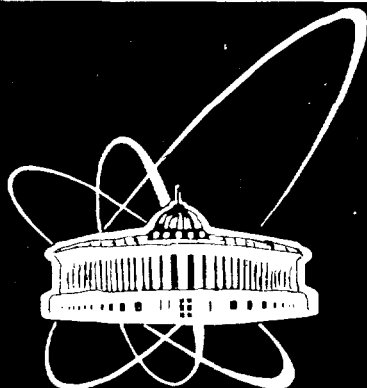




XJ9900199



**СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ**

Дубна

P15-98-363

В.Ф.Реутов

**О РОЛИ ДИСЛОКАЦИОННЫХ ПЕТЕЛЬ
В ПРОЦЕССЕ РАЗВИТИЯ
ВАКАНСИОННЫХ ПОЛОСТЕЙ**

30 - 29

1998

Введение

Одним из последних радиационных явлений в реакторном материаловедении, обнаруженным в 1967 году [1], является радиационное распухание - увеличение объема (геометрических размеров) облучаемого материала за счет образования и роста вакансионных полостей (ВП). Это неожиданное явление, катастрофически ограничивающее работоспособность реакторных конструкционных материалов, вызвало значительный интерес.

За 30-летний период проведено огромное количество экспериментальных и теоретических работ. Хотя они и показывают общие закономерности развития ВП в зависимости от скорости повреждения, флюенса и температуры облучения, тем не менее каждый тип материала, его состав, структурное состояние и т.п. имеют свои количественные закономерности.

К сожалению, до настоящего времени теории распухания не приводят к количественным прогнозам или хотя бы к полезным соотношениям, способным предсказать величину радиационного распухания для широкого класса материалов и условий облучения.

Согласно современным теоретическим представлениям, движущей силой зарождения и роста ВП в облучаемом материале является вакансионное пересыщение, обусловленное, как предполагается, неадекватностью взаимодействия вакансий и междоузельных атомов с дислокациями. С этой целью и было предложено существование преимущественного предпочтения (преференса) дислокаций по отношению к междоузельным атомам [2,3]. Теоретические оценки [4-6, 7-9, 10] показали, что именно преференс дислокаций к междоузельным атомам является причиной возникновения вакансионного пересыщения, необходимого для зарождения и роста ВП.

Однако существование преференса дислокаций по отношению к междоузельным атомам экспериментально не установлено. Например, ВВЭМ-эксперименты показали развитие вакансионных скоплений вблизи дислокаций. Кроме того, в чистых металлах ВП вначале зарождаются вдоль сжатой стороны краевых дислокаций [11-13].

Сложность вычисления параметра "преференса", зависящего от упругих полей стоков [14], степени усвояемости точечных дефектов [15], барьеров для поглощения точечных дефектов на поверхности стоков [16], вызывает необходимость искать другие источники пересыщения кристаллической решетки вакансиями. На наш взгляд, ими могут быть дислокации и дислокационные петли междоузельного и вакансионного типов, образующихся в процессе облучения.

Действительно, многие экспериментальные результаты свидетельствуют о важной роли дислокаций в процессе зарождения и роста ВП:

- вблизи дислокаций поры растут с большей скоростью, чем вдали от них [17,18],

- легирование металлов, приводящее к уменьшению скорости роста междоузельных дислокационных петель, уменьшает скорость роста ВП [19],

- вблизи границ зерен, где отсутствуют дислокационные петли, нет и полостей,

- увеличение подвижности дислокаций сопровождается увеличением скорости роста ВП [20],

- необходимым условием для зарождения полостей в облучаемом материале является достаточно высокая исходная плотность дислокаций [11].

Некоторые из вышеназванных результатов хотя и используются для обоснования гипотезы "преференса", тем не менее они без исключения применимы для рассмотрения гипотезы вакансионного пересыщения за счет термической эмиссии вакансий дислокационными петлями в процессе облучения в интервале температур проявления радиационного распухания материалов.

