лабораторією США було здійснено фізичний запуск саме такої установки.

Основними її функціями є розвиток робіт у галузі ядерного матеріалознавства та медичних досліджень. На установці проводитимуться дослідження в галузі фізики реакторів і матеріалознавства[3,4].

Метою розробки є створення в Україні безпечної експериментальної бази для нейтронно-фізичних досліджень з використанням інтенсивних потоків нейтронів (310^{14} н/с). Основними компонентами установки є лінійний прискорювач електронів, система транспортування пучка електронів від лінійного прискорювача до мішені, нейтроноутворююча мішень, підкритична збірка, нейтронні канали, біологічний захист і допоміжні системи (Рисунок 1).

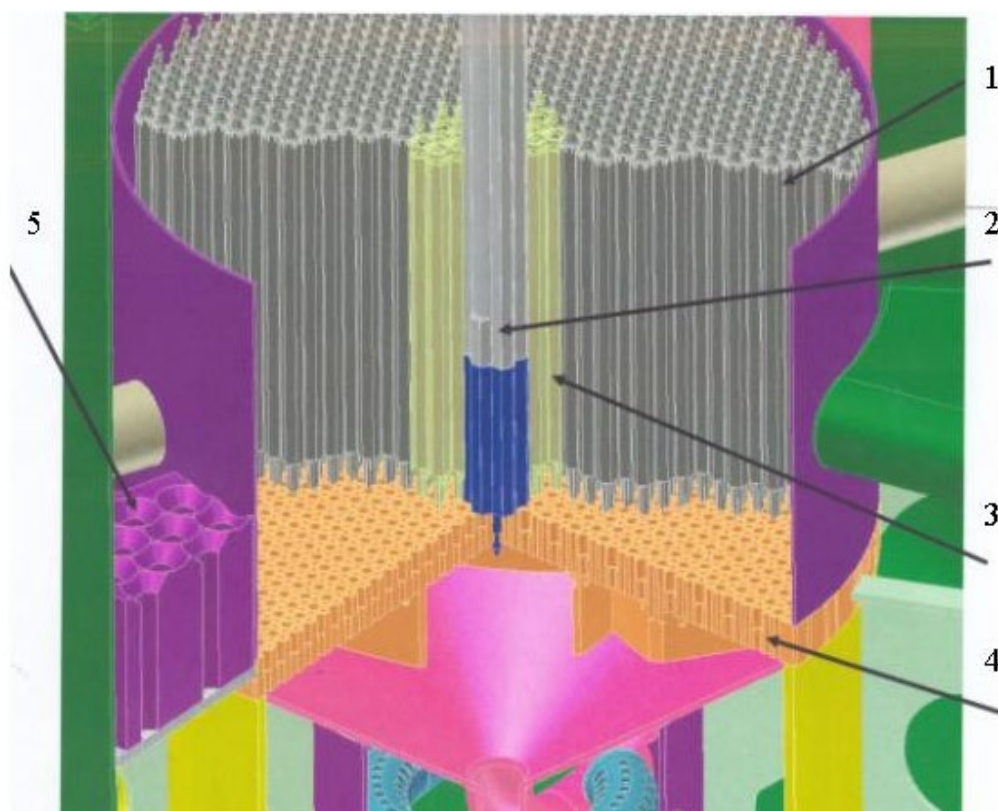


Рисунок 1 Загальний вигляд осердя підкритичної збірки: 1 – графітовий відбивач; 2 – вихід прискорювача електронів з нейтроноутворюючою мішенню для формування первинних нейтронів; 3 – паливні елементи; 4 – нижня решітка для встановлення тепловиділяючих збірок і блоків графітових відбивачів; 5 – внутрішній ящик для зберігання палива.

Первинні нейтрони народжуються у фотоядерних реакціях за допомогою жорсткого γ -випромінювання, яке утворюється при розсіюванні

електронів на ядрах важких елементів. Розглядаються два варіанти цілей: вольфрам і природний уран. Початкова енергія електронів 100 МеВ.

Таким чином, як це видно з Рисунок 1, мішень знаходиться під одночасною дією двох джерел опромінення, від високоенергетичного електронного опромінення (100МеВ), та опромінення від оточуючого середовища, тобто нейтронів підкритичної збірки (ПКЗ).

Підкритична збірка призначена для отримання максимального потоку нейтронів з підкритичністю 0,98. Таким чином, виключається можливість виникнення ланцюгової реакції в установці такого типу. Величина нейтронного потоку регулюється струмом пучка, а поле нейтронів у джерелі зникає після вимкнення пучка.

Розділ 2. W-Ta нейтроноутворюючі мішені ADS –систем

Завдяки високій температурі плавлення, щільності та теплопровідності, високій міцності, та високому перерізу взаємодії з нейтронами, основний матеріал мішені - вольфрам вже багато років використовують як матеріал мішені в ADS-системах, таких як LANCE, KENS та інш.[5,6]. Однак, вольфрам кородує у воді, особливо в умовах опромінення. Цю проблему можна вирішити, покривши вольфрам корозійностійким матеріалом. До числа таких можна віднести титан, нержавіючу сталь, тантал.

В установках ISIS і KENS були застосовані мішені з використанням біметалу тантал-вольфрам. Істотним позитивним металургійним фактором є хороша сумісність цих матеріалів завдяки їхній повній розчинності у твердому стані.

Чому саме тантал? Володіючи унікальними фізичними і металургійними властивостями, тантал є одним з найбільш підходящих матеріалів для мішеней. Серед тугоплавких металів 4-6 груп він має найвищу після вольфраму температуру плавлення (3140°C), відрізняється винятковою пластичністю і в'язкістю в литому і рекристалізованому стані, тому його можна деформувати

при кімнатній температурі з великими відновленнями (до 90-95%), не піддаючи його проміжному відпалу.

Таблиця 1. Основні характеристики W-Ta ADS-систем

Рік	Країна проекту	Параметри пучка	Мішенева концепція	Літературне джерело
1997 - 2020	США, LANSE	48 kW 0,06 mA, 800 MeV протони Імпульсний режим	W Водяне охолодження	[5]
1980 - 2003	Японія, KENS	3 kW 500 MeV протони	W-Ta	[6]
2010	Китай, CSNS	120 кВт протони 1,6 GeV	Тверда мішень, що обертається, з W корпус - SS316 10 мм	[7]
2010 - 2025	European Spallation Source (ESS) Лунд, Швеція	2 GeV протони 5 MW, 2,5 mA вольфрамова мішень, що обертається	Тверда мішень, що обертається, з W 5,400 годин на рік	Запуск - середина 2020- х років
1997 - 2018	ISIS, Об'єднане Королівство, Лабораторія Резерфорд Епплтон	600 MeV протони 160 kW	Перша у світі W-Ta (target block). Водяне охолодження	[8]
2021	Україна, ННЦ ХФТІ, ANL США	100 MeV електрони, 1 mA, 625 Гц, 100 кВт	Тверда мішень U(Al), W(Ta)	Фізичний пуск

Вкриті танталом вольфрамові мішені впродовж десятиліть використовують у цілій низці ADS-систем у всьому світі (див. Табл.1).

