

注氢纯铝中间型位错环一维迁移现象的原位观察

李然然 张一帆 殷玉鹏 渡边英雄 韩文妥 易晓鸥 刘平平 张高伟 詹倩 万发荣

In-situ study of one-dimensional motion of interstitial-type dislocation loops in hydrogen-ion-implanted aluminum

Li Ran-Ran Zhang Yi-Fan Yin Yu-Peng Watanabe Hideo Han Wen-Tuo Yi Xiao-Ou Liu Ping-Ping
Zhang Gao-Wei Zhan Qian Wan Fa-Rong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 016102 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20211229

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211229>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

注氢纯铝中间隙型位错环一维迁移现象的原位观察*

李然然¹⁾ 张一帆²⁾ 殷玉鹏¹⁾ 渡边英雄³⁾ 韩文妥¹⁾
易晓鸥^{1)†} 刘平平¹⁾ 张高伟¹⁾ 詹倩¹⁾ 万发荣¹⁾

1) (北京科技大学材料科学与工程学院, 北京 100083)

2) (合肥工业大学材料科学与工程学院, 合肥 230009)

3) (九州大学应用力学研究所, 福岡 8168580)

(2021年7月1日收到; 2021年9月13日收到修改稿)

核聚变堆材料在高速粒子辐照过程中会产生大量点缺陷, 导致辐照脆性和辐照肿胀等现象. 因而, 研究点缺陷在辐照过程中的演变过程至关重要. 点缺陷团簇的一维迁移现象是这种演变过程的主要研究内容之一. 本文采用普通低压 (200 kV) 透射电镜, 在室温条件下对注氢纯铝中的间隙型位错环在电子辐照下的一维迁移现象进行了观察和分析. 在 200 keV 电子辐照下, 注氢纯铝中的位错环可多个、同时发生一维迁移运动, 也可单个、独立进行一维迁移运动. 位错环沿柏氏矢量 $1/3\langle 111 \rangle$ 的方向可进行微米尺度的一维长程迁移, 沿柏氏矢量 $1/2\langle 110 \rangle$ 的方向一维迁移也可达数百纳米. 电子束辐照时产生的间隙原子浓度梯度是引起位错环一维迁移并决定其迁移方向的原因. 位错环发生快速一维迁移时, 其后会留下一条运动轨迹; 位错环一维迁移的速率越快, 运动的轨迹则越长, 在完成迁移过后的几十秒内这些运动轨迹会逐渐消失.

关键词: 一维迁移, 电子束辐照, 位错环, 铝

PACS: 61.80.-x, 61.72.J-, 61.80.Fe, 68.37.Lp

DOI: 10.7498/aps.71.20211229

1 引言

材料的辐照损伤是核反应堆材料, 尤其是核聚变堆材料所要面临的重要问题. 核聚变堆材料在聚变堆运行过程中, 将会受到高能中子的辐照, 产生辐照点缺陷 (间隙原子和空位). 这些点缺陷是形成所有辐照缺陷团簇的基础, 可以聚集形成位错环、层错四面体及空洞等^[1]. 在辐照过程中, 间隙原子与空位是成对产生的, 二者的总数量相等. 如果间隙原子和空位相互结合, 可以相互抵消间隙原子和空位, 从而恢复到点缺陷产生之前的状态. 然而, 由于间隙原子和空位的特性差别很大, 间隙原子的

形成能远大于空位的形成能, 而间隙原子的迁移能远小于空位的迁移能^[1-3]. 因而, 在辐照过程中间隙原子和空位的不同演变过程, 导致了辐照肿胀和辐照脆化等材料辐照损伤现象^[3,4].

间隙原子和空位在辐照过程中呈现出这种行为, 可称之为偏压. 偏压有两种形式: 产生偏压 (production bias) 和陷阱偏压 (sink bias)^[5]. 在辐照级联过程的中心区域, 存在的主要是空位, 而间隙原子则分布在空位区域外. 这种区域之间形成的空位和间隙原子的浓度差异, 称为产生偏压. 产生偏压对于辐照肿胀形成过程中的空洞形核具有重要意义. 在材料中能够大量吸收点缺陷的区域称之为点缺陷阱. 对于有些点缺陷阱来说, 吸收间

* 国家自然科学基金 (批准号: 11875085) 和国家留学基金 (批准号: 201806460050) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xiaouyi@ustb.edu.cn

隙原子的数量可能远超过空位的数量. 表征这一差异的量称为陷阱偏压. 辐照产生的间隙型位错环是陷阱偏压形成的主要来源. 陷阱偏压主要通过三维运动来吸收单个的间隙原子. 而产生偏压则表现为间隙型位错环的一维迁移现象. 间隙型位错环的一维迁移现象的出现, 使得其输送间隙原子的能力远超过单个点缺陷的三维扩散, 导致更多的间隙原子被输送到晶界和材料的表面, 加剧了材料中间隙原子和空位的浓度差别, 从而加剧了材料的辐照损伤^[5].

因此, 位错环的一维迁移引起了研究人员的广泛关注^[5-10]. 分子动力学模拟结果显示, 即使应力为 0, α -纯铁中柏氏矢量为 $\mathbf{B} = 1/2\langle 111 \rangle$ 、直径小于几纳米的间隙型位错环也能沿其柏氏矢量方向做快速一维滑移扩散^[11,12]. Osetsky 等^[13]发现在体心立方金属中小空位和间隙型位错环的热演化可以产生原子位移, 从而产生原子输运, 即: 小尺寸位错环的一维迁移是由于原子的热振动而发生的, 而非应力作用. 另一方面, 含有杂质原子的金属在电子或者中子辐照下, 间隙型位错环也可以发生一维迁移, 却容易被杂质陷阱所捕获^[14,15]. 入射电子轰击杂质原子使其离位, 从而使被捕获的间隙型位错环挣脱束缚, 恢复为自由团簇. 此后自由团簇因较低的迁移能垒而发生快速一维迁移, 直到被另一杂质原子或者缺陷捕获^[2,16,17]. 以前一般认为, 只有自间隙原子团簇才会出现一维迁移现象. 但是, 现在也有一些关于空位型位错环的一维迁移现象的研究^[18,19]. Matsukawa 和 Zinkle^[19]发现纳米尺寸的空位团簇可表现出一维快速迁移, 其迁移率高于单个空缺随机迁移, 可与单个自间隙原子随机迁移率相当.

