

## Компьютерное моделирование тепловых полей системы Mo-Zr для формирования покрытий с помощью низкоэнергетического сильноточного электронного пучка

*А.В. Соловьев\*, А.Б. Марков, Е.А. Пестерев, Е.В. Яковлев, В.И. Петров*

*Томский научный центр СО РАН, Томск, Россия*

*\*a.solovyov@hq.tsc.ru*

**Аннотация.** Проведены расчеты температурных полей системы Mo (пленка)/Zr (подложка) при импульсном электронно-пучковом воздействии. Представлены рассчитанные зависимости порогов плавления системы Mo (пленка)/Zr (подложка) от толщины пленки. Порог плавления пленки Mo при увеличении её толщины монотонно увеличивается и стремится к порогу плавления чистого Mo. Порог плавления подложки Zr при увеличении толщины пленки Mo монотонно увеличивается от значения порога плавления чистого циркония до бесконечности. При значениях пленки молибдена не превышающих 8 мкм первой начинает плавиться подложка циркония. При дальнейшем увеличении толщины пленки, наоборот, первой начинает плавиться пленка молибдена. Рассчитаны зависимости толщины расплавленного слоя подложки из циркония от плотности энергии НСЭП для систем Mo/Zr с толщинами пленок молибдена 0.10, 0.25, 0.50 и 1.00 мкм. При увеличении плотности энергии наблюдается монотонное увеличение толщины расплава. Представлены временные зависимости толщины расплава при плотностях энергии НСЭП 2.5, 3.5, 4.5 и 5.5 Дж/см<sup>2</sup> для системы Mo/Zr с толщиной пленки 0.5 мкм.

**Ключевые слова:** моделирование, низкоэнергетический сильноточный электронный пучок, поверхностный сплав, молибден, цирконий.

### 1. Введение

В настоящее время повышенный интерес представляют работы направленные на оптимизацию оболочек ТВЭЛ с целью повышения стойкости к окислению при высоких температурах (>1000 °C), которые могут возникнуть в сценариях аварий с потерей теплоносителя (LOCA) [1]. Один из методов защиты оболочек ТВЭЛ – это нанесение хромосодержащих покрытий [2, 3]. Использование молибдена рассматривается в качестве барьерного слоя между цирконием и хромосодержащими покрытиями [4]. Например, сплав FeCrAl обеспечивает превосходную стойкость к окислению, однако Fe образует эвтектику с Zr при температурах до 928 °C, что приводит к взаимной диффузии и связанному с ней плавлению. Использование промежуточного покрытия Mo привлекательно, благодаря его высокой температуре плавления (2632 °C), низкой скорости диффузии Cr, Fe и Zr в Mo, а также высокими точкам эвтектики с Fe и Zr [5–8].

Наиболее перспективным методом формирования высокоадгезионного покрытия является синтез поверхностного сплава с помощью предварительного напыления пленок магнетронным способом и их последующего перемешивания с подложкой в жидкой фазе низкоэнергетического сильноточного электронного пучка (НСЭП) микросекундной длительности [9, 10]. Последовательность операций при формировании поверхностного сплава следующая: в едином вакуумном цикле на подложку напыляется пленка хрома толщиной  $h$  (μm) затем следует НСЭП обработка с плотностью энергии  $E_s$  (Дж/см<sup>2</sup>). Плотность энергии и толщина пленки магнетронного напыления в конечном итоге определяют толщину расплава системы пленка-подложка, его время жизни и температуру. Оптимальные параметры плотности энергии НСЭП и толщины пленки Mo для синтеза Mo-Zr поверхностного сплава можно определить с помощью компьютерного моделирования температурных полей в системах пленка/подложка.

В настоящей работе исследуется влияние энергетических характеристик электронно-пучкового воздействия на систему Мо (пленка)/Zr (подложка) на глубину и время жизни расплава.

