

Секция
РАДИАЦИОННЫЕ МЕТОДЫ КОНТРОЛЯ И ИСПЫТАНИЙ

**НЕРАЗРУШАЮЩИЙ КОНТРОЛЬ ВОДОРОДНО-ГЕЛИЕВОГО
ОХРУПЧИВАНИЯ КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ**

*И.П. Чернов¹, М. Кренинг², Ю.П. Черданцев¹, А.С. Сурков²
Ю.И. Тюрин¹, Н.Н. Никитенков¹, А.М. Лидер¹
¹ г. Томск, Россия, ² г. Саарбрюкен, Германия*

Данные о свойствах систем металл-водород, металл-гелий и эффективные способы неразрушающего контроля позволят оценить время безопасной эксплуатации и провести раннюю диагностику опасной стадии разрушения металлических конструкций. Целью данной работы являлось исследование влияния водорода и гелия на физико-механические свойства ферритной стали марки ЭП-450. Ферритная сталь используется в реакторах, и ее эксплуатационные характеристики в значительной мере зависят от наличия примесей гелия и водорода. Для исследований использован комплекс неразрушающих атомных и ядерно-физических методов анализа.

Распределение изотопов водорода и гелия в приповерхностном слое металлов изучалось на циклотроне НИИ ядерной физики ТПУ (г. Томск) методом ядер отдачи [1]. В качестве зондирующего пучка использовали ионы азота с энергией 12–16 МэВ и ионы гелия с энергией 2,4 МэВ. Метод позволял получать информацию о миграции и диффузии водорода в процессе воздействия зондирующего пучка, имитирующего действие осколков деления. Структура дефектов и их концентрации изучалась методом электрон-позитронной аннигиляции. Уровень дефектности и внутренних напряжений стали, возникающих при насыщении водородом, определялись по величине скорости звуковых волн. Измерения скорости звука осуществлялось методом автоциркуляции импульсов, используя рэлеевские волны. Погрешность измерений и скорости звука не превышает 0,01 %. Глубина распространения ультразвуковой волны составляет 1,5–2 мм. Для измерения диаграмм нагружения использована испытательная машина ComTen 95T. Микротвердость тонкого наводороженного слоя измеряли с помощью нанотвердомеров NanoTest 600 и CSEM – NHT [2]. Зависимость глубины проникновения от приложенной силы в стадиях нагрузки и разгрузки анализировали по методу Оливера и Фарра [3]. Суть метода заключается во вдавливании индентора с алмазным наконечником в исследуемый материал и измерении зависимости нагрузки на индентор от глубины проникновения. Для определения адгезионных свойств материалов и реализуется т. н. методика «царапанья». На поверхность металла индентором, движущимся с заданной скоростью, наносится царапина. В процессе движения индентора производится измерение сигналов акустической эмиссии (АЭ). Микроскопические исследования царапины после теста позволяют обнаружить характерные особенности разрушения адгезионных связей, что добавляет привлекательности методам наноиндентирования как отличному аналитическому инструменту. Достоинством методов при анализе насыщенных водородом и гелием поверхностных слоев является возможность исследования свойства материалов на малых глубинах (0,1–10 мкм), где наиболее сильно проявляется влияние этих примесей на свойства материала.

Для исследования магнитных свойств образцов использован магнитный анализатор 3 МА [4]. Проводилось измерение магнитной проницаемости (μ_{\max}), коэрцитивной силы перемангничивания ($H_{\text{сн}}$), магнитных шумов Баркгаузена ШБ (M_{\max}) и вихретоковых параметров (M_{ag1} – амплитуда напряжения). Объемное содержание водорода в стали определя-

лось методом термостимулированного газовыделения (ТСГВ). На этой же установке изучалось поведение водорода в стали под действием электронов и рентгеновских квантов.

