

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА.

В 124

P14-88-440

С.П.Вагин*, А.Ю.Дидык, В.Ф.Реутов*,
В.А.Скуратов, П.В.Чакров*

ОСОБЕННОСТИ
РАДИАЦИОННОГО РАСПУХАНИЯ МЕДИ,
ОБЛУЧЕННОЙ ИОНАМИ КСЕНОНА И МЕДИ
С ЭНЕРГИЕЙ 1 МэВ/а.е.м.

Направлено в "Журнал технической физики"

*Институт ядерной физики АН КазССР, Алма-Ата

1988

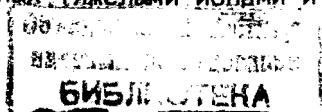
1. ВВЕДЕНИЕ

Материалы, используемые в конструкциях действующих и вновь создаваемых ядерных и термоядерных установок, испытывают высокие радиационные и тепловые нагрузки при длительном воздействии потоков нейтронов и других видов излучений. Такие воздействия приводят к значительным изменениям их механических и структурных свойств^{1/}. Одним из наиболее вредных явлений, существенно сокращающих срок эксплуатации конструкционных материалов, является радиационное распухание, обусловленное образованием в материалах пор.

В настоящее время процессы зарождения и роста вакансионных и газовых пор в облучаемых металлах далеко не ясны^{1,2/}, несмотря на то, что эта проблема изучается уже в течение нескольких десятков лет. По-прежнему в центре внимания остаются вопросы выяснения механизмов зарождения и роста пор и дислокационных петель, влияния на них многочисленных факторов, таких, как температура облучения, упругие напряжения, наличие примесей, структурные свойства, скорость генерации точечных дефектов, режим облучения и ряд других^{1-3/}.

Детальное выяснение влияния всех вышеперечисленных факторов на величину распухания конструкционных и модельных материалов требует проведения многочисленных экспериментов в реакторах. Отметим, что ввиду низких скоростей дефектообразования такие эксперименты требуют длительных облучений. Кроме того, облучаемые образцы активируются, что затрудняет их исследование и вызывает необходимость применения "горячих" камер. Отмеченные трудности при исследовании влияния нейтронного облучения на изменения механических и структурных свойств реакторных материалов стимулировали такие исследования с применением других видов излучений - электронного /на ускорителях и в высоковольтных электронных микроскопах/ и облучения тяжелыми ионами различных энергий. Основным преимуществом тяжелых ионов, по сравнению с облучением нейтронами, является высокая скорость дефектообразования, что позволяет получить значительные уровни повреждений за относительно короткие времена и надежно контролировать условия облучения.

Однако сравнение результатов по радиационному распуханию материалов, облученных тяжелыми ионами и нейтронами, встречает



определенные трудности, связанные с различием процессов потерь энергии и дефектообразования.

Основные различия таких процессов заключаются в следующем: 1/ тяжелые ионы с энергиями порядка 1 МэВ/а.е.м. существенную долю своей энергии теряют на электронное торможение; 2/ распределение образующихся точечных дефектов по пробегу иона сильно неоднородно; 3/ при облучении ионами, которые остаются в образце, могут возникать значительные напряжения, влияющие на процессы формирования дефектной структуры; 4/ высокие скорости дефектообразования меняют характеристики диффузионных процессов, что сказывается на образовании кластеров точечных дефектов /междоузельных и дислокационных петель, вакансионных и газовых пор/; 5/ различие в спектрах энергий первично-выбитых атомов приводит к различным особенностям образования дефектов в каскадах атом-атомных соударений; 6/ при указанных выше энергиях ионов не происходят ядерные реакции, приводящие к образованию трансмутационных примесей /в частности, не нарабатывается гелий, меняющий величину распухания и т.д./.

Большинство указанных различий имеет место и при облучении материалов различными тяжелыми ионами. Так, несмотря на отсутствие ядерных реакций, внедряемые ионы сами могут играть роль примесей /или дополнительных междоузельных атомов при облучении собственными ионами/ и оказывать заметное влияние на кинетику зарождения и роста пор. Поэтому выяснение особенностей радиационных эффектов в материалах, облученных различными тяжелыми ионами, представляет важный аспект для такого моделирования.

