

P14-2001-251

А. Хофман*, А. Ю. Дидык

**ЭВОЛЮЦИЯ СТРУКТУРНЫХ ДЕФЕКТОВ
В АЛЮМИНИИ, ОБЛУЧЕННОМ ИОНАМИ
КСЕНОНА**

Направлено в журнал «Физика и химия обработки материалов»

*Институт атомной энергии, Свек, Республика Польша

1. Введение

Преимущества алюминия как реакторного конструкционного материала – сравнительно малое поглощение тепловых нейтронов, высокая теплопроводность, высокая стабильность под облучением, хорошая коррозионная стойкость в воде и на воздухе, обрабатываемость и свариваемость, низкая стоимость и доступность – явились причиной выбора его в качестве конструкционного материала (оболочки твэлов и другие детали и узлы) учебных и исследовательских реакторов.

Он интересен также и потому, что свойства радиационных повреждений (точечных дефектов, кластеров, дислокаций, петель и т.д.) в облученном алюминии хорошо известны и он используется как модельный материал для проведения фундаментальных исследований в физике радиационных повреждений. В исследованиях изменений микроструктуры алюминия после облучения нейтронами, электронами [1] и ионами [2] важную роль играет изучение воздействия ионов газов на структурные, механические и термические свойства облученного алюминия. В исследовательских реакторах в твэлах с оболочкой из алюминия энергетические газовые осколки деления создают поток высокоэнергетических продуктов, доходящих до внутренней поверхности оболочки. Тогда на внутренней стороне алюминиевой оболочки создается слой с радиационными повреждениями, вызванными упругими столкновениями осколков с атомами алюминия, и ионно-имплантированный слой. Например, газовый продукт деления Kr^{85} имеет период полураспада 10,76 лет. Каково его поведение в алюминиевой оболочке после 20 лет пребывания в мокрых хранилищах топлива и планируемого пребывания в сухих хранилищах в течение 50 лет – пока неизвестно. По нашему мнению, для решения этой задачи возможно и необходимо проведение имитационных экспериментов по изучению

поведения газовых осколков деления в Al-оболочке с применением тяжелых ионов.

В работе представлены результаты исследований эволюции микроструктуры и микроскопического поведения пузырьков Хе в Al при облучении ионами Хе⁺ (E=124 МэВ).

2. Методика эксперимента

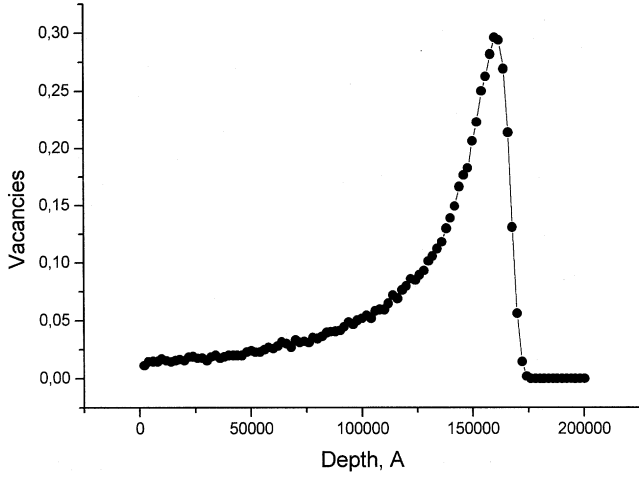
В работе был использован алюминий чистоты 99,99%. Фольга толщиной 86 мкм была отожжена в вакууме при 480°C в течение 8 ч. Образцы для просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), вырезанные из средней части облученной зоны фольги, были приготовлены полировкой в 20%-м растворе хлорной кислоты в этаноле.

Облучение образцов ионами Хе с энергией E=124 МэВ до флюенсов в диапазоне 5×10^{12} - 2×10^{16} см⁻² происходило при комнатной температуре и при 100°C. Профиль повреждения ионами Хе с энергией 124 МэВ в алюминии ($E_d = 15$ эВ) и профиль легирования ионами ксенона, рассчитанные по программе TRIM, показаны на рис. 1.