Чистий тантал (99,99%) зберігає високу пластичність і в'язкість при температурах, близьких до абсолютного нуля! [7]. Однак, як і інші ОЦК метали, він різко окрихчується при збільшенні вмісту міжвузлевих домішок. Так, ще в [8] було показано, що при збільшенні вмісту кисню до 1,3 ат.% тантал проявляє крихкість вже при кімнатній температурі.

Серед усіх недорогоцінних матеріалів він має найвищу стійкість до корозії, наближаючись до платини при температурах до 1500С. Однак він має низьку стійкість до окислення на повітрі та інших окислювальних середовищах при температурах вище 500⁰С.

Радіаційні властивості танталу вивчені недостатньо, та викликають суперечки. Так, у роботі [9], виявлено високу пластичність танталу, опроміненого дози 10 дпа (Рисунок 2).

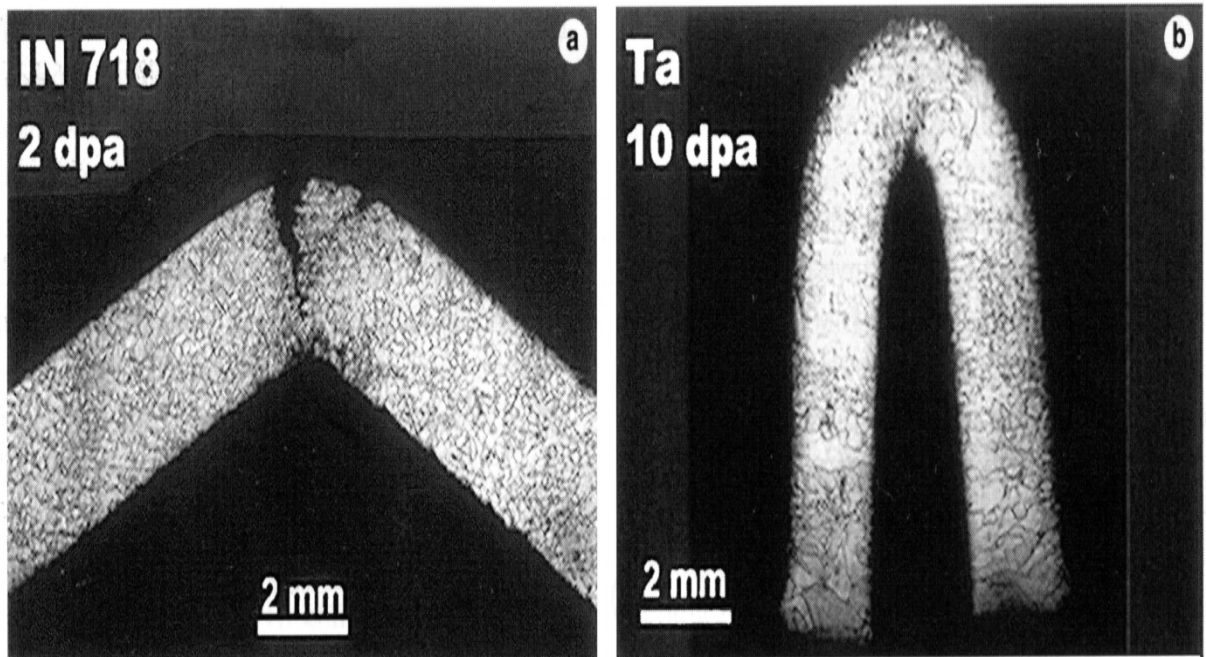


Рисунок 2 Випробування на згин опроміненних зразків високонікелевого сплаву Інконель 718 і чистого танталу. Показано величезний запас пластичності танталу, опроміненого дози 10 дпа, порівняно з високонікелевим сплавом.

Проте в роботі [10] виявлено повне окрихчення танталу технічної чистоти навіть при дозах опромінення лише 0,14 дпа. Причиною крихкості, на думку

одного з авторів, може бути насичення матеріалу киснем ще до початку опромінення. Сплави танталу з вольфрамом також «не рятують ситуацію»: вони демонструють повну втрату пластичності при дозах менше 1 дпа.

До недоліків танталу як матеріалу мішені можна віднести його відносно великий переріз взаємодії з нейтронами (особливо в надтепловому діапазоні енергій), що призводить до його високої радіоактивності після опромінення. Аналіз, проведений для випадку установки ESS(5MW), показав, що після року опромінення тантал мав індуковану активність у десять разів більшу, ніж вольфрам або ртуть [11]. Саме тому дві ядерні установки KENS і ISIS відразу ж замінили танталові мішені на вольфрамові.

Однією з основних вимог до цього ефективного антикорозійного танталового покриття є збереження надійного контакту з вольфрамом протягом усього часу роботи мішені. Наявність зазору покриття-вольфрам різко знижує знімання тепла з мішені за допомогою потоку води. В свою чергу, танталове покриття призводить до поліпшення тепловіддачі мішені в охолоджувальну воду порівняно з вольфрамом.

Забезпечення надійного контакту Та-вольфрам при створенні низки мішеней для *мегаватних Spallation neutron sources* досягається за рахунок застосування методу ГПІ (гарячого ізостатичного пресування). Успішне використання цього методу було вперше продемонстровано на установці ISIS (Лабораторія Резерфорд Еплтон у Великій Британії) [8], а потім японськими вченими на установці KENS [6].

У **ННЦ ХФТІ** для цих цілей розроблено метод високотемпературної вакуумної прокатки у поєднанні з газозфазним осадженням танталу на бічних поверхнях мішені. Схему мішені, що стоїть під пучком електронів з енергією **100 МеВ**, і одночасно опромінюється нейтронами підкритичної збірки, представлено на Рисунок 3.

