

## ВЛИЯНИЕ СОСТОЯНИЯ ГЕЛИЯ В РЕШЕТКЕ МОЛИБДЕНА НА КИНЕТИКУ РОСТА МЕЖДОУЗЕЛЬНЫХ ПЕТЕЛЬ В ВВЭМ

Ш. Ш. Ибрагимов, В. Ф. Реутов, К. В. Ботвин

Приведены экспериментальные данные по росту дислокационных петель междуузельного типа в молибдене при облучении в ВВЭМ при различных температурах. Установлено, что присутствие различных по морфологическому состоянию гелий-вакансионных комплексов оказывает сложное воздействие на кинетику роста междуузельных петель.

Хорошо известно, что в результате облучения материалов нейтронами, особенно в термоядерном реакторе, происходит не только образование радиационных дефектов, но и накопление большого количества гелия в результате ядерных реакций типа  $(n, \alpha)$ .

Установлено, что присутствие в материалах гелия влияет на формирование дефектной структуры как в процессе облучения, так и послерадиационного отжига [1]. В зависимости от температуры облучения или послерадиационного отжига морфологическое состояние гелия в кристаллической решетке изменяется от небольших гелий-вакансионных комплексов ( $He_m V_n$ ) до крупных скоплений в виде газонаполненных равновесных или неравновесных газовых пузырей.

Изучение особенностей влияния морфологии гелий-вакансионных комплексов на развитие дефектной структуры является важным этапом на пути понимания процессов взаимодействия подвижных точечных дефектов с дислокациями, находящимися в поле различных по мощности стоков. Получение подобной экспериментальной информации в последнее время стало возможным в связи с развитием высоковольтной электронной микроскопии (ВВЭМ).

В настоящей работе приведены результаты изучения в ВВЭМ кинетики роста междуузельных дислокационных петель в молибдене с различным по морфологии состоянием гелия в его решетке.

### Методика эксперимента

Равномерное легирование молибденовых фольг гелием до концентрации  $\sim 10^{-2}$  ат. % проводилось при температуре не более 100 °С в процессе облучения альфа-частицами с энергией 29 МэВ, ускоренными на циклотроне [2].

Облученные образцы разбивались на три группы (А, Б, В). Образцы группы А не подвергались послерадиационному отжигу перед экспериментами в ВВЭМ, образцы групп Б и В отжигались при 800 и 1100 °С в течение часа соответственно.

Предварительные исследования данных образцов в просвечивающем электронном микроскопе (ПЭМ) при ускоряющем напряжении 100 кВ показали (рис. 1), что в структуре образцов А наблюдаются скопления радиационных дефектов в виде мелких дислокационных петель, равномерно распределенных по телу зерна. В образцах Б в результате послерадиационного отжига при 800 °С были сформированы междуузельные дислокационные петли и мелкие полости, а в образцах В — дислокационные петли и гелиевые поры, расположенные как в теле зерна, так и на дислокациях.

Маркировка образца	Дислокационные петли		Полости		Гелиевые пузырьки	
	плотность, $\text{м}^{-3}$	средний размер, нм	плотность, $\text{м}^{-3}$	средний размер, нм	плотность, $\text{м}^{-3}$	средний размер, нм
А	$1.5 \cdot 10^{22}$	6	—	—	—	—
Б	$9 \cdot 10^{21}$	12	$10^{20}$	1.5	—	—
В	$2 \cdot 10^{21}$	15	—	—	$1.9 \cdot 10^{22}$	1.6

Количественные характеристики дефектной структуры образцов А, Б, В приведены в таблице.

Для изучения кинетики роста междоузельных петель данные образцы облучались в ВВЭМ электронами с энергией 1 МэВ. Поток электронов составлял  $6 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , что соответствовало скорости генерации точечных дефектов  $\sim 6 \cdot 10^{-4} \text{ сна} \cdot \text{с}^{-1}$  [3]. Ориентация облучаемых участков по отношению к падающему пучку электронов была во всех случаях  $\langle 100 \rangle$ . Образцы облучались в ВВЭМ при 20, 150, 200, 300 и 400 °С. С целью сохранения относительно оди-