国内外在位错环一维迁移方面的研究主要表现为两大特点. 一方面, 文献报道的间隙型位错环一维迁移尺度多为短程 (纳米尺度)^[12,20-22]. Wirth 等^[21,22]发现含有 91 个间隙原子的团簇经过 135 ps 后只迁移了 6 nm, 而含有 19 个间隙原子的团簇经过 25 ps 后可迁移 4.9 nm. Arakawa 等^[23]通过透射电镜的原位观察发现在 190—373 K 温度范围内, 在电子辐照下 Fe 中位错环可进行 40 nm 内的一维迁移现象, 而在相同的条件下, Fe-9 wt%Cr 合金内观察到了 15 nm 内的位错环的一维迁移运动. 另一方面, 间隙型位错环的一维迁移研究大部分是基于加速电压为 1000 kV 或者更高

的超高压电镜而开展的^[16,24-27]. Hamaoka 等^[24]通过超高压电镜发现硅和铜作为铁中的合金元素可以降低位错环一维迁移的频率和距离; Hayashi 等^[25]发现相比于纯金属, 杂质对合金材料中的间隙原子团簇的一维迁移的影响要小的多; Satoh 等^[26]发现一维迁移的距离与温度有很大关系, 在温度高于 250 K 时, 一维迁移距离可以长达 100 nm 以上; 而在 150—250 K 范围内, 一维迁移距离急剧降低; 到达 150 K 以下时, 一维迁移距离小于 20 nm.

关于点缺陷团簇或者位错环的一维迁移, 仍有许多尚未明确的问题. 例如, 决定它们一维迁移方向与柏氏矢量 \mathbf{B} 的方向正向平行或反相平行的因素尚不明确, 需要进一步研究. 针于国内外超高压电镜实验平台较为匮乏的现象, 本文利用了加速电压为 200 kV 的普通电镜作为电子束辐照源, 在室温条件下对注氢纯铝中间隙型位错环的一维迁移进行了观察和研究. 200 kV 的普通电镜在纯铝中所能产生的最大离位能量可达到 19.5 eV, 而纯铝的击出阈值仅为 16 eV^[28]. 因而, 利用普通电镜可以观察到注氢纯铝中间隙型位错环的一维迁移现象, 进而研究有关位错环一维迁移的相关问题.

2 实验

所用试样为纯度 99.99 wt% 的铝片. 首先将 0.12 mm 厚的纯铝样品进行冲孔、抛光、超声清洗得到 0.1 mm 厚、直径 3 mm 的圆片. 然后利用电解双喷的方法制备透射电镜用薄膜样品, 双喷条件为: 电压约 18 V, 温度 -25 °C 左右, 电解液为 25% 硝酸 + 75% 甲醇溶液 (体积分数). 利用日本九州大学的离子加速器, 进行室温下的氢离子注入, 注入能量为 30 keV, 注入剂量为 5.0×10^{16} ions·cm⁻². 利用 SRIM-2013 软件计算了氢离子注入后纯铝中的辐照损伤值 dpa 和氢离子浓度随着样品深度的分布, 如图 1 所示^[29,30]. 由图 1 中可以看出, dpa 和氢离子浓度分布的峰值均在 250 nm 左右, 而纯铝样品在加速电压为 200 kV 的透射电镜下能够观察的厚度极限约为 250 nm^[31]. 因而, 30 keV 氢离子注入后纯铝中辐照损伤峰值处于透射电镜能够观察的厚度范围内, 可以观察到离子注入过程所形成的点缺陷团簇. 透射电镜实验在 JEM-2000 上进行, 电子束辐照能量为 200 keV, 实验温度为室温.

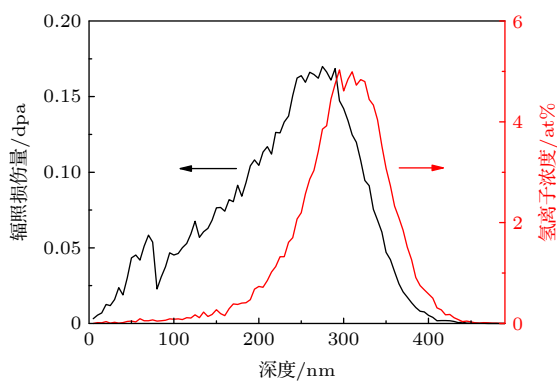


图 1 由 SRIM-2013 计算得到的注氢纯铝的辐照损伤值和氢离子浓度随样品厚度的分布

Fig. 1. Depth profiles of displacement damage (dpa) and hydrogen concentration (H, at.%) of ion irradiations in pure Al calculated by SRIM-2013 software.

3 结果与讨论

3.1 电子束斑辐照位置对间隙型位错环一维迁移的影响

对于氢离子注入的纯铝样品,在室温下进行电子辐照,观察到位错环的一维迁移现象,如图 2 所示.图 2(a) 为运动学双束条件下的电子衍射图 ($g = 111$)、位错环的一维迁移方向以及与其柏氏矢量方向最相近的两组晶向 $[111]$ 和 $[011]$.在双束条件下,除透射电子束以外,只存在一束较强的衍射束 (hkl) 精确地满足或接近布拉格条件.在这种条件下,衬度会对弱的晶格应变很敏感,所以更易观察材料中小的缺陷团簇,如位错环^[2].图 2(b) 和图 2(c) 为一维迁移运动过程中不同辐照时间电子束斑中心的位置.图 2(d)—(i) 为运动学双束条件下观察到的位错环随着电子束辐照而发生的一维迁移过程.为了区分文中所论述的不同的位错环,图 2 下方区域将在图 2(d)—(i) 中用不同的形状标出的位错环进行编号(位错环 1-11).注氢纯铝在室温条件下所观察到的位错环为氢离子注入时形成的,均为间隙型位错环^[32].因而,本文所论述的位错环的一维迁移均对应间隙型位错环的一维迁移.通过改变电子束斑中心的位置,即改变电子束辐照区域与位错环的相对位置,来分析电子束辐照对位错环的一维迁移运动的影响.图 2(d)—(g) 中电子束斑中心辐照位置处为视场正中,如图 2(b) 所示;对应于图 2(h)—(i) 时,电子束斑中心辐照位置移动到视场的中上区域,如图 2(c) 所示.在拍照时,电子束斑中心位置均移动到视场正中.