## 2. Методика расчетов

Для вычисления температурного поля в системе Мо (пленка)/Zr (подложка), решалось одномерное уравнение теплопроводности с соответствующими граничным и начальным условиями. Процесс плавления моделировался методом эффективной теплоемкости, а процесс испарения учитывался с помощью модели теплового разрушения [11, 12]. При моделировании импульсного пучка ускоренных электронов использовались реальные осциллограммы тока на коллекторе и ускоряющего напряжения НСЭП. Температурные поля вычислялись для разных плотностей энергии НСЭП, длительность импульса  $\tau$  была равна 2.5 мкс. Расчеты проводились для одиночного импульса. В таблице 1 представлены теплофизические свойства подложки из циркония и пленки из хрома, используемые при вычислении температурных полей в изучаемых системах. Здесь  $\rho$ ,  $c$ ,  $k$ ,  $T_m$  и  $L_m$  – это плотность, теплоемкость, теплопроводность, температура плавления и скрытая теплота плавления соответственно. Температурные зависимости теплофизических свойств материалов брались из справочников [13].

Таблица 1. Теплофизические свойства материалов

Режим	$\rho$ , кг/м <sup>3</sup>	$c$ , Дж/(кг К) (при 300 К)	$k$ , Вт/(м К) (при 300 К)	$T_m$ , К	$L_m$ , кДж/кг
Zr	6450	279	23	2125	160.046
Mo	10220	250	138	2893	375.235

## 3. Результаты и обсуждения

Важной энергетической характеристикой электронно-пучкового воздействия является порог плавления. Порогом плавления называют наименьшую величину плотности энергии электронного пучка, при которой происходит начало плавления пленки или подложки. Пороги плавления пленки и подложки зависят от теплофизических свойств материалов, а так же от толщины напыляемой пленки. Практический интерес представляет порог плавления системы, когда оба материала пленки и подложки находятся в расплавленном состоянии. Если первой начинает плавиться пленка, то порог плавления системы связывают с порогом плавления подложки. Расплав подложки при этом происходит на незначительную глубину, но достаточную для начала процесса перемешивания элементов пленки и подложки для формирования поверхностного сплава. Если первой начинает плавиться подложка, то порог плавления системы связывают с порогом плавления пленки. На рис.1 представлены рассчитанные зависимости порогов плавления системы Мо (пленка)/Zr (подложка) от толщины пленки. Пороги плавления чистых металлов молибдена и циркония равны 7.02 и 1.85 Дж/см<sup>2</sup> соответственно. На рис.1 они обозначены штриховыми линиями. Расчеты показали, что порог плавления пленки Мо при увеличении её толщины монотонно увеличивается (кривая 1 на рис.1) и стремится к порогу плавления чистого Мо. Порог плавления подложки Zr (кривая 2 на рис.1) при увеличении толщины пленки Мо монотонно увеличивается от значения порога плавления чистого циркония до бесконечности. Расчеты показали, что при значениях пленки молибдена не превышающих 8 мкм первой начинает плавиться подложка циркония. Это можно объяснить более низкой теплопроводностью Zr по сравнению с Мо. При дальнейшем увеличении толщины пленки, наоборот, первой начинает плавиться пленка молибдена.

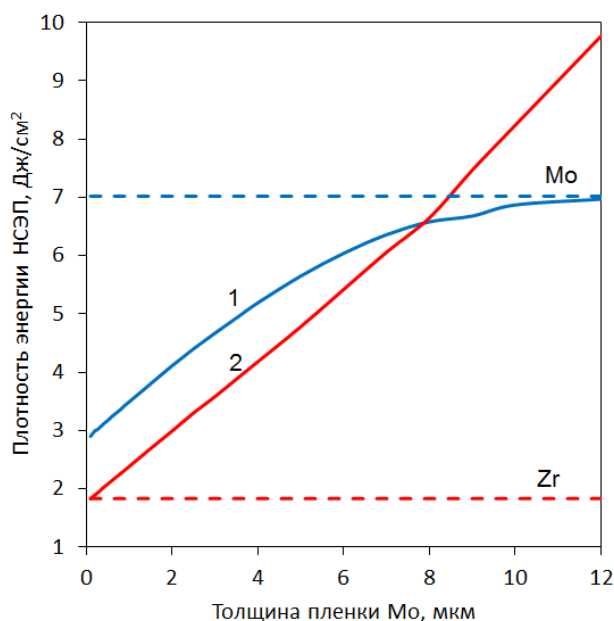


Рис.1. Зависимость порогов плавления пленки Мо (1) и подложки Zr (2) от толщины пленки Мо.

