

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

ДУБНА



8/14-75

P14 - 8801

ф-716

Г.Н.Флеров, Г.Н.Акапьев, В.С.Барашенков,
В.Е.Дубинский, С.Я.Лебедев, В.Г.Родионова,
С.И.Руднев, С.Я.Сурков

3344/2-75

ВАКАНСИОННАЯ ПОРИСТОСТЬ
В МЕТАЛЛАХ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ
ИХ УСКОРЕННЫМИ ИОНАМИ ЖЕЛЕЗА

1975

P14 - 8801

Г.Н.Флеров, Г.Н.Акапьев, В.С.Барашенков,
В.Е.Дубинский*, С.Я.Лебедев*, В.Г.Родионова*,
С.И.Руднев*, С.Я.Сурков*

**ВАКАНСИОННАЯ ПОРИСТОСТЬ
В МЕТАЛЛАХ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ
ИХ УСКОРЕННЫМИ ИОНАМИ ЖЕЛЕЗА**

Направлено в АЭ

* Физико-энергетический институт (г. Обнинск)

1. ВВЕДЕНИЕ

Исследования конструкционных материалов, подвергающихся облучению в реакторах большими интегральными потоками быстрых нейтронов при повышенных температурах, показали возникновение вакансионной пористости, сопровождающееся увеличением размеров /распуханием/ этих материалов^{1,2,3/}. Такое распухание /для нержавеющей стали 304 при интегральном потоке быстрых нейтронов $7,8 \times 10^{22}$ н/см² и температуре облучения 500 °С составляет 7%/ ставит очень серьезные проблемы перед конструкторами энергетических реакторов на быстрых нейтронах.

Поскольку потоки быстрых нейтронов в действующих реакторах не превышают 10^{15} н/см² сек, то для получения заметного эффекта необходимо облучать исследуемый образец в течение года и более, что существенно затрудняет изучение явления распухания. Вместе с тем процесс возникновения вакансионной пористости можно наблюдать также в случае бомбардировки материала ускоренными ионами. При этом принципиального различия в действии нейтронного облучения и ионных пучков на конструкционные материалы ядерных реакторов нет, поскольку в обоих случаях первичным актом радиационного повреждения является смещение атома кристаллической решетки облучаемого материала, которое порождает каскад последующих смещений других атомов. Этот процесс продолжается до тех пор, пока выбитые в предыдущих столкновениях атомы могут передать в последующих столкновениях с покоящимися атомами энергию, превышающую энергию смещения.

В среднем нейтроны реакторного спектра непосредственно смещают менее 1% общего количества атомов, участвующих в каскаде столкновений. Более 99% атомов смещаются в последующих стадиях каскада^{14/}.

Благодаря большим поперечным сечениям упругого взаимодействия иона с атомами мишени, скорость создания дефектов в материале, облучаемом тяжелыми ионами, на несколько порядков выше, чем в материале, облученном эквивалентной нейтронной дозой /в реакторе - 10^{-6} с/ав.сек, на ускорителе - 10^{-3} с/ав.сек/. Поэтому заметная пористость при облучении ионами может быть достигнута всего лишь за несколько часов.

Следует однако заметить, что скорость создания радиационных повреждений не должна быть слишком большой: за время облучения на ускорителе в мишене должны успеть произойти те же диффузионные процессы, что и в реакторе при длительном облучении. Это требование, по-видимому, выполняется лишь для достаточно высоких температур облучаемой мишени, поскольку коэффициенты диффузии точечных дефектов быстро растут с увеличением температуры.

Основное различие при облучении нейтронами и ионами состоит лишь в том, что из-за малой величины поперечного сечения столкновения нейтрона с атомом решетки / $\sim 10^{-24}$ см² /, а, следовательно, и большего свободного пробега нейтрона между столкновениями, нейтроны производят смещения практически однородно по всему объему облучаемого материала, в то время как при облучении тяжелыми ионами смещения атомов происходят лишь в тонком поверхностном слое мишени, причем степень нарушения кристаллической решетки даже в этом тонком слое изменяется по глубине.