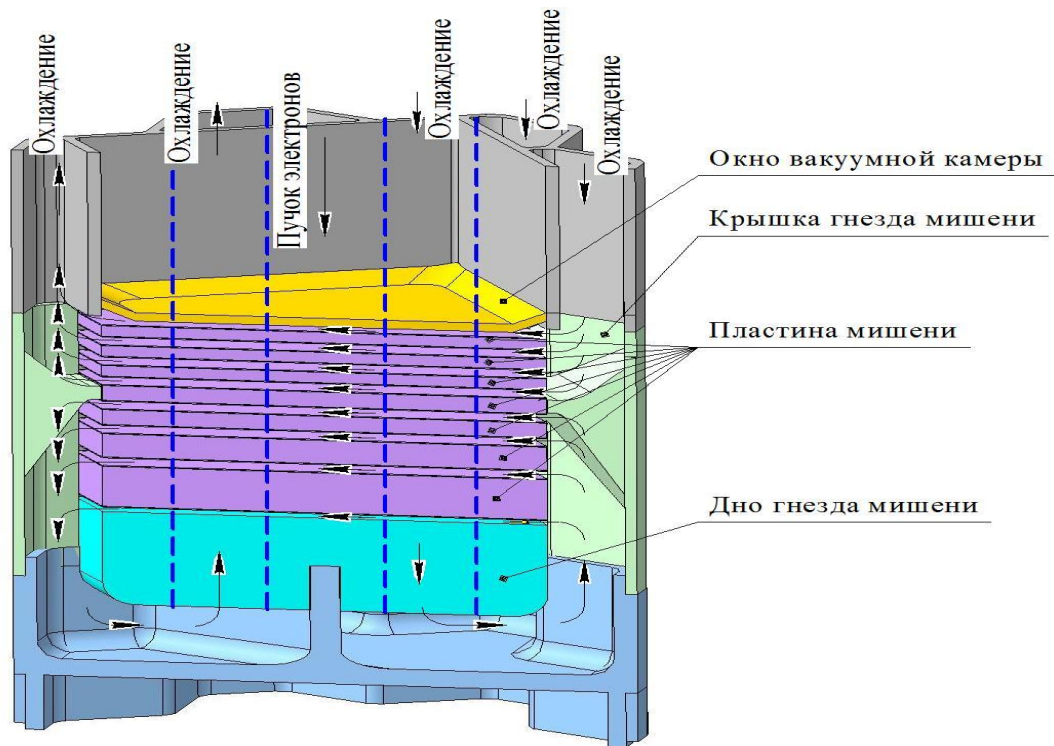


Рис.3 Схема вольфрамової нейтроутворюючої мішені ННЦ ХФТІ.

При цьому для покриття пластин вольфраму використовується тантал товщиною 0,25...0,3 мм, як і в установці LANCE (США). Ця величина визначається компромісом між забезпеченням, з одного боку, надійності захисту вольфраму від водної корозії в активному середовищі, а з іншого – недопущенням істотного зниження виходу нейтронів.

Розділ 3. Методи дослідження матеріалів мішеней

3.1 Визначення основних механічних властивостей

Під дією зовнішніх навантажень відбувається деформація досліджуваних зразків, внаслідок чого можуть змінюватися форма і розміри тіла. За результатами механічних випробувань оцінюють різні характеристики пружної і, частіше, залишкової пластичної деформації.

Було проведено механічні іспити зразків, із застосуванням серво-гідролічної установки типу INSTRON, зовнішній вигляд якої наведено на Рисунку 4.



Рисунок 4. Сервогидравлічна установка для проведення механічних дослідів при кімнатних температурах у коледжі Сентенніал (Centennial College) (Торонто, Канада).

У Додатку наведено типи зразків, що використовувались для механічних досліджень, та криві деформування у істинних, та інженерних координатах

Більшість стандартних характеристик міцності розраховують за положенням певних точок на епюрі розтягу зразків, у вигляді умовних напружень розтягу. На практиці механічні властивості зазвичай визначаються за основними кривими розтягування в координатах навантаження-подовження, автоматично записаними на стрічку діаграми випробувальної машини.

Для визначення деформації розглянемо випадок осьового розтягу циліндричного стрижня. Під дією прикладеного розтягуючого навантаження стрижень деформується - збільшується в довжину і зменшується в діаметрі. Якщо довжина стрижня від початкової l_0 збільшується до l_n , то відносна відносна деформація стержня ϵ визначається за формулою $\epsilon = (l_n - l_0) / l_0$, тобто за величину деформації прийнято відношення зміни розміру до початкового значення.

3.2 Діаграма розтягнення: характерні точки

Основними критеріями, що визначають вибір матеріалу для будь якої конструкції, є передусім, його міцнісні характеристики. Велике значення також має спроможність матеріалу до рівномірної пластичної деформації.

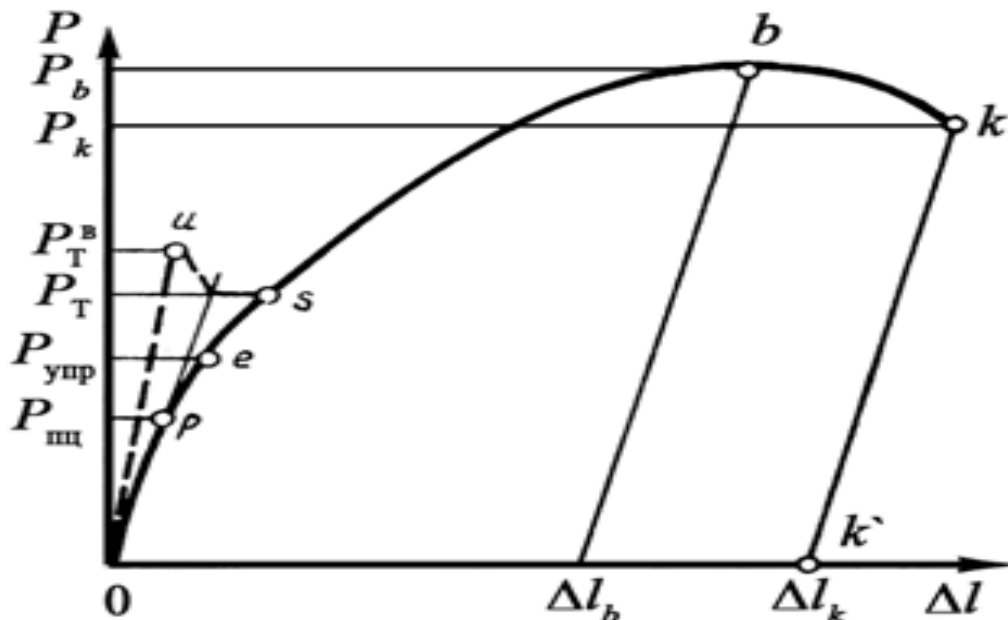


Рисунок 5. Характерні точки на діаграмі розтягу, за якими розраховується міцнісні характеристики матеріалу.

Її величина знаходиться у прямій залежності від спроможності матеріалу до деформаційного зміцнення. Залежно від типу діаграми змінюється набір характеристик, які можна за нею обчислити, а також їх фізичний зміст. На рис А нанесено характерні точки, по ординатах яких розраховано характеристики міцності $\sigma_i = P_i / F_0$.

Межа пропорційності. Першою характерною точкою на діаграмі розтягування є точка p. Сила PPT визначає значення межі пропорційності - максимального напруження, яке може витримати матеріал зразка без відхилення від закону Гука (тобто в пружній області).