На рис.2 приведены зависимости толщины расплавленного слоя подложки из циркония от плотности энергии НСЭП для систем Mo/Zr с толщинами пленок молибдена 0.10, 0.25, 0.50 и 1.00 мкм. Для всех рассматриваемых случаев первой начинает плавиться подложка циркония. При значениях энергии НСЭП выше порога плавления пленки молибдена происходит плавление не только пленки, но и подложки и оба элемента системы находится в жидкой фазе. Для эффективного перемешивания элементов системы пленка-подложка плотность энергии НСЭП должна быть больше порога плавления пленки. Для всех рассматриваемых толщин пленки наблюдаются общие закономерности изменения толщины расплава при увеличении плотности энергии НСЭП. При увеличении плотности энергии наблюдается монотонное увеличение толщины расплава.

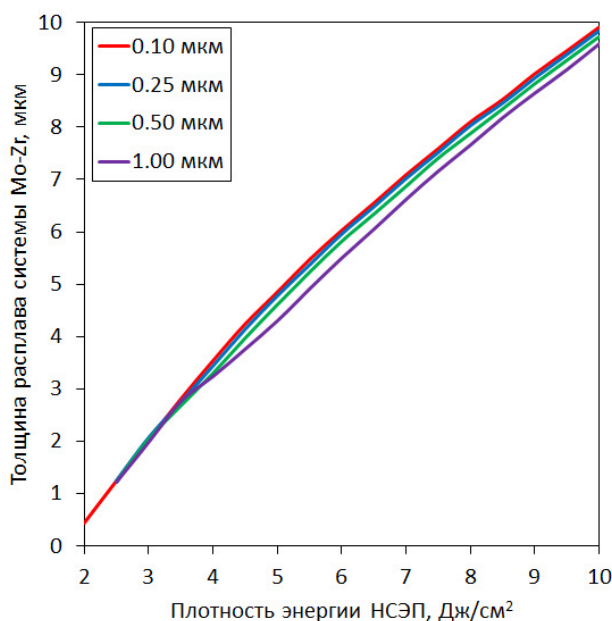


Рис.2. Зависимость толщины расплава от плотности энергии НСЭП.

На рис.3 представлены временные зависимости толщины расплава при плотностях энергии НСЭП 2.5, 3.5, 4.5 и 5.5 Дж/см<sup>2</sup> для системы Мо/Zr с толщиной пленки 0.5 мкм. Временная шкала на рис.3 приведена в масштабах длительности импульса электронного пучка  $t$ . Расплав системы обозначен серыми областями. При облучении системы с плотностью энергии НСЭП 2.5 Дж/см<sup>2</sup> плавится только подложка циркония (рис.3а). Данная плотность энергии ниже порога плавления пленки. Максимальная толщина расплава Zr наблюдается при 0.6 $t$ , а полная кристаллизация подложки происходит ещё до момента окончания действия импульса. При облучении системы с плотностью энергии НСЭП 3.5 Дж/см<sup>2</sup> сначала плавится подложка Zr и через 0.42 $t$  начинает плавиться плёнка Мо (рис.3б). Расплав плёнки Мо существует до 0.73 $t$ . Максимальная толщина расплава Zr наблюдается при 1.00 $t$ . Полная кристаллизация системы происходит после 1.28 $t$ . При облучении системы с плотностью энергии НСЭП 4.5 Дж/см<sup>2</sup> сначала так же плавится подложка Zr и через 0.36 $t$  начинает плавиться плёнка Мо (рис.3в). Расплав плёнки Мо существует до 0.99 $t$ . Максимальная толщина расплава Zr наблюдается при 1.15 $t$ . Полная кристаллизация системы происходит после 1.89 $t$ . При облучении системы с плотностью энергии НСЭП 5.5 Дж/см<sup>2</sup> так же сначала плавится подложка Zr и через 0.34 $t$  начинает плавиться плёнка Мо (рис.3г). Расплав плёнки Мо существует до 1.23 $t$ . Максимальная толщина расплава Zr наблюдается при 1.25 $t$ . Полная кристаллизация системы происходит после 2.66 $t$ . Существование расплава пленки больше времени действия импульса можно объяснить меньшей теплопроводностью подложки по сравнению с теплопроводностью плёнки (таблица 1), что затрудняет отток тепла и увеличивает время жизни расплава.

