

# Nb 涂层 N36 锆合金原位加热过程中的缺陷演化行为

魏铭言<sup>1</sup>, 雷鹏辉<sup>1</sup>, 张平<sup>1</sup>, 王云鹏<sup>1</sup>, 吴璐<sup>2</sup>, 王桢<sup>2</sup>, 伍晓勇<sup>2</sup>, 卢晨阳<sup>1</sup>

(1. 西安交通大学 核科学与技术学院, 陕西 西安 710049)

(2. 中国核动力研究设计院, 四川 成都 610041)

**摘要:** 福岛核事故之后, 为锆合金表面涂覆涂层是一种提高核燃料包壳事故容错能力的重要方式。含 Nb 涂层 N36 合金辐照后的透射电镜样品利用聚焦离子束进行制备, 并通过原位透射电子显微镜研究了 Kr 离子注入后, Nb 涂层在加热过程中的气泡生长行为。原位加热结果表明, 界面对气泡的生长存在影响, 界面在加热过程中通过对周围气泡的捕获与输送, 导致界面附近气泡的生长速度低于远离界面的气泡生长速度。原位加热后的元素分析表明, 辐照与加热均会导致涂层-基体元素扩散距离的增加, 其中辐照过程中的元素扩散由热峰混合机制主导。元素的扩散有助于提高涂层的结合性能, 并为 N36 合金提供一定的抗腐蚀能力。

**关键词:** 铌涂层锆合金; 离子辐照; 原位加热; 缺陷演化

中图分类号: TL341

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2023)08-2985-08

2011 年福岛第一核电站事故暴露出目前的锆合金包壳在高温蒸气环境下会发生剧烈氧化反应, 发生氢爆并最终导致堆芯熔毁<sup>[1]</sup>。事故之后, 如何提高包壳的事故容错能力成为新的研究热点<sup>[2]</sup>。目前事故容错燃料 (accident tolerant fuel, ATF) 包壳材料设计存在 2 种思路: (1) 设计新型非锆的包壳材料, 如 SiC 基陶瓷复合材料<sup>[3]</sup>、FeCrAl 合金<sup>[4]</sup>、纳米氧化物弥散强化 (ODS) 合金<sup>[5]</sup>以及 Mo 为主的难熔合金<sup>[6]</sup>; (2) 为已有的锆合金产品开发高结合性的抗氧化涂层。高性能涂层的应用使包壳材料不仅保持了锆合金原有的优势, 如低热中子吸收截面、足够的机械性能与抗辐照性能, 以及一定的耐腐蚀性能, 并且为锆合金提供了足够的耐高温蒸汽氧化能力。因此, 在开发出能替代锆合金的包壳材料之前, 为锆合金研发具有优异性能的涂层是解决锆水反应问题的主要途径。

目前研究的涂层材料主要为 2 种: (1) 陶瓷涂层, 如 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub><sup>[7]</sup>等氧化物、SiC<sup>[8]</sup>、ZrC<sup>[9]</sup>等碳化物、TiN<sup>[10]</sup>、ZrN<sup>[11]</sup>、CrN<sup>[12]</sup>等氮化物以及 MAX 相材料<sup>[13-14]</sup>等; (2) 金属涂层, 如 Cr<sup>[15]</sup>、FeCrAl<sup>[16]</sup>以及高熵合金<sup>[17]</sup>等。然而, 目前已有的材料均面临着实际应用的问题, 例如对于陶瓷材料, 部分 MAX 相材料中的 Al 元素在高温下容易与 Zr 基体发生反应<sup>[18]</sup>, 碳化物在淬火以及水蒸气环境下的氧化过程中会出现开裂与剥落

现象<sup>[19]</sup>, 氧化物的导热能力较差<sup>[20]</sup>, 而含 Al 氮化物遇水会生成非致密氧化物 Al(O)OH, 使氧化加速<sup>[10]</sup>。对于金属材料, FeCrAl 涂层在低于 1200 °C 时与 Zr 的共晶反应会造成辐照脆化与氢渗透现象<sup>[21]</sup>。Nb 元素作为新型含 Nb 锆合金的合金元素, 其热中子吸收截面低于 Cr, 并且少量 Nb 在 Zr 合金之中能够形成析出相以提升合金的耐腐蚀能力<sup>[22]</sup>; 同时 Nb 能够在其转化为碳化物时对热氢腐蚀形成有效屏障<sup>[23]</sup>, 是一种具有优异前景的 ATF 包壳涂层的候选材料。

在核反应堆中, 核裂变会产生许多裂变产物元素, Kr 与 Xe 作为核燃料中常见的裂变产物, 其在包壳材料中的行为会导致材料性能的劣化, 目前对裂变元素在 ATF 包壳涂层材料的演化行为研究还存在不足。在本研究中, 通过透射电子显微镜 (TEM) 研究了涂层锆合金在 Kr 离子辐照后原位加热时气泡的演化以及不同温度加热导致的元素扩散行为, 并探索涂层界面对气泡演化行为的影响。在原位加热前通过加速器进行 160 keV 的 Kr 离子辐照, 将 Kr 原子引入涂层材料。