Значення ROC можна приблизно визначити по точці, де крива розтягування починає відхилятися від продовження прямої ділянки.

Межа пружності. Наступна характерна точка на діаграмі первинного натягу – точка *e* – відповідає навантаженню, за яким розраховується умовна межа пружності - максимальне напруження, при якому залишкове відхилення досягає заданого значення, зазвичай 0,05%.

Межа плинності Якщо на діаграмі розтягування відсутні «зуб» (точка *i*) і плато текучості, розраховується умовна межа текучості - напруга, при якому залишкове подовження досягає заданого значення, зазвичай 0,2%. Відповідно, межа течії позначається $\sigma_{0,2}$. Межа плинності характеризує напругу, при якій відбувається повний перехід від пружної деформації до пластичної.

Умовні межі пропорційності, пружності та плинності характеризують стійкість матеріалу до малих деформацій. Технічне значення цих обмежень зводиться до оцінки рівнів напружень, при яких конкретна деталь може працювати без залишкової деформації (межа пропорційності) або деформується на деяку малу допустиму величину, що визначається умовами експлуатації ($\sigma_{0,01}$, $\sigma_{0,05}$, $\sigma_{0,2}$ тощо). Оскільки в сучасній техніці можливість залишкових змін розмірів деталей і конструкцій все більше обмежується, стає зрозумілою нагальна необхідність точного знання меж пропорційності і пружності.

Фізична межа текучості — напруга σ_s , при якій зразок деформується під дією майже постійного розтягуючого навантаження P_t (границя текучості на рис. А). Фізична межа текучості також називається нижньою (точка *s*) на відміну від верхньої межі текучості, що відповідає вершині зуба текучості *u*.

Міцність на розрив. Після проходження точки *s* на діаграмі розтягу, в зразку розвивається інтенсивна пластична деформація. До точки **б** (див. рис.5) робоча частина зразка, змінюючись у розмірах, зберігає початкову форму. Відносне подовження при цьому рівномірно розподіляється по розрахунковій довжині зразка, який деформується. У точці **б** ця макrorівномірність пластичної деформації порушується, та починається локалізація деформації. Воно відповідає локальному звуженню поперечного перерізу зразка - утворенню «шийки» (див. анімацію у Додатку). Цей перехід проходить наступним чином.

Після межі текучості починають деформуватися сприятливо орієнтовані мікрооб'єми зразка. За умов деформаційного зміцнення спротив деформації в них збільшується і в деформацію включаються сусідні частки зразка. На деякій стадії деформації деформаційне зміцнення стає недостатнім для того, щоб залучати до деформації сусідні, вже зміцнені об'єми, і деформація локалізується із утворенням «шийки». Шийка розвивається від точки *b* до руйнування в точці *k* (див. Рисунок 5), і в той же час сила, що діє на зразок, зменшується.

За максимальним навантаженням P_b на первинній діаграмі розтягу розраховують так званий, *тимчасовий опір*, який часто називають умовним розтягуванням $\sigma_b = P_b/S_0$. Для матеріалів, які руйнуються з утворенням шийки, σ_b – *умовне напруження*, що характеризує опір максимально рівномірній деформації. У системі СІ напруги виражаються в мегапаскалях (МПа)

Розділ 4. Аналіз результатів механічних досліджень опроміненого танталу, у широкому інтервалі доз

Для вирішення мети роботи, щодо оцінки ступеня радіаційної крихкості, та ресурсу мішені, необхідно було зробити три речі.

1. Визначити дозу опромінення танталу, наприклад, за один рік роботи джерела нейтронів.
2. Провести аналіз результатів механічних іспитів зразків, опромінених при температурах, що відповідають умовам опромінення на ДН ХФТІ.
3. Відмітити на графіках деградації міцності та пластичності (дозових залежностях) дозу опромінення танталу джерела нейтронів ХФТІ, та визначити відповідні значення міцності та пластичності опроміненого матеріалу.

4.1 Визначення дози опромінення у танталі

У разі зіткнення частинок високої енергії із кристалом, можна очікувати утворення не поодиноких дефектів, але цілого каскаду зміщень. Середню кількість зміщених атомів в одиниці об'єму N_d можна визначити за формулою $N_d = \phi t n_0 \sigma_d \nu$, де ϕ – щільність потоку бомбардуючих частинок; t – час бомбардування; n_0 – кількість атомів в одиниці об'єму зразка; σ_d – переріз утворення дефектів (на атом), що призводить до змішування; ν – каскадна функція, тобто середнє число пошкоджень на один, так званий спочатку вибитий атом (ПВА).

Усі ці величини, за винятком ν , відомі; наближене значення ν визначається за загальноприйнятою моделлю Торранса-Робінсона-Норсетта (стандарт TRN):

$$\nu = \frac{\chi E_{sp}}{2Ed}$$

де χ – ефективність зміщення, E_{sp} – середня енергія, передана бомбардуючою частинкою. Ed — порогова енергія зміщення (90 еВ для танталу)

Типове значення каскадної функції ν для нейтронів із середньою енергією 1 МеВ, тобто енергія, яка зазвичай має місце при опроміненні в реакторі, а також у джерелі нейтронів ХФТІ, з урахуванням значень порогової енергії зміщення, розрахована за цією формулою, становить близько 160.

При опроміненні вольфрамової мішені пучком електронів з енергією 100 МеВ в матеріалі мішені утворюються радіаційні дефекти. Основними джерелами утворення таких дефектів будуть ядра віддачі, які виникають при розсіянні електронів і нейтронів на ядрах, а також в результаті ядерних реакцій за участю гамма-променів.

У роботі [12] проведено розрахунок швидкості формування зміщення у вольфрамовій мішені джерела нейтронів ННЦ ХФТІ при опроміненні високоенергетичними електронами з енергією 100 МеВ. Встановлено, що найбільший внесок у швидкість пошкодження вольфрамової мішені вносить

пружна взаємодія електронів високих енергій з ядрами. Максимальна потужність дози становить близько 0,7 зна/рік, і досягається у другій пластині вольфрамової мішені (на глибині ~ 1 см).

На Рисунку 6, показано розподіл дози радіаційного ураження у Та на поверхні другої вольфрамової пластини, і всередині неї, при опроміненні протягом 1 року.