从图 2(d)—(i) 中可以看出,在电子辐照下该区域有多达 11 个位错环同时发生一维迁移现象.所有位错环均朝着同一个方向进行一维迁移.根据之前关于位错环一维迁移的研究,体心立方金属中位错环一维迁移沿柏氏矢量方向 $\langle 111 \rangle$,而面心立方金属则与之不同,沿柏氏矢量方向 $\langle 110 \rangle$ ^[5, 16, 20].对于面心立方结构中的 $1/3 \langle 111 \rangle$ 位错环,相当于在 $\{111\}$ 平面之间插入一个层错面,其应变延伸的方向为 $\langle 111 \rangle$ 方向,而不是沿着挤列的原子列方向^[33].因而,在面心立方结构材料中,使位错环沿着 $\langle 111 \rangle$ 方向进行一维迁移,需要克服更大的阻碍.因而,对于面心立方金属中位错环的一维迁移沿着 $\langle 110 \rangle$ 方向更容易进行^[33].但是,当面心立方结构具有足够大的层错能时,柏氏矢量为 $1/3 \langle 111 \rangle$ 的位错环也将有可能变成可滑动的位错环,沿 $\langle 111 \rangle$ 方向进行一维迁移.对于面心立方的纯铝来说,其层错能可以达到 $0.2 \text{ J}\cdot\text{m}^{-2}$,比大部分面心立方金属都要高,例如纯铜的层错能只有 $0.055 \text{ J}\cdot\text{m}^{-2}$,金的只有 $0.05 \text{ J}\cdot\text{m}^{-2}$,而银的只有 $0.0216 \text{ J}\cdot\text{m}^{-2}$ ^[34-38].因而,纯铝中有可能出现沿 $\langle 111 \rangle$ 方向的一维迁移现象.图 2 中位错环的一维迁移方向与 $[111]$ 方向仅偏差约 13° ,而与 $[011]$ 方向偏差约 25° ,如图 2(a) 所示.因而,在误差允许的范围,图 2 中注氢纯铝的位错环在电子辐照下的一维迁移与柏氏矢量 $1/3 \langle 111 \rangle$ 的方向一致.

基于图 2(d)—(i),对位错环 1—7 不同电子辐照时间段的迁移距离、平均迁移速率以及对应时间点的轨迹长度(关于一维迁移的运动轨迹会在后续进行详细说明)进行了统计计算,如表 1 所列.根据位错环 8—11 在 0 s 时所显示出的迁移轨迹,以及后续 0—209 s 电子辐照期间未发生一维迁移运动,可以确定其仅在 0 s 前进行了一定距离的一维迁移运动,因而未在表 1 中进行列举.图 2(d) 所显示的位错环迁移过后的运动轨迹可以认为该组数据中所能观察到的 0 s 前的一维迁移距离(0 s 前指的是从电子束移动到该区域开始到所捕捉的第一张明场像图片,即图 2(d) 之间的时间段).通过计算所能观察到的位错环 0 s 之前以及 0—209 s 电子辐照下的一维迁移距离,得到位错环 1—7 的一维迁移总距离分别约为 1135 nm, 995 nm, 640 nm, 889 nm, 596 nm, 479 nm 和 337 nm.因此,位错环 1—7 的迁移距离远大于之前所报道的纳米级的一维迁移^[12,20-22],尤其是位错环 1 的

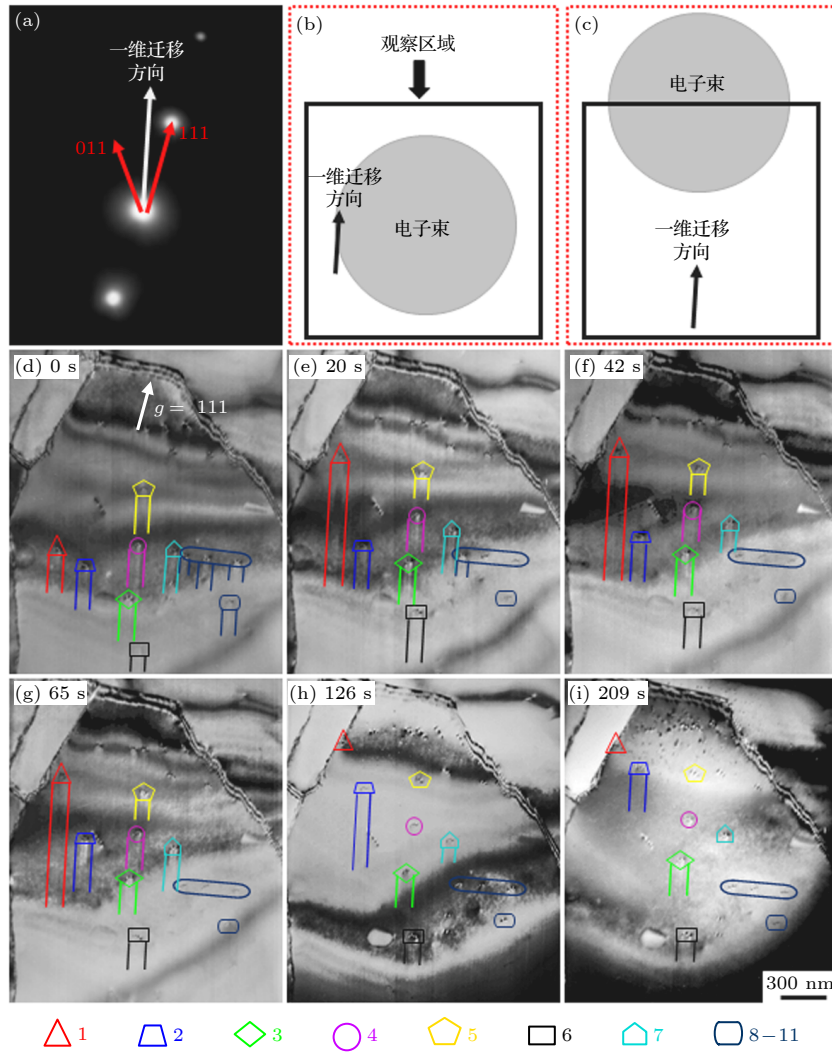


图 2 不同电子束斑中心位置的电子辐照下位错环的一维迁移运动 (a) 原位观察对应的运动学双束衍射条件 ($g = 111$), 一维迁移方向 ($//$ 柏氏矢量 $B = 1/3 \langle 111 \rangle$ 或者 $1/2 \langle 110 \rangle$ 方向) 以及与其最相近的两组晶向; (b), (c) 电子辐照期间电子束斑中心与观察区域的相对位置; (d)–(i) 位错环在电子辐照下的一维迁移现象. 不同形状符号所对应的数字“1, 2, 3, …11”分别指第“1, 2, 3, …11”编号位错环

Fig. 2. One-dimensional motion of dislocation loops under electron irradiation at different electron beam center locations: (a) Diffraction pattern illustrating the two-beam kinematical condition during in-situ observation ($g = 111$), and one-dimensional motion direction ($//$ the direction of Burgers vector, $B = 1/3 \langle 111 \rangle$ or $1/2 \langle 110 \rangle$) and the two groups of crystal orientation closest to it; (b), (c) the positions of electron beam center for different durations of electron irradiation; (d)–(i) one-dimensional motion of dislocation loops under electron irradiation. Shapes numbered “1, 2, 3, …11” correspond to dislocation loops “1, 2, 3, …11”, respectively.