## 1 实验

试样由中国核动力设计研究院提供, 利用物理气相沉积技术 (PVD) 制备成 10 mm×8 mm×1 mm 的 Nb 涂层 N36 合金块体材料。

收稿日期: 2023-03-16

基金项目: 国家重点研发计划 (2022YFB190122); 国家自然科学基金 (12205232); 西安交通大学基本科研业务费 (xzy012022077)

作者简介: 魏铭言, 男, 1997 年生, 硕士, 西安交通大学核科学与技术学院, 陕西 西安 710049, E-mail: wmyxj97@stu.xjtu.edu.cn

Kr 离子辐照实验在武汉大学物理学院进行, 辐照剂量为  $4 \times 10^{15}$  Kr/cm<sup>2</sup>, 入射能量 160 keV。高能离子入射方向平行于涂层-基体界面, 并垂直于块体材料横截面, 辐照过程如图 1 所示。

利用 SRIM-2009 软件中的“Ion distribution and Quick Calculation of Damage”模式分别模拟离子在 Nb 涂层侧以及 N36 合金基体中的沉积分布与损伤分布, 如图 2 所示。其中 N36 合金中 Zr 原子的离位阈能为 40 eV, Nb 涂层中 Nb 原子的离位阈能为 60 eV。160 keV Kr 离子注入块体样品的 SRIM 模拟结果表明, 在 N36 合金侧, Kr 离子浓度峰值为 1.3at%, 深度为 60 nm, 离位损伤峰值为 24.5 dpa, 深度为 20 nm, 如图 2a 所示; 在 Nb 涂层侧, Kr 离子浓度峰值为 1.4at%, 深度为 40 nm; 离位损伤量峰值为 10.3 dpa, 深度为 20 nm, 如图 2b 所示。

利用聚焦离子束 (FIB) 制备原位 TEM 加热截面样品, 截面 FIB 样品采用“Lift-Out”方法从辐照表面提取, 并垂直于涂层界面。利用 FEI Tecnai F30 透射电子显微镜进行原位加热实验, 电子加速电压为 300 kV, 并与 Gatan 652 型原位加热样品杆配合使用以实现原位加热, 加热温度是基于反应堆内包壳材料在正常服役与事故前期的工作温度选取的, 为 300 与 500 °C, 加热时间 120 min。加热后微观表征利用 FEI Talos F200X 透射电子显微镜进行, 工作电压为 200 kV, 利用 Talos F200X 配备的 SuperX-EDS 设备进行加热后的元素分析。

## 2 结果与讨论

### 2.1 辐照后样品的微观形貌

图 3 是辐照后含 Nb 涂层 N36 合金样品的 TEM 照片。图 3a 为辐照样品的明场像, 图 3b 为辐照后样品的高角环形暗场像, 图 3c 和 3d 为辐照样品的 EDS