Цель настоящей работы - исследование различий в процессах радиационного распухания модельного материала - меди при облучении ионами меди и ионами ксенона с энергиями порядка 1 МэВ/а.е.м.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследование радиационного распухания проводилось на образцах меди чистотой 99,99%. Образцы представляли собой диски диаметром 3 мм и толщиной 100 мкм /для последующего изучения в просвечивающем электронном микроскопе/. После механической и электролитической полировки все образцы отжигались в вакууме 10^{-3} Па при температуре 700°C в течение часа.

Облучение образцов проводилось на ускорителе У-300 Лаборатории ядерных реакций ионами ксенона с энергией 124 МэВ и меди с энергией 63 МэВ в температурном интервале от 400 до 700°C. Интенсивности пучков ионов ксенона и меди составляли 3×10^{11} и 6×10^{11} ион/см²с соответственно.

Вакуум при облучении образцов составлял 10^{-3} Па. Для уменьшения содержания масляных паров в зоне облучения перед мишенным устройством располагалась азотная ловушка с узким коллиматором, мишенное устройство состояло из охлаждаемого проточной водой /температура воды 20°C/ передней диафрагмы, за которой располагалась подложка с облучаемым образцом, имеющая надежный тепловой контакт с подогревным устройством. Мишенное устройство через изолирующие прокладки крепилось к охлаждаемому шестиграннику. Нагрев образцов осуществлялся электрическим током и за счет тепла, вносимого пучком ионов. Стабилизация температуры образцов во время облучения проводилась терморегулятором, точность поддержания температуры составляла $\pm 5^\circ\text{C}$.

После облучения образцы исследовались на просвечивающем электронном микроскопе JEM-100CX. Изучение структуры было выполнено на глубине 3 мкм от облученной поверхности.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

Электронно-микроскопические исследования образцов меди показали, что во всем температурном интервале от 400 до 700°C, который был изучен, происходит образование пор. Вблизи границ зерен наблюдается обедненная зона, в которой поры отсутствуют, и при приближении к которой из тела зерна средний размер пор увеличивается, а их плотность уменьшается /рис.1а/. Наряду с порами во всех исследованных образцах присутствуют развитая дислокационная структура и мелкие скопления дефектов с диаметром менее 10 нм, основная часть которых, по-видимому, представляет тетраэдры дефектов упаковки /рис.1б/.

Рассчитанные на основе электронно-микроскопических фотографий дозовые зависимости среднего диаметра и концентрации пор, а также величины объемного распухания приведены на рис.2 и 3 для случая облучения меди ионами ксенона с энергией 124 МэВ при температуре облучения 500°C. Дозы повреждений в меди при облучении как ионами Xe^{129} , так и ионами Cu / $E = 63$ МэВ/ рассчитывались с использованием программы ЕДЕР-1 /версия 1985 г./4/. На рис.4 показаны профили повреждений и залегания внедренных ионов Xe и Cu . Пороговая энергия смещения выбиралась равной 29 эВ. На рис.4 отмечена зона, в которой проводились электронно-микроскопические исследования.

Из рис.2 и 3 видно, что в изученном интервале уровня повреждений от 0,42 до 2,7 сна степень радиационного распухания возрастает от 0,5 до 6% и меняется практически линейно с дозой. В то же время концентрация пор в пределах точности ее опреде-