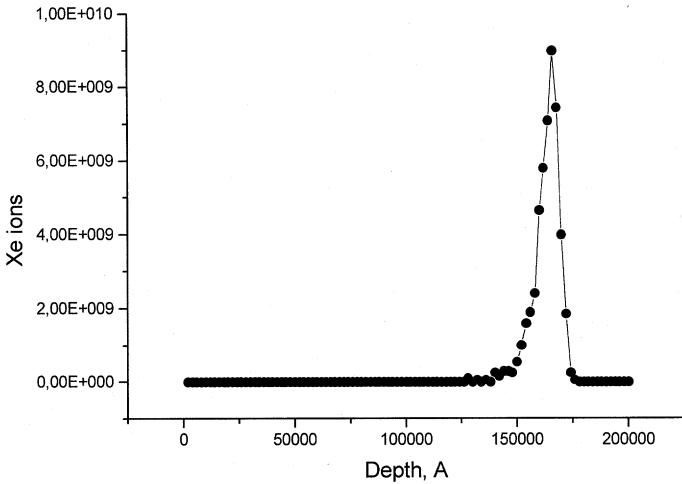
Некоторые образцы после облучения были отожжены в эвакуированных ампулах ($6,5 \times 10^{-5}$ Па) при температуре 480°C в течение 8 ч и при 600°C в течение 4 ч.

3. Результаты исследований и обсуждение

Эволюция микроструктуры алюминия была изучена в зависимости от флюенса и температуры облучения. После облучения низкими флюенсами, менее 10^{13} см⁻², при комнатной температуре микроструктура характеризуется отдельными дислокационными петлями, образованными кластерами подвижных междоузельных атомов, которые «пережили» рекомбинацию с вакансиями. При флюенсах $\sim 10^{15}$ см⁻² наблюдаются



a



б

Рис.1. Профили распределения вакансий (*a*) и ионного легирования (*б*) в Al, облученном ионами Xe ($E=124$ МэВ); $E_d=15$ эВ; флюенс $\Phi t = 10^{14}$ см⁻²

мелкие дислокационные петли междуузельного типа с плотностью $2 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$. Петли растут с увеличением флюенса и достигают при флюенсе $3 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$ размера 10^{-6} см при плотности 10^{12} см^{-2} . При температуре облучения 100°C большие междуузельные петли наблюдаются при флюенсе $3 \times 10^{14} \text{ см}^{-2}$. При флюенсе $> 10^{15} \text{ см}^{-2}$ в микроструктуре появляются пузырьки, которые возникают путем соединения вакансий. При флюенсе $1,3 \times 10^{16} \text{ см}^{-2}$ наблюдается высокая плотность пузырьков ($6 \times 10^{12} \text{ см}^{-2}$) со средним диаметром 4,7 нм (рис.2, 3).

В работе [1] при исследовании микроструктуры алюминия после имплантации ионов Kr^+ при флюенсах $> 6 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$ наблюдается появление дополнительных рефлексов в картине электронной дифракции, которые относятся к криптону в твердой фазе. Выделения твердого криптона окружены пузырьками. Симметрия дифракционной картины от криптона при разных ориентациях Al-матрицы показывает, что выделения имеют структуру ГЦК при увеличении флюенса до $2 \times 10^{16} \text{ см}^{-2}$, когда появляются большие пузырьки. С помощью электронной дифракции установлено, что криптон находится в жидком или газообразном состоянии. Автор предполагает, что с ростом пузырьков происходит фазовое превращение криптона из твердого состояния в жидкое или газообразное. Поведение пузырьков и их взаимодействия с криптоном с ростом флюенса нуждаются в дополнительном исследовании.

Для определения влияния температуры отжига на подвижность пузырьков образцы отжигали при температурах выше температуры облучения.

В образцах, облученных при комнатной температуре, после отжига при 100°C дислокационные петли укрупняются, их величина составляет 10^{-7} см , а плотность - 10^{12} см^{-2} . При больших флюенсах, более 10^{15} см^{-2} , и отжига при 480 и 600°C , появляются пузырьки (рис.3). С увеличением