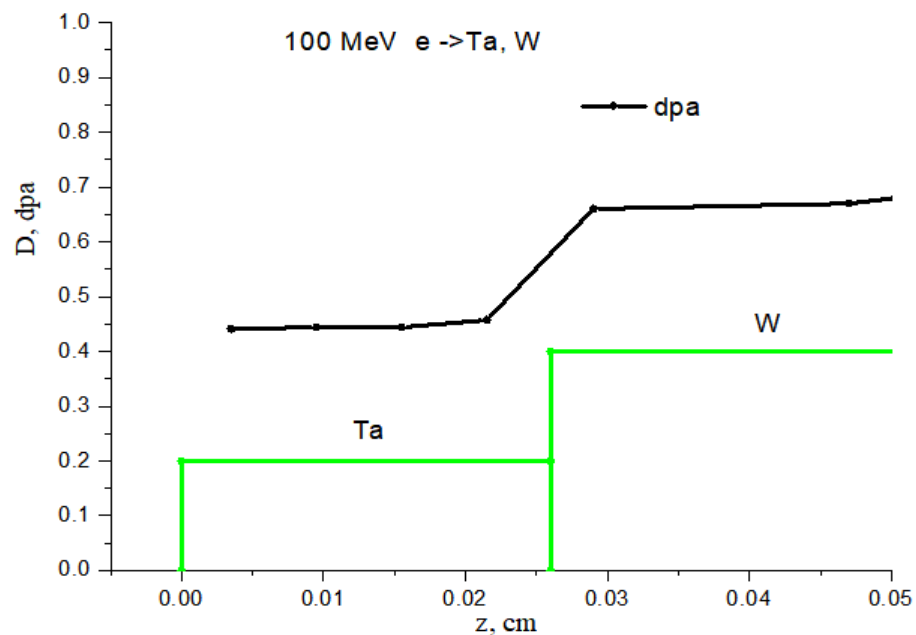


Рисунок 6. Розподіл доз радіаційного пошкодження в Та, та вольфрамі, які були накопичені протягом одного року опромінення.

Врахування пошкоджень нейтронами підкритичної збірки. Не будемо забувати, що мішень знаходиться під одночасною дією двох джерел опромінення, від високоенергетичного електронного опромінення (100 MeV), та опромінення від оточуючого середовища, тобто нейтронів підкритичної збірки (ПКЗ)

У роботі [12] було показано, що внесок у швидкість збільшення дози опромінення вольфрамової пластини від нейтронів підкритичної збірки становить 0,15 зна / рік.

Ядра танталу мало відрізняються від вольфрамових, але порогові енергії зміщення сильно відрізняються. Для вольфраму вона становить 70 eV, а для

танталу — 90 еВ. Враховуючи це, отримуємо для танталу швидкість пошкодження нейтронами ПКЗ рівною приблизно 0,11 зна / рік.

Таким чином, *загальна швидкість накопичення дози (електрони + ПКЗ) у другій пластині (де вона максимальна) становить $0,45 + 0,11 = 0,56$ зна / рік.*

Забгато, замало? Про який радіаційний ризик свідчить така доза опромінення? Подивимося на результати досліджень танталових зразків на розтягнення.

4.2 Аналіз кривих деформування опромінених зразків танталу

Цей метал виявився дуже чутливим до радіації. Як видно з Рисунку 7, зниження його пластичності починається вже при дуже низьких дозах — близько $4 \cdot 10^{-5}$ зміщень на атом [10].

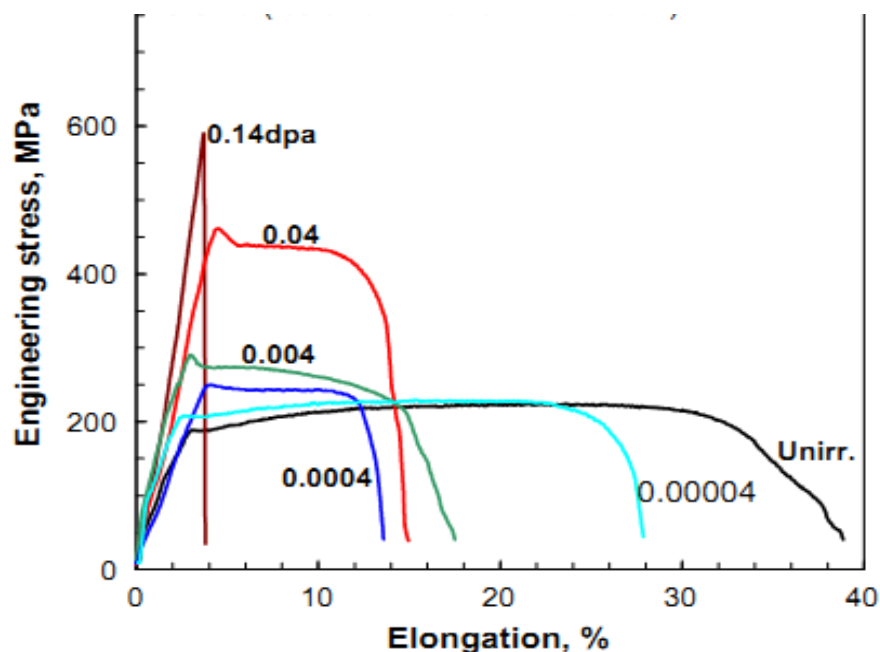


Рис.7 Криві розтягу танталу, опроміненого у реакторі в умовах близьких до роботи джерела нейтронів ННЦ ХФТІ

Ми можемо виділити 4 стадії розвитку радіаційної крихкості танталу :

1) – при дозі $4 \cdot 10^{-5}$ змiщень на атом, зменшення видовження вже є (має місце скорочення діаграми розтягу), але деформаційне зміцнення ще залишається (після межі текучості напруга течії зростає). 2) на цій стадії, починаючи з $4 \cdot 10^{-4}$, до $4 \cdot 10^{-2}$ зна, деформаційне зміцнення вже не має місця. Після так званого «зуба текучості» на діаграмі, напруга течії зменшується. 3) при дозі 0,14 зна стадія деформаційного зміцнення повністю відсутня. Одразу після межі текучості, має місце різке зниження напруги течії. Пластична деформація відсутня. Цей ефект має назву *пластична нестабільність*. 4) На цій стадії, за умов відсутності пластичної деформації, має місце вже ефект зниження самої напруги руйнування (у інтервалі пружної деформації).

4.3 Дозова залежність напруги течії та міцності руйнування опроміненого танталу

Основними критеріями, що визначають вибір матеріалу для конструкції є його міцнісні характеристики. Велике значення також має здатність матеріалу до рівномірної деформації. Прийнято вважати, що чим більші ці показники, тим краще матеріал витримує технологічні та експлуатаційні навантаження. Саме тому, у цьому розділі наведені створені залежності напруги течії, та рівномірного видовження танталу різної чистоти у вихідному та опроміненому станах.