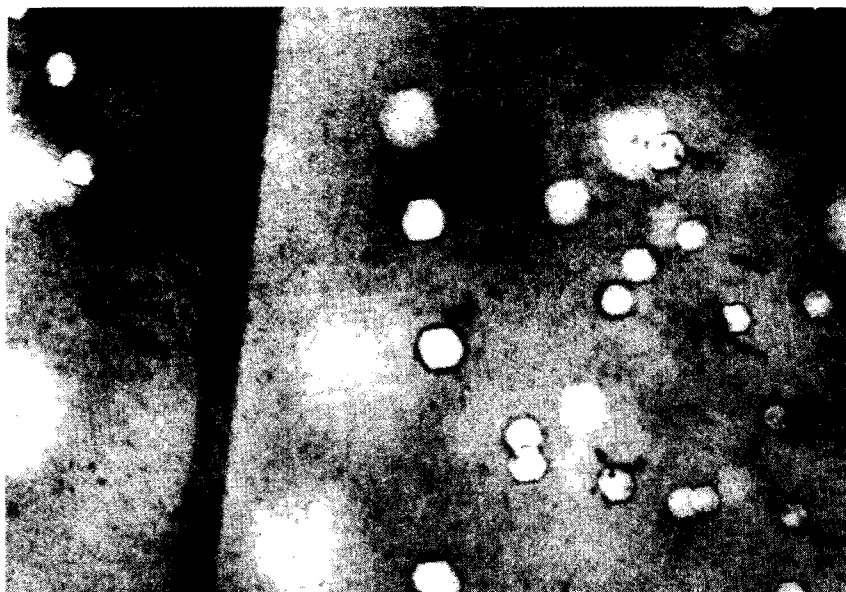


Рис.1. Электронно-микроскопические фотографии структуры образцов меди, облученных ионами Хе с энергией 124 МэВ при температуре 500°C: а/ светлопольное изображение обедненной порами зоны вблизи границы зерна, б/ темнопольное изображение пор и мелких скоплений радиационных дефектов.

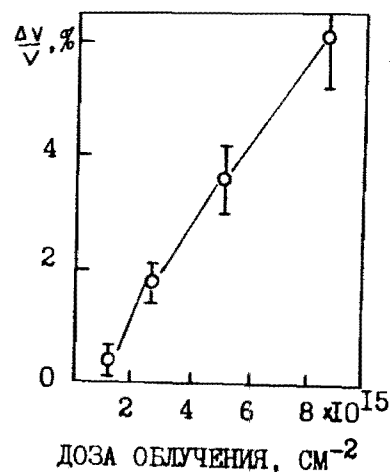


Рис.2. Дозовая зависимость набухания меди, облученной ионами Хе с энергией 124 МэВ при температуре 500°C.

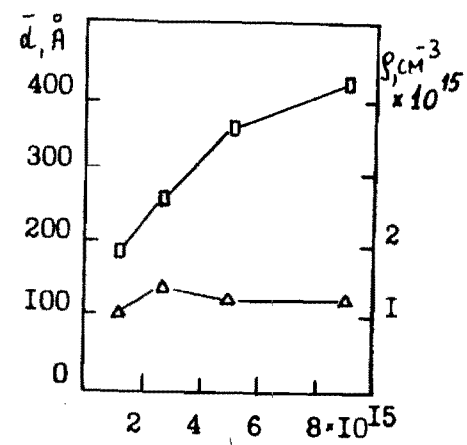


Рис.3. Дозовые зависимости концентрации (Δ) и среднего размера пор (□) в меди, облученной ионами Хе при температуре 500°C.

ления практически не изменяется, средний диаметр пор возрастает, что и обуславливает наблюдаемые величины радиационного набухания меди /см. рис.5/.

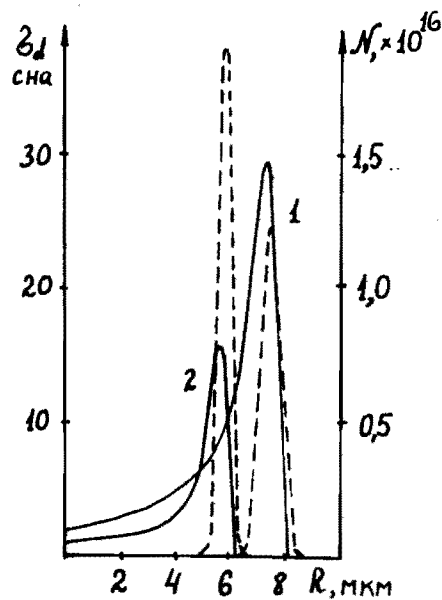


Рис.4. Профили распределения дефектов, созданных в меди ионами Хе (I) и Cu (II), и профили залегания внедренных атомов.