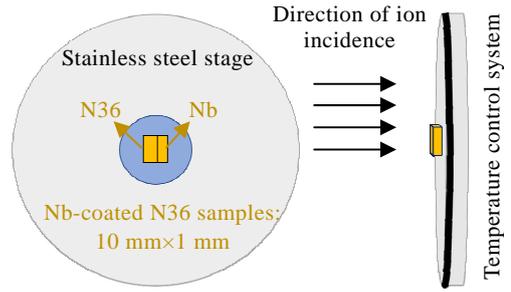


图 1 涂层样品辐照示意图

Fig.1 Sketch diagram of coating samples during irradiation

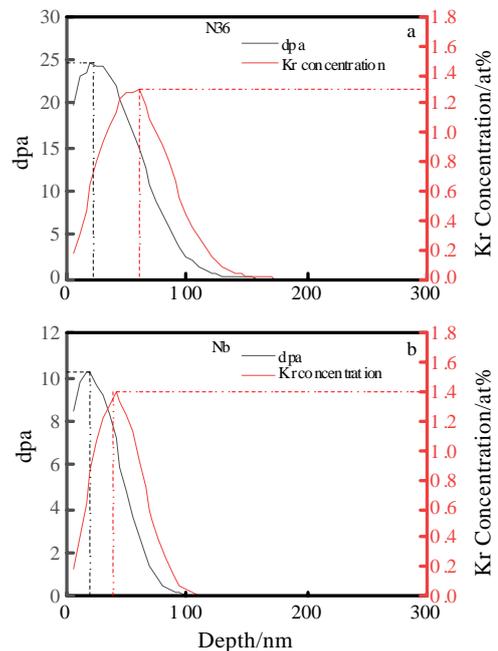


图 2 Kr 离子注入的 SRIM 模拟结果

Fig.2 SRIM simulation results of Kr ion implantation: (a) N36 and (b) Nb coating

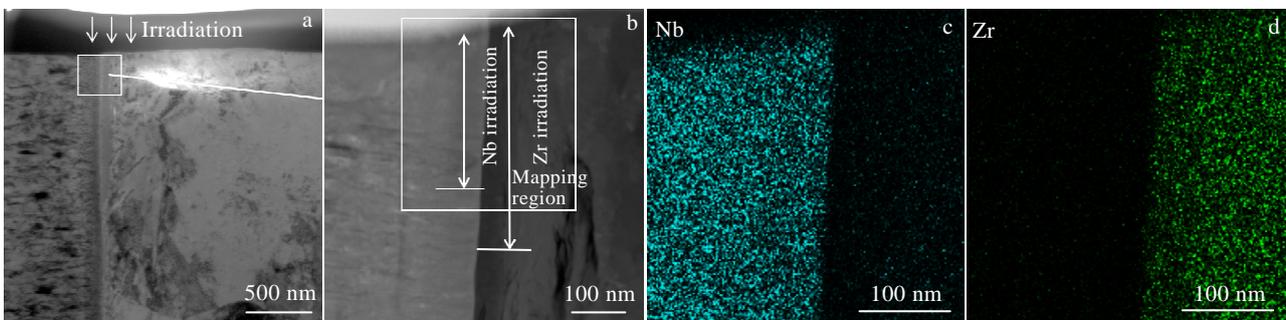


图 3 辐照后样品的 TEM 像

Fig.3 TEM images of irradiated samples: (a) BF image and (b) HAADF image; EDS element mapping of Nb (c) and Zr (d)

面扫描图片。结合 EDS 结果可以表明,高角环暗场像中衬度较亮侧为 Nb 涂层,衬度较暗侧为 N36 基底,其中 Nb 涂层晶粒为细小的柱状晶,而 N36 基底为等轴晶形貌。图 4a 为辐照后欠焦拍摄条件下,涂层样品明场像照片,可以发现明显的气泡存在,这些气泡是通过注入不溶于固体的惰性气体原子与辐照产生的空位结合并逐渐生长形成的<sup>[24]</sup>。

## 2.2 原位加热过程中的气泡演化

图 4 展示了 500 °C 原位加热过程中的气泡演变,图 4a 与图 4b 中黑色圆圈与蓝色圆圈分别标记了 N36 侧 2 个不同的观察区域,黑色箭头与蓝色箭头所指分别对应 2 个区域的部分气泡聚集-生长随时间的演化过程。可以发现,黑色箭头所指区域(距离涂层界面约 40 nm,距表面深度约 20 nm)的部分气泡随着加热过程的持续,从 0 min 相互独立,到 30 min 逐渐靠近,再到 70 min 气泡开始融合,最终在 120 min 聚集成为一个 Kr 气泡,而该区域的平均气泡尺寸从加热前的 1.0 nm 增长到了加热后的 1.3 nm,气泡密度从加热前的  $1.83 \times 10^{23}/\text{m}^3$  下降到加热后的  $1.41 \times 10^{23}/\text{m}^3$ ;蓝色箭头所指区域(距离涂层界面约

76 nm,距表面深度约 20 nm)的部分气泡在加热过程中,逐渐接近、聚合,最终在 120 min “串联”起来,但由于原位加热时间限制,未能观察到这些气泡最终聚集成为单一气泡。而在 Nb 涂层侧,也伴随着相对不明显的聚集现象,在与 N36 侧同样的相对位置区域平均气泡从加热前的 1.1 nm 增长到了加热后的 1.3 nm,气泡密度从加热前的  $4.75 \times 10^{23}/\text{m}^3$  下降到加热后的  $4 \times 10^{23}/\text{m}^3$ 。

Kr 离子辐照产生的气泡在材料中的演化过程被分为 3 个阶段<sup>[25-27]</sup>:第 1 阶段为孵化阶段,Kr 原子通过辐照注入材料中,使材料内部游离 Kr 浓度大量提升;第 2 阶段为形核阶段,新注入的 Kr 原子很可能被已形成的空位-气泡原子团簇吸收,并逐渐形成可以观测到的气泡,而非与空位形成新的团簇;第 3 阶段为生长阶段,Kr 气泡通过多个气泡的迁移与聚集,或者 Kr 原子与空位扩散至气泡的行为,最终实现气泡的生长。由于原位加热并未引入新的 Kr 原子以及离位损伤,因此加热过程中 Kr 气泡的生长主要在第 3 阶段实现。气泡在固体材料中的生长主要受 2 种机制影响<sup>[28]</sup>:第 1 种为气泡迁移、聚集并融合的“migration and