Хотя теоретически механизм термического роста дислокационных петель за счет испускания ими вакансий признается, тем не менее зафиксировать это экспериментально достаточно сложно.

С этой целью, на наш взгляд, необходимо создать специфические условия для термической эволюции дислокационных петель, позволяющие экспериментально установить существование данного механизма создания пересыщения решетки вакансиями.

В настоящей работе методами ПЭМ-исследований изменения структуры в результате послерадиационного отжига молибдена, легированного атомами гелия, облученного высокоэнергетичными альфа-частицами и нейтронами деления, показано :

- рост дислокационных петель за счет испускания ими вакансий,

- зарождение и рост гелиевых пор через стадию развития вакансионной пористости,

- преимущественный рост гелиевых пор со стороны матрицы зерна с междоузельными дислокационными петлями,

- развитие ВП в результате послерадиационного отжига скоплений радиационных дефектов, сформированных в процессе низкотемпературного облучения.

Экспериментальные методы

В качестве материала для исследований был выбран молибден (99,97%). Облучение осуществлялось нейтронами в реакторе ВВР и альфа-частицами с энергией 50 МэВ на циклотроне при температуре около 60 °С.

Послерадационный изотермический и изохронный отжиги проводились в вакууме 5×10^{-3} Па в интервале температур от 100 до 1100 °С.

ПЭМ-объекты приготавливались на установке "Микрон"[2].

Результаты и обсуждение

Если критические условия для коалесценции дислокационных петель при их скольжении и переползании, вызванные упругим взаимодействием петель, не выполняются или минимизированы, то дислокационные петли могут расти за счет эмиссионного потока вакансий из них. Для реализации этих условий роста необходимо "заблокировать" дислокации от возможности их перемещения за счет скольжения и переползания.

В этой связи для экспериментального наблюдения с помощью ПЭМ факта испускания дислокационными петлями вакансий необходимо выполнить следующие условия.

1. Уменьшить или исключить процесс скольжения и переползания дислокационных петель.

2. Чтобы уменьшить ошибку в измерении изменений диаметра дислокационных петель, а следовательно, число междоузельных атомов в них, необходимо иметь дело с достаточно крупными петлями и высокими температурами отжига. При этом размер петель при их достаточной для статистики плотности в образце не должен превышать толщину ПЭМ-объекта (около 100 нм).

3. В образце должны быть мощные стоки для улавливания вакансий, испущенных дислокационными петлями, чтобы избежать их улавливания соседними петлями. В противном случае не будет наблюдаться ожидаемое увеличение междоузельных атомов в петлях.

Выполнение этих условий возможно в образцах, легированных атомами гелия, в которых после соответствующего отжига формируются дислокационные петли междоузельного типа как источники вакансий и гелиевые поры, как стоки для них.

Действительно, в образцах Мо, легированного гелием до $4,5 \times 10^{-2}$ ат.% и отожженного при 900 °С, образуются соответствующие вышеописанным

условиям в п. 2, 3 плотность и размер дислокационных петель и гелиевых пор.

Наличие гелиевых пор на дислокационных петлях обеспечивает их закрепление от консервативного движения, а их высокая плотность в объеме материала между дислокационными петлями - это эффективные и термически устойчивые стоки для вакансий.

Данные образцы изотермически отжигались при температурах 1000 и 1100°C в течение 1,5, 10, 50 и 100 часов.

Как показано на рис. 1, с увеличением времени отжига происходит рост дислокационных петель и уменьшение их плотности. Проведенный ПЭМ-анализ показал, что дислокационные петли преимущественно междоузельного типа расположены в плоскостях типа $\{111\}$ и имеют вектор Бюргерса типа $1/2a \langle 111 \rangle$. Исходя из этого было рассчитано количество междоузельных атомов в дислокационных петлях и его изменение со временем отжига при 1000 и 1100°C (рис.2). Из графиков на рис.2 видно, что число междоузельных атомов в дислокационных петлях линейно растет со временем отжига. При