При облучении ионами появляется возможность раздельно изучить зависимость порообразования от примесей газовых атомов и степени нарушения кристаллической решетки, чего нельзя сделать при облучении в реакторе. При ионном облучении легче обеспечить точный контроль и постоянство температуры образцов, что особенно важно, так как исследования облученных в быстрых реакторах конструкционных материалов показав-

ли, что интервал температур облучения, при которых возникает радиационная пористость, сравнительно невелик $/0,25 \div 0,6 T_{пл} K^{\circ} /^{3/}$.

Важное преимущество тяжелых ионов состоит также в том, что облученные образцы не активируются, работать с такими образцами значительно проще, это также ускоряет получение необходимой информации.

Определенным недостатком метода моделирования радиационных повреждений с помощью пучков тяжелых ионов является то, что вследствие тонкости слоя, в котором концентрируются повреждения, создаваемые пучком ионов, число методик, с помощью которых можно изучать структуру и свойства материала, крайне ограничено. Практически единственной методикой, пригодной в настоящее время для этой цели, является электронная микроскопия.

Целью данной работы является изучение возможности, предоставляемой ускорителями многозарядных ионов, для моделирования радиационных повреждений конструкционных материалов реакторов на быстрых нейтронах.

Эксперименты выполнены на ускорителе У-300 ЛЯР ОИЯИ, позволяющем получать интенсивные пучки тяжелых ионов всех элементов вплоть до ксенона.

Разработанные в ЛЯР ОИЯИ источники позволяют получать интенсивные пучки многозарядных ионов не только для элементов, имеющих газообразные соединения, но и применять твердые вещества^{/5,6/}. Именно такой источник с твердым веществом использовался в данной работе для получения ионов железа.

2. Требования к пучку ионов

При моделировании радиационных повреждений реакторных материалов пучок ионов должен минимально изменять химический состав облучаемого материала. В частности, следует избегать облучения ионами тех элементов, которые, внедряясь в образец, образуют в нем нерастворимые осадки или соединения. Образование нерастворимых фаз может значительно изменить повреж-

денное состояние исследуемого металла или сплава. При облучении металлов, особенно металлом с ГЦК решеткой, наиболее критичными в этом отношении являются соединения, образуемые легкими элементами: бором, углеродом, азотом, кислородом. Нежелательно также использование ионов благородных газов, поскольку инертные газы имеют чрезвычайно низкую растворимость в металлах и при пересыщении, - особенно при высоких температурах, когда подвижность внедренных газовых атомов велика, - выпадают в осадок в виде пузырьков.

Итак, для того, чтобы получить наилучшее соответствие с образцами, облученными в реакторе, при моделировании радиационного распухания желательнее проводить облучение чистых металлов ионами той же природы, что и облучаемая мишень, а сплавы - ионами того элемента, который составляет основу данного сплава.

Изучение порообразования в металлах ^{/7/}, облученных в реакторах и на ускорителе, показало, что в некоторых случаях области, прилегающие к поверхностям образцов, не содержат пор. Такие области захватывают глубины порядка 1000 Å. При моделировании следует учитывать этот эффект, поэтому необходимо использовать ионы с энергией, достаточной для того, чтобы произвести основную массу радиационных повреждений на глубине, превышающей несколько тысяч ангстрем.

Применение ионов низких энергий ~ 100 кэВ/ может представлять определенный интерес ^{/8,9,10/}, однако следует иметь в виду, что в этом случае можно получить лишь качественные зависимости, количественные же соотношения искажаются из-за близости поврежденного слоя к поверхности образца и неравномерности плотности смещения по глубине.

Мы использовали внутренний /не выведенный из ускорителя/ пучок трехзарядных ионов железа ${}_{56}\text{Fe}^{+3}$ на радиус $R = 57$ см*. Энергия ионов на этом радиусе $E(R) = 2,08 \cdot 10^{-3} \cdot R^2 = 6,8$ МэВ, что соответствует среднему пробегу в никеле - 1,5 мк.

* Это составляет около трети максимального радиуса орбиты ионов в циклотроне У-100.

