

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

97-100

P14-97-100

А.Хофман

ДИСЛОКАЦИОННАЯ МИКРОСТРУКТУРА
АУСТЕНИТНОЙ НЕРЖАВЕЮЩЕЙ
СТАЛИ ООХ17Н14М2, ОБЛУЧЕННОЙ
ВЫСОКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИМИ ИОНАМИ
И НЕЙТРОНАМИ ($E_n > 0,1$ МэВ).

1997

1. Введение

Изменения микроструктуры в результате облучения нейтронами или заряженными частицами существенно влияют на свойства материалов. Физические явления, вызванные в кристаллических телах действием облучения, такие как радиационное упрочнение, низкотемпературное и высокотемпературное радиационное охрупчивание, радиационное распухание можно отнести непосредственно к изменениям в микроструктуре. Радиационная ползучесть и разрушение в результате коррозии под напряжением рассматриваются как динамическое взаимодействие микроструктуры с точечными дефектами: вакансиями, межузельными атомами и атомами примесей.

Вследствие перенасыщения точечными дефектами и их высокой подвижностью взаимодействие дефектов друг с другом и с имеющимися несовершенствами кристаллической решетки в облучаемом материале вызывают изменения, и происходит образование новых линейных двумерных и объемных дефектов.

Процессы, вызванные облучением, являются термоактивированными, поэтому существенную роль в эволюции микроструктуры играет температура облучения. От этого параметра зависят процессы диффузии и радиационная сегрегация, фазовые превращения, объединение вакансий и межузельных атомов в кластеры и дислокационные петли, а также вакансионные поры. Так, количество радиационных дефектов уменьшается с повышением температуры облучения, что связано с увеличением их подвижности и ростом аннигиляционных процессов. Примером такой температурной зависимости является изменение микроструктуры, облученной аустенитной стали типа AISI316 [1-3]. Эта сталь AISI316 рассматривается в качестве кандидатного конструкционного материала для термоядерных реакторов, работающих в диапазоне температур 323 - 673 К [4].

Изменения механических свойств этой стали при относительно низких температурах основаны, главным образом, на результатах их исследований в реакторах на быстрых нейтронах и ускорителях заряженных частиц. Однако в отличие от теоретических моделей эволюция микроструктуры при облучении быстрыми нейтронами и тяжелыми ионами при низких дозах, в указанном температурном интервале облучения, исследована далеко не полностью. Влияние облучения на материалы, вызывающее эволюцию микроструктуры, необходимо рассматривать с начальной стадии облучения, когда начинается рост скопления точечных дефектов (кластеров). Взаимодействие дефектов приводит к образованию кластеров дефектов, дислокационных петель, тетраэдров дефектов упаковки и пор.

Цель настоящей работы - изучение влияния облучения тяжелыми ионами и нейтронами ($E_n > 0,1$ МэВ) при низких дозах облучения на эволюцию дислокационной микроструктуры в зависимости от температуры облучения.

2. Методика эксперимента

В исследованиях использовалась аустенитная нержавеющая сталь ООХ17Н14М2. Данные химического состава этой стали представлены в таблице 1.

Таблица 1. Химический состав стали ООХ17Н14М2 (вес, %)

C	Ni	Cr	P	S	Mn	Ti	Mo	Fe
0,0093	12,9	17,15	0,0036	0,015	1,76	<0,01	2,58	остальное

Образцы для электронно-микроскопических исследований были подготовлены в виде дисков диаметром 3 мм и толщиной 100 мкм и отожжены в вакууме при $P=1,33 \cdot 10^{-3}$ Па при температуре 1323 К в течение 30 мин с последующим охлаждением потоком холодного аргона. Облучение образцов проводилось ионами ^{129}Xe ($E=124$ МэВ) и ^{40}Ar ($E=225$ МэВ) при плотности потока $F=(1,5-3) \cdot 10^{11}$ ион/см²·с при температурах в диапазоне 473 - 923 К до дозы повреждений 0,1-1 с.н.а. Мишенное устройство включало в себя охлаждаемую проточной водой диафрагму, за которой находилась подложка с облучаемыми образцами, имеющая надежный тепловой контакт с нагревательным элементом. Мишенное устройство через изолирующие прокладки крепилось к охлаждаемому водой медному держателю. Нагрев образцов осуществлялся электрическим током и за счет тепла, вносимого пучком ионов. Стабилизация температуры образцов производилась терморегулятором с точностью поддержания температуры до $\Delta T = \pm 5^\circ\text{C}$.