一维迁移已达到微米级. 另一方面, 同一区域相邻的位错环 1—11 在同样的电子辐照条件下, 一维迁移距离各不相同. 说明对于位错环的长程一维迁移运动的迁移距离受迁移路径中杂质原子等环境差异的影响而各不相同.

对比同一位错环不同时间段的平均迁移速率可以发现, 没有任何一个位错环的一维迁移是匀速过程, 而是在不规则的时间间隔内进行着短期的匀速运动或者静止状态, 而不同时间间隔之间, 位错环的迁移速率相差很大. Satoh 等^[26]发现了大多

数自间隙原子团簇的一维迁移都是在不规则时间间隔下位置逐步变化. 因而, 可以认为在位错环的迁移过程中, 会被迁移路径中的杂质原子所捕获, 然后在通过一定时间的电子辐照来获得足够的能量, 使被捕获的位错环挣脱束缚变为自由团簇, 进而再次进行一维迁移. 因此, 位错环的一维迁移是分阶段进行的, 在迁移过程中有可能会被杂质原子所捕获而短暂停止, 甚至直接终止运动, 从而导致同一位错环在不同时间段的迁移速率各不相同.

表 1 不同辐照时间内位错环 1—7 的一维迁移距离、平均迁移速率以及轨迹长度
Table 1. The migration distance, average migration speed and migration track length of one-dimensional motion for dislocation loops 1–7 for different durations of electron irradiation.

	辐照时间/s	0	20	42	65	126	209
位错环1	迁移距离/nm	×	600	57	0	152	0
	平均速率/(nm·s ⁻¹)	×	30	2.59	0	2.47	0
	轨迹长度/nm	326	917	890	405	0	0
位错环2	迁移距离/nm	×	144	46	187	307	133
	平均速率/(nm·s ⁻¹)	×	7.2	2.09	8.13	5.03	1.6
	轨迹长度/nm	178	334	260	305	478	222
位错环3	迁移距离/nm	×	257	57	61	0	100
	平均速率/(nm·s ⁻¹)	×	12.9	2.59	2.65	0	1.2
	轨迹长度/nm	165	370	174	175	91	131
位错环4	迁移距离/nm	×	192	41	78	41	50
	平均速率/(nm·s ⁻¹)	×	9.6	1.86	3.39	0.67	0.6
	轨迹长度/nm	487	259	190	148	0	0
位错环5	迁移距离/nm	×	109	0	78	52	61
	平均速率/(nm·s ⁻¹)	×	5.45	0	3.39	0.85	0.73
	轨迹长度/nm	292	231	139	243	0	0
位错环6	迁移距离/nm	×	244	44	30	0	0
	平均速率/(nm·s ⁻¹)	×	12.2	2	1.3	0	0
	轨迹长度/nm	161	288	210	137	114	110
位错环7	迁移距离/nm	×	139	48	39	0	44
	平均速率/(nm·s ⁻¹)	×	6.95	2.18	1.7	0	0.53
	轨迹长度/nm	107	265	152	157	82	0

*迁移距离为不同时间段位错环的一维迁移距离; 平均速率为该时间与前一时间点之间的平均迁移速率; 轨迹长度为对应时间点一维迁移所能显示出的迁移轨迹. 所有数据均是基于图2进行统计计算的结果. “×”表示对应条件下无相关数据.

在位错环一维迁移运动前方进行一段时间电子束辐照后, 如图 2(h) 和图 2(i) 所示, 位错环的一维迁移逐渐减缓直至停止, 其原因可能是位错环周围的间隙原子的浓度都已达到饱和值, 使得间隙原子的浓度梯度消失或过低的缘故. 实际上, 辐照级联过程中的间隙原子团簇的一维迁移, 其驱动力也是来自间隙原子的浓度梯度^[5]. 这一现象反向证明间隙原子团簇的一维迁移方向和单个间隙原子一样, 也是从间隙原子浓度高的区域向间隙原子浓度低的区域迁移. 位错环受到电子辐照后, 从静止状态开始进行一维迁移. 有研究认为, 这些位错环在静止状态时, 被杂质原子 (柯垂尔气团, Cottrell atmosphere) 所捕获, 而高能电子束辐照会将这些杂质原子从捕获位置撞击出去, 从而使得位错环进行一维迁移^[2,5,16,17,39]. 这种解释存在两个问题: 一是将杂质原子从捕获位置撞击出去, 不同于将晶格原子从晶格位置撞击出去, 不需要太高的击出能量, 例如对于 α -纯铁含有 9 个间隙原子的

1/2<111>和<100>原子团簇与碳原子最大结合能分别为 0.86 eV 和 1.22 eV^[40]. 此时, 即使对纯铁样品来说, 超高压电镜的电子束辐照也不一定是必要条件. 另外, 柯垂尔气团不止是一个杂质原子, 辐照时不可能同时击出气团中的所有杂质原子, 总还是有部分杂质原子仍然吸附在位错环上. 因此, 不可能瞬间使得位错环脱离柯垂尔气团所有杂质原子的吸附. 二是脱离了杂质捕获的位错环, 在进行一维迁移时, 迁移方向可能是与柏氏矢量方向平行, 也可能与柏氏矢量方向反平行, 因此还是无法从柯垂尔气团的角度来解释实际观察到的一维迁移现象. 从本文上述实验现象可知, 电子束辐照产生的间隙原子浓度梯度才是促使间隙型位错环进行一维迁移的直接原因. 或者说, 即使位错环摆脱了柯垂尔气团的束缚, 也还需要有间隙原子浓度梯度的存在, 才能实现位错环的一维迁移.

通过对比所有位错环在电子束斑中心辐照位置移动前后的平均迁移速率, 即图 2(d)—(g) 与

图 2(h) 和图 2(i), 可以看出, 虽然将电子束斑辐照位置移动到位错环 1—11 一维迁移的前方区域, 使得位错环的一维迁移速率有所降低, 但并未能够立刻阻碍所有位错环的一维迁移运动. 随着电子束辐照的进行, 视场上方区域间隙原子浓度逐渐增大, 导致位错环 1—11 的一维迁移逐渐停止. 由此现象可知, 电子束斑辐照位置对位错环的一维迁移的影响不是立刻形成的, 要通过一段时间的辐照量累积才会出现效果, 这说明电子束辐照下产生新的辐照点缺陷, 使其浓度增加才是影响位错环一维迁移速率和方向的原因. 位错环 1—11 之所以没有掉转头朝反方向进行一维迁移, 可能是此时电子束辐照产生的点缺陷浓度还不够高的缘故, 或者是位错环与点缺陷相互吸引融合成尺寸过大的缺陷团簇.