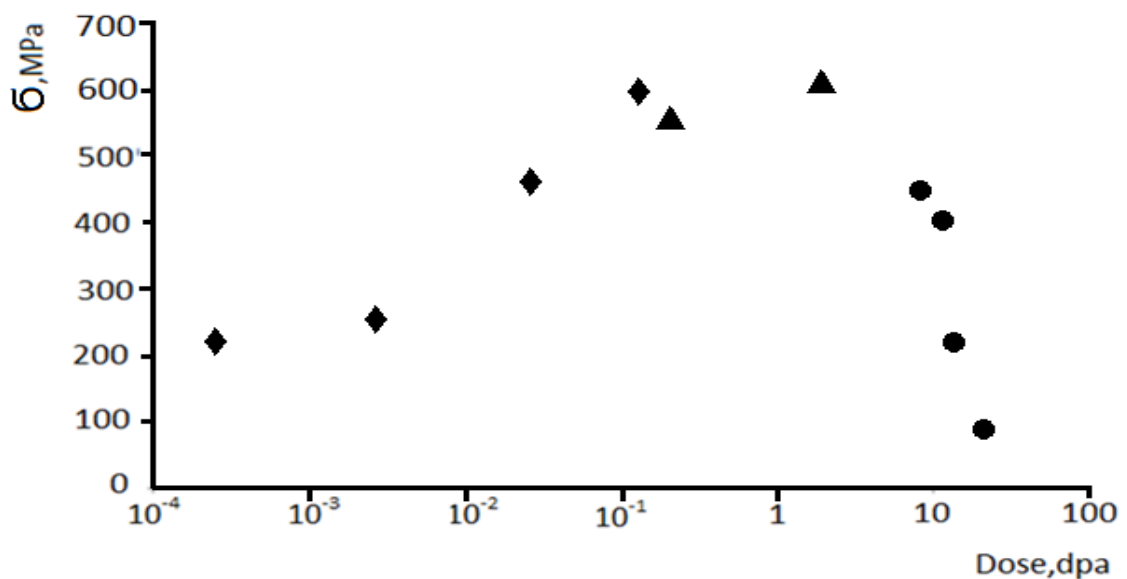


Рис.8 Дозова залежність напруги течії опроміненого танталу. Ромби - робота [10], трикутники – робота [14], кульки-робота [13].

Під час аналізу слід пам'ятати, що величина межі текучості неопромінених зразків танталу становить (в залежності від чистоти металу) від 180 до 220МПа. При цьому, загальна швидкість накопичення дози (електрони + ПКЗ) у другій пластині (де вона максимальна) становить 0,56 зна / рік.

Залежність можна розділити на дві складові. На першому етапі опромінення має місце значний ефект радіаційного зміцнення. Межа текучості збільшується втричі – з 189-220 до майже 600МПа. Після досягнення одного зна, напруга течії починає зменшуватися, і за доз більше 10 зна напруга зменшується навіть нижче значень межі текучості у неопроміненому стані. Це означає, що відбувається процес крихкого руйнування у пружній області напружень, без внеску пластичної деформації.

4.4 Дозова залежність пластичності (рівномірного видовження) опроміненого танталу

Для прогнозування ступеня крихкості та покриття ННЦ ХФТІ, необхідно знати, до якої категорії чистоти по домішкам належить вихідний тантал.

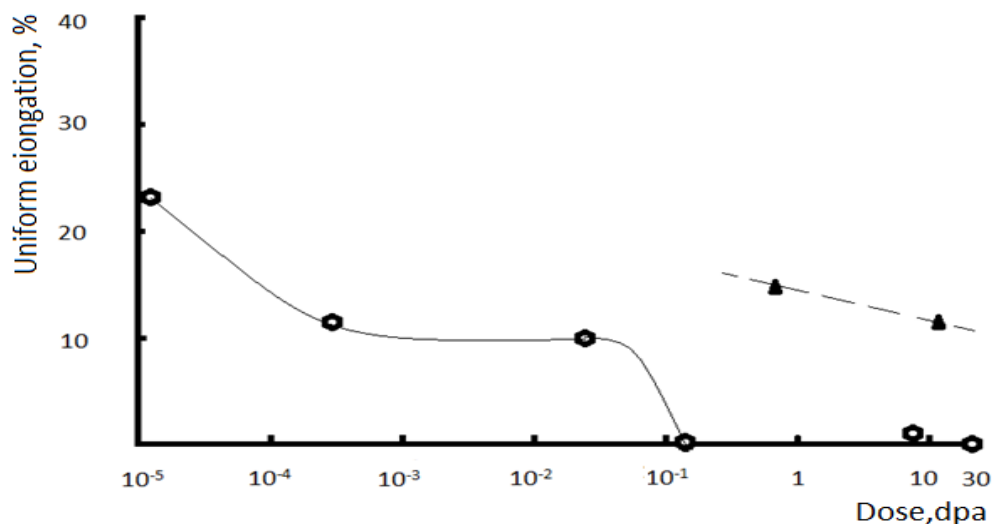


Рис.9 Дозова залежність рівномірного видовження зразків танталу різної чистоти, що були опромінені на джерелах нейтронів LANCE(США) (шестикутники), та SINQ(Швейцарія, чорні трикутники). Трикутники відповідають концентрації кисню 50 аppм(5 \cdot 10⁻⁴ %), а шестикутники-концентрації кисню 500 аppм(5 \cdot 10⁻³ %).

Як можна побачити із Рисунку 9, має місце значна розбіжність між поведінкою танталу чистотою по кисню 50 аppм(510^{-4} %), та 500 аppм(510^{-3} %) : річна доза 0,56 зна, для танталу з великою концентрацією кисню, відповідає абсолютній втраті пластичності. Хімічний аналіз на аналізаторі ELVAX показав, що чистота танталу становить 98,4% (категорія «брудний»).

4.5 Вплив домішок впровадження (водню, кисню) та продуктів ядерних реакцій на розвиток радіаційної крихкості металів 5-ї групи Періодичної системи елементів(танталу)

Понад 20 років тому, при вивченні механічних властивостей нержавіючих сталей, опромінених нейтронами і протонами високої енергії в умовах ADS, була виявлена значна різниця в результатах випробувань [15]. Пізніше було встановлено, що це значною мірою зумовлено впливом високих концентрацій продуктів ядерної реакції, головним чином гелію та водню, які утворюються під час опромінення, крім радіаційних дефектів [16].

За даними авторів [17], основний внесок у різке (до 0,5%) зниження рівномірного видовження сталі під час випробувань на розтяг за кімнатної температури вносять гелій і водень, сумарна концентрація яких навіть при дозі $Z_{\text{зна}}$ (у ADS), становить величезне значення – близько 0,6 ат.%. При цьому він не пов'язаний із зміною мікроструктури сталі (навіть утворенням пор), а визначається поєднанням радіаційного зміцнення з наступним різким деформаційним розм'якшенням, що, у свою чергу, пов'язане з локалізацією процесів пластичної деформації (див. пояснення до рис. 7)

Щодо впливу продуктів ядерних реакцій на тантал, то ситуація ускладнюється сумісним впливом вже трьох газів – водню, гелію, та кисню.