Облучение нейтронами ($E > 0,1$ МэВ) было проведено в реакторе "EWA" и "MARIA" при температурах 353, 473, 573 и 673 К.

Исследования микроструктуры были проведены на электронных микроскопах JEM 100CX и JEM 200CX. Для получения оптимальных условий анализа микроструктуры использовались светлопольное изображение и слабый пучок, а также темнопольное изображение при условиях дифракции $g=(200)$ и $(g,6g)$.

3. Результаты и обсуждения

3.1. Облучение тяжелыми ионами

Как показал ПЭМ анализ, все испытанные образцы содержали дислокационные петли. Там, где был возможен подробный анализ, было обнаружено, что эти петли - межузельные дислокационные [5].

Можно сделать вывод, что межузельные атомы объединяются на плотноупакованных плоскостях [111] в $\geq 95\%$ случаях в петли Франка с вектором Бюргерса $b = \frac{a}{3} [111]$. Оставшиеся петли, присутствующие в материале - это бездефектные петли (призматические) с вектором Бюргерса $b = \frac{a}{2} [110]$.

На рис.1. показаны дефекты, представляющие собой дислокационные петли в стали ООХ17Н14М2, облученной ионами при разных температурах. Микроструктура стали, облученной при температуре 473 К, представляет собой, кроме петель Франка, небольшие кластеры дефектов, видимые как черные точки (black-spot) с размерами 2-4 нм, равномерно распределенные по всему объему (рис.1а.)

В образцах, облученных при 923 К (рис.1б), где средний размер петель достигал толщины фольги, имело место формирование призматических петель, а также сегментов петель и дислокационной сетки. Результаты, полученные при температурах 573, 673, 773 К, хорошо воспроизводились, а при температуре 923 К наблюдалось различие в ряде образцов. Количественные данные, которые были получены из микрофотографий облученных образцов, представлены графически на рис.2-5. Рис.2 и 3 показывают, что концентрация петель понижается, а средний размер возрастает с увеличением температуры облучения. Из рис.4 и 5 видно, что концентрация петель достигает насыщения при определенной дозе облучения. Для более высоких температур насыщение концентрации петель имеет место при более низких дозах облучения.

В зависимости от уровня повреждений микроструктура представляет собой кластеры дефектов, дефектные петли Франка (рис.1), трансформирующиеся в совершенные петли, затем в сетку дислокаций и, наконец, в основную сетку дислокаций [6]. Увеличение температуры облучения ускоряет процесс образования дислокационной сетки.

При относительно низких температурах облучения (ниже $0,3 T_{\text{пл}}$), когда межузельные атомы подвижны, а вакансии малоподвижны, концентрация межузельных дислокационных петель быстро насыщается с дозой (рис.4).

Как известно, с повышением температуры облучения (увеличением подвижности вакансий) продлевается этап зарождения межузельных дислокационных петель [7]. Значительная часть радиационных повреждений в образцах, облученных тяжелыми ионами, создается в каскадах атомных смещений, в частности, за счет атермического схлопывания кластеров в вакансионные петли [8].

В работе [9] установлено, что вакансионные петли образовывались в стали типа 316, облученной ионами хрома ($E=80 \text{ KeV}$). При этом они оказались стабильными до температур порядка 423 К, но имели очень короткий период существования при температурах $\geq 798 \text{ K}$.

В этих экспериментах отмечалась повышенная концентрация вакансионных петель за счет аннигиляции межузельных атомов на поверхности образцов. Благодаря этому происходило более эффективное образование вакансионных кластеров в центре каскадов. Образованные по этому механизму петли имели диаметр в пределах 2-3 нм. Вакансионные петли в зоне повреждений, удаленной от поверхности, как это было в наших экспериментах, могут быть очень небольшого размера. Фактически не наблюдались вакансионные петли при температурах облучения 373, 673 и 773 К. При 573 и 673 К, где плотность вакансионных петель весьма значительна, высокая их концентрация может привести к затруднениям при наблюдении и анализе на электронном микроскопе таких петель малых размеров. При более низких температурах облучения происходит формирование межузельных и вакансионных петель, так как межузельные атомы подвижны. Межузельные петли растут с увеличением дозы облучения, в то время как вакансионные петли медленно уменьшаются за счет абсорбции межузельных атомов. Исходный размер вакансионных петель, образующихся при ионном и нейтронном облучении металлов, настолько велик при низких температурах облучения, что несмотря на последующее их растворение, они сохраняются в течение длительного времени. Таким образом, электронно-микроскопические исследования металлов показали, что в области каскадов смещений обогащение вакансиями приводит к образованию вакансионных петель [10, 11]. Конечную форму выживших вакансионных скоплений определяют термически активируемые процессы.