Рис.1. Развитие дислокационных петель в Мо, легированном гелием ($4,5 \times 10^{-2}$ ат.%), в процессе послерадиационного отжига при 1000°C в течение 1ч (а), 10ч(б), 50ч(в) и 100ч(г)

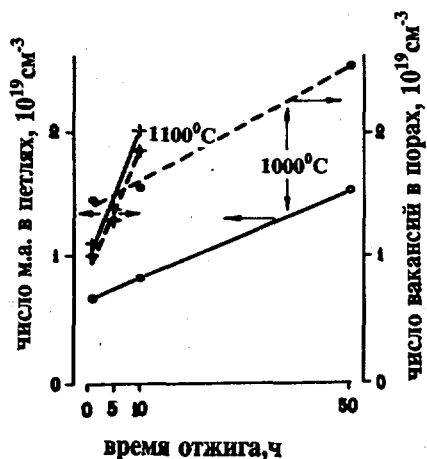


Рис.2. Изменение числа междоузельных атомов в дислокационных петлях и вакансий в гелиевых порах в Мо в зависимости от времени послерадиационного отжига при 1000 и 1100°C.

этом скорость изменения их числа в петлях при 1100°C значительно больше, чем при 1000°C. Более того, важно отметить, что величина прироста междоузельных атомов в петлях хорошо коррелирует с величиной прироста числа вакансий в гелиевых порах.

Таким образом, настоящие результаты свидетельствуют о механизме роста междоузельных петель путем испускания ими вакансий. Кроме того, оценка энергии активации роста петель даёт величину около 3 эВ, которая близка к энергии образования вакансий в молибдене (3,3 эВ [22]).

В подтверждение факта появления мощного источника вакансий в присутствии дислокационных петель междоузельного типа, следует привести результаты наших исследований [23], в которых было обнаружено немонотонное увеличение объема гелиевых пор в результате изохронного отжига Мо, легированного гелием до концентрации 6×10^{-2} ат. % (рис. 3). Как следует из рис. 3, в области температур 700-800°C наблюдается увеличение величины объема наблюдаемых пор с последующим ее уменьшением с дальнейшим ростом температуры до 900°C. Лишь при температуре более 1000°C объем пор вновь увеличивается, как это и должно ожидаться для роста гелиевых пор.

Гомогенное распределение полостей в теле зерна и их отсутствие на дислокациях и границах зерен указывает на то, что сформированные при температуре 700-900°C полости имеют вакансионную природу. В условиях

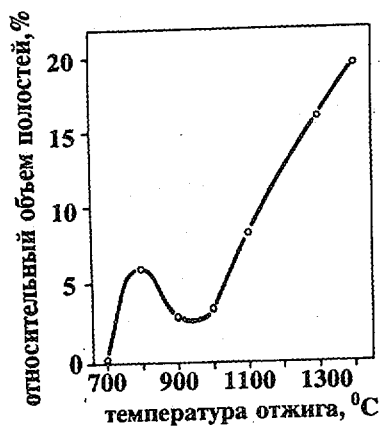


Рис.3. Зависимость распухания Mo, содержащего 6×10^{-2} ат.%He, от температуры отжига