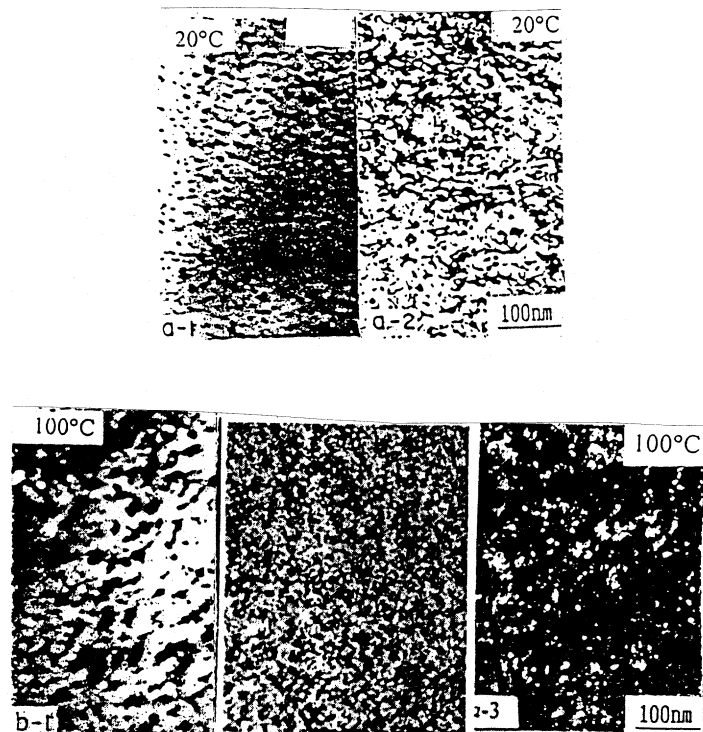


Рис.2. Микроструктура Al, облученного ионами Xe ($E=124$ МэВ) при температуре 20°C и 100°C флюенсами $1,5 \times 10^{14}$ см⁻² (a-1, b-1); $1,5 \times 10^{15}$ см⁻² (a-2, b-2); $1,3 \times 10^{16}$ см⁻² (a-3).

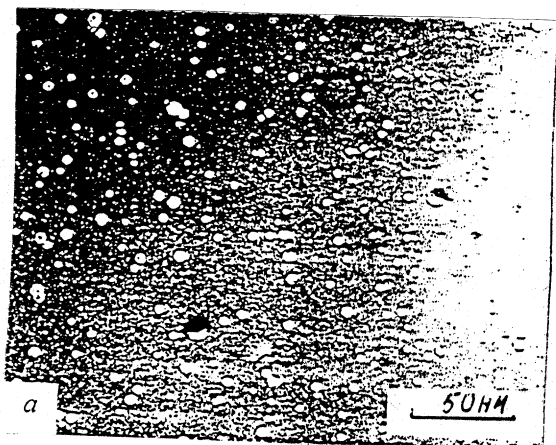


Рис.3. Микроструктура Al, облученного ионами Хе ($E=124$ МэВ) флюенсом $1,3 \times 10^{16}$ см⁻² и отожженого 8 ч при 480°C (a) и 600°C (b).

продолжительности отжига плотность пузырьков понижается, а их размер увеличивается. Распределение пузырьков по размерам в зависимости от времени отжига показано на рис.4.

Возможны два механизма роста пузырьков: а) растворимость малых пузырьков и б) миграция пузырьков и их коалесценция. Наблюдения в электронном микроскопе, выполненные в работе [2], показывают, что наиболее вероятный механизм роста пузырьков – их миграция и коалесценция. Авторы утверждают, что миграция пузырьков контролируется поверхностной диффузией. Этот процесс ограничен образованием плоских граней в случае граненых пузырьков. На основе этого предположения был определен коэффициент диффузии, согласно работам Чена и Коста [4] для температуры отжига 600°C, достаточно высокой, чтобы пузырьки могли перемещаться на расстояние 4,2 нм.

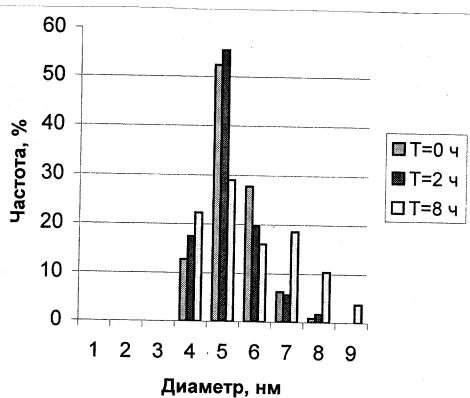


Рис.4. Распределение пузырьков в Al, облученном при 100°C ионами Хе (E=124 МэВ) флюенсом $1,3 \times 10^{16} \text{ см}^{-2}$ и отожженном при 480°C в течение 0, 2 и 8 ч

Очень важно исследовать движение газовых пузырьков ксенона в алюминии во время облучения. Информация об этом явления ограниченная. В опубликованных работах высказано предположение, что миграция пузырьков Kr в Al происходит за счет объемной диффузии [5]. Предполагается, что облучение повышает скорость миграции пузырьков

за счет объемной диффузии посредством радиационно-усиленной диффузии [6]. В работе [3] доказано, что повышение подвижности пузырьков под действием облучения в 2,9 раза превышает значение, вызванное только термическим отжигом.