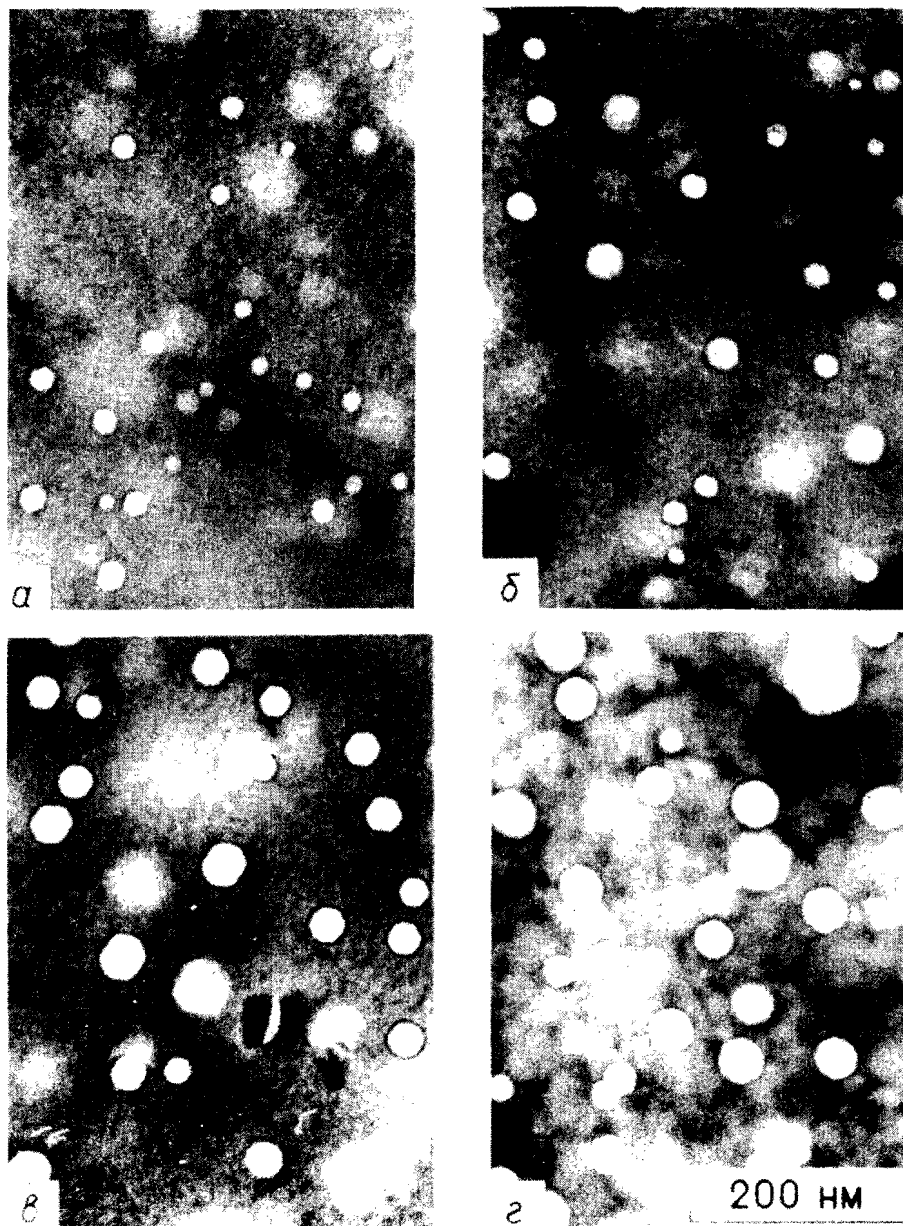


Рис.5. Светлопольные электронно-микроскопические фотографии структуры образцов меди, облученных ионами Хе при температуре 500°C до флюенсов: а/ $1,25 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$, б/ $2,5 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$, в/ $5,25 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$, г/ $8 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$.