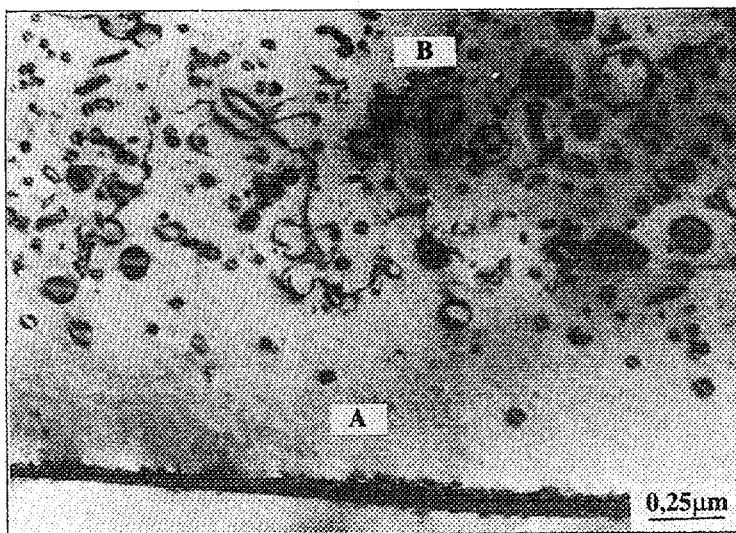


Рис.4. Дислокационные петли в Ni, легированном гелием до 2×10^{-2} ат.% и отожженном при 600°C в течение 1 ч

того, что они развивались в поле высокой плотности дислокационных петель междуузельного типа, есть основания предполагать, что именно петли являются источниками вакансий для их роста. Естественно полагать, что центром для зарождения вакансионных пор могут быть $He_m V_n$ - комплексы.

В другой серии экспериментов, в которых изучались особенности развития гелиевых пор вблизи границ зерен в Ni, легированном гелием [23], нами получены данные, которые также свидетельствуют о том, что междуузельные дислокационные петли являются достаточно мощным источником вакансий.

В образцах Ni были созданы обедненные от дислокационных петель зоны вблизи границ зерен, в которых присутствовали гелиевые поры (рис.4). При дальнейшем отжиге, когда междуузельные дислокационные петли в теле зерна продолжают расти, наблюдается увеличение диаметра гелиевых пор вблизи границ зерен (общепринятого мощного источника вакансий), а в противоположной области, граничащей с областью тела зерна с высокой плотностью междуузельных дислокационных петель (рис.5). Мы полагаем, что и в этом случае поток вакансий из области тела зерна с дислокационными петлями превалирует над потоком вакансий из границ зерен. После высокой температуры отжига, когда дислокационные петли отжигаются, граница зерна вновь становится преимущественным источником вакансий, и гелиевая пористость прогрессивно развивается как на самих границах, так и в теле зерна.

Таким образом, все вышеописанные экспериментальные результаты, по нашему мнению, убедительно свидетельствуют о том, что междуузельные и, конечно, вакансионные дислокационные петли являются мощными источниками вакансий и, следовательно, могут быть причиной пересыщения ими кристаллической решетки металлов при соответствующих температурах. В результате этого и при наличии центров для их конденсации, в частности $He_m V_n$ - комплексов, может идти процесс образования и роста вакансионных полостей. При этом, что очень важно, без привлечения гипотезы о т.н. "преференсе".

Известно, что из-за высокой подвижности междуузельных атомов даже при низких температурах облучения они будут находиться в скоплениях в виде дислокационных петель. В связи с этим в процессе послерадиационного отжига исключается какое-либо их участие в эволюции дислокационных петель и тем более в образовании вакансионных полостей.

Это условие и вышеописанные результаты дают основание предположить возможность образования вакансионной пористости в образцах, облученных при низких (комнатных) температурах и подвергнутых послерадиационному отжигу.