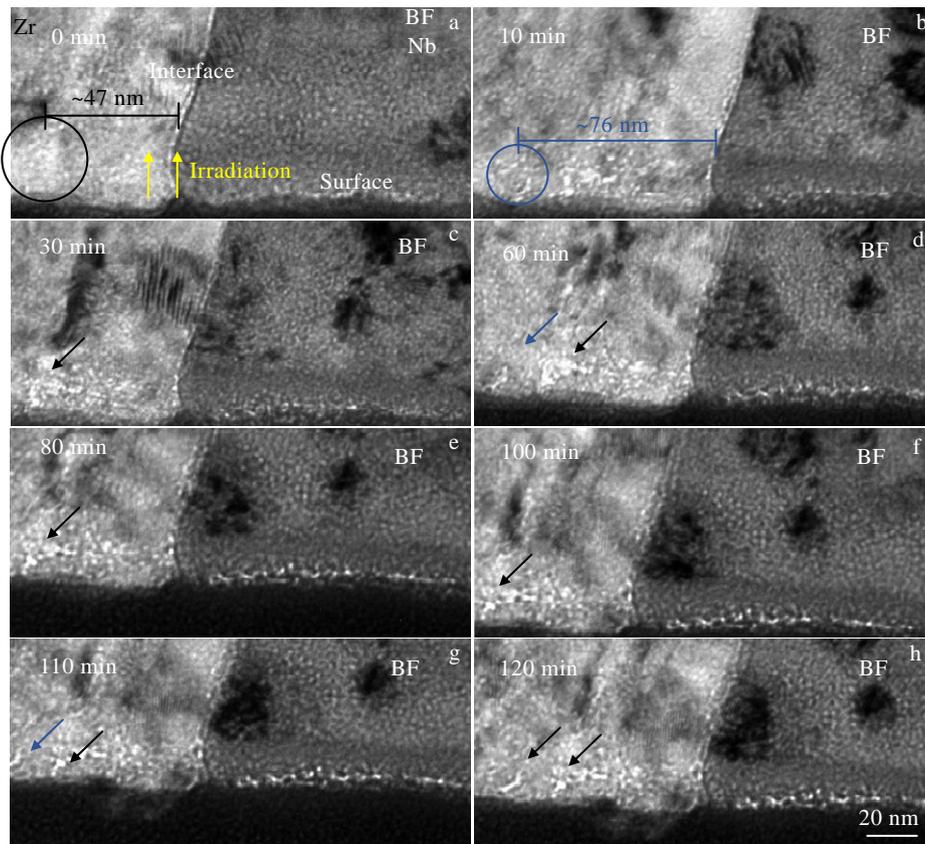


图 4 500 °C 原位加热不同时间界面两侧 Kr 气泡演变

Fig.4 Evolution of Kr bubbles on both sides of the interface with in-situ heating at 500 °C for different time: (a) 0 min, (b) 10 min, (c) 30 min, (d) 60 min, (e) 80 min, (f) 100 min, (g) 110 min, and (h) 120 min

coalescence” (MC) 机制；第 2 种为气泡分解后重吸收的“Ostwald ripening” (OR) 机制。其中 OR 机制大约在大于  $0.5 T_m$  的加热温度下占主导作用，加热小于  $0.5 T_m$  时 MC 机制占主导作用。本工作的  $500\text{ }^\circ\text{C}$  加热温度，远低于锆合金 ( $1850\text{ }^\circ\text{C}$ ) 以及 Nb ( $2468\text{ }^\circ\text{C}$ ) 的熔点，因此 MC 机制为涂层样品中气泡生长的主导因素。然而在 Nb 侧，气泡的聚集现象不明显，这可能是两个原因所致：其一是由于发生聚集的气泡尺寸相对较小，超出了电镜的分辨能力，导致无法直接观测；其二由于 FIB 样品尺寸较小，气泡可能从样品表面逃逸，导致发生聚集的气泡有限。

图 5 分别统计了涂层及基体两侧 Kr 原子峰值深度处、距界面不同距离区域的平均气泡尺寸差，其中距界面  $0\sim 20\text{ nm}$  为区域 I， $20\sim 40\text{ nm}$  为区域 II， $40\sim 60\text{ nm}$  为区域 III，如图 5a 所示。对统计结果进行拟合， $0\text{ min}$  时气泡的平均尺寸差异，可以反映出辐照后的不同区域的

气泡尺寸差异；曲线的斜率反应了 2 个区域气泡增长速度的差异，斜率越大表明增长速度差距越大，这可以表明涂层-基体界面在加热过程中对气泡生长的影响。图 5b~5d 为 Zr 侧的统计结果，可以发现区域 I 的平均气泡尺寸从加热前的大于区域 II、III 的气泡尺寸，到逐渐接近，最终小于区域 II 以及区域 III 的气泡尺寸。这说明界面的存在使得区域 I 中气泡尺寸的增长速度减缓，同时其与较远区域气泡的生长速度差异随着加热的进行逐渐变大。而 II、III 区域的气泡尺寸在加热前期差异不明显，但在加热过程中变化速度逐渐产生差异。图 5e-5g 为 Nb 涂层侧的统计结果，其中区域 I 的平均气泡尺寸在加热过程中接近区域 II、III 的气泡尺寸，且最终小于区域 II 以及区域 III 的气泡尺寸。在加热过程中区域 I 的气泡增长速度逐渐小于区域 II、III 的气泡增长速度。但是在区域 II 与区域 III 中，气泡尺寸增长速度相差不大，这说明界面对不同材料的影响程度并不一致。