3. Методика эксперимента

Устройство мишени должно было обеспечивать получение максимального числа смещений на атом в пике смещений, измерение дозы облучения, контроль и поддержание на протяжении всего эксперимента заданной температуры облучаемого образца. Поскольку тепла, выделяемого ионным пучком на мишени, вполне достаточно для нагрева до нужной температуры, дополнительного нагрева не требовалось. Величина теплосъема изменялась в зависимости от размера излучающей поверхности держателя мишени. Для увеличения плотности тока ионов при заданной температуре целесообразно использовать не предельную энергию ионов в циклотроне, а пониженную до нескольких $MэВ$, для чего следует располагать мишень внутри циклотрона на малом радиусе. Уменьшение энергии ионов ведет к повышению числа смещений на атом в пике, что происходит и из-за меньшего разброса пробега.

На рис. 1 представлена одна из четырех использованных нами ячеек мишени. Образец /1/ в виде фольги толщиной 200 мк зажимался между держателем /4/ и накладкой /3/. Температура измерялась с помощью хромель-алюмелевой термопары /2/ в чехле диаметром 0,5 мм, прижатой к фольге винтом /5/.

Ток пучка ионов измерялся интегратором по величине тока коллектора ионов. В качестве коллектора использовалась сама мишень, надежно изолированная от земли. При всех рабочих температурах мишени сопротивление изоляции мишени существенно превышало величину входного сопротивления интегратора.

Использование мишени в качестве коллектора стало возможным благодаря наличию сильного магнитного поля циклотрона, препятствующего вылету из мишени вторичных электронов.

Поскольку ускоряющее высокочастотное напряжение создает сильные электромагнитные наводки, мишень со всех сторон закрывалась охлаждаемым водой медным экраном. Пучок попадал на мишень через отверстие /входное окно/ в танталовой диафрагме, укрепленной на медном экране.

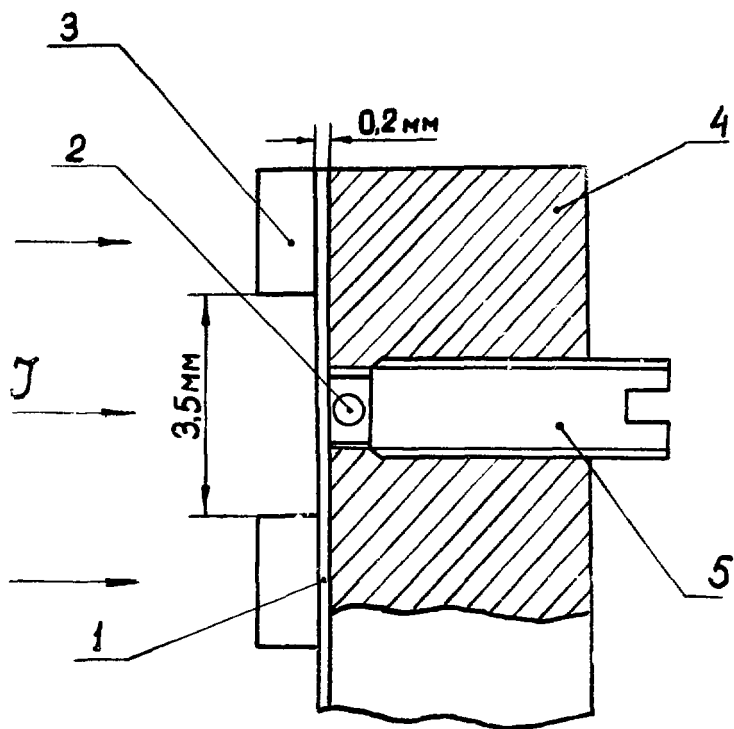


Рис. 1. Ячейка узла мишени. 1 - мишень, 2 - терморпара, 3 - накладка, 4 - держатель мишени, 5 - вики.

Конструкция коллектора позволяла осуществлять постоянный контроль над абсолютной величиной тока пучка.

Подготовленный для облучения образец вставлялся в держатель /см. рис. 1/ и крепился на конце специального устройства - пробника, который через вакуумный шлюз вводился внутрь циклотрона в зазор между дуантами /см. рис. 2/. Смещение пробника по радиусу, а также плавное регулирование интенсивности пучка ионов с пульта управления циклотрона позволяло точно устанавливать температуру облучаемого образца и поддерживать ее в заданных пределах. Температура измерялась четырьмя хромель-алюмелевыми термопарами и контролировалась с пульта циклотрона.