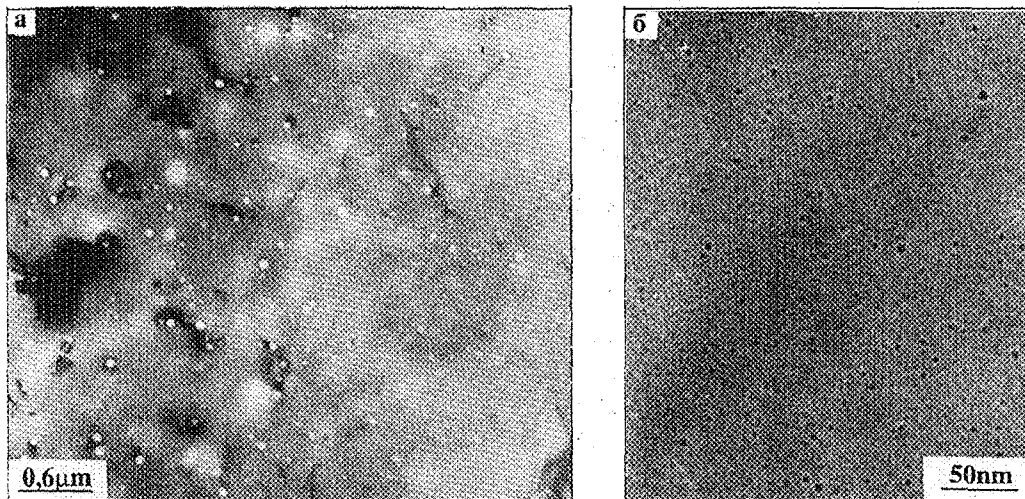


Рис.5. Развитие гелиевых пор в Ni (2×10^{-2} ат.%He) в результате отжига при 800°C : а - в обедненной от дислокационных петель приграничной области А (см.рис.4), б - в теле зерна (область В, см. рис.4)

С этой целью Мо (99,97%) в виде фольги толщиной 100 мкм был облучен при температуре около 60⁰С нейтронами в ядерном реакторе и альфа-частицами с энергией 50 МэВ "на прострел" до 7×10^{-2} сна.

Послерadiационный отжиг проводился в вакууме 5×10^{-3} Па в интервале 100-1100⁰С с шагом в 100⁰С.

Непосредственно после облучения нейтронами и альфа-частицами в образцах формируется морфологически идентичная дефектная структура в виде вакансионных кластеров/петель и междоузельных дислокационных петель (рис.6). Средняя плотность дефектов и их распределение по размерам также оказались подобными. При этом дефекты размером менее 5 нм, в основном были вакансионного типа, в то время как дислокационные петли большего размера были междоузельного типа.

Эволюция дефектной структуры наблюдается при 300⁰С - исчезают дефекты размером около 2 нм. Заметная эволюция петлевой структуры имеет место при температурах более 500⁰С. В интервале 800-1100⁰С наблюдается образование и рост полостей (рис. 7а,б). Характер изменения наблюдаемых полостей от температуры отжига (рис. 8), т.е. увеличение объема полостей при 900⁰С и практически их полный отжиг при 1100⁰С, свидетельствует о том, что они имеют вакансионную природу.

Расчетное количество прироста числа междоузельных атомов в дислокационных петлях и вакансий в полостях указывает на то, что

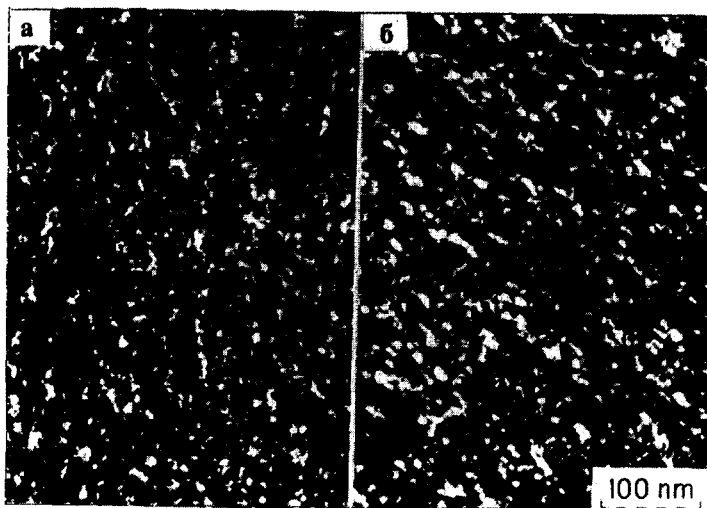


Рис.6. Дефектная структура в Мо после облучения при 60⁰С.
а - нейтронами деления (7×10^{-2} сна),
б - альфа-частицами с энергией 50МэВ (7×10^{-2} сна)