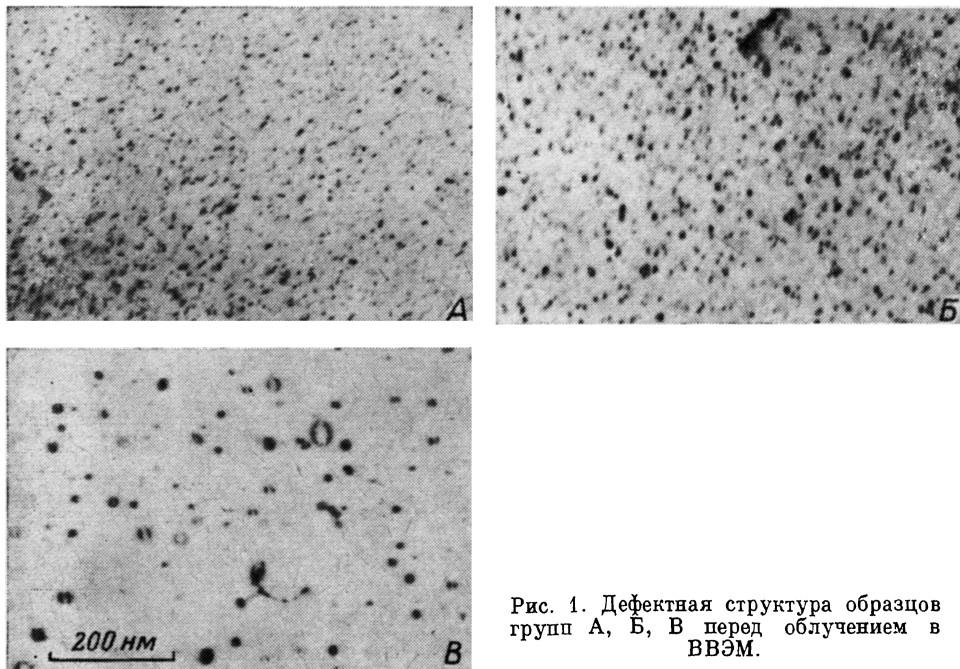


Рис. 1. Дефектная структура образцов групп А, Б, В перед облучением в ВВЭМ.

наковых условий по структурному состоянию изучаемые участки образца выбирались в одном зерне при всех температурах облучения в ВВЭМ.

Из-за незначительного градиента толщины исследуемых объектов было невозможно определить ее величину в ВВЭМ. Однако можно утверждать, что толщина исследуемых в ВВЭМ участков образцов была по крайней мере не меньше 0.2 мкм, поскольку они были «непрозрачными» для электронов с энергией 100 кэВ.

В каждой серии снимков, полученных при облучении образцов в ВВЭМ, исследовались изменения размера междоузельных петель. Их положение в объеме образца во внимание не принималось. Величина скорости роста определялась как средняя из обработки нескольких десятков петель.

## Результаты

Наряду с образцами А, Б, В были проведены исследования в ВВЭМ образцов исходного молибдена. В процессе облучения в ВВЭМ при 20 °С в исходном молибдене происходит образование и последующий рост междоузельных петель

аналогично тому, что имело место в работе [4]. Однако при облучении в температурном интервале 200—400 °С в исходном молибдене не было обнаружено образования скоплений радиационных дефектов, разрешаемых в ВВЭМ за время экспозиции до 25 мин. Причины подобного экспериментального факта пока не ясны. Приписывать поверхности образца роль очень сильного стока, по-видимому, не следует, поскольку она практически не оказывает влияния на формирование дефектной структуры при 20 °С, и ее роль с повышением температуры облучения до 400 °С в молибдене также не является определяющей. В работе [5] при исследовании в ВВЭМ меди показано, что толщина приповерхностного слоя, в котором не происходит зарождения дефектных скоплений,