3.2 相同电子束辐照方向下相邻区域不同间隙型位错环的一维迁移现象

图 3 表示在同一运动学双束成像条件、相同电子辐照 (相同的电子束斑中心位置以及相同的电子束辐照能量) 下, 相邻两个视场不同位错环的一维迁移现象. 图 3(a) 为两个视场电子辐照时的电子衍射图谱, 为运动学双束条件 ($g = \bar{2}20$); 图 3(b) 为相应两组数据间隙型位错环一维迁移方向以

与其最相近的两组晶向, 分别为 $[\bar{1}11]$ 和 $[\bar{1}01]$. 图 3(c)—(e) 为位错环 12 在 0—68 s 电子辐照下的运动轨迹 (短划线双线箭头标注); 而与之相邻区域的位错环 13 (虚线双线箭头标注) 和位错环 14 (实线双线箭头标注) 在 0—130 s 相同电子辐照条件下的运动轨迹由图 3(f)—(j) 显示. 由图 3(c)—(e) 可以看出, 位错环 12 在 0—18 s 电子辐照过程中位错环发生了大约 343 nm 的一维迁移, 并且在 18 s 时, 位错环 12 的一维迁移形成了长达 240 nm 的运动轨迹, 平均迁移速率为 $19 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$, 而在 18—68 s 电子辐照过程中位错环 12 位置基本没变, 可能由于该位错环一维迁移过程中, 被杂质原子所捕获 [5,39]. 而由图 3(c) 所显示的 0 s 时, 在位错环 12 一维迁移的后方有一条较长的运动轨迹 (约 230 nm, 双线箭头的两条直线标注), 说明在实际实验过程中, 在照片拍摄前, 位错环 12 已经进行了一段距离的一维迁移运动.

在相同的双束成像条件、相同的电子束辐照条件下, 位错环 13 和 14 则表现出与位错环 12 完全不同的一维迁移状态. 首先, 由图 3(f) 和图 3(g) 可以看出, 在 0—27 s 电子辐照过程中, 位错环 13 仅进行了约 88 nm 的一维迁移, 然后被一维迁移路径中的位错环 15 (圆形标注) 所捕获而停止运动.

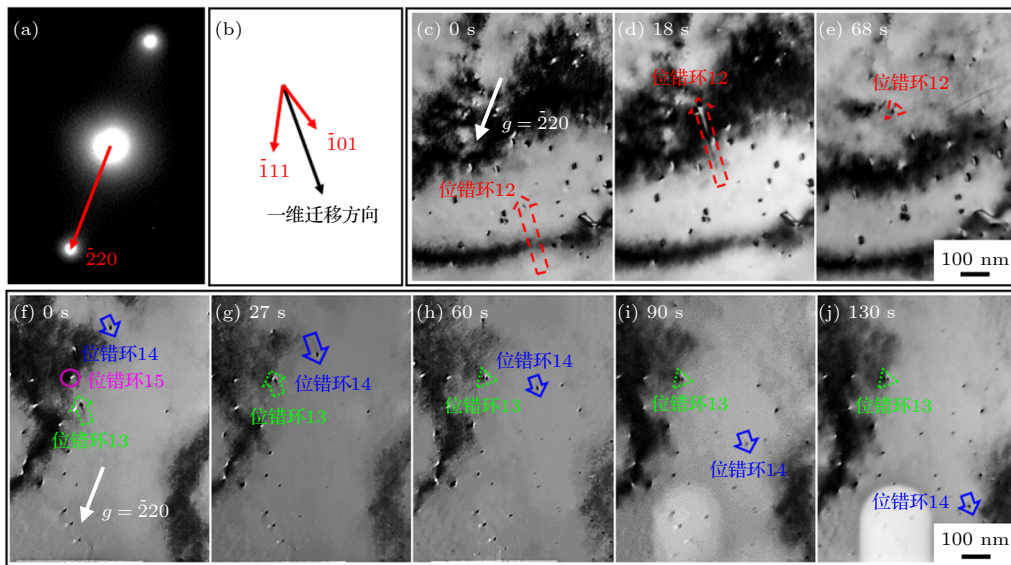


图 3 相同电子辐照条件下两个相邻区域不同位错环的一维迁移运动 (a) 运动学双束条件下的电子衍射图 ($g = \bar{2}20$); (b) 一维迁移方向 (// 柏氏矢量 $B = 1/3 \langle 111 \rangle$ 或者 $1/2 \langle 110 \rangle$ 的方向) 以及与其最相近的两组晶向; (c)—(j) 位错环 12—14 在电子辐照下的一维迁移现象

Fig. 3. One-dimensional motion of dislocation loops in two adjacent regions under the same electron irradiation: (a) Diffraction pattern illustrating the two-beam kinematical imaging condition ($g = \bar{2}20$); (b) one-dimensional motion direction (// the direction of Burgers vector, $B = 1/3 \langle 111 \rangle$ or $1/2 \langle 110 \rangle$) and the two groups of crystal orientation closest to it; (c)—(j) one-dimensional motion of dislocation loops 12–14 under electron irradiation.

而由图 3(f)—(j) 可以看出, 位错环 14 在 130 s 的电子辐照下, 进行了长达约 650 nm 的一维迁移现象, 平均迁移速率为 $5 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$. 而位错环 13 和 14 在一维迁移过程中轨迹长度比较短, 在 100 nm 以内. 因而, 在电子辐照下, 从位错环 12—14 一维迁移的距离、平均迁移速率以及迁移轨迹的长度看, 说明即使在相邻区域、相同电子束辐照条件, 位错环的一维迁移状态也大不相同. 可能由于不同位错环迁移过程中的缺陷和杂质原子的影响程度不同.

由图 3(b) 可以看出, 位错环 12—14 一维迁移方向与 $[\bar{1}01]$ 相差 17° , 而与 $[\bar{1}11]$ 方向相差 29° . 因而, 判定图 3 中位错环 12—14 的一维迁移方向沿 $\langle 110 \rangle$ 方向. 对比位错环 13 和 14 的一维迁移方向发现, 在电子辐照下, 两个间隙型位错环可以沿着同一柏氏矢量 $1/2\langle 110 \rangle$ 的方向, 发生相向的一维迁移运动. 由前文 3.1 的实验现象可知, 电子束辐照产生的间隙原子浓度梯度才是促使间隙原子位错环进行一维迁移的直接原因. 而位错环 13 和 14 的相向的一维迁移运动可能由于在电子束由观察区域外移动到观察区域期间, 电子辐照产生的间隙原子浓度梯度使得其中一个位错环发生沿着柏氏矢量方向的一维迁移运动, 而在该位错环运动期间, 电子束移动到观察区域而为另一个位错环的一维迁移运动提供了相反的间隙原子浓度梯度, 而前一个位错环所形成的一维迁移运动还未完全停止, 从而形成了不同位错环在短时间内的相向一维迁移运动. 然而, 位错环沿着柏氏矢量的方向进行相向运动所形成的具体原因仍需更多实验进行探索和研究.