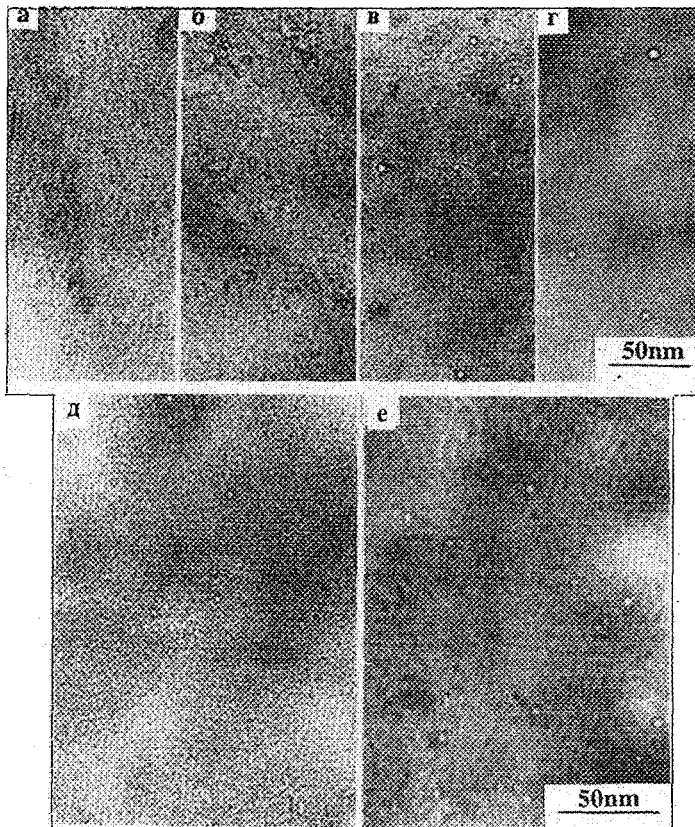


Рис.7. Вакансионные полости в Мо:

- облученном альфа-частицами и отожженном при 800°C (а), 900°C (б), 1000°C (в) и 1100°C (г);
- облученном нейтронами и отожженном при 800°C (д), 900°C (е)

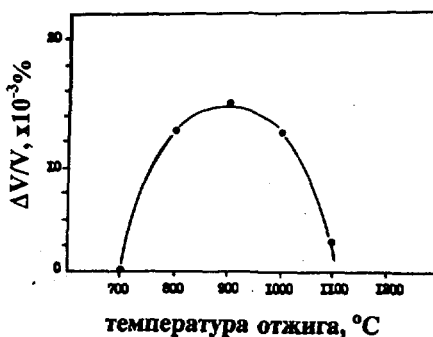


Рис.8. Изменение относительного объема вакансионных полостей в Мо в результате изохронного отжига

источниками вакансий для роста полостей являются междоузельные дислокационные петли.

Центром для зарождения полостей, по-видимому, являются $He_m V_n$ - комплексы. В случае нейтронного облучения гелий накапливается в результате (n, α) -реакций. При облучении альфа-частицами накопление гелия в Мо идет как за счет соответствующих каналов ядерных реакций типа $(\alpha, \chi\alpha)$, так и за счет эффекта обратного рассеяния в образце бомбардирующих альфа-частиц. В этой связи большее количество атомов гелия в образцах Мо, облученного высокоэнергетичными альфа-частицами, по сравнению с облучением нейтронами деления, по-видимому, и является причиной наблюдаемой большей плотности и размера полостей в первом случае.

Таким образом, вышеописанные результаты, указывают не только на возможность развития вакансионных полостей в процессе отжига дефектной структуры, сформированной при низкотемпературном облучении, но и еще раз достаточно убедительно свидетельствуют об эмиссии вакансий из растущих при соответствующих температурах дислокационных петель.