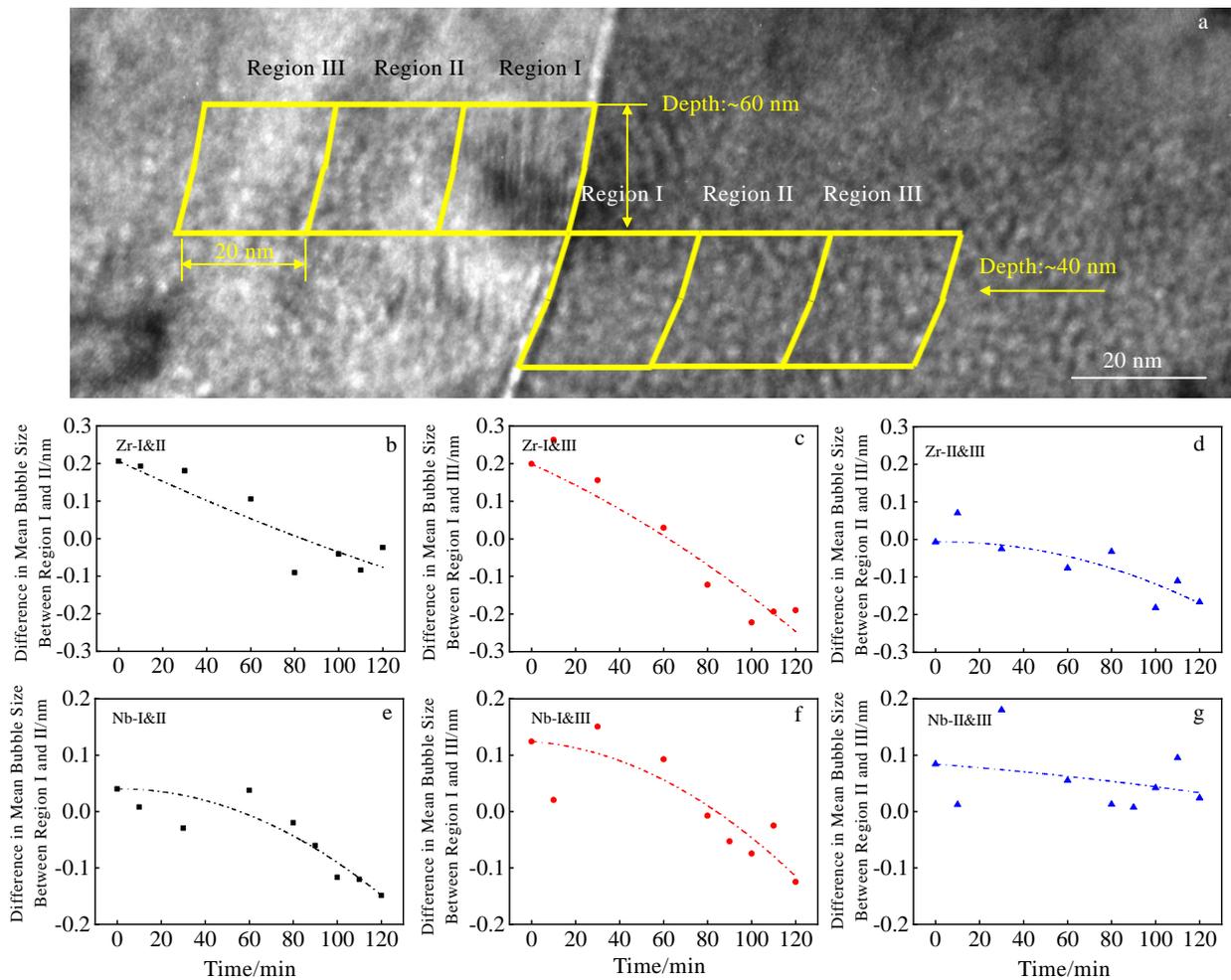


图 5 不同区域的气泡直径差随时间的演变

Fig.5 Evolution of bubble diameter difference in different areas with time: (a) BF image at 0 min, (b) difference between regions I&II in Zr, (c) difference between regions I&III in Zr, (d) difference between regions II&III in Zr, (e) difference between regions I&II in Nb, (f) difference between regions I&III in Nb, and (g) difference between regions II&III in Nb

不同区域内气泡生长速度的差异源于加热过程中界面对气泡迁移行为的影响。在辐照后, 界面及周围的气泡尺寸大于其它区域, 这是由于界面为 Kr 气泡提供了优先的形核点, 并在材料中捕获了更多的 Kr 原子的原因<sup>[29]</sup>。晶格参数不同的材料之间的界面存在许多失配位错交点, 惰性气体原子与本征空位从能量角度上讲更容易在交点处结合, 最终形成气体原子-空位团簇, 使得界面及周围的气泡尺寸相对更大<sup>[29]</sup>。原位加热过程中, 气泡在材料中的迁移以随机布朗运动为主, 而界面附近随机运动的气泡会在运动过程中被界面俘获<sup>[30]</sup>。并且由于气泡在界面中的扩散速率大于材料内部<sup>[31]</sup>, 因此界面附近部分气泡会从界面处运输至其它区域而非参与聚集生长, 最终导致靠近界面的气泡生长速度变慢。

本工作主要研究样品辐照后的原位加热行为, 对于块体样品, 升高温度引起气泡在涂层样品中的生长也会对涂层性能产生影响。研究发现<sup>[32]</sup>, 在涂层-基体结合处, 辐照引入的惰性气体气泡在原位加热过程中生长, 且涂层厚度较大, 限制了气泡从表面的逃逸。同时由于气泡在生长至临界尺寸后无法继续与周围气泡聚合, 辐照后的涂层-基体界面在原位加热后会形成空洞<sup>[32]</sup>, 这可能对涂层的结合强度等性能产生不利影响。