Твердотельный источник ионов железа стабильно работал в течение многих часов, обеспечивая интегральный поток ионов не менее $3 \cdot 10^{16}$ ионов/см². час.

При плотности тока $3 \div 4$ МкА/см² температура мишени составляла 500°С. Облучение проводилось в течение двух-четырех часов. Число смещений в никеле составляло 20, а в сталях - 40 смещ./атом.

Для того, чтобы можно было использовать электронный микроскоп, облученные образцы должны быть приготовлены в виде тонких фольг /толщина 0,05 - 0,1 мк/, иметь почти параллельные стороны и обладать чистой поверхностью [11]. Последнее особенно важно, так как тонкий слой аморфного материала, не создавая контраста, может при просмотре резко снизить прозрачность образца вследствие диффузного рассеяния электронов.

В качестве исходного материала был выбран никель, прскатанный в фольгу толщиной 200 мк. Химический состав фольги приведен в таблице:

Элемент	Ni	Mg	Si	Cu	Fe	Co
Сод. в 1% вес.	99,9	$2 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-2}$	$1,7 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-3}$
Элемент	Mo	Cr	Cd	Sb	Mn	
Сод. в 1% вес.	10^{-3}	$6 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-3}$	$1,7 \cdot 10^{-4}$	

Из никелевой фольги вырубались полосы размером 10x25 мм, которые и представляли собой исходные заготовки образцов. Для придания поверхности необхо-

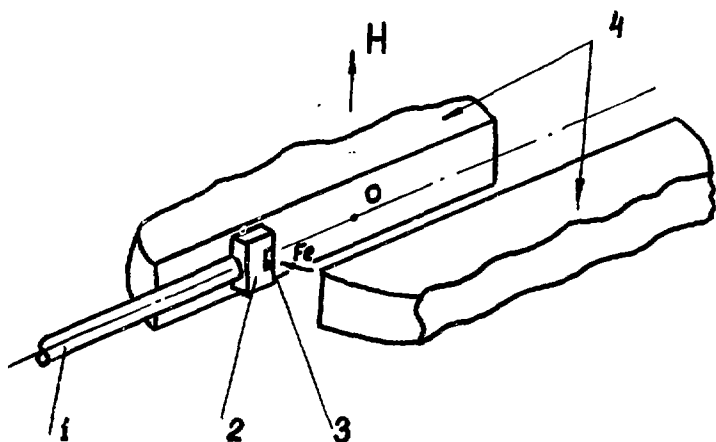


Рис. 2. Схема расположения мишени в камере циклотрона У-300. 1 - пробник, 2 - медный экран, 3 - входное окно, 4 - дуанты циклотрона, H - магнитное поле.

димой степени гладкости заготовки подвергались электрополировке в электролите, составленном из смеси ортофосфорной кислоты H_3PO_4 /88%/ и хромового ангидрида CrO_3 /12%/. /Химический состав электролита, электрический режим и время полирования устанавливались опытным путем/. Качество поверхности проверялось на оптическом микроскопе МИМ-7.

Для снятия внутренних напряжений и для упорядочения структуры, заготовки подвергались рекристаллизационному отжигу в вакууме / 10^{-5} Тор/ в течение часа при температуре $800^\circ C$. Средний размер зерен после отжига составлял 15 мк.

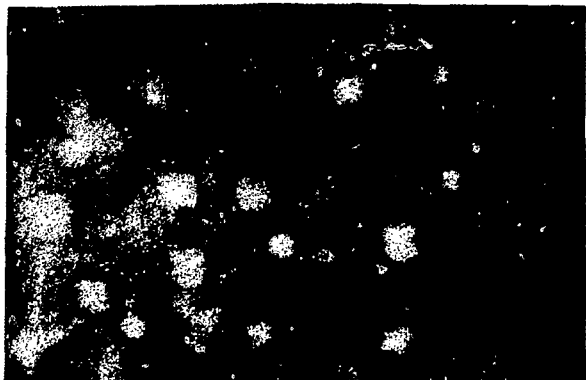
Как известно, развитие вакансионной пористости происходит в узком слое $\sim 500 \text{ \AA}$. Для того, чтобы достигнуть глубины, где плотность поврежденной максимальна, необходимо после бомбардировки с помощью электрической полировки снять слой толщиной 1,5 мк.