Для определения состояния отработанного топлива реакторов EWA и MARIA, находящегося в "мокрых" хранилищах, было бы важно определить подвижность газовых осколков деления в оболочках из алюминия как во время работы в реакторе, так и в процессе хранения. Предлагаются исследования подвижности пузырьков в алюминии после облучения ионами ксенона и криптона, а также после облучения нейтронами в реакторе MARIA.

Литература

1. R.C.Birtcher, W.Yagel, Precipitation of Implanted Krypton in Aluminium, J.Nucl. Mater. 135 (1985) 274-276.
2. D.Gavilett, R.Gotthardt, J.L.Martin, W.V.Green, H.Victoria, in Proceedings of 12th Int. Symp. On Effects of Radiation on Materials, F.A.Garner and J.J.Perrin eds., ASTM STP 870 (1985) p.394.
3. Dale E.Alexander, R.C.Birtcher, The Effect of Ion Irradiation on Inert Gas Bubble Mobility, J.Nucl.Mater. 191-194 (1992) 1289-1294.
4. K.Y.Chen, J.R.Cost, J.Nucl.Mater. 52 (1974) 59.
5. H.Yamaguchi, I.Hashimoto, H.Mitsuya, K.Nakamura, E.Yagi, J.Nucl.Mater. 161 (1989) 164.
6. R.Sizmann, J.Nucl.Mater. 69-70 (1978) 386.

Рукопись поступила в издательский отдел
27 ноября 2001 года.

Хофман А., Дидык А. Ю.

P14-2001-251

Эволюция структурных дефектов в алюминии,
облученном ионами ксенона

С помощью просвечивающей электронной микроскопии была исследована эволюция дефектов структуры в чистом алюминии как сразу после облучения, так и после отжига. Фольги алюминия высокой чистоты были облучены ионами Хе с энергией 124 МэВ флюенсом до $2 \cdot 10^{16} \text{Xe}^+ \text{см}^{-2}$ при комнатной температуре и при 100°C . Образцы, облученные ионами Хе⁺ при 100°C , были отожжены при 480 и 600°C . На начальной стадии облучения, при низкой дозе ($\leq 2 \cdot 10^{14} \text{Xe}^+ \text{см}^{-2}$) в структуре наблюдаются изолированные петли дислокаций, а при росте флюенса — их эволюция. При дозах выше $10^{15} \text{Xe}^+ \text{см}^{-2}$ микроструктура характеризуется высокой плотностью мелких пор (пузырьков), которые с ростом флюенса растут и слабо срастаются. При этих условиях наиболее вероятный механизм роста пузырьков — их коалесценция, контролируемая диффузией.

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

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2001

Перевод авторов

Hofman A., Didyk A. Yu.

P14-2001-251

Evolution of Structural Damage in Aluminium Irradiated
with Xenon Ions

Structural defect evolution in high-purity aluminium both as-irradiated and annealed after irradiation has been investigated by transmission electron microscopy. The foils of high-purity aluminium were irradiated with 124 MeV Xe ions with fluence up to $2 \cdot 10^{16} \text{Xe}^+ \text{см}^{-2}$ at room temperature and at 100°C . The samples irradiated at 100°C were annealed at 480 and 600°C . At initial stage of irradiation, at low fluence ($\leq 2 \cdot 10^{14} \text{Xe}^+ \text{см}^{-2}$) the isolated dislocation loops are observed. When ion fluence increased the loops grow. At fluences above $10^{15} \text{Xe}^+ \text{см}^{-2}$ the microstructure is characterized by high-density small voids (pores) which are grown and slowly merged with fluence increasing. For these conditions, the most possible mechanism of pore growth is their diffusion-controlled coalescence.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2001

Редактор М. И. Зарубина. Макет Н. А. Киселевой

Подписано в печать 18.12.2001
Формат 60 × 90/16. Офсетная печать. Уч.-изд. л. 0,5
Тираж 290. Заказ 53017. Цена 50 к.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
Дубна Московской области