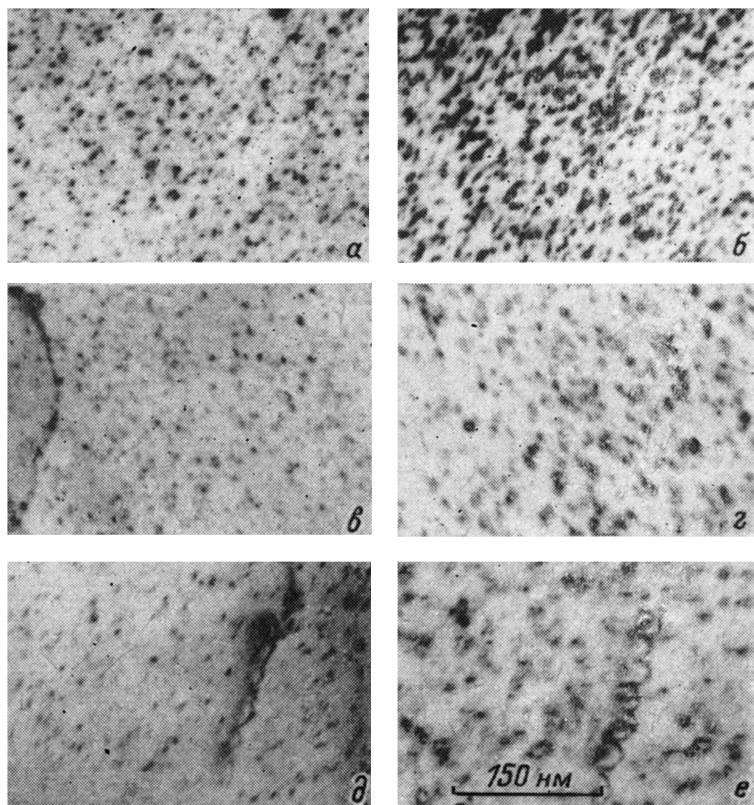


Рис. 2. Дефектная структура образцов группы А в начале и после 15 мин облучения в ВВЭМ при температурах 20 (а, б), 200 (в, з) и 400 °С (д, е).

составляет 5 нм при температуре облучения 100 °С и увеличивается до 25 нм при температуре облучения 350 °С.

Образцы А. Как уже отмечалось, структура данных образцов непосредственно после их легирования гелием до  $10^{-2}$  ат. % характеризуется присутствием скоплений радиационных дефектов как междуузельного, так и вакансионного типа, равномерно распределенных по телу зерна [6], а также не разрешимых в ПЭМ гелий-вакансионных комплексов [7]. На рис. 2 приведены снимки характерных участков образцов А в начальной и конечной стадиях их облучения электронами с энергией 1 МэВ в ВВЭМ при 20, 200 и 400 °С. Прежде всего необходимо отметить, что при температуре облучения 20 °С наблюдается образование «новых» скоплений радиационных дефектов. На рис. 3, а показано изменение среднего размера междуузельных петель в образцах группы А со временем при температурах облучения 20 (1), 150 (2), 300 (4) и 400 °С (5). При этом, как следует из рис. 3, б, скорость роста междуузельных петель при 20 и 150 °С составляет около 0.006 нм/с, увеличивается примерно до 0.008 нм/с при 200 °С и сохраняется на этом уровне при дальнейшем повышении температуры облучения до 400 °С.

Образцы Б. В данных образцах до облучения их электронами разре-  
шаемая в ПЭМ структура представляет собой скопления междоузельных ато-  
мов в виде дислокационных петель и вакансий в виде полостей [8]. Поскольку

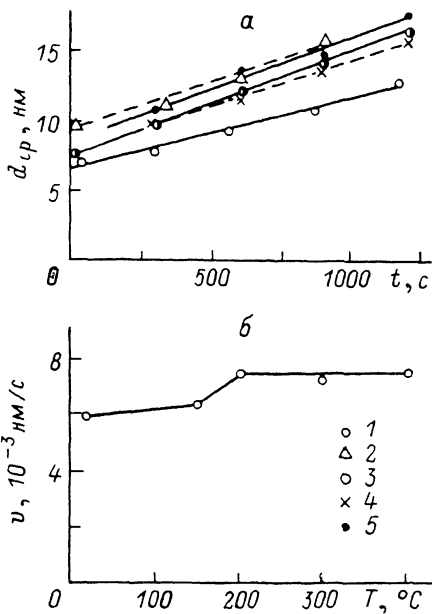


Рис. 3.

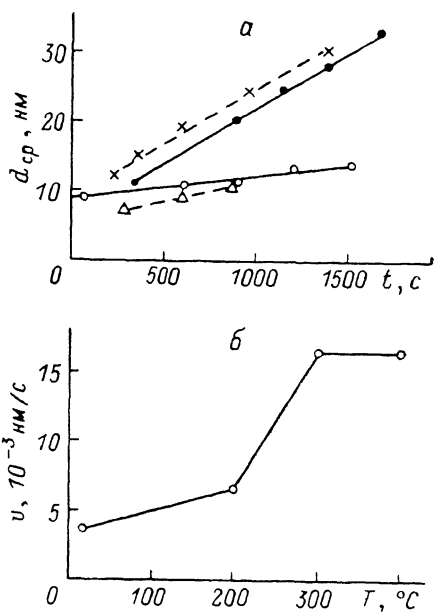


Рис. 4.

