

ЗАХВАТ ДЕЙТЕРИЯ НА ЛОВУШКАХ, СОЗДАННЫХ В СТАЛИ X18H10T ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ВЫСОКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИМИ ИОНАМИ АРГОНА

Г.Д. Толстолуцкая, И.Е. Копанец

Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»

ул. Академическая, 1, Харьков, Украина, 61108, тел. 38 057 3353795

g.d.t@kipt.kharkov.ua, kopanets65@mail.ru

Методами ядерных реакций, обратного резерфордовского рассеяния каналированных ионов исследовано поведение изотопа водорода-дейтерия в стали X18H10T при создании повреждений и одновременном внедрении атомов инертного газа (аргона). Установлена повреждаемость структуры на глубине, значительно превышающей пробег ионов аргона. Показано, что увеличение концентрации дейтерия и накопление его в приповерхностном слое при температурах отжига 90 °С связано с диффузией дейтерия из области глубин, превышающих его пробег.

Введение

С началом широкого освоения атомной энергетики стало очевидным, что необходимо понимание всех или хотя бы большинства процессов, ответственных за изменение структурно-фазового состояния и комплекса свойств материалов под облучением. Определение путей контролируемого управления ими позволяет решать задачу создания радиационно-стойких материалов, обеспечивающих надежность и безопасность эксплуатации изделий в активных зонах ядерных реакторов.

В конструкционных материалах реакторов и ядерных установок под действием нейтронов создаются дефекты, и одновременно в процессах трансмутации нарабатываются гелий и водород. Изучение влияния дефектов на процессы удержания и накопления водорода и гелия и определение механизма этих процессов является актуальным в связи с обнаружением синергетического характера поведения этих газов при одновременном их внедрении в материалы и создании повреждений.

Общепринятым считается, что уход дейтерия из зоны внедрения замедляют дефекты, созданные при ионной имплантации. Результаты, приведенные в работе [1], свидетельствуют об эффективном закреплении дейтерия в случае развития гелиевой пузырьковой структуры и расширении температурного интервала захвата и удержания дейтерия в стали X18H10T до ~700 °С.

В настоящей работе приведены результаты исследования поведения изотопа водорода-дейтерия при создании повреждений и одновременном внедрении атомов инертного газа в стали X18H10T при облучении высокоэнергетическими ионами аргона и дейтерия. Сталь X18H10T была выбрана как объект исследования в связи с использованием ее в качестве материала выгородки реактора ВВЭР-1000. Облучение высокоэнергетическими ионами аргона обеспечивало возможность одновременного создания повреждений в решетке материала и внедрения инертного газа. В [2] показано, что инертные газы неон и аргон по характеру своего влияния на развитие газовой пористости могут использоваться вместо гелия.

Методика эксперимента

Для исследований использовали образцы размерами 27×7×0,1 мм³ из стали X18H10T, предварительно прошедшие аустенизирующий отжиг при температуре 1050 °С в вакууме 10⁻⁴ Па в течение одного часа. Образцы полировались в электролите: 54%Н₃РO₄, 11%Н₂SO₄, 21%Н₂O, 14%CrO₃. После электрополировки перед облучением образцы кратковременно отжигали до 900 °С в экспериментальной камере.

Образцы стали X18H10T облучали ионами D₂⁺ с энергией 10 кэВ (5 кэВ/D⁺) до доз в интервале (1-5)·10¹⁶ D/см². Дейтерий внедрялся практически перпендикулярно к поверхности образца. Температура облучения составляла 20, 200 и 300 °С и контролировалась хромель-алюмелевой термопарой. Влияние предварительной и совместной имплантации аргона на накопление и удержание в стали X18H10T дейтерия исследовали при внедрении ионов аргона с энергией 500 кэВ до дозы 5·10¹⁶ см⁻². Ионы аргона внедряли под углом 60° по отношению к перпендикуляру к поверхности образца.

Облучение ионами дейтерия и Ar⁺, а также исследование образцов методами резерфордовского обратного рассеяния каналированных частиц и ядерных реакций проводили на электростатическом ускорителе ЭСУ-2 МэВ в одной экспериментальной камере без извлечения образцов на атмосферу. В [3] было показано, что процессы массопереноса водорода и его изотопов, особенно их выход из образца в вакуум, очень чувствительны к состоянию поверхности, в частности, к наличию окисных пленок.

Геометрия эксперимента определялась необходимостью совмещения пучков аргона и дейтерия на образце при облучении, отжиге образцов и измерении пространственно-концентрационного распределения дейтерия. Распределение по глубине в образцах стали X18H10T было измерено с помощью реакции D(³He,p)⁴He в геометрии обратного рассеяния. Регистрацию атомов реакции D(³He, p)⁴He вели по протонам, энергия которых лежала в пределах 12-14 МэВ. Измерения в геометрии обратного

рассеяния позволяют анализировать глубины до 1,5 мкм.