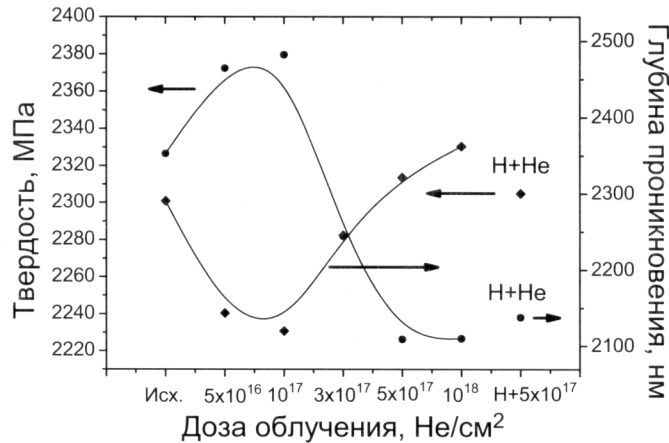


Рис. 1. Зависимость глубины проникновения от дозы облучения

Для исследования были изготовлены образцы ферритной стали марки ЭП – 450 (12Х12М1БФР-Ш). Образцы механически полировали, для снятия внутренних напряжений и удаления растворенных газов отжигали в вакууме (10^{-5} Па) при 550°C в течение 60 минут с последующим охлаждением в печи. Затем образцы подвергались электролитическому насыщению водородом из 1 М раствора LiOH+H₂O при плотности тока 0,1 А/см². Время насыщения составляло 240 мин. Часть образцов облучали ионами гелия с энергией 40 кэВ на ускорителе ИЛУ-3 (Курчатовский институт).

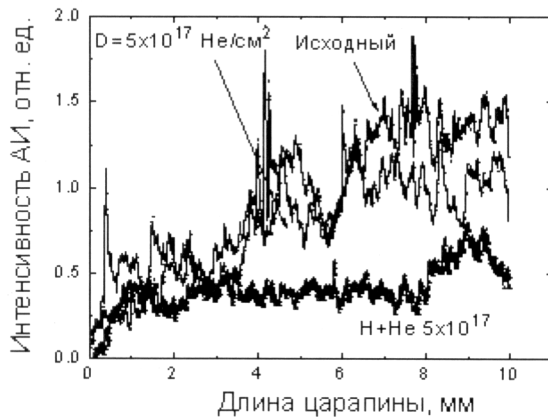


Рис. 2. Зависимость интенсивности выхода АЭ от координаты царапины

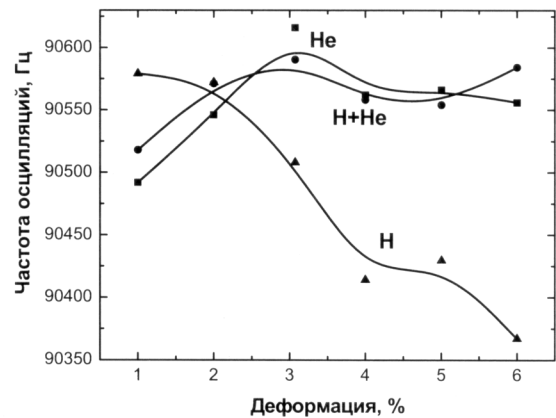


Рис. 3. Зависимость скорости звуковых волн от уровня деформации до и после облучения ионами гелия

Результаты измерений микротвердости в облученных гелием образцах приведены на рис. 1. При дозе внедрения гелия ниже $5 \times 10^{16} - 10^{17}$ He/cm² микротвердость растет, а глубина проникновения наноиндентора, соответственно, снижается. Далее, с ростом дозы до 10^{18} He/cm², микротвердость снижается. Предварительное внедрение водорода, затем гелия (доза 5×10^{17} He/cm²) практически не повлияло на микротвердость. Полученный результат, по-видимому, объясняется упрочнением тонкого поверхностного слоя при накоплении мелких вакансионных кластеров He_mV_n и снижении прочности покрытия (но не повышения пластичности!) при укрупнении дефектов. Зависимость

выхода АЭ от длины царапины в случае, если на наноиндентор действует линейно-возрастающая сила (сила нагружения), показана на рис. 2. Наибольшая интенсивность выхода АЭ наблюдается для исходного образца, после облучения He и последовательного насыщения H + He выход АЭ снижается. По-видимому, результат объясняется снижением прочности покрытия, что ведет к увеличению глубины проникновения индентора. Зависимость выхода сигналов АЭ от дозы внедрения гелия показана на рис. 4.