Так, у роботі [18] зазначається, що "...кінетика поглинання водню танталом при температурах нижче 500 °C сильно залежить від попереднього вакуумного відпалу зразків, парціального залишкового тиску кисню в об'ємі та домішки кисню в водні. Це свідчить про те, що швидкість реакції при низьких температурах визначається проникністю атомів водню через кисневмісні шари

на поверхні металу, а не об'ємною дифузією атомів водню...» Таким чином, воднева стійкість танталу буде визначатися станом поверхні металу і, перш за все, складом, структурою, товщиною і воднепроникністю поверхневої оксидної плівки.

У цьому відношенні результати [19], в якому за допомогою ряду структурних методів досліджено поверхню танталу, що покриває вольфрамову мішень LANSE (Лос-Аломос, США). Встановлено, що в результаті процесу гарячого ізостатичного пресування - ГП (параметри - 1500 °С, 200 МПа, 3 години) хімічний склад поверхні має два шари. Поверхневий шар, до глибини 5 мкм, збагачений карбідами танталу, а далі до глибини 70 мкм знаходяться оксиди (Ta_2O_5). Оцінки авторів показали, що в обсязі танталу міститься до 400 ppm кисню. Це призводить до подвійного зміцнення танталу, але не тільки. Так, у роботі [20] було показано, що при рівнях кисню, починаючи з 500 ppm, *інтенсивне окрихчення танталу відбувається без опромінення*. Цікаво відзначити, що під час ГП також захоплюється водень, концентрація якого в кінці процесу досягає 100 ppm. Водночас автори роботи [19] висловлюють думку, що його наявність є позитивним фактором, оскільки він може зменшити вміст оксидів.

Таким чином, навіть без опромінення, концентрації кисню на рівні 500 ppm у танталі можуть призводити до його окрихчення. При цьому водень, гелій, та радіаційні дефекти можуть значно підсилювати дію кисню. Так, у роботі [21] було встановлено вирішальну роль концентрації міжвузлевих домішок, і особливо кисню у радіаційному зміцненні металів групи 5 групи Періодичної системи (до якої належить тантал), при низьких дозах та температурах деформування. Це особливо важливо для данної роботи, бо ці дослідження були проведені саме після опромінення високоенергетичними електронами із енергією більше 100 MeV.

ВИСНОВКИ

- Проведено короткий аналіз сучасного стану розвитку ADS –систем –прообразів майбутніх реакторів 5-го покоління.
- Проведено аналіз використання Та покриттів у нейтроноутворюючих мішенях ADS –систем. Встановлено, що W-Та композити займають чільне місце у світі, серед мішеней найбільш потужних ADS.
- Проведено аналіз впливу опромінення танталу у ADS –системах та реакторах, на його основні механічні властивості. Встановлено особливості дозової залежності пластичності танталу різної чистоти, та факт визначального впливу кисню на його радіаційну крихкість.
- Встановлена дозова залежність напруги течії, та напруги руйнування опроміненого Та. Показано, що відбувається перехід від радіаційного зміцнення при дозах до 1-2 зна, до значної втрати міцності танталу(радіаційне знеміцнення), навіть у досить чистому танталу, при дозах 10 зна. Матеріал починає руйнуватися у пружній області, при рівнях навантаження нижче за межу текучості, в наслідок чого має місце його крихке руйнування.
- Зроблений прогноз стосовно поведінки танталового покриття нейтроно-утворюючої мішені ННЦ ХФТІ. Враховуючи високу концентрацію у матеріалі домішок впровадження(кисню), можна вважати, что танталовое покрытие вольфрамової мішені, практично, не буде мати запасу пластичності, вже у перший рік роботи джерела нейтронів.

ПЕРЕЛІК ДЖЕРЕЛ ПОСИЛАННЯ

1. C.Rubbia, J.A.Rubbio, S.Buono . Conceptual design of a Fast neutron operated high power energy amplifier. CERN/ AT/95-44T.
2. D.Ridicas, H.Safa, M.-L.Giacri. Conceptual study of neutron irradiation driver by electron accelerators// Seven Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product , Jeju, Korea, 14-16 Oct.2002
3. A. Bykhun, P. Gladkikh, I. Karnaukhov, V. Lyashchenko, A. Mytsykov, V. Ridozub, V. Selivanov, V. Stomin, A. Tertychnyj, I. Ushakov, A. Zelinsky Reactivity measurement methods and the first results of the physical start-up for the nuclear subcritical facility “Neutron Source” Ukr. J. Phys. 2023, v.68, No. 3, p. 147-161
4. I.M. Karnaukhov, O.P. Bezditko, B.V. Borts, O.V. Bykhun, V.T. Bykov, P.I. Gladkikh, L.I. Glushchenko, O.M. Gordienko, V.G. Grevtsev, I.I. Karnaukhov, Ye.V. Lutsenko, V.M. Lyashchenko, Yu.A. Marchenko, A.O. Mytsykov, O.V. Nevara, V.M. Ridozub, V.S. Selivanov, D.V. Tarasov, A.V. Tertychny, O.F. Vanzha, I.V. Ushakov, A.Yu. Zelinsky, V.P. Androsov, Yu.M. Telegin. Research of neutron-physical characteristics of the Subcritical Nuclear Facility “Neutron Source” of NSC KIPT during the physical start-up. Доповіді Національної академії наук України., 2024, № 3, с. 44-59
5. M.S.Wechsler, J.Sommer, C.Lin, L.L.Daemen, P.D.Ferguson Radiation effects in materials for accelerators- driven neutron technologies // *Journal of Nuclear Materials* 244(1997) p.177-184 **materials for accelerator-**
6. M. Kawai, M. M. Kawai, M. Furusaka, K. Kikuchi, H. Kurishita, et al. R&D of MW-class solid target for a spallation neutron source.// *Journal of Nuclear Materials* 318 (2003) 38–55.
7. W.Yin Q.Z Yu, Y.L.Lu The expected radiation damage of CSNS target // *Journal Nuclear Materials* 431(2012)39-43 doi.org./10/1016/ j.jnucmat.2011.11.025

