

氢对铁中缺陷行为的影响*

万发荣¹⁾ 朱晓峰 肖纪美 袁 逸

北京科技大学材料物理系, 北京, 100083

1989 年 9 月 26 日收到

本文研究了铁中氢与辐照缺陷的相互作用。氢与这些缺陷结合, 形成不同类型的氢与缺陷的复合体。在从低温到高温的时效过程中, 可以清楚地观察到间隙型位错环($>300^{\circ}\text{C}$)、空位型位错环($>450^{\circ}\text{C}$)和空洞(520°C)的形成。研究表明, 这三种缺陷分别是氢与间隙原子、氢与单个空位、氢与复数个空位等三种复合体聚集而成。

PACC: 6170; 6180; 2852

一、引 言

作为 21 世纪的理想能源, 核聚变反应的研究受到了越来越广泛的重视。而核聚变反应堆第一壁材料的研究也日益成为一个非常紧迫的课题。

与核裂变反应相比, 核聚变反应不仅会产生大量的高能中子, 而且还将伴有许多氢、氦等气体元素的发生。这些气体元素将会影响第一壁材料的抗中子辐照性能。

近年来, 有关氢与辐照缺陷的相互作用, 已有不少报道。但是关于氢与辐照缺陷的相互作用, 却研究不多, 其原因可能是一般认为高温时氢的影响太小, 以至可以忽略不计。但是, 作者在研究 316 奥氏体钢时, 发现氢对辐照缺陷的形成有着明显的影响^[1]。

铁素体钢由于其抗辐照性能优于奥氏体钢而被认为是第一壁材料较为理想的候补合金。因此本文以纯铁作为基础研究的试样, 以探讨铁素体钢中氢对辐照缺陷行为的影响, 为将来核聚变反应堆第一壁材料的研究和设计提供参考。

二、实 验 方 法

本实验采用的纯铁试样的化学组成为:

C: 0.006, Ni: 0.003, Si: 0.002, Mn: 0.002,

P: 0.001, S: 0.005, N: 0.001, Fe: Bal (wt%)

试样冷压至 0.1mm 厚, 冲制成直径为 3mm 的圆片。在 700°C 温度下真空退火 1h,

* 国家自然科学基金资助的课题。

1) 中国高等科学技术中心(世界实验室)凝聚态与辐射物理分中心。

水冷至室温,然后利用双喷电解装置减薄成电子显微镜观察用薄膜。电解液为高氯酸:醋酸=1:15。

薄膜充氢实验在离子加速器上进行。离子加速电压为 100keV,充氢温度为室温,充氢量为 1×10^{21} 离子数/ m^2 。利用 TRIM3D 程序计算结果表明,氢离子和辐照缺陷在试样厚度方向分布的平均深度为 580 和 500nm。薄膜试样充氢后,利用 1000keV 超高压电子显微镜进行观察、时效以及电子束辐照等实验。各温度下的失时效时间均为 30min 左右。电子束辐照的目的是为了区分不同性质的位错环。同时,利用 200keV 电子显微镜进行部分观察实验。

三、实验结果

室温下进行氢离子注入后的试样,在电子显微镜下可以观察到其中有大量的辐照缺陷,如图 1(见图版 I)所示。这些缺陷密度大,尺寸小,以至难以将其互相区别开来。氢将会被这些辐照缺陷所捕获,而比较安定地残存于试样中。

充氢试样在 300—450℃ 时效时,可以明显地观察到尺寸较大的位错环。此时进行电子束辐照,这些位错环将不断长大,如图 2(见图版 I)所示。经分析这些位错环都是间隙型位错环。低于 450℃ 时,时效时形成的间隙型位错环的数密度随时效温度升高而减少,其平均尺寸则随时效温度升高而增大。

450℃ 时效时,开始有两种不同类型的位错环形成。在电子束辐照下,其中一种位错环不断长大,而另一种位错环则逐渐缩小以至最后消失,如图 3(见图版 I)所示。经过内衬-外衬实验方法判定,这种在电子束辐照下不断缩小的位错环为空位型位错环。

一般离子注入或辐照实验中,在铁中所能观察到的位错环都是间隙型位错环,它们在电子束辐照下都将不断长大^[2]。本实验中观察到空位型位错环的产生,说明氢与缺陷的结合有其特殊性。

在 450—500℃ 范围内,随着时效温度的升高,所形成的间隙型位错环的相对数密度和平均尺寸都逐渐减少。到 500℃ 时,所形成的位错环全部是空位型位错环。但空位型位错环的绝对数密度随着时效温度的升高而减少,其平均尺寸则随时效温度的升高而增大。