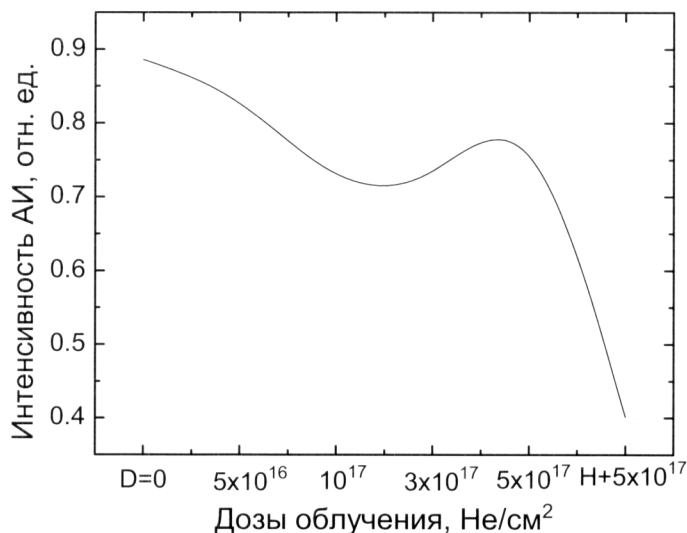


Рис. 4. Зависимость интенсивности акустической эмиссии от дозы облучения

Из рис. 4 видно, что при увеличении дозы облучения He интенсивность акустической эмиссии вначале убывает (снижение глубины проникновения индентора), затем возрастает (увеличение глубины проникновения). Последовательное внедрение водорода, затем гелия, привело к значительному уменьшению АЭ. Возможно, вклад в увеличение амплитуды АЭ при дозе 5×10^{17} He/см² вносит рост шероховатости поверхности при имплантации He.

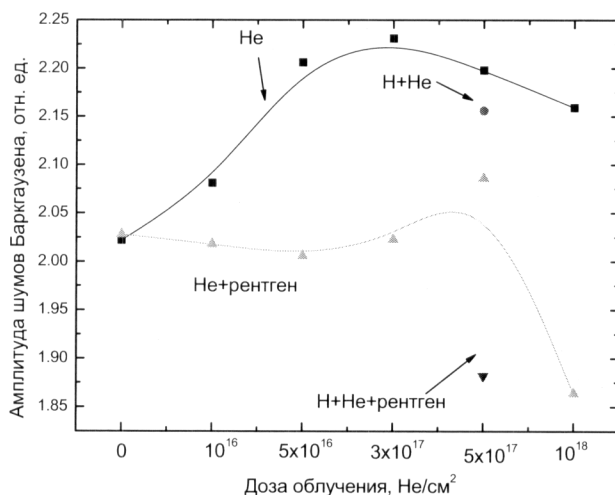


Рис. 5. Зависимость амплитуды ШБ от дозы внедрения гелия до (He) и после (He + рентген) облучения образцов ферритной стали рентгеновскими квантами. Здесь же показаны значения амплитуды ШБ для образцов, последовательного насыщенных водородом, затем гелием

На следующем этапе исследований изучено влияние деформации на скорость звуковых волн в серии образцов, насыщенных водородом и облученных гелием. Скорость