### 2.3 原位加热对界面元素扩散的影响

气泡的演化涉及空位的运动, 而元素的扩散也与空位运动有关。辐照和高温对界面两侧的元素扩散均会产生影响, 而对于涂层材料, 涂层与基体的化学成分变化也会影响材料的点缺陷团簇分布, 最终使得材料力学性能产生变化<sup>[33-34]</sup>。为了反映辐照与温度对化学成分的影响, 对 300 及 500 °C 原位加热 120 min 后的 FIB 样品进行元素分析。由于对 N36 合金以及 Nb 涂层在界面处的扩散系数难以获取, 对涂层材料物理界面的界定存在很大困难, 因此选择 Nb 与 Zr 占比各 50% 处设定为物理界面<sup>[35]</sup>。图 6 为 300 °C 原位加热后的辐照区域以及未辐照区域的 HADDF 照片、EDS 面扫描以及线扫描结果。其中左侧绿色为 Zr 元素, 右侧青色为 Nb 元素, 线扫描结果中红色线段为发生元素扩散的范围。在辐照区域 (图 6a), Nb 元素扩散范围为 12.8 nm, Zr 元素扩散范围为 15.1 nm, 这大于未辐照区域 (图 6b) Nb 元素的 8.6 nm 以及 Zr 元素的 8.8 nm, 且由于本项工作为室温辐照, 辐照过程中环境导致的热影响有限, 由此可以发现辐照对 Nb 涂层 N36 合金的元素扩散产生了一定的影响。而 500 °C 原位加热后的 EDS 结果发现, 如图 7 所示, 辐照区域 (图 7a) 中 Nb 元素的扩散范围为 14.9 nm, 而 Zr 元素的扩散范围为 15.8 nm; 未辐照区域 (图 7b) 中 Nb 元素的

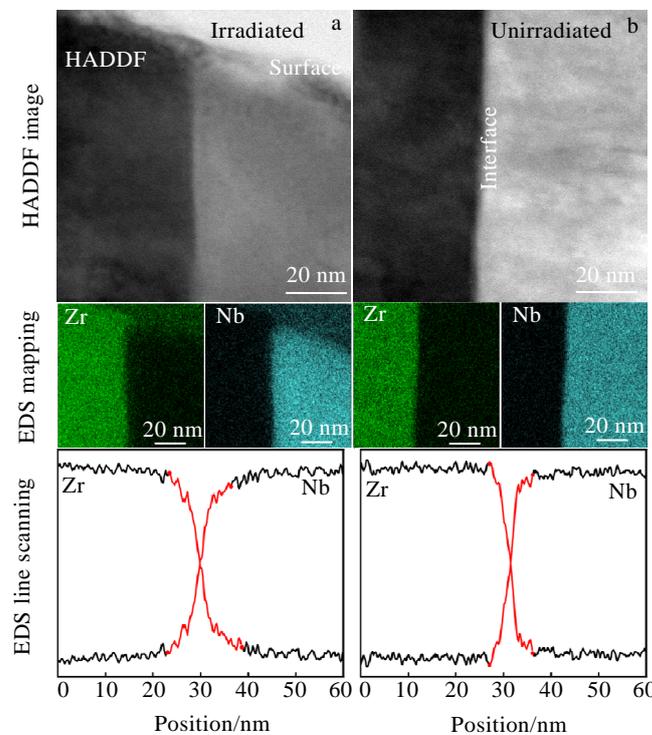


图 6 300 °C 原位加热后的 HADDF 照片及 EDS 能谱结果

Fig.6 HADDF images and EDS results after in-situ heating at 300 °C: (a) irradiated region, and (b) unirradiated region

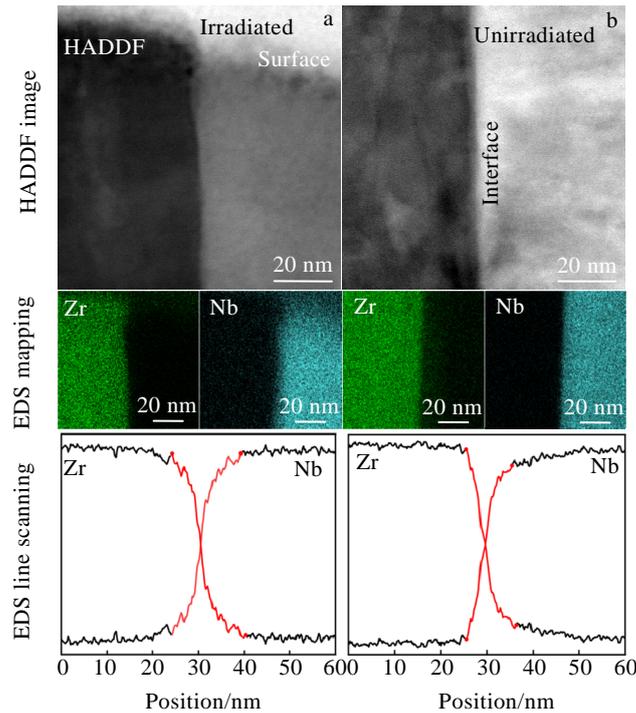


图 7 500 °C原位加热后的 HADDF 照片及 EDS 能谱结果

Fig.7 HADDF images and EDS results after in-situ heating at 500 °C: (a) irradiated region, and (b) unirradiated region

扩散范围为 9.9 nm, Zr 元素的扩散范围为 10.7 nm, 两种元素对应 300 °C 原位加热后结果均有增加, 表明加热同样会增强元素的扩散行为。并且, 500 °C 原位加热后辐照区域元素相较未辐照区域扩散范围更远, 综上所述, 辐照对界面两侧的元素扩散具有一定的增强作用。