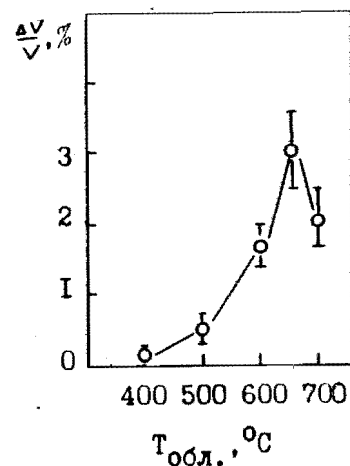


Рис.6. Температурная зависимость распухания меди, облученной ионами Хе до флюенса $1,25 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$.

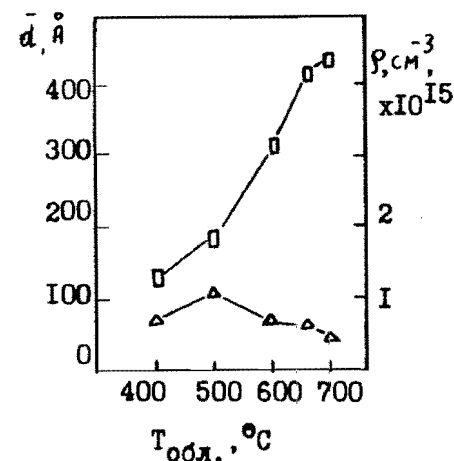


Рис.7. Температурные зависимости концентрации (Δ) и среднего размера пор (\square) в меди, облученной ионами Хе до флюенса $1,25 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$.

рация пор имеет максимум при температуре $T = 500^\circ\text{C}$, а затем уменьшается /рис.8/.

Для выяснения различий радиационного распухания при облучении материалов газовыми ионами /в данном случае ионами ксенона/ и ионами металлов, образцы были облучены ионами меди с энергией 63 МэВ до дозы $7 \times 10^{15} \text{ ион/см}^2$, что на глубине 3 мкм соответствует степени повреждения 1,15 сна, в температурной области от 400 до 550°C. На рис.9 и 10 показаны температурные зависимости величины распухания, а также концентраций и размеров пор. Видно, что, как и в случае облучения ионами ксенона, с возрастанием температуры средний размер пор увеличивается, а их концентрация имеет максимум при температуре 450°C и более быстро падает при дальнейшем увеличении температуры. Температурный максимум распухания расположен в области $T = 450^\circ\text{C}$. Необходимо заметить, что в обоих случаях /облучения ионами ксенона и меди/ скорости дефектообразования были одинаковыми и составляли 10^{-4} сна/с .