звуковых волн для деформированных и насыщенных водородом образцов спадает практически линейно от величины деформации (рис. 3, кривая Н). Снижение скорости звука при деформации связано с ростом уровня дефектности (увеличением длины дислокационных линий). Глубина среднего проективного пробега гелия на три порядка больше глубины анализируемого слоя при измерении скорости звуковых волн. Тем не менее, облучение гелием (He) привело к резкому увеличению (практически, восстановлению до исходной величины) скорости звуковых волн для больших уровней деформации. Результат можно объяснить совместным действием облучения (генерация точечных радиационных дефектов) и повышенной температурой в области внедрения (миграция и последующая аннигиляция части дефектов). Не исключен вклад процессов закрепления дислокаций атомами гелия. В то же время, при деформации ниже 2 % скорость звуковых волн в образцах, насыщенных водородом выше, чем для образцов имплантированных He. Увеличение скорости звуковых волн при внедрении водорода (при невысоких деформациях) связано с закреплением дислокаций атомами H.

Исследование шумов Баркгаузена в зависимости от дозы имплантации He указывает на их рост с увеличением дозы He. Глубина анализируемого слоя у магнитных методов достигает 100 мкм, поэтому, как и в предыдущем случае, можно предполагать, что внедрение гелия приводит к изменению физических свойств металла на глубину, значительно превышающую пробег ионов He. Повышение твердости металла при внедрении He приводит к закреплению границ магнитных доменов, соответственно, интенсивность ШБ растет (рис. 6). Облучение рентгеновскими квантами приводит к значительному снижению ШБ. По-видимому, результат связан с уменьшением общего уровня дефектов в металле, облегчению подвижности границ доменов. Внедрение водорода привело еще более значительному снижению уровня ШБ. По-видимому, водород увеличил «магнитную мягкость» магнетика.

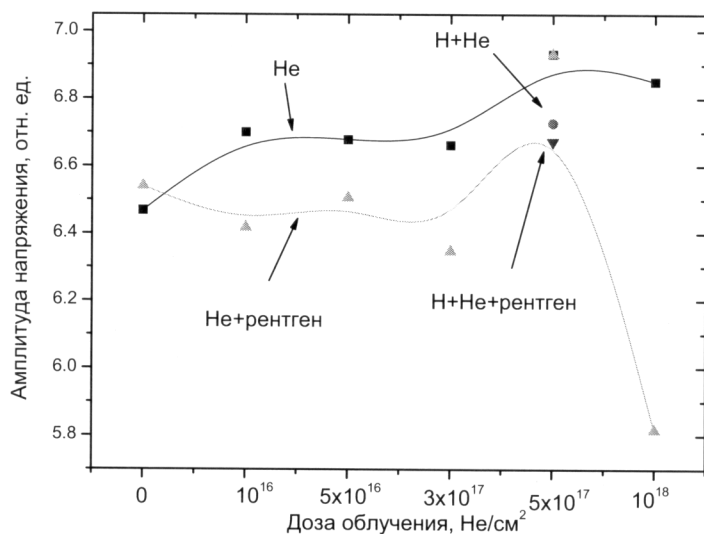


Рис. 6. Зависимость амплитуды напряжения (M_{ag1}) от дозы внедрения гелия до и после облучения ферритной стали рентгеновскими квантами

Внедрение гелия приводит к росту амплитуды вихретоковых напряжений, что, в общем случае, указывает на рост уровня дефектности металла (рис. 6) и подтверждает полученные ранее результаты. При облучении рентгеновскими квантами амплитуда напряжения снижается. Предварительное внедрение водорода (в отличие от измерений ШБ и данных акустических исследований) влияет на изменение амплитуды вихретоковых напряжений.

Изменение коэрцитивной силы (КС) с ростом дозы гелия показано на рис. 6. При росте дозы имплантации до 3×10^{17} He/см² коэрцитивная сила снижается, затем вновь

возрастает. Облучение рентгеновскими квантами привело к снижению КС при дозах имплантации больше 5×10^{16} He/cm². Наводороживание ведет к снижению коэрцитивной силы (H+He). Наибольшее изменение коэрцитивной силы после облучения рентгеновскими квантами наблюдается именно в наводороженном образце (H + He + рентген).