Для характеристики повреждаемости, создаваемой при облучении стали X18H10T ионами аргона, использовали данные, полученные методом каналирования. В этом случае монокристаллы никеля облучали ионами аргона с энергией 300 кэВ при падении пучка перпендикулярно к поверхности. Никель использовали как модельный материал для изучения нержавеющей стали. Отжиг образцов осуществлялся прямым пропуском тока.

Основная часть

На рис. 1 приведены извлеченные из энергетических спектров профили распределения дейтерия, имплантированного при $T_{\text{комн}}$ до дозы $1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ в образец, с предварительно внедренным до дозы $5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ 500 кэВным аргоном. После облучения при комнатной температуре профили распределения дейтерия при предварительном внедрении аргона имеют большую полуширину и максимальную глубину проникновения до ~0,3 мкм по сравнению с профилями при одиночном его внедрении.

При отжиге до температуры 90 °C ширина профиля на полувысоте практически не меняется, однако общее количество дейтерия в приповерхностной зоне внедрения в образцах с предварительно внедренным аргоном возрастает примерно на 30 % (рис.1).

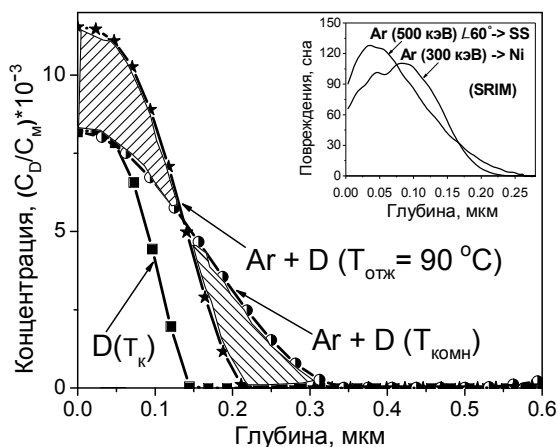


Рис. 1. Профили распределения дейтерия, имплантированного при $T_{\text{комн}}$ одновременно с внедрением аргона: (■) - только дейтерий, (●) - аргон + дейтерий при $T_{\text{комн}}$, (★) - аргон + дейтерий после отжига 90 °C

Увеличение концентрации дейтерия происходит в процессе отжига, когда облучение остановлено. Сравнение экспериментальных профилей распределения дейтерия с расчетными профилями дефектов, создаваемых аргоном, позволяет утверждать, что большая часть ионноимплантированного при $T_{\text{комн}}$ дейтерия захватывается на дефектах, созданных в зоне торможения аргона (см. вставку к рис. 1), остальной дейтерий диффундирует вглубь и

закрепляется в области глубин за профилем аргоновых дефектов.

Возрастание за время остановки облучения средней концентрации имплантированного дейтерия в облученной зоне аустенитной стали X16H15M3T1 наблюдали в работе [4]. Было установлено, что радиационно-индуцированная сегрегация (РИС) дейтерия в этой стали, в отличие от других изученных материалов, нестабильна по аномальному «собирательному» типу. Следует отметить, что в [4] анализ дейтерия заканчивался на глубине меньшей его пробега, поскольку и внедрение и измерения выполняли с помощью ионов только дейтерия, используя реакцию (d,d). В настоящей работе измерения проводились до глубин, существенно превышающих пробег ионов дейтерия и аргона.

Профили распределения дефектов, создаваемых при облучении аргоном, получали из экспериментальных зависимостей выхода обратного резерфордского рассеяния каналированных ионов гелия для исходного монокристалла никеля и кристаллов, облученных ионами аргона с энергией 300 кэВ при комнатной температуре до доз $5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$. Как видно из вставки к рис. 1, профили дефектов для двух рассматриваемых случаев совпадают удовлетворительно.

Профиль повреждений, извлеченный из экспериментальных данных по деканалированию анализирующих частиц, показан на рис. 2.

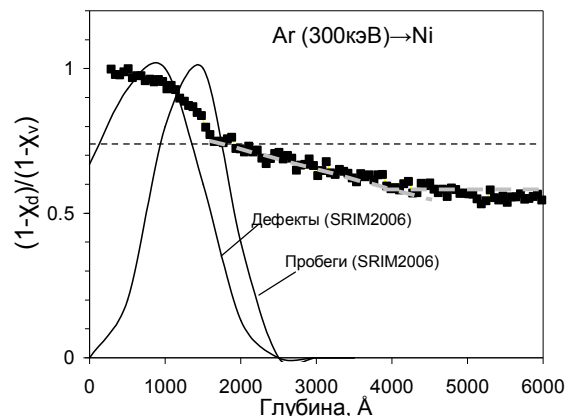


Рис. 2. Экспериментальный профиль повреждений при дозе $5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ и рассчитанные с помощью программы SRIM2006 профили вакансий и пробеги для ионов аргона с энергией 300 кэВ в никеле

При облучении ионами аргона профиль повреждений оказывается достаточно широким и охватывает область глубин, совпадающую с расчетными профилями дефектов и пробеги. Производная параметра деканалирования на глубине равной $R_p + \Delta R_p$ не выходит на постоянный уровень. Снижение производной указывает на развитие повреждений структуры, которые простираются на глубину ~400 нм (рис.2, серый пунктир), превышающую пробег + страгглинг. Увеличение деканалирования на этих глубинах свидетельствует о разупорядочении исходной структуры.