в ВВЭМ полости размером до 5 нм не разрешались, а толщина выбранных участ-  
тков была слишком большой для их последующего исследования с помощью  
обычных ПЭМ, то в настоящем эксперименте не представлялось возможным  
получить какую-либо информацию об изменении их размеров. Так же как и в об-  
разцах А, образование «новых» скоплений радиационных дефектов наблюда-  
ется только при температуре облучения 20 °С. Из рис. 4, а видно, что при всех  
температурах облучения образцов группы Б электронами происходит рост  
междоузельных петель, причем величина скорости роста петель растет с тем-  
пературой в интервале 20—300 °С и не меняется в интервале 300—400 °С.  
При температуре 150 °С скорость роста петель соизмерима, а при 300 и 400 °С  
практически в 2 раза выше, чем скорость роста междоузельных петель в об-  
разцах А в аналогичных температурных условиях (обозначения точек на рис. 4  
те же, что и на рис. 3).

Образцы В. В структуре данных образцов (подвергнутых послерадиаци-  
онному отжигу при 1100° С) присутствуют крупные междоузельные дисло-  
кационные петли и гелиевые поры, которые располагаются как в теле зерна,  
так и на дислокационных петлях. Так же как в экспериментах с образцами  
А и Б, было обнаружено, что при температуре облучения 20 °С примерно через  
10 мин на фоне «старых» дислокационных петель появляются «новые», образо-

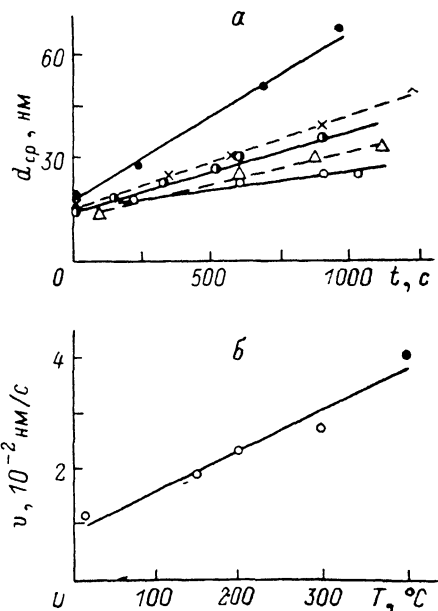


Рис. 5.



ванные в результате облучения электронами. При повышении температуры облучения образование «новых» скоплений радиационных дефектов не наблюдалось. Скорость роста «старых» дислокационных петель при 20 °С была сравнима со скоростями роста междоузельных петель в образцах А и Б, однако при более высоких температурах облучения она была значительно выше. С повышением температуры облучения скорость роста «старых» дислокационных петель монотонно возрастает (рис. 5; обозначения точек те же, что и на рис. 3).

Наряду с вышесказанным в образцах В было обнаружено одно интересное явление: при температуре облучения в ВВЭМ 200 °С и выше периметр растущих

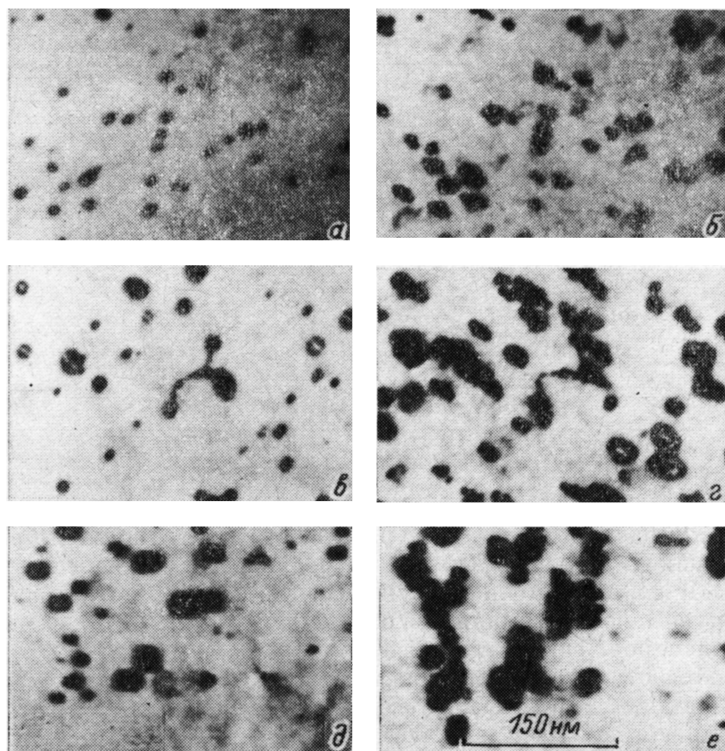


Рис. 6. Дефектная структура образцов группы В в начале и после 15 мин облучения в ВВЭМ при температурах 150 (а, б), 200 (в, з) и 400 °С (д, е).