Количество стравливаемого материала определялось весовым методом, после чего из облученной фольги вырубались образцы диаметром 3 мм, которые доводились до толщины $1000 \pm 1500 \text{ \AA}$. Это утончение проводилось в два этапа: сначала образцы подвергались полировке в сернофосфорном электролите, а затем в фосфорнохромовом электролите окончательно доводились до нужной толщины. После утончения образцы просматривались на электронном микроскопе.

4. Результаты измерений и их обсуждение

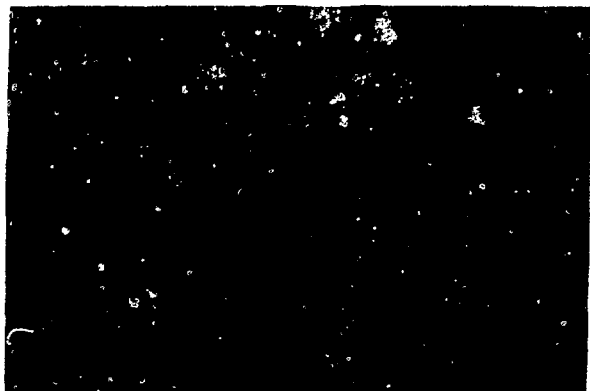
На рис. 3 представлены типичные микрофотографии образцов никеля и сталей 1X18N9T и OX16N15M3B. Поры в никеле гораздо крупнее и имеют огранку. Их форма близка к кубооктаэдру. В сталях в пределах разрешения микроскопа форма пор сферическая. Вблизи границ зерен наблюдаются обедненные зоны шириной 900° \AA /см. также /7/. Кроме того, наблюдаются выделения, которые проявляются в темном поле и дают рефлексы при электронной дифракции.

На рис. 4 приведены гистограммы распределения



x 135000

a/



x 135000

b/

Рис. 3. Электронномикроскопические микрофотографии облученных образцов никеля /а/, стали 1X18H9T /б/ и стали ОХ16Н15МЗБ /в/ / X 135 000/.



x 135000

Рис. 3в

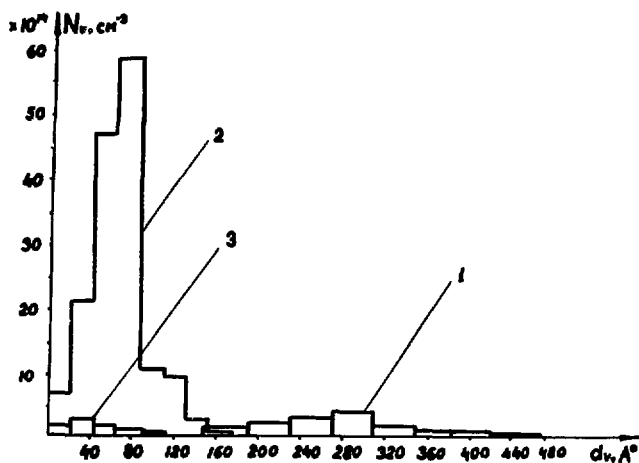


Рис. 4. Распределение числа пар в единице объема в зависимости от диаметра. 1 - никель, 2 - сталь 1X18H9T, 3 - сталь OX16П15МЗБ.

числа пор в единице объема (N_v) в зависимости от их диаметра.

Обсчет этих гистограмм приводит к данным, представленным в табл. 2.