Выводы

Все приведенные в настоящей работе экспериментальные результаты, показывающие:

- увеличение с температурой и временем отжига числа междоузельных атомов в дислокационных петлях и вакансий в гелиевых порах,
- немонотонное изменение с температурой отжига относительного объема гелиевых пор,
- преимущественный рост приграничных гелиевых пор со стороны тела зерна с дислокационными петлями,

- развитие вакансионных полостей в результате послерadiационного отжига дислокационно-петлевой структуры, сформированной облучением альфа-частицами (50 МэВ) и нейтронами деления при 60⁰С, дают основание утверждать, что при высоких температурах отжига или облучения (более 0,3Т_{пл.}) дислокационные петли являются мощными источниками вакансий. В этой связи, при условии наличия в кристаллической структуре облучаемого материала комплексов типа He_mV_n , вакансионное пересыщение за счет термической эмиссии вакансий дислокационными петлями радиационного происхождения может быть определяющей движущей силой образования и роста вакансионных полостей.

Литература

1. C.Cawthorne, E.Fulton. Voids in irradiated stainless steel. Nature. 1967.216.N.5115.p.575-576.
2. A.Hishinuma, L.K.Mansur. Critical radius for bias-driven swelling - a further analysis and its application to bimodal cavity size distributions. J. Nucl. Mat. 1983. 118.N1. p.91-99.
3. M.J.Makin. The effect of void density on the dislocation bias. J. Nucl. Mat. 1982. 110. N2/3. p.196-200.
4. A.D.Brailsford, R.Bullough. The rate theory of swelling due to void growth in irradiated metals. J. Nucl. Mat. 1972. 44. N2. p.121-135.
5. A.D.Brailsford, R.Bullough. The stress dependence of high temperature swelling. J. Nucl. Mat. 1973.48. N2. p.87-106.
6. Yu.V.Konobeev, A.V.Subbotin, S.I.Golubov. The theory of void and interstitial dislocation loop growth in irradiated metals. Rad. Effects. 1973. 20. N4. p.265-271.
7. S.B.Fisher, R.J.White. The dislocation preference for interstitials and void swelling rates. Rad. Effects. 1976. 30. N1. p.17-25.
8. S.B.Fisher, R.J.White. The analysis of void swelling experiments. Rad. Effects. 1976. 30 N1. p.27-36.
9. P.T.Heald, M.V.Speight. Point defect behavior in irradiated materials. Acta Met. 1975. 23. N11. p.1389-1399.
10. A.B.Субботин. О зарождении пор. Атомная энергия.1978, 45, 4. с.276-280.
11. J.M.Lanore, L.Glqwinski, et.al.. Studies of void formation in pure metals. CONF-751006-P2. Fundam. aspects of rad. dam. in metals. Proc. Int. Conf. Gatlinburg. 1975. Washington. (D.C.). 1976. 2. p.1169-1180.
12. V.Levy, N.Azam, L.Le Naur and et.al.. Effect of structure and alloying elements on void formation in austenitic steels and nickel alloys. Rad. Eff. in breeder reactor. str. mat. Proc. Int. Conf.. Scottsdale. 1977. New York. 1977. p.709-725.

13. P.J.Jackson, K.Kemm, J.Nevin, D.Spalding. The precipitation of point defect near grown in dislocations during neutron irradiation. Rad. Effects. 1978.35. N1/2. p.1-5.
14. P.T.Heald, M.V.Speight. Irradiation creep and swelling. Phil. Mag. 1974. 30. N4. p.869-875.
15. Л.А.Максимов, А.И.Рязанов. Кинетические уравнения для вакансионных пор. Решетка пор, диссипативная структура, устойчивая в условиях облучения. ЖЭТФ, 1980, 79, 6, с. 2311-2327.
16. J.H.Fikus, R.A.Johnson. Effect of surface energy barriers on void growth kinetics. Rad. Effects. 1979. 40. N1/2. p.63-70.
17. D.I.R.Norris. The growth of voids in nickel in HVEM. Phil. Mag. 1971. 23. N181. p.135-152.
18. A.Risbert, G.Brebec, J.M.Lanore, V.Levy. Influence de la dose de neutrons rapides sur la formation des cavites dans l'aluminium. J. Nucl. Mat. 1975. 56 N3. p.348-354.
19. T.W.Willianes. Composition effects on the development of damage structures in accelerator irradiated austenitic steels. Proc. Int. Conf. Ajaccion. 1979. France. 1979. p.189-194.
20. A.Hishinuma, Y.Katano, K.Shiraishi. Void swelling in electron irradiated high pure Fe-Cr-Ni alloys. J. Nucl. Sci. and Techn. 1978. 15. N9. p.690-695.
21. В.Ф.Реутов, Н.В.Богоаева, А.Н.Подилько. Устройство "Микрон" и способ приготовления объектов для ПЭМ из высокорadioактивных материалов. Препринт 5-87. ИЯФ АН КазССР. Алма-Ата. 1987. 15с.
22. I.A.Schwirtlich, H.Schulz. Quanching and recovery experiment on Mo. Phil. Mag. 1980. 42. N5. p.601-611.
23. I.V.Reutov, V.F.Reutov. Development of helium porosity near by grain boundaries in nickel-carbon alloys. Preprint of JINR,FLHR. Dubna.1995. 14p.