3.3 同一电子束辐照下同一区域内不同间隙型位错环的一维迁移现象

图 4 为电子辐照下两个相邻位错环的一维迁移距离与电子辐照时间的关系. 图 4(a) 为电子辐照过程中所对应的运动学双束条件下的电子衍射图 ($g = 200$); 图 4(b) 为图中间隙型位错环一维迁移方向以及与其最相近的两组晶向, 分别为 $[1\bar{1}\bar{1}]$ 和 $[1\bar{1}0]$; 图 4(c) 对应图 4(d)—(k) 两个位错环 16, 17 随着电子辐照时间的延长的一维迁移距离的变化. 由图 4 可以看出, 两个位错环 16, 17 在长达 420 s 的电子辐照下所产生的一维迁移, 分别为 41 nm 和 62 nm, 为短程一维迁移现象. 另一方面, 即使两个位错环在相同电子辐照下以及相似的周边环

境, 仍然表现出了不同的迁移距离, 说明位错环周围细小的环境差异对短程一维迁移现象的运动轨迹和速度有很大的影响, 与前文中 3.1 长程一维迁移现象具有相同的结论. 对比两个位错环的运动轨迹可以看出, 位错环 16, 17 实际一维迁移方向与 $[1\bar{1}\bar{1}]$ 差 10° , 而与 $[1\bar{1}0]$ 方向相差 41° , 如图 4(b) 所示. 因而在误差允许范围内判定位错环 16, 17 的一维迁移沿着 $\langle 111 \rangle$ 方向.

3.4 间隙型位错环在一维迁移过程中形成的运动轨迹

如图 5 所示, 为前文中部分位错环一维迁移过程中迁移轨迹区域放大图 (图 5(a)—(c) 分别对应前文中图 2(e)、图 3(d) 和图 4(d)). 由图 5 中可以看出, 一些位错环在一维迁移过后会在其后方形成一条较长的运动轨迹, 即图片中所表现的衬度变化, 由两条直线标注出, 如图 5(a) 和 (b) 所示; 而一些位错环的一维迁移则未产生运动轨迹, 如图 5(c) 所示. 因而, 运动轨迹的产生与否, 可能与位错环的一维迁移速率有关. 通过表 1 中对位错环 1—11 以及前文中对位错环 12—14, 16—17 一维迁移运动轨迹以及迁移速率的描述可以发现, 对于大多数位错环的运动轨迹的长度和迁移速率成正比. 一般迁移速率越快, 所形成的运动轨迹越长, 当迁移速率较小时, 则无法形成运动轨迹. 而对于本文中部分位错环某一段时间运动轨迹的长度和迁移速率不成正比关系, 可能由于受到位错环一维迁移路径中各种杂质原子的等因素的影响而短时间减缓了位错环的迁移速率, 从而影响了该时间段的平均迁移速率. 因而, 一维迁移的运动轨迹的形成与否与迁移速率依然有很大关系, 超过一定的迁移速率才能形成运动轨迹, 通过对比所有位错环迁移速率和运动轨迹的关系, 该临界迁移速率应该在 $0.85\text{—}1.2 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$ 之间. 迁移轨迹的形成原因可能是由于在位错环一维迁移的过程中, 位错环附近分布的氢原子等杂质原子被挤压到两侧, 其衬度变化来自氢原子引起的晶格应变场的变化. 位错环的快速一维迁移运动导致挤压出的杂质原子无法在位错环一维迁移过后立刻恢复到原始状态, 从而形成一条运动轨迹. 这种运动轨迹形成后会逐渐消失, 从而恢复到位错环通过前的原始状态. 这一运动轨迹恢复时间与被空位捕获的氢的扩散有关, 并非一成不变, 但均在几十秒范围内逐渐消失.

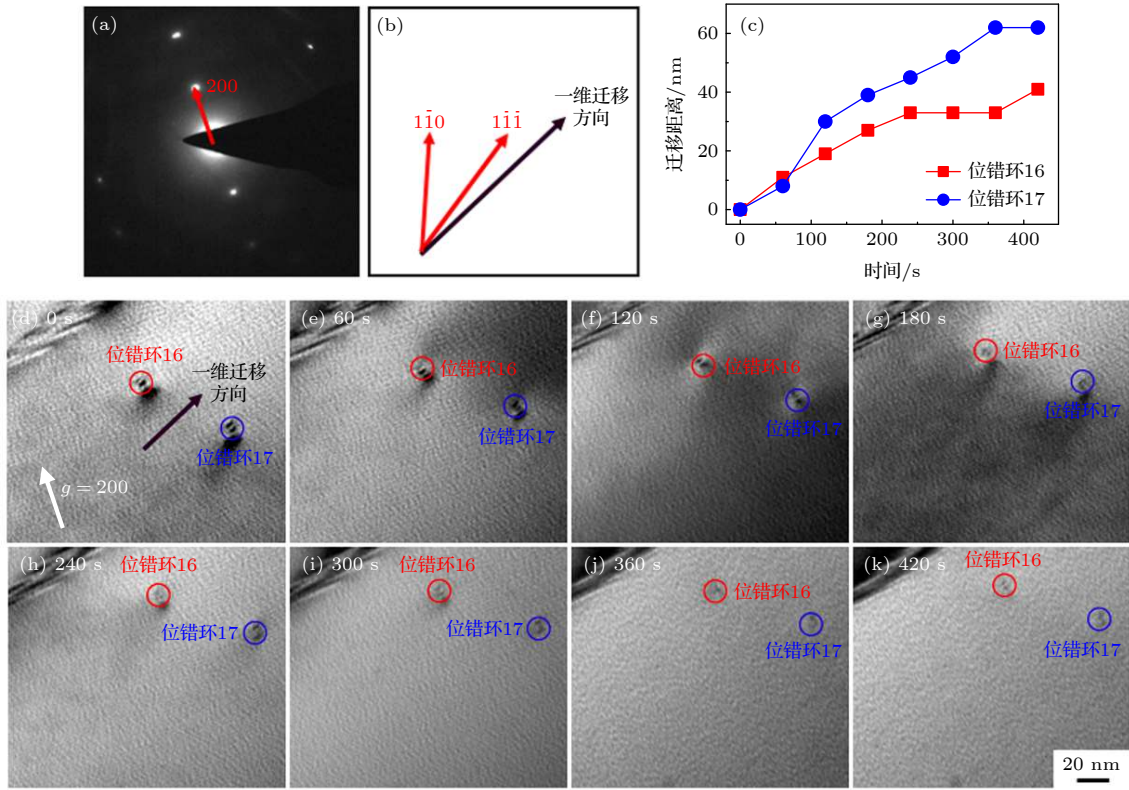


图 4 相邻两个位错环的一维迁移距离与电子束辐照时间的关系 (a) 运动学双束条件下的电子衍射图 ($g = 200$); (b) 一维迁移方向 ($//$ 柏氏矢量 $B = 1/3 \langle 111 \rangle$ 或者 $1/2 \langle 110 \rangle$ 的方向) 以及与其最相近的两组晶向; (c) 位错环 16 和 17 一维迁移距离随辐照时间的变化; (d)–(k) 位错环在电子辐照下的一维迁移现象. 黑色箭头表示一维迁移方向