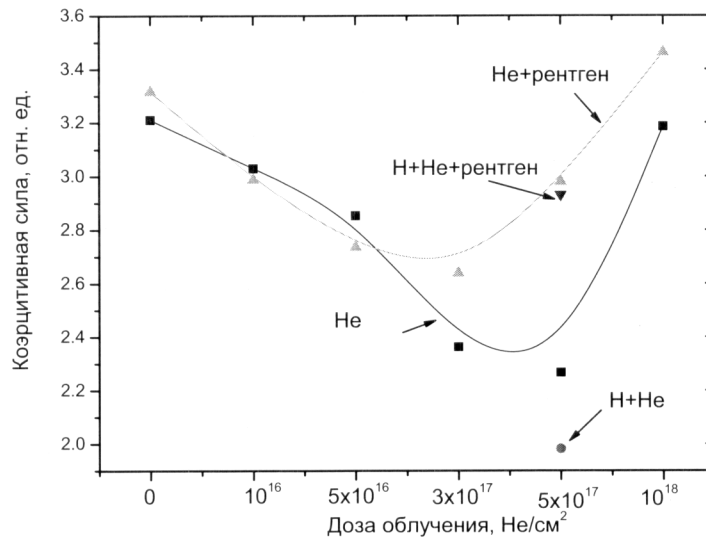


Рис. 7. Зависимость величины коэрцитивной силы от дозы внедрения гелия до и после облучения ферритной стали рентгеновскими квантами

Измерение магнитной проницаемости для этой же серии образцов показало, что при внедрении гелия (как и H) магнитная проницаемость возрастает (рис. 8). После облучения рентгеновскими квантами величина магнитной проницаемости снижается.

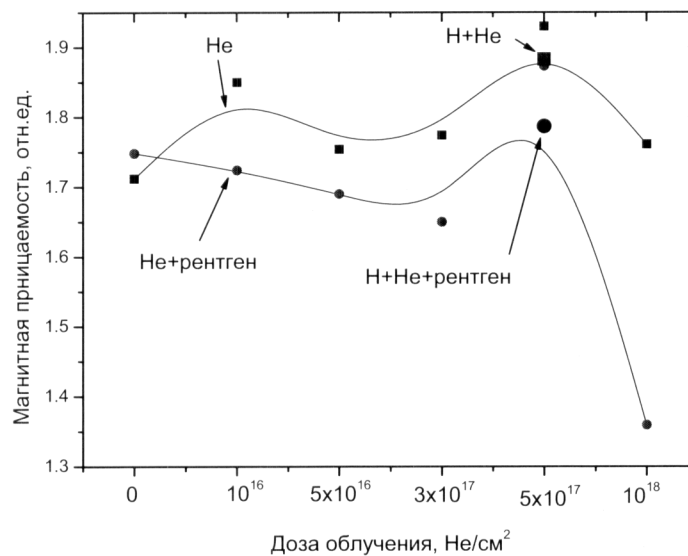


Рис. 8. Зависимость измерения магнитной проницаемости от дозы внедрения гелия до и после облучения ферритной стали рентгеновскими квантами

Микроскопические исследования образцов, насыщенных последовательно H, затем He и одним гелием выявили существенную разницу в характере эрозии поверхности (рис. 9). Если в случае облучения гелием (при дозах больше 5×10^{17} He/cm²) на поверхности стали наблюдается блистеринг «в чистом виде», то внесение водорода приводит к появлению на поверхности фазовых выделений различной формы и размеров. Характерных признаков гелиевого блистеринга в последнем случае не наблюдается.