高温会导致涂层与基体的元素发生互扩散现象<sup>[36]</sup>, 由于扩散过程中, 温度越高, 原子热激活能量越大, 因此其扩散系数也越大, 这导致了在未辐照区域中, 300 °C 加热样品的元素扩散距离小于 500 °C 的扩散距离。同时, Nb、Zr 元素的扩散行为与涂层和基体的晶体结构存在相关性, N36 合金基体主要为密排六方结构, 而 Nb 涂层主要为体心立方结构。其中密排晶体结构中的扩散原子激活能要大于非密排晶体结构, 这导致涂层与基体的原子在不同晶体结构中的扩散系数存在差异<sup>[37]</sup>。而 Nb 原子在 N36 合金基体中扩散所需的激活能高于 Zr 原子在 Nb 涂层中的扩散, 因此 Zr 元素的扩散距离会比 Nb 元素更远。

辐照区域的扩散行为主要是由于高能粒子室温辐照导致的界面原子的混合, 使得涂层材料实现了离子束混合的效果。离子束混合主要是由 3 种机制实现: 级联碰撞混合, 热峰混合以及辐照增强扩散混合<sup>[38]</sup>。其中由于辐照方向平行界面, 并且辐照温度较低, 空位运动相对有限, 辐照增强扩散具有温度依赖性, 因

此辐照的扩散行为由热峰混合机制进行主导。Dienes 等<sup>[39]</sup>认为对辐照后的样品进行加热可同样通过辐照缺陷的移动增强扩散行为, 但由于辐照后大量缺陷的复合, 扩散效率低于高温辐照。这说明退火后辐照样品的元素扩散由热峰扩散过程与预辐照退火共同作用, 且 2 种温度下辐照区域的扩散距离均大于未辐照区域。Nb、Zr 元素分别向基体与涂层产生更远的互扩散距离有利于涂层的结合, 并且也可以将涂层从机械结合过渡至冶金结合, 最终为提升涂层材料的界面结合强度产生一定的贡献<sup>[40]</sup>, 并且服役过程中的 Nb 元素在 Zr 中会产生析出相, 提升材料的耐腐蚀能力<sup>[22]</sup>。

### 3 结 论

1) 本研究对镀有 Nb 涂层的 N36 合金截面进行了 160 keV 室温 Kr 离子辐照, 利用聚焦离子束方法制备的截面样品进行原位加热, 并对加热后的样品进行了能量色散光谱分析。

2) 对于制备的样品, 在透射电子显微镜下观察到 Kr 气泡在 500 °C 原位加热以迁移-聚集的形式进行生长。同时, 由于界面对气泡的捕获以及运输作用, 涂层和基体靠近界面区域气泡的尺寸增长速度均小于远端气泡的增长速度, 并且在不同材料中界面的影响范围存在一定差异。

3) 原位加热样品的能谱分析结果表明, 辐照后加热区域的涂层/基体的元素扩散行为受辐照以及加热的共同影响, 且扩散距离大于未辐照加热区域; 因此, 辐照可以促进基体与涂层间的元素扩散, 不仅有利与提高涂层材料的界面结合强度, 也对基体表面的耐腐蚀性能有一定提升。