Fig. 4. The relationship between one-dimensional motion distance and electron irradiation time of two adjacent dislocation loops: (a) Diffraction pattern illustrating the two-beam kinematical imaging condition ($g = 200$); (b) one-dimensional motion direction ($//$ the direction of Burgers vector, $B = 1/3 \langle 111 \rangle$ or $1/2 \langle 110 \rangle$) and the two groups of crystal orientation closest to it; (c) the one-dimensional migration distance of dislocation loops (16, 17) under electron irradiation as a function of time; (d)–(k) the one-dimensional motion of dislocation loops 16, 17 under electron irradiation. The black arrows indicate the direction of one-dimensional motion of dislocation loops.

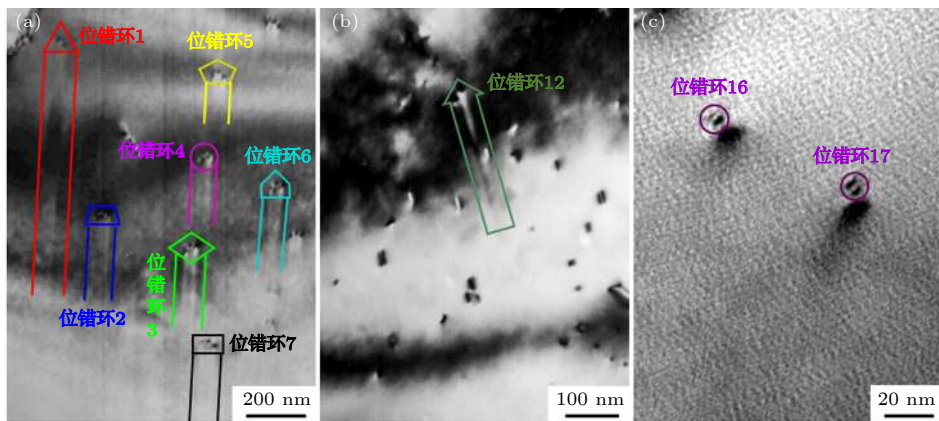


图 5 电子辐照下不同位错环一维迁移形成的运动轨迹

Fig. 5. The migration tracks of different dislocation loops formed by one-dimensional motion under electron irradiation.

4 结 论

通过普通低压透射电镜观察室温注氢纯铝在 200 keV 电子辐照下间隙型位错环的一维迁移现

象, 获得如下结论:

1) 位错环存在两种尺度的一维迁移行为: 长程 (微米级) 和短程 (纳米级). 有一排位错环的同时一维迁移, 也有单个位错环的一维迁移.

2) 位错环的一维迁移方向与柏氏矢量 $1/3\langle 111 \rangle$ 或者 $1/2\langle 110 \rangle$ 的方向平行, 并且这种一维迁移方向是从间隙原子浓度高的区域移到间隙原子浓度低的区域。

3) 发生快速一维迁移的位错环后面会留下一条运动轨迹, 并且一维迁移速率越快, 运动轨迹越长。一维迁移导致的运动轨迹形成后在几十秒内会逐渐消失, 从而恢复到位错环通过之前的状态。