Рукопись поступила в издательский отдел
21 декабря 1998 года.

О роли дислокационных петель в процессе развития вакансионных полостей

В настоящей работе методами ПЭМ-исследований изменения структуры в результате послерадиационного отжига молибдена, легированного атомами гелия, облученного высокоэнергетичными альфа-частицами и нейтронами деления, экспериментально установлено, что

— число междоузельных атомов в дислокационных петлях и вакансий в гелиевых порах увеличивается с температурой и временем отжига, т.е. рост дислокационных петель происходит за счет испускания ими вакансий

— зарождение и рост гелиевых пор происходит через стадию развития вакансионной пористости,

— рост приграничных гелиевых пор происходит преимущественно со стороны тела зерна с дислокационными петлями,

— в результате послерадиационного отжига дислокационно-петлевой структуры, сформированной облучением альфа-частицами (50 МэВ) и нейтронами деления при 60 °С, развиваются вакансионные полости.

Вышеизложенное дает основание утверждать, что при высоких температурах отжига или облучения (более $0,3 T_{пл}$) дислокационные петли являются мощными источниками вакансий. В этой связи, при условии наличия в кристаллической структуре облучаемого материала комплексов типа $He_m V_n$, вакансионное пересыщение за счет термической эмиссии вакансий дислокационными петлями радиационного происхождения может быть определяющей движущей силой образования и роста вакансионных полостей.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г.Н.Флерова ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1998

Перевод автора

Role of Dislocation Loops in the Development of Vacancies-Containing Cavities

This paper presents the results of a TEM-investigation of the effect of postradiation annealing on the structure of molybdenum doped with helium atoms and irradiated with high-energy α -particles and fission neutrons. It was found that:

— the number of the interstitial atoms in the dislocation loops and of the vacancies in the helium bubbles increases with an increase in the temperature and annealing time, that is, the dislocation loops grow by emitting vacancies,

— the arising and growth of helium pores involves a stage characterised by the growing of vacancy voids,

— the helium bubbles arising near grain boundaries are formed on the side of the grain body with dislocation loops,

— the postradiation annealing of the structure involving dislocation loops produced by irradiation with 50 MeV α -particles and fission neutrons at 60 °С results in the development of vacancy voids.

The foregoing gives grounds to state that high temperature annealing or irradiation at high temperature (more than $0,3 T_{melt}$) constitutes the conditions under which dislocation loops are powerful sources of vacancies. Therefore, on condition that in the crystal structure of the irradiated material there are, for example, the $He_m V_n$ complexes, vacancy oversaturation accounted for by thermal emission of vacancies by dislocation loops of radiation origin may be the main driving force for the nucleation and growth of vacancy voids.

The investigation has been performed at the Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 1998

Редактор Е.Ю.Шаталова. Макет Н.А.Киселевой

Подписано в печать 20.01.99
Формат 60 × 90/16. Офсетная печать. Уч.-изд. листов 1,02
Тираж 270. Заказ 51115. Цена 1 р. 25 к.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
Дубна Московской области