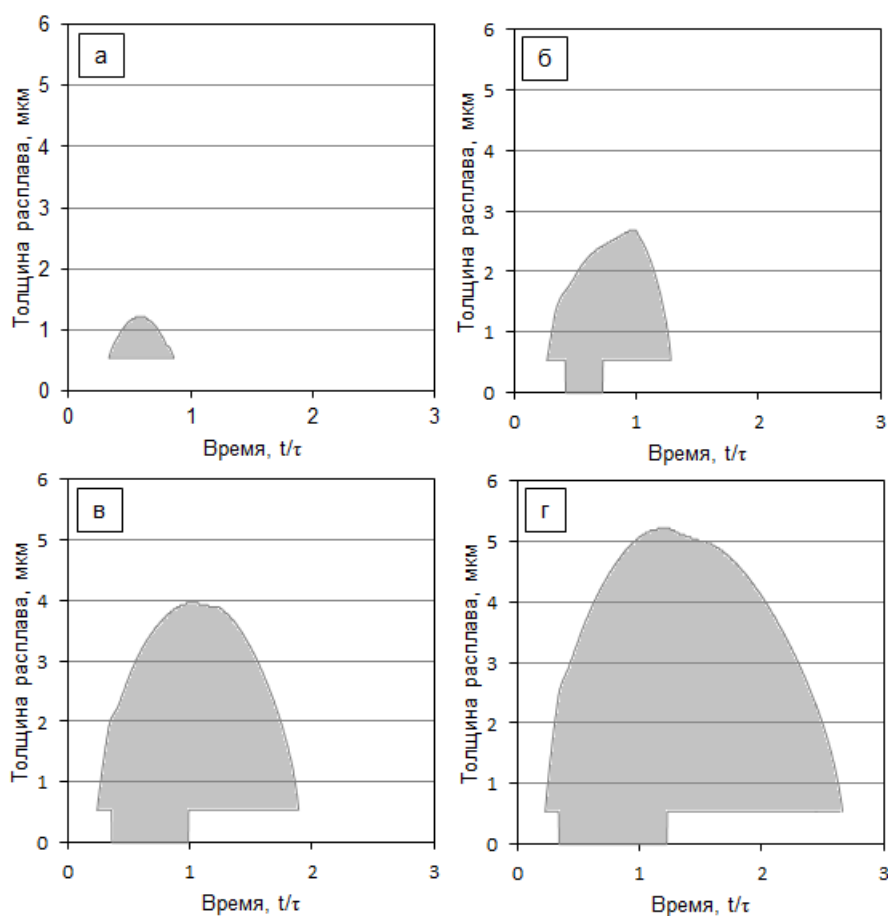


Рис.3. Временные зависимости толщины расплава системы Мо/Zr с толщиной пленки 0.5 мкм при плотностях энергии НСЭП 2.5 (а), 3.5 (б), 4.5 (в) и 5.5 (г) Дж/см<sup>2</sup>.