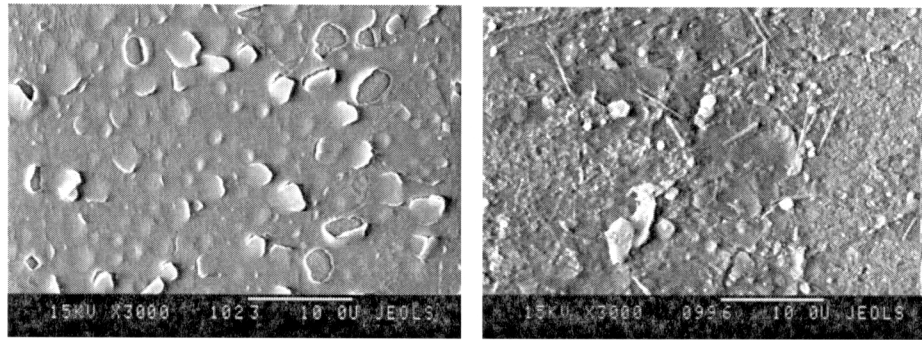


Рис. 9. Поверхность образцов стали облученных ионами He (слева) и наводороженных, затем облученных He (справа). Доза внедрения 5×10^{17} He/см²

Микроскопические исследования поверхности образцов насыщенных H, затем He и одним гелием выявили существенную разницу в характере эрозии поверхности. Если в случае облучения гелием на поверхности наблюдается блистеринг «в чистом виде», то внесение водорода приводит к появлению на поверхности фазовых выделений различной формы и размеров. Характерных признаков гелиевого блистеринга в последнем случае не наблюдается. Механические испытания показали, что при облучении гелием до дозы 3×10^{17} He/см² микротвердость стали повышается (глубина проникновения наноиндентора, соответственно, снижается), затем идет резкое уменьшение этой величины. Подобным образом меняется с ростом дозы внедрения He интенсивность выхода акустических сигналов под действием на образец наноиндентора. Предварительное внедрение водорода не изменило микротвердости насыщенных гелием образцов, но значительно уменьшило интенсивность выхода акустической эмиссии. Изучено влияние деформации на скорость распространения звуковых волн для серии стальных образцов, насыщенных водородом и облученных гелием. Скорость звуковых волн снижается практически линейно от величины относительного растяжения. Облучение гелием привело к резкому увеличению скорости звуковых волн для больших уровней деформации. В то же время, при деформации ниже 2 % скорость звуковых волн меньше, чем для образцов без гелия. Последовательное внедрение H и He не изменило этой зависимости. Исследование зависимости амплитуды шумов Баркгаузена (M_{\max}) от дозы внедрения гелия показало значительное увеличение M_{\max} при $D_{\text{He}} \geq 5 \times 10^{16}$ ат/см². Последовательное внедрение водорода, затем гелия снижает эту величину практически до её значения в исходном материале. Отмечен рост магнитной проницаемости стали μ_{\max} при имплантации гелия. Внесение водорода не внесло существенных изменений в эту величину.

Список литературы

1. И.П. Чернов, Ю.П. Черданцев, Ю.И. Тюрин. Методы исследования систем металл-водород. – М.: Энергоатомиздат, 2004. – 270 с.
2. A. Pelletier, J. Krier Pierhe Mille. Characterization of mechanical properties of thin films using nanoindentation test. *Mechanics of Materials* 38, 2006. – С. 1182–1198.
3. W. Oliver, G. Pharr. An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments // *J. Mater. Res.* – 1992. – V. 7. – № 6. – 1564 p.
4. M. Lang, I. Alpeter, G. Dobmann. A new approach toward the early recognition of H-induced stress corrosion cracking // *Materials and corrosion.* – 1995. – V. 46. – P. 422–425.

Работа выполнена при финансовой поддержке Международного научно-технического центра и гранта Министерства науки и образования РФ «Развитие научного потенциала высшей школы 2006–2008 гг.»