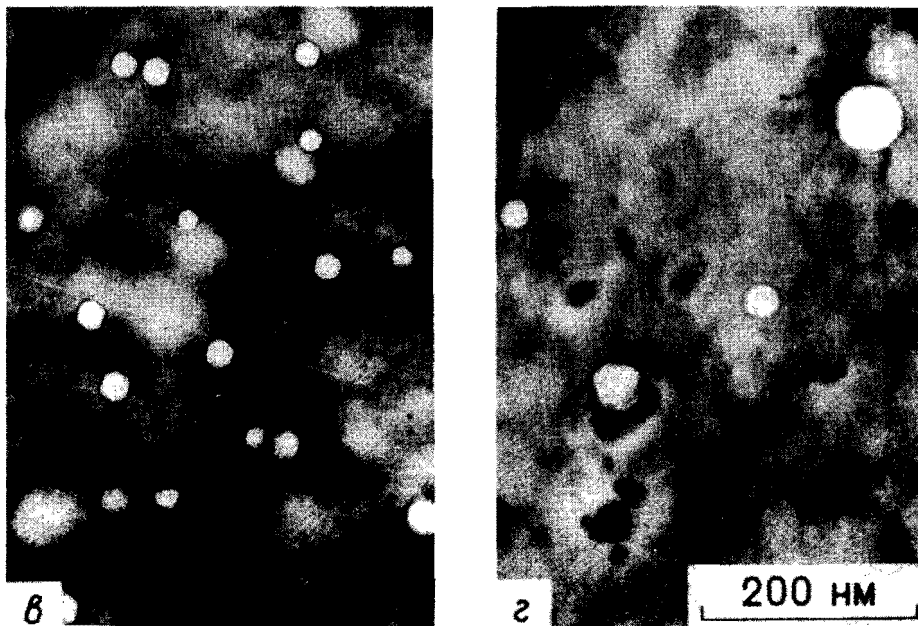
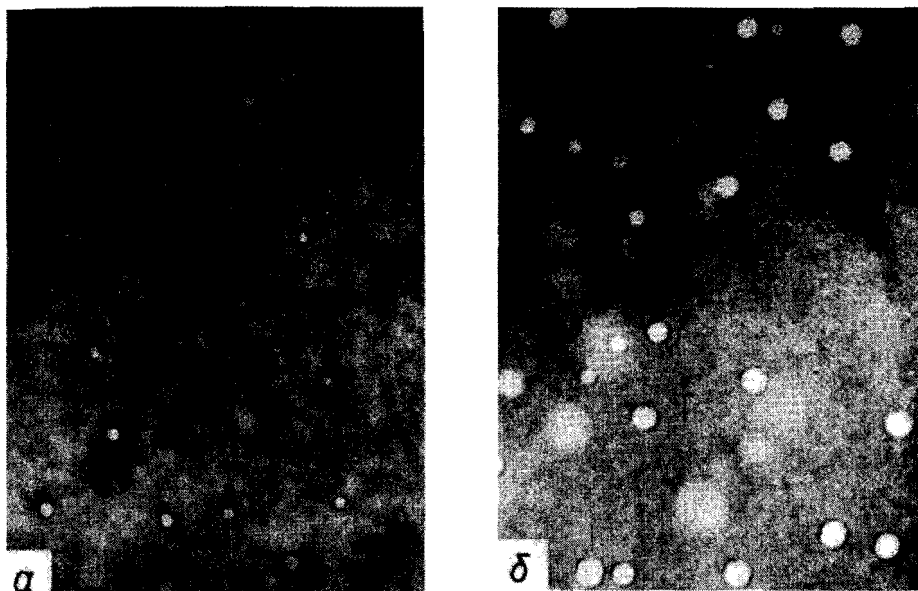


Рис.8. Светлопольные электронно-микроскопические фотографии образцов меди, облученных ионами Хе до флюенса $1,25 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$ при температурах: а/ 400°C, б/ 500°C, в/ 600°C, г/ 700°C.

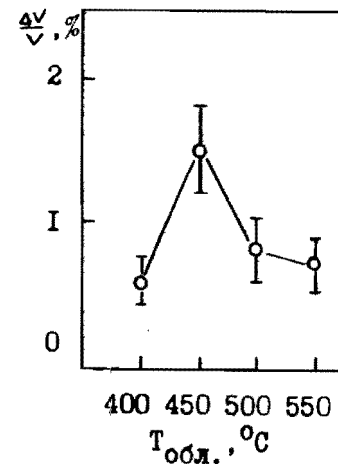


Рис.9. Температурная зависимость распухания меди, облученной ионами Си /с энергией 63 МэВ/ до флюенса $7 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$.

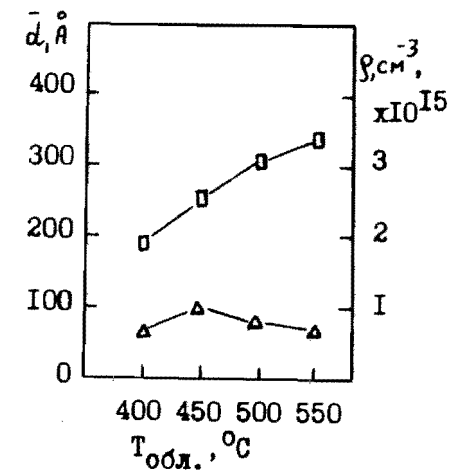


Рис.10. Температурные зависимости концентрации (Δ) и среднего размера пор (\square) в меди, облученной ионами Си до флюенса $7 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

При электронно-микроскопическом исследовании облученных образцов меди обнаружены обедненные порами зоны, расположенные вблизи границ зерен, причем ширина таких зон составляет более 100 нм. Как хорошо известно, их образование объясняется уходом вакансий и междоузельных атомов на границы зерен. На основании полученных данных можно сделать вывод о том, что для моделирования эффектов радиационного распухания материалов с помощью тяжелых ионов необходимо выбирать образцы с толщинами, по крайней мере вдвое превышающими ширину обедненной зоны.