Таблица 2

Материал	$\frac{\Delta V}{V} \text{ %}$	$N_v \text{ см}^{-3}$	$\langle V_v \rangle \text{ см}^3$	$\langle d_v \rangle \text{ \AA}$	$\langle \bar{d}_v \rangle \text{ \AA}$
IX18H9T	1,01	$1,6 \cdot 10^{16}$	$6,25 \cdot 10^{-19}$	74	106
OX16H15M3Б	0,015	$4,8 \cdot 10^{14}$	$3,1 \cdot 10^{-19}$	50	84
никель	2,5	10^{15}	$2,5 \cdot 10^{-17}$	290	310

где $\langle V_v \rangle$ - средний объем поры, $\langle d_v \rangle$ - средний диаметр пор для сфер или средняя величина межплоскостного расстояния для квадратных граней кубоэктаэдров /типа 100/, $\langle \bar{d}_v \rangle$ - соответствующий размер поры среднего объема, $\Delta V/V$ - величина распухания.

Таким образом, сопоставление результатов облучения никеля и указанных типов сталей показывает, что сталь OX16H15M3Б приблизительно в сто раз менее подвержена радиационному распуханию, чем другие исследованные материалы. Эти данные получены при температуре 500°C . Если этот вывод подтвердился и при других температурах, то сталь OX16H15M3Б следует рассматривать как весьма перспективный материал для реакторов на быстрых нейтронах. Экстраполяция по наиболее резкой, наблюдавшейся зависимости $\frac{\Delta V}{V} \sim (\phi t)^2$, где ϕt - интегральная доза $^{13/}$, указывает, что при данных условиях 10%-ное распухание наступит лишь при 1000 смещ./атом, что соответствует интегральной дозе реакторного спектра $\sim 1,3 \cdot 10^{24} \text{ н/см}^2 / E > 0,1 \text{ МэВ}^{12/}$.

Из полуколичественных результатов работы $^{13/}$ можно заключить, что отношение минимальных температур, при которых происходит распухание в случае облучения материала в реакторе и пучком ускоренных ионов, составляет около 0,9. Температура наших образцов была близка к нижней границе распухания $^{13/}$. Полученная таким образом оценка приводит к тому, что представленные вели-

**чныи распухания и экстраполированные данные соответ-
ствуют температуре реакторного облучения $\approx 400^\circ\text{C}$.**

**Мы пользуемся случаем поблагодарить Ю.П.Третья-
кова за обеспеченне надежной работы источника нейтрон
и помощь при облучении.**

Литература

1. *Proc. of the British Nuclear Energy Society
European Conference on Voids Formed by Irradiation
of Reactor Materials, Reading University, 24-25 March
1971. S.E.Pujh, M.H.Loretto, D.J.R.Morris (eds.),
pp. 1-21.*
2. *Radiation Induced Voids in Metals, Albany, New-
York, USA, June 9-11, 1971. AEC Symposium Series
(CONF-710601). J.W.Corbett and L.C.Janiello (ed.).*
3. *D.J.R.Morris. "Void in Irrdiated Metals" Radiation
Effects, v. 14, 15, 1972.*
4. *G.L.Hulcenski et al. Nucl.Instr. &Meth., 94, 365
(1971).*
5. *Ю.П.Третьяков и др. Препринт ОИЯИ, Р7-4477,
Дубна, 1969.*
6. *А.С.Пасюк, Ю.П.Третьяков. Препринт ОИЯИ
Р7-6668, Дубна, 1972.*
7. *J.L.Brimhall, V.Mastel. J.Nucl.Math., 33, 186 (1969).*
8. *С.Я.Лебедев, С.Д.Панин. ПТЭ №3, 179, 1973.*
9. *В.Н.Быков, А.Г.Вахнин, С.Я.Лебедев, С.Д.Панин.
ФТТ, в. 15, 910, 1973.*
10. *В.И.Кронов, С.Я.Лебедев, В.Н.Быков. АЭ, в. 37,
№10, 343, 1974.*
11. *П.Хирш, А.Хови и др. "Электронная микроскопия
тонких кристаллов", М., 1968.*
12. *W.G.Jonston, Rosolowski, Turkabo. J.Nucl.
Mat., v. 47, no. 2, 1973.*
13. *S.J.Golubov, Yu. V.Konobeev and A. V.Subbotin,
phys.stat.sol., v. 18, no. 2, K81.*

**Рукопись поступила в издательский отдел
17 мая 1975 года.**