致谢: 感谢中核集团青年英才启明星项目对本研究的支持。

#### 参考文献 References

- [1] Terrani K A. *Journal of Nuclear Materials*[J], 2018, 501: 13
- [2] Pint B A, Terrani K A, Yamamoto Y *et al. Metallurgical and Materials Transactions E*[J], 2015, 2(3): 190
- [3] Agarwal S, Duscher G, Zhao Y *et al. Acta Materialia*[J], 2018, 161: 207
- [4] Haley J C, Briggs S A, Edmondson P D *et al. Acta Materialia*[J], 2017, 136: 390
- [5] Dryepont S, Unocic K A, Hoelzer D T *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2018, 501: 59
- [6] Cockeram B, Smith R, Leonard K *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2008, 382(1): 1
- [7] Duan Zhengang, Yang Huilong, Kano Sho *et al. Surface and Coatings Technology*[J], 2018, 334: 319
- [8] Al-Olayyan Y, Fuchs G, Baney R *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2005, 346(2-3): 109
- [9] Katoh Y, Vasudevamurthy G, Nozawa T *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 441(1-3): 718
- [10] Alat E, Motta A T, Comstock R J *et al. Surface and Coatings Technology*[J], 2015, 281: 133
- [11] Gao Zhaohe, Chen Ying, Kulczyk-Malecka J *et al. Corrosion Science*[J], 2018, 138: 242
- [12] Kacsich T, Lieb K P. *Thin Solid Films*[J], 1994, 245(1-2): 4
- [13] Maier B R, Garcia-Diaz B L, Hauch B *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 466: 712
- [14] Roberts D A. *Magnetron Sputtering and Corrosion of Ti-Al-C and Cr-Al-C Coatings for Zr-Alloy Nuclear Fuel Cladding*[D]. Knoxville: University of Tennessee, 2016
- [15] Ribis J, Wu A, Brachet J C *et al. Journal of Materials Science*[J], 2018, 53(14): 9879
- [16] Kennas M, Kim H, Gigax J G *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2020, 536: 152 175
- [17] Zhang W, Tang R, Yang Z B *et al. Surface and Coatings Technology*[J], 2018, 347: 13
- [18] Tallman D J, Yang J, Pan L *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 460: 122
- [19] Usui T, Sawada A, Amaya M *et al. Journal of Nuclear Science and Technology*[J], 2015, 52(10): 1318
- [20] Bo Guanghai(柏广海), Chen Zhilin(陈志林), Zhang Yanwei(张晏玮) *et al. Rare Metal Materials and Engineering* (稀有金属材料与工程)[J], 2017, 46(7): 2035
- [21] Terrani K A, Parish C M, Shin D *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2013, 438(1-3): 64
- [22] Qiu Risheng(邱日盛), Luan Baifeng(栾佰峰), Chai Linjiang(柴林江) *et al. The Chinese Journal of Nonferrous Metals*(中国有色金属学报)[J], 2012, 22(6): 1605
- [23] Goldberg D, Dicker G, Worcester S. *Nuclear Engineering and Design*[J], 1972, 22(1): 124
- [24] Pagano Jr L, Motta A, Birtcher R. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1997, 244(3): 295
- [25] Huang Minjiang, Li Yipeng, Ran Guang *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2020, 538: 152 240
- [26] Lei Penghui, Ran Guang, Liu Chenwei *et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*[J], 2017, 406: 648
- [27] Shen H H, Peng S M, Chen B *et al. Materials Characterization*[J], 2015, 107: 309
- [28] Schroeder H, Fichtner P F. *Journal of Nuclear Materials*[J], 1991, 179: 1007
- [29] Wang J, Shu R, Dong Y *et al. Scripta Materialia*[J], 2017, 137: 13
- [30] Ono K, Furuno S, Kanamitsu S *et al. Philosophical Magazine Letters*[J], 1997, 75(2): 59
- [31] Liu Simian, Li Shihao, Han Weizhong. *JOM*[J], 2020, 72(6): 2352
- [32] He Yunpeng(贺云鹏), Lao Yuanxia(劳远侠), Sun Sen(孙森) *et al. Nuclear Techniques*(核技术)[J], 2018, 41(10): 100 602
- [33] Hoffelner W. *Materials for Nuclear Plants: From Safe Design to Residual Life Assessments*[M]. Heidelberg: Springer Science & Business Media, 2012: 255
- [34] Was G S. *Fundamentals of Radiation Materials Science: Metals and Alloys*[M]. New York: Springer, 2016: 207
- [35] Wu A, Ribis J, Brachet J C *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2018, 504: 289
- [36] Richard C, Beranger G, Lu J *et al. Surface and Coatings Technology*[J], 1996, 82(1-2): 99
- [37] Sun Zhenyan(孙振岩), Liu Chunming(刘春明). *Diffusion and Phase Transformation in Alloys*(合金中的扩散与相变)[M]. Shenyang: Northeastern University Press, 2002: 62
- [38] Riviere J P. *Application of Particle and Laser Beams in*

- Materials Technology. Ion Beam Mixing*[M]. Dordrecht: Springer Netherlands, 1995: 527
- [39] Dienes G J, Damask A. *Journal of Applied Physics*[J], 1958, 29(12): 1713
- [40] Yuan Xiaoguang(袁晓光), Liu Yanxue(刘彦学), Wang Yisong(王怡嵩) *et al. Transactions of the China Welding Institution*(焊接学报)[J], 2007, 28(11): 5

## Defect Evolution Behavior of Nb-Coated N36 Alloy During In-situ Heating

Wei Mingyan<sup>1</sup>, Lei Penghui<sup>1</sup>, Zhang Ping<sup>1</sup>, Wang Yunpeng<sup>1</sup>, Wu Lu<sup>2</sup>, Wang Zhen<sup>2</sup>, Wu Xiaoyong<sup>2</sup>, Lu Chenyang<sup>1</sup>

(1. School of Nuclear Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

(2. Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610041, China)

**Abstract:** Coating the surface of zirconium alloy is an important way to improve the accident tolerance capability for nuclear fuel cladding after the Fukushima nuclear power plant accident. Transmission electron microscope (TEM) samples of the irradiated N36 alloy with Nb coating were prepared by focusing ion beam (FIB). Bubble evolution during in-situ heating of the irradiated Nb-coated N36 alloy samples was investigated by in-situ TEM. The results show that the interface has a strong effect on bubble growth during the in-situ heating process. The bubbles near the interface are captured and transported by the interface, which leads to the fact that the growth rate of the bubbles near the interface is lower than that away from the interface. The analysis of elements after in-situ heating indicates that both irradiation and heating can increase the diffusion distance of the elements between coating and matrix, and the diffusion during irradiation is mainly caused by the thermal spike diffusion. The diffusion of elements is beneficial to improve the bonding properties of the coating, which provides certain corrosion resistance for N36 alloy.

**Key words:** niobium-coated zirconium alloy; ion irradiation; in-situ heating; defect evolution

---

Corresponding author: Lei Penghui, Ph. D., Professor, School of Nuclear Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, P. R. China, E-mail: penghuilei@xjtu.edu.cn