Как видно из рис.6 и 9 максимумы температурных зависимостей распухания при облучении ионами меди /с энергией 63 МэВ/ и ксенона /с энергией 124 МэВ/ имеют место при температурах 450 и 650°C соответственно.

Обычно температурные сдвиги максимума распухания связывают с изменением скоростей дефектообразования в соответствии с выражением:

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_2} + \frac{\kappa_B}{Q} \ln \frac{\kappa_2}{\kappa_1}, \quad //$$

где T_1 и T_2 - температуры максимумов распухания, k_1 и k_2 - соответствующие им скорости дефектообразования, k_B - постоянная Больцмана, а величина Q определяется соотношением:

$$Q = E_v^m + 2E_v^f. \quad /2/$$

Здесь E_v^m - энергия миграции вакансий, а E_v^f - энергия активации образования вакансий.

В работах^{5,6/} изучалось радиационное распухание меди при облучении ионами меди /с энергией 500 кэВ/ и электронами /с энергией 1 МэВ/ при скорости дефектообразования 3×10^{-3} и $1,3 \times 10^{-3}$ сна соответственно. Положение температурного максимума распухания находилось в температурной области вблизи $T = 500^\circ\text{C}$. Сравнение результатов работ^{5,6/} с температурой максимума распухания меди, облученной ионами меди / $E = 63$ МэВ/, с использованием выражения /1/ позволяет оценить величину Q , входящую в /1/, которая получилась равной $Q = 3,28$ эВ. По данным работы^{7/} энергия активации образования вакансии для меди имеет величину $E_v^f = 1$ эВ. Используя выражение /2/, можно оценить энергию миграции вакансии, которая получается весьма разумной / $E_v^m = 1,28$ эВ/.

Для анализа распухания меди при облучении ионами ксенона необходимо выделить следующие обстоятельства.

Во-первых, при температуре облучения, соответствующей максимуму распухания в случае облучения ионами меди, распухание при облучении ионами ксенона существенно меньше.

Во-вторых, наблюдаемый максимум распухания при облучении ионами ксенона смещен в область высоких температур, и величина распухания, несмотря на меньшую степень повреждения, приблизительно в два раза больше, по сравнению с максимумом распухания при облучении ионами меди.

Для объяснения указанных различий необходимо учесть, что облучение газовыми ионами может существенно влиять на кинетику зарождения и роста пор вакансионных. Как было показано в^{8/}, газовые примеси при определенных условиях могут являться центрами конденсации вакансий и стабилизировать образующиеся вакансионные скопления /вакансионные поры/. При невысоких температурах облучения это приводит к увеличению /по сравнению с облучением собственными ионами/ концентрации вакансионных пор и уменьшению их среднего размера, что и наблюдается экспериментально в случае облучения меди ионами ксенона при $T_{обл.} = 400^\circ\text{C}$. Следствием этого является уменьшение величины вакансионного распухания. С увеличением температуры облучения происходит возрастание среднего размера пор, которые вследствие присутствия в них атомов газа /в данном случае ксенона/ остаются

стабильными при более высоких температурах по сравнению с "чистой" вакансионными порами. Дальнейшее увеличение температуры приводит к усилению процесса испарения вакансий из пор, уменьшению концентрации пор и увеличению их среднего размера. При этом общее число вакансий в порах уменьшается, в результате чего величина распухания при повышенных температурах начинает падать.

Необходимо отметить, что профиль залегания ионов ксенона значительно удален от области, в которой проводились исследования по распуханию /см.рис.4/, поэтому описанный выше механизм может работать только при миграции ионов ксенона к облучаемой поверхности.