3.2. Облучение нейтронами ($E_n > 0,1 \text{ МэВ}$)

На рис.6. показана микроструктура стали ООХ17Н14М2, облученной нейтронами ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) при температуре 573 К, а на рис.7. - плотность петель в зависимости от дозы повреждений в с.н.а., Как видно из рисунка, плотность дефектов возрастает с ростом с.н.а., при этом она более чем на

порядок выше, чем в стали, облученной при 373 К [12,13]. Наблюдаемые дефекты (рис.6.) представляют собой дислокационные петли или тетраэдры дефектов упаковки. Их размер слишком мал, чтобы определить их морфологию или кристаллографию, но испытания термической стабильности (см. работу [14]) позволяют предположить, что это межзельные дислокационные петли. Сильный контраст изображения позволяет считать их дефектными петлями Франка с $b = \frac{a}{3} [111]$ [12, 13].

На рис.8. приведены фотографии типичной микроструктуры (изображение – слабый пучок, темное поле) аустенитного сплава Fe-Cr-Ni, облученного нейтронами ($E > 0,1$ МэВ) при низких дозах [15]. В зависимости от температуры облучения наблюдались дислокационные петли, тетраэдры дефектов упаковки и поры. Большие петли идентифицировались как межзельные конвенциональным методом вне внутреннего контраста.

Распределение размеров межзельных петель, сформированных при температурах облучения 673 и 473 К, изображено на рис.9.

Эволюция микроструктуры, как изображено выше, сильно зависит от температуры облучения. В реакторных экспериментах очень трудно поддерживать постоянную температуру. В работе [15] показано, как контроль температуры облучения влияет на распределение размеров дислокационных петель. При “улучшенном” контроле температуры величина желаемой температуры облучения поддерживалась перед началом работы реактора и сохранялась до момента снижения мощности реактора до нуля. При конвенциональном методе контроля температуры необходимо учитывать, что желаемую температуру облучения образец достигает после 10 часов от момента включения реактора, и она поддерживается в течение нескольких часов при охлаждении после выключения реактора. При конвенциональном контроле температуры плотность петель была в три раза меньше, чем при улучшенном контроле, а их размер меньше. Влияние вариации температуры облучения на дислокационную микроструктуру в аустенитном сплаве Fe-Cr-Ni было также подтверждено при облучении тяжелыми ионами.

Механизм формирования межзельных петель в аустенитном сплаве Fe-Cr-Ni при повышенных температурах после облучения электронами был исследован в работе Watanabe и других [16]. При облучении электронами нет каскадов смещений, электроны с энергией 1–10 МэВ вызывают смещение атомов и создают в металлах дефекты в виде отдельных пар Френкеля [17].

Межзельные петли формируются как результат реакции между свободно мигрирующими точечными дефектами, межзельными атомами и вакансиями.

Согласно работе [18] концентрацию межзельных петель C_{LS} в условиях насыщения приблизительно можно описать следующими уравнениями:

$$C_{LS} = 0,4 f (C_M P / M_B)^{1/2} \quad (1)$$

для низких температур и

$$C_{LS} = f (P / M_i)^{1/2} \quad (2)$$

для высоких температур, где P - скорость повреждений (с.н.а./сек), C_M - концентрация примесей, действующих как ловушка для межзельных атомов, и f - эффективность формирования димезулий. M_i и M_B определены следующими уравнениями:

$$\begin{aligned} M_i &= v_0 \exp (-E_m^i / kT), \\ M_B &= v_0 \exp \{ -(E_m^i + E_b) / kT \}, \end{aligned} \quad (3)$$

где E_b - энергия взаимодействия межзельных атомов примесей, E_m^i - энергия миграции межзельных атомов.

Сравнение рассчитанной концентрации межзельных петель с использованием уравнения (1) с экспериментальными данными [16] показало, что концентрации их при 563 К были в три раза выше, чем теоретические значения. Это свидетельствует о том, что большинство межзельных петель зарождаются путем перегруппировки точечных дефектов в субкаскадах, а не из-за реакций между свободными межзельными атомами. Но при облучении при температуре 673 К [16] концентрация межзельных дислокационных петель понижается и хорошо согласуется с данными из уравнения (2). Это свидетельствует о том, что каскады смещений теряют свою преобладающую роль в зарождении петель и что взаимодействие между свободно мигрирующими точечными дефектами управляет процессом зарождения петель при высоких температурах.