Повреждаемость кристалла на глубину, значительно превышающую пробег облучающих ионов, была обнаружена в [5]. На атомном уровне с помощью полевой ионной микроскопии проведено наблюдение радиационных дефектов и изучено структурное состояние чистого иридия после облучения ионами аргона. В имплантированном иридии обнаружена ультрадисперсная блочная структура, которая сохранялась на расстоянии до 50 нм от облученной поверхности, в то время как проективный пробег ионов аргона в иридии составляет не более 10 нм при используемых режимах имплантации. По мнению авторов, наблюдаемые деформационные эффекты, скорее всего, обусловлены ударным воздействием ионного пучка.

В настоящей работе методом электронной микроскопии для образцов никеля, облученных ионами аргона до дозы $5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ при комнатной температуре, обнаружено образование полостей, в которых аргон находится в твердом состоянии. Возможной причиной наблюдаемых особенностей в профилях распределения протяженных дефектов может быть создание за счет растяжения решетки вокруг пузырьков с твердым инертным газом упругих напряжений, с эффектом дальнего действия на глубину превышающую $R_p + \Delta R_p$.

Дейтерий, имея при комнатной температуре коэффициент диффузии $D \sim 1 \cdot 10^{-12} \text{ см}^2 \text{ с}^{-1}$ (сталь X18H10T), за время облучения захватывается во всей зоне повреждения (рис. 1, профиль Ar+D ($T_{\text{комн}}$)). Аномальное увеличение концентрации дейтерия в приповерхностной области при отжиге связано с выходом дейтерия из ловушек, расположенных на глубине 0,2-0,3 мкм, и миграции его в область большей радиационной повреждаемости (рис. 1, профиль Ar+D ($T_{\text{отж}}=90^\circ\text{C}$)).

Закключение

С использованием ядерно-физических методов и электронной микроскопии исследовано поведение изотопа водорода-дейтерия в стали X18H10T при создании повреждений и одновременном внедрении атомов инертного газа облучением высокоэнергетическими ионами аргона и дейтерия. Установлено, что увеличение концентрации дейтерия и накопление его в приповерхностном слое при температурах отжига 90°C связано с диффузией дейтерия из области глубин, превышающих его пробег. Предположено, что захват дейтерия на глубинах, превышающих его пробег, связан с созданием упругих напряжений за счет растяжения решетки вокруг пузырьков с твердым инертным газом.

Список литературы

1. Tolstolutskaia G.D., Ruzhytskiy V.V., Kopanetz I.E., Karpov S.A., Bryk V.V., Voyevodin V.N., Garner F.A. Displacement and helium-induced enhancement of hydrogen and deuterium retention in ion-irradiated 18Cr10NiTi stainless steel // J. of Nucl. Mater. – 2006. – Vol. 356 – P. 136.
2. Marochov N., Goodhew P.J. // J. of Nucl. Mater. – 1988. – 158. – P. 81-86.
3. Карпов С.А., Ружицкий В.В., Толстолуцкая Г.Д. Влияние пассивирующей пленки на удержание ионно-имплантированного дейтерия в нержавеющей стали типа 18-8 // Альтернативная энергетика. – 2007. – №6. – P. 44–49.
4. Arbuzov V.L., Raspopova G.A., Danilov S.E., Druzhkov A.P., Zouev Yu.N. The interaction of deuterium and tritium with radiation other defects in austenitic steel and nickel // J. of Nucl. Mater. – 2000. – Vol. 283-287. – P. 849-853.
5. Ивченко В.А., Сюткин Н.Н. Полевая ионная микроскопия деформационных эффектов в приповерхностном объеме ионно-имплантированных металлов (Ir) // Письма в ЖТФ. – 1999. – Т. 25. – Вып. 6. – С. 60-64.

CAPTURING OF DEUTERIUM ON THE TRAPS CREATED BY HIGH-ENERGY ARGON IONS IN 18Cr10NiTi STEEL

G.D. Tolstolutskaia, I.E. Kopanets

National science center "Kharkov institute of physics and technology"
Akademicheskaya street, 1, Kharkov, Ukraine, 61108, 38 057 3353795
g.d.t@kipt.kharkov.ua, kopanets65@mail.ru

The nuclear reactions and channeling experimental techniques were applied to investigate (study) the behavior of the deuterium (hydrogen) in the case of simultaneous damage production and inert gas impurity introduction in 18Cr10NiTi stainless steel irradiated by high energy argon ions. The damage structure was detected (observed) at a depth much greater than the calculated argon ions range. It is shown that increasing of the deuterium concentration and its accumulation in the surface layer during annealing at temperatures of 90°C occurs due to the reverse (back) deuterium diffusion from the depths exceeding its implantation range.