8. D.Wilcox,P.Loveridge,T.Davenne, et al. Stress level and failure modes of Ta clad W targets of ISIS //Journal of Nuclear Materials 506 (2018) 76–82.
9. J. Chen, P. Jung, M. Rüdiger, H. Ullmaier, G.S. Bauer. Ductility recovery in structural materials for spallation targets by post-irradiation annealing. Journal of Nuclear Materials, v.343(2005), p.227-235
10. T.S.Byun,S.Maloy Dose dependence of mechanical properties in tantalum and tantalum alloys after low temperature irradiation // Journal of Nuclear Materials 377 (2008) 72–79.
11. E. Lopez Sola, M. Calviani , P. Avigni, M. Battistin, J. Busom Descarrega, J. Canhoto Espadanal, M. A. Fraser, S. Gilardoni, B. Goddard, D. Grenier, R. Jacobsson, K. Kershaw, M. Lamont, A. Perillo-Marcone, M. Pandey, B. Riffaud, S. Sgobba, V. Vlachoudis, and L. Zuccalli Design of a high power production target for the beam dump facility at CERN. *PHYSICAL REVIEW ACCELERATORS AND BEAMS* 22, 113001 (2019). doi.10.1103./PhysRevAccelBeams.22.1.3001
12. V.V. Gann, A.V. Gann, B.V. Borts, I.M. Karnaukhov, P.I. Gladkikh, A.A. Parkhomenko. RADIATION DAMAGE TO A TUNGSTEN TARGET OF A NEUTRON SOURCE // *VANT, Ser. YFI.* 2021, № 6(136), p.17-26. doi.org./10.46813/2021-136-017
13. S.Saito, K.Suzuki, H. Obata, Y. Dai Mechanical properties of pure tungsten and tantalum irradiated by protons and neutrons at the Swiss spallation-neutron source.NuclearMaterialsandEnergy.vol34(2023)101338.https://doi.org/10.1016/j.nme.2022.101338
14. F.W.Fiffen Tensile propertiesof of fast-reactor neutron irradiation ECC metals and alloys . Proc. Conf.730813.1973, 22p.
15. S. Maloy, M.R. James, G. Willcutt, W.F. Sommer, M.Sokolov, L.L. Snead, M.L. Hamilton, F. Garner, J. Nucl. Mater. 296 (2001) 119.
16. X. Wu. Journal of Nuclear Materials 343 (2005) 302–307.

17. H.Sencer, S.A.Maloy, M.L.Hamilton, F.A.Garner Microstructural evolution of both as-irradiated and subsequently deformed microstructures of 316L SS irradiated at 30-160oC at LANCE J. Nucl. Mater. 345 (2005) 136-145.
18. J. Chen, H. Ullmaier, T. Floßdorf, W. Kühnlein, R. Duwe, F. Carsughi, T. Broome, Mechanical properties of pure tantalum after 800 MeV proton irradiation, J. Nucl. Mater. 298 (3) (2001) 248–254.
19. A.T.Nelson, J.A.O.Toole, S.A.Maloy Fabrication of a tantalum-clad tungsten target for LANCE. Journal of Nuclear Materials 431 (2012) 172-184
20. T. Tietz, J. Wilson, Behavior and propeties of refractory metals, Stanford University Press, Stanford, CA, 1965. 234p.
21. М.П. Зейдліц, В.Ф. Зеленський, Л.С. Ожигов, А.А. Пархоменко Питання Атомної науки і техніки . Серія : Фізика радіаційних пошкоджень та радіаційне матеріалознавство. Вип.1(2)1975 с. 21-24.

Додаток (до Розділу 3) *Крива деформування, та утворення «шийки» на зразку під час деформації розтягу(анімація)*



Рис. А Типи зразків, що використовуються для механічних досліджень

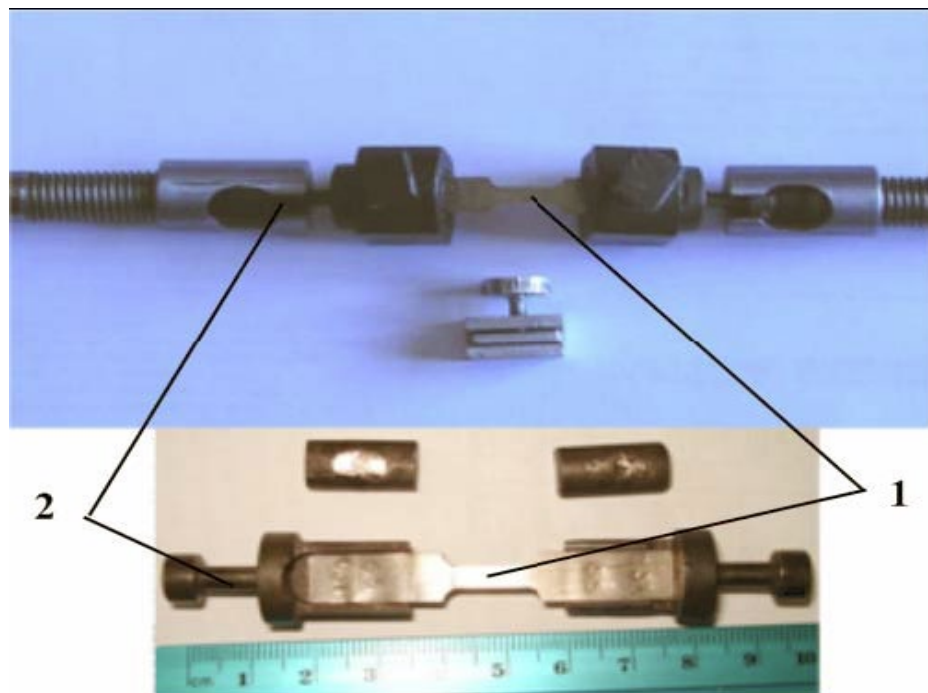


Рис.Б Плоскі зразкі з танталу, товщиною 270 мкм у захватах.

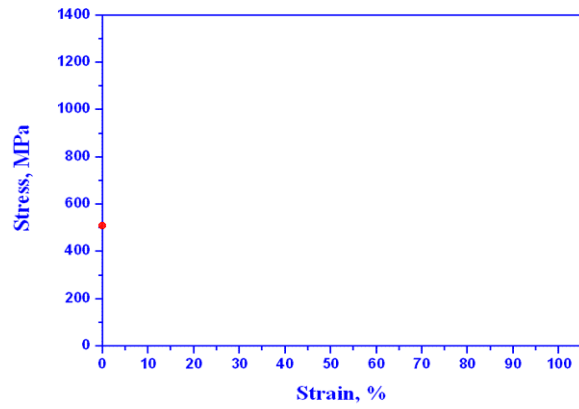
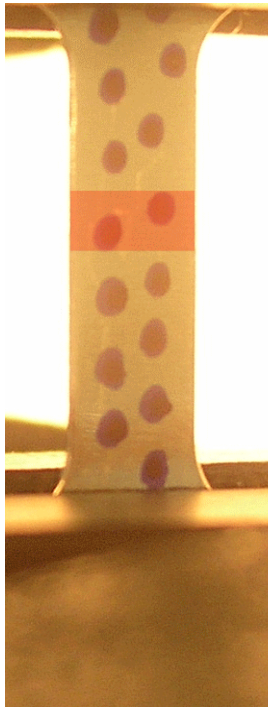


Рис.В Крива деформування у інженерних(нижня), та істинних координатах, із утворенням «шийки»