4. Выводы

1. Отличительной чертой микроструктуры стали OOX17H14M2, облученной тяжелыми ионами и нейтронами при температурах 473 - 923 К, является дислокационная микроструктура, которая представляет собой межзельные дислокационные петли, средний размер которых возрастает, а концентрация понижается с увеличением температуры облучения.

2. Наблюдаемая высокая плотность межзельных петель не может быть объяснена теорией гомогенного зарождения. Наиболее вероятно, что зарождение петель в диапазоне температур 473 - 673 К является результатом процессов, происходящих в зоне каскадов атомных смещений. При высоких температурах облучения (673 К) концентрация межзельных петель понижается и хорошо согласуется с рассчитанными значениями, полученными из уравнения (2). Из этого следует, что при высоких температурах процесс зарождения петель определяется взаимодействием между свободно мигрирующими точечными дефектами.
3. Электромикроскопические исследования не выявили разницы между изображениями микроструктуры в стали ООХ17Н14М2 после облучения тяжелыми ионами и нейтронами в диапазоне температур 473 - 923 К. Концентрация дефектов после облучения нейтронами и тяжелыми ионами сопоставима с величиной, полученной при облучении при 373 К [14].
4. При конвенциональном контроле температуры образцов плотность петель была в два раза выше наблюдаемой при улучшенном контроле температуры. Облучение при более низких температурах, имеющих место при конвенциональном контроле температуры, приводит к более высокой плотности петель. Это необходимо иметь в виду при сопоставлении результатов облучения в ядерных реакторах.

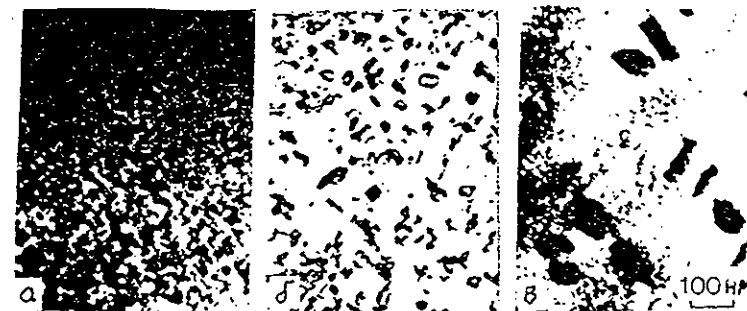


Рис.1. Дислокационная микроструктура стали ООХ17Н14М2, облученной ионами ^{129}Xe ($E=124$ МэВ) до дозы 1 с.н.а. при температурах: а - 473 К, б - 573 К, в - 923 К

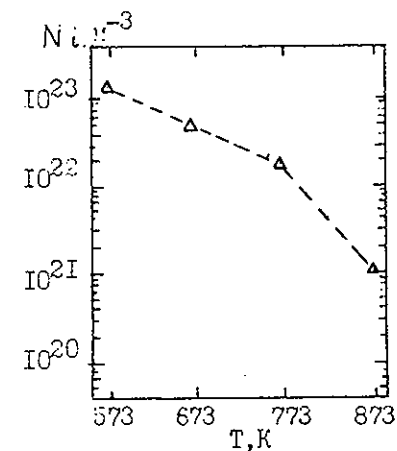


Рис.2. Зависимость концентрации дислокационных петель в стали ООХ17Н14М2, облученной ионами ^{129}Xe ($E=124$ МэВ) от температуры

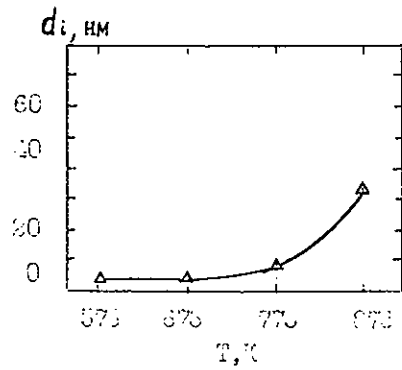


Рис.3. Зависимость среднего размера дислокационных петель в стали OOX17H14M2, облученной ионами ^{129}Xe ($E=124$ МэВ) от температуры