В заключение представляется важным отметить факт одновременного существования в образцах, облученных ионами ксенона, двух различных морфологических форм скопления вакансий, а именно вакансионных пор и тетраэдров дефектов упаковки. В отличие от результатов настоящей работы в работе^{9/}, где изучалась дефектная структура особо чистой меди при облучении ионами меди с энергией 14 МэВ в температурной области от 100 до 500°C при уровне повреждений от 9 до 40 сна, авторы не обнаружили пор, а дефектная структура состояла из тетраэдров дефектов упаковки и дислокационных петель. Это указывает на то, что наличие в изученных в настоящей работе образцах меди газовых примесей, в частности кислорода, может приводить к образованию комплексов дефектов, состоящих из газовой примеси и вакансий, которые обладают низкой энергией активации диффузии и могут мигрировать, приводя к образованию пор^{10/}. При облучении ионами ксенона роль такой примеси, по-видимому, могут играть атомы ксенона. Детальное выяснение механизмов влияния газовых примесей, в том числе и имплантированных в материал в процессе облучения, на процессы образования энергетически выгодных конфигураций вакансионных скоплений требует дальнейших исследований.

Авторы благодарят академика Г.Н.Флерова за стимулирующие и плодотворные обсуждения на всех этапах выполнения данной работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Альтовский И.В. В сб.: Итоги науки и техники. Серия Металловедение и термическая обработка. М.: ВИНТИ, 1987, т.21, с.3.
2. Зеленский В.Ф. и др. Некоторые проблемы физики радиационных повреждений материалов. Киев: Наукова думка, 1979.

3. Mansur L.K., Yoo M.H. - J.Nucl.Mater., 1979, v.85-86, p.523.
4. Davisson C.M., Manning I. - Comp.Phys.Comm., 1986, 42, p.137.
5. Lanore J.M. et al. In.: Fundamental aspects of radiation damage in metals: Proc.Int.conf., Washington, 1976, v.2, p.1169.
6. Adda Y. In.: Radiation - induced voids in metals: Proc.Int. conf. Oak Ridge: USAEC Technical Information Centre, 1972, p.31.
7. Ибрагимов Ш.Ш., Кирсанов В.В., Пятилетов Ю.С. Радиационные повреждения металлов и сплавов. М.: Энергоатомиздат, 1985.
8. Andermann A., German Q.G. - phys.stat.sol., 1968, v.30, p.283.
9. Zinkle S.J., Kulcinski, Kroll R.W. - J.Nucl.Mater., 1986, 138, p.46.
10. Zinkle S.J., Seitzman L.E., Wolfer W.G. - Phil.Mag., 1987, A55, No.1, p.111.

Рукопись поступила в издательский отдел
21 июня 1988 года.

Вагин С.П. и др.

P14-88-440

Особенности радиационного распухания меди, облученной ионами ксенона и меди с энергией 1 МэВ/а.е.м.

Изучено радиационное распухание меди, облученной тяжелыми ионами ксенона /с энергией 124 МэВ/ и меди /с энергией 63 МэВ/. Получены температурные и дозовые зависимости величины радиационного распухания. Положение температурного максимума распухания в случае облучения ионами меди хорошо согласуется с имеющимися экспериментальными данными. Проведена оценка энергии активации миграции вакансий. В то же время показано, что при облучении ионами ксенона наблюдается температурный сдвиг максимума распухания. Предложена феноменологическая модель, объясняющая такое поведение.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.
Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1988

Перевод О.С.Виноградовой

Vagin S.P. et al.

P14-88-440

Peculiarity of Copper Radiation Swelling Irradiated by Xenon and Copper Ions with Energy 1 MeV/a.m.u.

The copper radiation swelling irradiated by xenon (with 124 MeV energy) and copper (with 63 MeV energy) heavy ions is studied. The temperature and dose dependences of the radiation swelling quantity are obtained. The position of the temperature swelling maximum in the case of copper ion irradiation agrees with earlier experimental data. The estimation of vacancies migration activation energy is carried out. It is shown that in the case of irradiation by xenon ions the temperature displacement of swelling maximum is observed. The phenomenological model describing this behaviour is suggested.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1988