междоузельных дислокационных петель декорируется мелкодисперсными микроструктурными особенностями (рис. 6). Причем по мере роста основной дислокационной петли с дозой облучения они также увеличиваются в размере.

Таким образом, обобщая полученные экспериментальные результаты по облучению в ВВЭМ, необходимо отметить следующие особенности, характеризующие общие и отличительные черты изменения роста междоузельных дислокационных петель, находящихся в поле различных по состоянию гелий-вакансионных комплексов.

1. Формирование «новых» скоплений радиационных дефектов происходит во всех исследованных образцах молибдена только при комнатной температуре облучения.

2. Скорости роста «старых» дислокационных петель в образцах А и Б слабо зависят от температуры облучения и соизмеримы друг с другом в интервале 20—150 °С. В образцах В скорость роста дислокационных петель в случае облучения при 150 °С более чем в 2 раза выше, чем в образцах А и Б.

3. При температуре облучения 200 °С и выше скорость роста дислокационных петель увеличивается по мере развития в структуре молибдена гелиевой

пористости. Т. е. наименьшая скорость роста наблюдается в образцах, облученных в ВВЭМ непосредственно после легирования гелием, наибольшая — в образцах, в которых сформированы гелиевые поры.

4. В образцах с гелием (А и Б), в которых он находится в начальной стадии развития гелиевой пористости (т. е. в «простейших»  $He_mV_n$  комплексах), наблюдается увеличение скорости роста междоузельных петель с температурой в области 150—300 °С.

5. В образцах группы В скорость роста междоузельных петель монотонно увеличивается с повышением температуры облучения.

6. В образцах В, в которых наряду с дислокационными петлями имеются гелиевые поры, при температурах облучения в ВВЭМ 200 °С и выше имеет место декорирование растущих дислокационных петель микроструктурным особенностями, искажающими правильную форму дислокационных петель.

Настоящие экспериментальные результаты, хотя и не вскрывают причин, тем не менее указывают на то, что присутствие в структуре различных по морфологическому состоянию гелий-вакансионных комплексов оказывает сложное влияние на кинетику роста дислокационных петель. Это может быть вызвано следующими причинами.

«Простейшие» гелий-вакансионные комплексы могут служить стоком для подвижных точечных дефектов, образующихся при облучении в ВВЭМ. Т. е. чем больше плотность таких комплексов, тем меньше скорость роста междоузельных петель.

Послерadiационный отжиг молибденовых образцов, легированных гелием, может повлиять на перераспределение примесей, способствуя тем самым исключению центров захвата подвижных междоузельных атомов. При облучении в ВВЭМ это приводит к увеличению потока подвижных точечных дефектов к дислокационным петлям и, следовательно, к увеличению скорости их роста.

Эти предположения, естественно, требуют не только дальнейших экспериментальных исследований, но и новых теоретических подходов для описания наблюдаемых явлений.

### Литература

- [1] *Wiedersich H., Burton J. J., Katz J. L.* J. Nucl. Mat., 1974, v. 51, p. 287—301.
- [2] *Реутов В. Ф., Ждан Г. Т.* А. с. № 591087. Оpubл. в Б. И., 1980, № 8, с. 227.
- [3] *Makin M. J.* Phil. Mag., 1969, v. 20, p. 1133—1146.
- [4] *Реутов В. Ф.* ЖТФ, 1981, т. 51, № 11, с. 2403—2407.
- [5] *Stathopoulos A. J., Murphy S. M., Wood M. H.* et al. J. Nucl. Mat., 1982, v. 110, N 2—3, p. 301—308.
- [6] *Ибрагимов Ш. Ш., Реутов В. Ф., Ждан Г. Т.* В кн.: Радиационные эффекты в металлах и сплавах. Алма-Ата: Наука, 1985, с. 20—28.
- [7] *Reutov V. F., Abdrashitov I. Yu., Loktionov A. A., Kramar S. F.* Radiation Effects, 1983, v. 71, N 1—2, p. 43—53.
- [8] *Ибрагимов Ш. Ш., Реутов В. Ф., Ждан Г. Т.* ВАНТ. Сер. физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение, 1985, в. 4 (37), с. 57—62.

Институт ядерной физики  
АН КазССР  
Алма-Ата

Поступило в Редакцию  
9 января 1987 г.