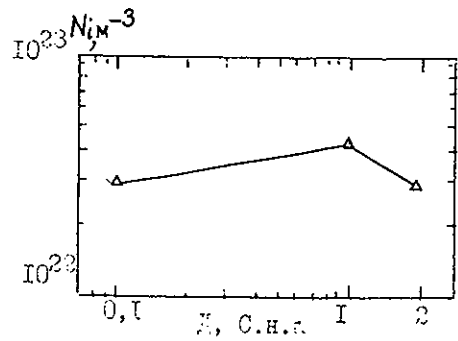


Рис.4. Зависимость концентрации дислокационных петель в стали OOX17H14M2, облученной ионами ^{129}Xe ($E=124$ МэВ) при разных температурах от дозы

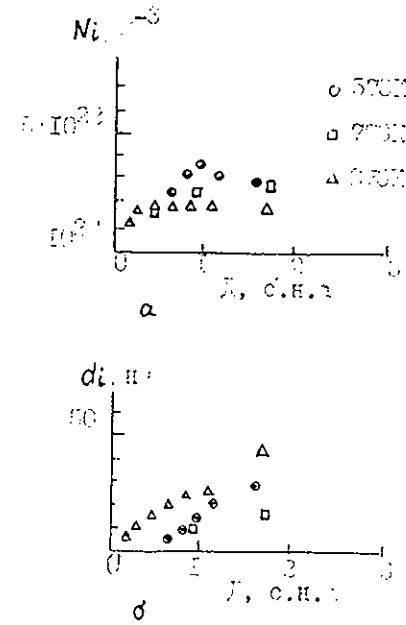


Рис.5. Зависимость среднего размера дислокационных петель (а) и концентрации (б) в стали OOX17H14M2, облученной ионами Ag ($E=225$ МэВ) при разных температурах от дозы

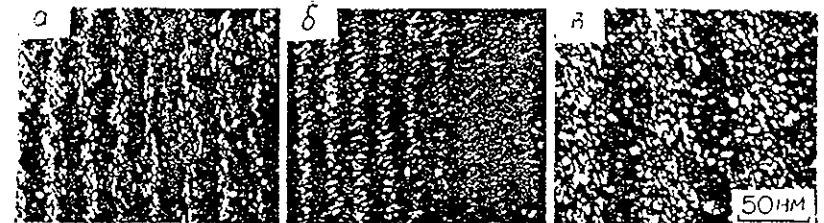


Рис.6. Микроструктура стали OOX17H14M2, облученной нейтронами ($E_n > 0,1$ МэВ) при температуре 573 К. а - 0,0035 с.н.а., б - 0,01 с.н.а., в - 0,03 с.н.а.

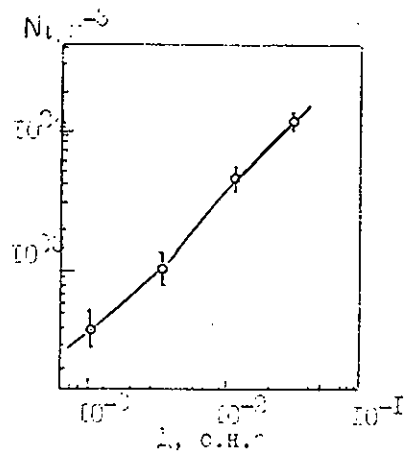


Рис.7. Зависимость концентрации дислокационных петель в стали ООХ17Н14М2, облученной нейтронами ($E_n > 0,1$ МэВ) при температуре 573 К от дозы

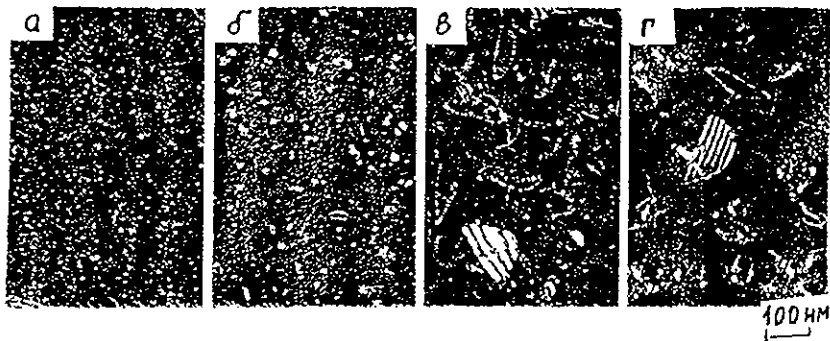


Рис.8. Микроструктура аустенитного сплава Fe-Cr-Ni, облученного нейтронами ($E_n > 0,1$ МэВ) при разных температурах и дозах а - 473 К, 0,037 с.н.а., б - 573 К, 0,054 с.н.а., в - 623 К, 0,16 с.н.а., г - 673 К, 0,14 с.н.а.