4) 位错环的一维迁移过程不是匀速过程, 而是阶段性运动, 不同的时间阶段内的位错环迁移速率相差很大。

参考文献

- [1] Wan F R 1993 *Irradiation Damage of Metal Materials* (Beijing: Science Press) p7 (in Chinese) [万发荣 1993 金属材料的辐照损伤 (北京: 科学出版社) 第7页]
- [2] Guo L P, Luo F F, Yu Y X 2016 *Dislocation loops in irradiated nuclear materials* (Beijing: National Defense Industry Press) p37 (in Chinese) [郭立平, 罗凤凤, 于雁霞 2016 核材料辐照位错环 (北京: 国防工业出版社) 第37页]
- [3] Du Y F, Cui L J, Han W T, Wan F R 2019 *Acta Metall. Sin.* **32** 566
- [4] Terentyev D, He X, Bonny G, Bakaev A, Zhurkin E, Malerba L 2015 *J. Nucl. Mater.* **457** 173
- [5] Wan F R 2020 *Chin. J. Eng.* **42** 1535 (in Chinese) [万发荣 2020 工程科学学报 **42** 1535]
- [6] Hwang T, Hasegawa A, Tomura K, Ebisawa N, Toyama T, Nagai Y, Fukuda M, Miyazawa T, Tanaka T, Nogami S 2018 *J. Nucl. Mater.* **507** 78
- [7] Ipatova I, Wady P T, Shubeita S M, Barcellini C, Impagnatiello A, Jimenez-Melero E 2018 *J. Microsc.* **270** 110
- [8] Satoh Y, Abe H, Matsukawa Y, Matsunaga T, Kano S, Arai S, Yamamoto Y, Tanaka N 2015 *Philos. Mag.* **95** 1587
- [9] Wang J, Hou Q, Zhang B L 2021 *Solid State Commun.* **325** 114158
- [10] Chen D, Murakami K, Abe H, Li Z, Sekimura N 2019 *Acta Mater.* **163** 78
- [11] Marian J, Wirth B D, Caro A, Sadigh B, Odette G R, Perlado J M, de la Rubia T D 2002 *Phys. Rev. B* **65** 144102
- [12] Arakawa K, Ono K, Isshiki M, Mimura K, Uchikoshi M, Mori H 2007 *Science* **318** 956
- [13] Osetsyky Y N, Bacon D J, Serra A 1999 *Philos. Mag. Lett.* **79** 273
- [14] Abe Y, Satoh Y, Hashimoto N, Ohnuki S 2020 *Philos. Mag.* **100** 110
- [15] Nandipati G, Setyawan W, Roche K J, Kurtz R J, Wirth B D 2020 *J. Nucl. Mater.* **542** 152402
- [16] Satoh Y, Matsui H, Hamaoka T 2008 *Phys. Rev. B* **77** 094135
- [17] Satoh Y, Matsui H 2009 *Philos. Mag.* **89** 1489
- [18] Osetsyky Y N, Bacon D J, Serra A, Singh B N, Golubov S I 2000 *J. Nucl. Mater.* **276** 65
- [19] Matsukawa Y, Zinkle S J 2007 *Science* **318** 959
- [20] Derlet P M, Gilbert M R, Dudarev S L 2011 *Phys. Rev. B* **84** 134109
- [21] Wirth B D, Odette G R, Maroudas D, Lucas G E 2000 *J. Nucl. Mater.* **276** 33
- [22] Wirth B D 2000 *Ph D Dissertation* (Santa Barbara: University of California)
- [23] Arakawa K, Hatanaka M, Mori H, Ono K 2004 *J. Nucl. Mater.* **329** 1194
- [24] Hamaoka T, Satoh Y, Matsui H 2013 *J. Nucl. Mater.* **433** 180
- [25] Hayashi T, Fukumoto K, Matsui H 2002 *J. Nucl. Mater.* **307** 993
- [26] Satoh Y, Abe Y, Abe H, Matsukawa Y, Kano S, Ohnuki S, Hashimoto N 2016 *Philos. Mag.* **96** 2219
- [27] Amino T, Arakawa K, Mori H 2016 *Sci. Rep.* **6** 26099
- [28] Williams D B, Carter C B 2009 *Transmission Electron Microscopy* (New York: Springer Science+Business Media) p68
- [29] Stoller R E, Toloczko M B, Was G S, Certain A G, Dwaraknath S, Garner F A 2013 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **310** 75
- [30] Astm-Committee 2003 *Standard Practice for Neutron Radiation Damage Simulation by Charged-particle Irradiation* (West Conshohocken: Copyright © ASTM International) p8
- [31] Rong Y H 2006 *Introduction to Analytical Electron Microscopy* (Beijing: Higher Education Press) p28 (in Chinese) [戎咏华 2006 分析电子显微学导论 (北京: 高等教育出版社) 第28页]
- [32] Ono K, Kino T, Furuno S, Hojou K, Izui K, Mizuno K, Ito K 1991 *J. Nucl. Mater.* **179-181** 978
- [33] Kuramoto E 2009 *Materia Jpn.* **48** 111
- [34] Schulthess T C, Turchi P E A, Gonis A, Nieh T G 1998 *Acta Mater.* **46** 2215
- [35] Sarma V S, Wang J, Jian W W, Kauffmann A, Conrad H, Freudenberger J, Zhu Y T 2010 *Mater. Sci. Eng., A* **527** 7624
- [36] Gallagher P 1970 *Metall. Trans.* **1** 2429
- [37] Kim J, Lee S, De Cooman B C 2011 *Scr. Mater.* **65** 363
- [38] Yan J A, Wang C Y, Wang S Y 2004 *Phys. Rev. B* **70** 174101
- [39] Portavoce A, Treglia G 2014 *Acta Mater.* **65** 1
- [40] Tapasa K, Barashev A V, Bacon D J, Osetsyky Y N 2007 *J. Nucl. Mater.* **361** 52

In-situ study of one-dimensional motion of interstitial-type dislocation loops in hydrogen-ion-implanted aluminum*

Li Ran-Ran¹⁾ Zhang Yi-Fan²⁾ Yin Yu-Peng¹⁾ Watanabe Hideo³⁾
 Han Wen-Tuo¹⁾ Yi Xiao-Ou^{1)†} Liu Ping-Ping¹⁾ Zhang Gao-Wei¹⁾
 Zhan Qian¹⁾ Wan Fa-Rong¹⁾

1) (*School of Materials Science and Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China*)

2) (*School of Materials Science and Engineering, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China*)

3) (*Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University, Fukuoka 8168580, Japan*)

(Received 1 July 2021; revised manuscript received 13 September 2021)

Abstract

The one-dimensional (1D) glide motion of dislocation loops along the direction of Burgers vector in various metallic materials has attracted considerable attention in recent years. During the operation of nuclear fusion reactor, component materials will be bombarded by high energy neutrons, resulting in production of radiation defects such as self-interstitial-atoms (SIAs), vacancies and their clusters. These defects feature large difference in migration energy, which may lead to concentration imbalance between SIAs and vacancies, and eventually irradiation damages such as swelling and embrittlement. Generally speaking, the mobility of a defect cluster is lower than that of a point defect. However, fast 1D motion may also take place among SIA clusters in the form of prismatic dislocation loops. This increases the transport efficiency of SIAs towards grain boundaries, surface and interface sites in the material, in favour of defect concentration imbalance and damage accumulation. To date, most literature works have found that the 1D motion of dislocation loops exhibited short-range (nanometer-scale) character. In addition, such experimental studies were generally conducted in pure metals using high voltage electron microscopes (HVEM) operated at acceleration voltages ≥ 1000 kV. However, for pure aluminum (Al), the maximum transferable kinetic energy from 200 keV electrons is 19.5 eV, while the displacement threshold energy is only 16 eV. Therefore, the observation and mechanistic investigation of 1D motion of dislocation loops in Al should also be possible with conventional transmission electron microscopes (C-TEM), as it may also exhibit the effects of beam heating and point defect production in HVEM. In view of the shortage of HVEM, this work reports the 1D motion of dislocation loops in pure Al implanted with hydrogen ions using C-TEM. Simultaneous dislocation loop motion in opposite directions of Burgers vector $1/2\langle 110 \rangle$ has been captured, as well as the collective 1D motion of an array of dislocation loops in the direction of Burgers vector $1/3\langle 111 \rangle$ under 200 keV electron irradiation. In addition, 1D motion of dislocation loops up to micron-scale range along the direction of Burgers vector $1/3\langle 111 \rangle$, and up to a few hundred nanometers range along the direction of Burgers vector $1/2\langle 110 \rangle$ have been found, which is different from previous literature works. A characteristic migration track would form behind the moving dislocation loop, lasting for about tens of seconds. The more rapid the dislocation loop motion, the longer the migration track length is. The concentration gradient of SIAs by electron irradiation and the redistribution of hydrogen atoms caused by the moving dislocation loops may account for the observed micron-scale 1D motion of dislocation loops and the migration tracks.

Keywords: one-dimensional motion, electron irradiation, dislocation loops, aluminum

PACS: 61.80.-x, 61.72.J-, 61.80.Fe, 68.37.Lp

DOI: 10.7498/aps.71.20211229

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11875085) and the China Scholarship Council (Grant No. 201806460050).

† Corresponding author. E-mail: xiaoouyi@ustb.edu.cn