#### 4. Заключение

Проведены расчеты температурных полей системы Мо (пленка)/Zr (подложка) при импульсном электронно-пучковом воздействии. Представлены рассчитанные зависимости порогов плавления системы Мо (пленка)/Zr (подложка) от толщины пленки. Порог плавления пленки Мо при увеличении её толщины монотонно увеличивается и стремится к порогу плавления чистого Мо. Порог плавления подложки Zr при увеличении толщины пленки Мо монотонно увеличивается от значения порога плавления чистого циркония до бесконечности. При значениях пленки молибдена не превышающих 8 мкм первой начинает плавиться подложка циркония. При дальнейшем увеличении толщины пленки, наоборот, первой начинает плавиться пленка молибдена. Расчитанны зависимости толщины расплавленного слоя подложки из циркония от плотности энергии НСЭП для систем Мо/Zr с толщинами пленок молибдена 0.10, 0.25, 0.50 и 1.00 мкм. При увеличении плотности энергии наблюдается монотонное увеличение толщины расплава. Представлены временные зависимости толщины расплава при плотностях энергии НСЭП 2.5, 3.5, 4.5 и 5.5 Дж/см<sup>2</sup> для системы Мо/Zr с толщиной пленки 0.5 мкм.

#### Благодарности

Работа выполнена в рамках государственного задания ТНЦ СО РАН проект № FWRF-2021-0001

#### 5. Список литературы

- [1] Pint B.A., et al., *J. Nucl. Mater.*, **440**, 420, 2013; doi: 10.1016/j.jnucmat.2013.05.047
- [2] Pint B.A., Terrani K.A., Yamamoto Y., Snead L.L., *Metall. Mater. Trans.*, **E2**, 190, 2015; doi:10.1007/s40553-015-0056-7
- [3] Pint B.A., Terrani K.A., Rebak R.B., *Metall. Mater. Trans.*, **E2**, 1451, 2019; doi: 10.1007/978-3-030-04639-2\_96
- [4] Yeom H., Maier B., Johnson G., Dabney T., Walters J., Sridharan K., *J. Nucl. Mater.*, **507**, 306, 2018; doi: 10.1016/j.jnucmat.2019.03.039
- [5] Houserová J., Vřešťál J., Šob M., *Calphad Comput. Coupling Phase Diagrams Thermochem.*, **29**, 133, 2005; doi: 10.1016/j.calphad.2005.06.002
- [6] Zinkevich M., Mattern N., *J. Phase Equil.*, **23**, 156, 2002; <https://link.springer.com/content/pdf/10.1361/1054971023604242.pdf>
- [7] Cheng B., Kim Y.-J., Chou P., *Nucl. Eng. Technol.*, **48**, 16, 2015; doi: 10.1016/j.net.2015.12.003
- [8] Neumann G., Tuijn C., *Self-diffusion and Impurity Diffusion in Pure Metals: Handbook of Experimental Data*. (Elsevier, 2011); <https://www.elsevier.com/books/self-diffusion-and-impurity-diffusion-in-pure-metals/neumann/978-1-85617-511-1>
- [9] Markov A., Yakovlev E., Shepel' D., Bestetti M., *Results Phys.*, **12**, 1915, 2019; doi:10.1016/j.rinp.2019.02.010
- [10] Batrakov A.V., Markov A.B., Ozur G.E., Proskurovsky D.I., Rotshtein V.P., *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, **43**, 283, 2008; doi: 10.1051/epjap:2008070
- [11] Markov A.B., Mikov A.V., Ozur G.E., Padei A.G., *Instruments and Experimental Techniques*, **54**, 862, 2011; doi: 10.1134/S0020441211050149
- [12] Rotshtein V., Ivanov Y., Markov A., *Materials Surface Processing by Directed Energy Techniques*, (Elsevier, 2006); doi: 10.1016/B978-008044496-3/50007-1
- [13] Babichev A.P., et al., (Eds.), *Physical quantities*. (Moscow: Energoatomizdat, 1991).