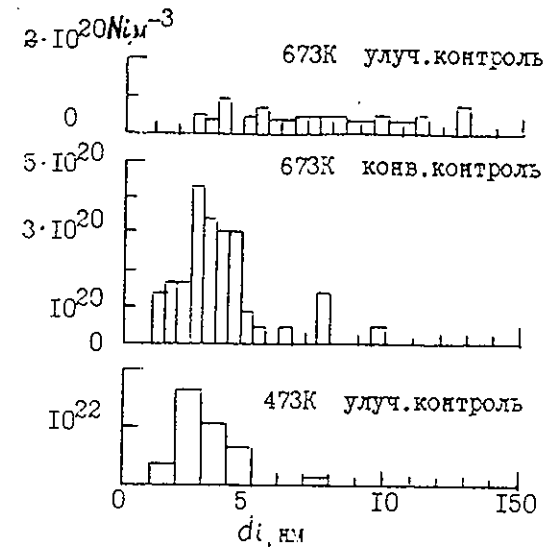


Рис.9. Распределение межзельных петель, сформированных при конвенциональном и улучшенном контроле температуры облучения в реакторе а - 673 К - улучшенный контроль, б - 673 К - конвенциональный контроль, в - 473 К - улучшенный контроль

ЛИТЕРАТУРА

1. Vandervoort R.R., Raymond E.L., Echer C.J. Radiat.Eff., 1980, N45, p.191.
2. Heinisch H.L., Atkin S.D., Martinez C., J.Nucl.Mater., 1986, v.141-143, p.807.
3. Heinisch H.L., J.Nucl.Mater., 1988, v.155-157, p.121.
4. Yoshida N., J.Nucl.Mater., 1990, v.174, p.220.
5. Хофман А., Дидык А.Ю., Коханьски Т., Щеголев В.А. Сообщение ОИЯИ, P14-96-274, 1996.
6. Harries D.R., Proc.Consult.Symp., Harwell, 9-11 Sept., 1974; Rept.AERE-R-7934.
7. Брык В.В., Воеводин В.Н., Марвенко Б.В., Вопр.атом.науки и техники. Сер. физика рад.повреждений и рад.материаловедение, 1983, вып.5, с.12.
8. Kiritani M., CONF-751006-P2: Fundamental aspects of radiation damage in metals: Proc.Int.Conf., Gatlinburg, 6-10 Oct., 1975, Washington (D.C.), 1976, v.2, p.695.
9. Marwick A.D., Piller R.C., Radiat.Eff., 1977, N4, p.245.
10. English C.A., Eyre B.L., Shoaib K., Williams T.M., J.Nucl.Mater., 1975, v.58, p.220.
11. Капинос В.Г., Кеворкян Ю.Р., Вопр.атом.науки и техники. Сер. физика рад.повреждений и рад.материаловедение, 1983, вып.2, с.3.
12. Yoshida N., Akashi Y., Kitajima K., Kiritani M., J.Nucl.Mater., 1985, v.133-134, p.405.
13. Yoshida N., Muroga T., Watanabe H., Araki K., Miyamoto Y., J.Nucl.Mater., 1988, v.155-157, p.1222.
14. Хофман А., Бондаренко Г.Г., Коханьски Т., Красновски М., Щеголев В.А., Радиационная физика твердого тела. VI Межнациональное совещание, Севастополь, 1-6 июля 1996.
15. Yoshida N., Xu Q., Watanabe H., Muroga T., Kiritani M., J.Nucl.Mater., 1992, v.191-194, p.1114.
16. Watanabe H., Aoki A., Murakami H., Muroga T., Yoshida N., J.Nucl.Mater., 1988, v.155-157, p.810.
17. Бондаренко Г.Г., Быстров Л.Н., Иванов Л.И., Платов Ю.М., Успехи физ.наук, 1975, 116, вып.2, с.303.
18. Yoshida N., Murakami H., Muroga T., in: Proc.Int.Symp. on Behaviour of Lattice Imperfections in Metarials, Osaka, 1985, p.18.

Рукопись поступила в издательский отдел
26 марта 1997 года.