当时效温度升至 520℃ 时,已观察不到位错环的形成。然而此时,不论在晶界还是在晶粒内部,都产生了大量的空洞,如图 4(见图版 I)所示。从这些空洞计算得到的肿胀量 (swelling) 约等于 5%。

由于电子显微镜试样加热台的限制,没有进行 520℃ 以上温度的时效实验。

四、讨 论

氢离子注入时,试样中产生的缺陷除了单个的间隙原子 I 或空位 V 之外,由于雪崩效应,还会产生由复数个间隙原子或空位组成的间隙原子团 I_n 和空位团 V_n 。这四种缺陷都可以成为氢的陷阱。因此,氢离子注入后的试样中可能存在 H-I, H-V, H- I_n , H- V_n 四

种氢和缺陷的复合体。

低温时效(300—450℃)时, H-I 和 H-I₂ 两种复合体开始移动并聚集成间隙型位错环。高压电子束辐照时, 会产生大量的间隙原子和空位, 即点缺陷对 (frenkel pair)。一般来说, 间隙原子比空位更易移动, 所以这些间隙型位错环在电子束辐照下会吸收间隙原子而不断长大。这种间隙型位错环在其他离子注入或辐照实验中经常可以观察到。只是由于氢的存在而使形成间隙型位错环的时效温度有所增加。

当时效温度升到 450℃ 以上时, H-V 复合体开始移动。450—500℃ 范围内, 间隙型位错环的平均尺寸逐渐减少是因为 H-V 复合体吸附于间隙型位错环上的缘故。同时, H-V 复合体本身也聚集在一起形成空位型位错环。电子束辐照下, 这些空位型位错环吸收间隙原子而不断缩小。

至于为什么 H-V 复合体聚集生成的是空位型位错环而不是空洞, 尚不清楚。可能这与氢在空位处被捕获的位置有关。曾有报道认为, 铝中氢在空位处被捕获的位置不是空位的中心而是空位旁边的四面体间隙^[3]或八面体间隙^[4]。如果铁中氢在空位处的被捕获位置同样也不在空位中心, 氢与空位结合形成的复合体将呈哑铃状, 具有明显的各向异性。这些哑铃状的 H-V 将沿某一平面聚集, 最后形成了空位型位错环。

到 520℃, H-V₂ 复合体开始移动。与 H-V 不同, H-V₂ 聚集后形成空洞。实验结果表明, 试样中 H-V₂ 复合体的数量远比 H-V 多。

由于缺乏 520℃ 以上的实验结果, 对空位团的组成情况尚明白了。

五、结 论

1. 氢离子注入后的纯铁试样在低温(300—450℃)时效时, 只有间隙型位错环形成。在 450℃ 以上时效时, 除了间隙型位错环外, 开始有空位型位错环形成。到 500℃ 时, 间隙型位错环不再出现, 只有空位型位错环形成。时效温度升至 520℃ 时, 有大量的空洞产生。

2. 氢离子注入后在试样中可以形成 H-I, H-I₂, H-V, H-V₂ 等四种氢与缺陷的复合体。前两种复合体聚集后形成间隙型位错环, H-V 复合体聚集后形成空位型位错环, H-V₂ 复合体聚集后则形成空洞。

[1] S. Ohnuki, H. Takahashi, T. Takeyama and P. Wan, *J. Nucl. Mater.*, 133/134(1985), 459.

[2] K. Kiritani, N. Yoshida, H. Takata and Y. Maehara, *J. Phys. Soc. Japan*, 38(1975), 1677.

[3] D. S. Larsen and J. K. Neskov, *J. Phys. F*, 9(1979), 1975.

[4] F. Perrot and M. Pasolt, *Phys. Rev.*, B23(1981), 6534.

EFFECT OF HYDROGEN ON THE BEHAVIOUR OF IRRADIATED DEFECTS IN IRON

WAN FA-RONG ZHU XIAO-FENG XIAO JI-MEI YUAN YI

Department of Materials Physics, Beijing University of Science and Technology, Beijing, 100083

(Received 26 September 1989)

ABSTRACT

The interaction between hydrogen and irradiated defects in iron was studied. Different kinds of complexes of hydrogen and defects would form if hydrogen was trapped by the defects. During aging at various temperatures, it was observed that interstitial-type loops formed above 300°C, vacancy-type loops formed above 450°C and voids formed at 520°C. We consider that such complexes as H-I or H-L, H-V and H-V, result in interstitial-type loop, vacancy-type loop and void, respectively.