



## 注氢铁基二元合金中辐照位错环演化及退火温度影响研究

李然然 殷玉鹏 渡边英雄 易晓鸥 韩文妥 刘平平 詹倩 万发荣

## Evolution of dislocation loops and effect of annealing temperature on hydrogen-ion-implanted Fe-based binary alloys

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

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 136101 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220137

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220137>

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

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

物理学报. 2022, 71(1): 016102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211229>

#### 表面效应对铁间隙型位错环的影响

Surface effect on interstitial dislocation loop in iron

物理学报. 2020, 69(3): 036101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191379>

#### 不同温度下bcc-Fe中螺位错滑移及其与[]位错环相互作用行为

Screw dislocation slip and its interaction with [] dislocation loop in bcc-Fe at different temperatures

物理学报. 2021, 70(6): 068701 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201659>

#### 铁基软磁非晶/纳米晶合金研究进展及应用前景

Research progress and application prospect of Fe-based soft magnetic amorphous/nanocrystalline alloys

物理学报. 2018, 67(1): 016101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171473>

#### 体心立方Fe中位错环对微裂纹扩展影响的分子动力学研究

Effect of interstitial dislocation loop on expansion of micro-crack in body centered cubic iron investigated by molecular dynamics method

物理学报. 2020, 69(11): 116102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200317>

#### 铁基合金薄带多次等温回火特性的研究

The characteristics of multiple isothermal tempered Fe-based alloy ribbons

物理学报. 2019, 68(13): 137501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190017>

# 注氢铁基二元合金中辐照位错环演化及退火温度影响研究\*

李然然<sup>1)2)</sup> 殷玉鹏<sup>1)</sup> 渡边英雄<sup>3)</sup> 易晓鸥<sup>1)†</sup> 韩文妥<sup>1)</sup>  
刘平平<sup>1)</sup> 詹倩<sup>1)</sup> 万发荣<sup>1)</sup>

1) (北京科技大学材料科学与工程学院, 北京 100083)

2) (烟台大学核装备与核工程学院, 烟台 264005)

3) (九州大学应用力学研究所, 日本福岡 8168580)

(2022 年 1 月 19 日收到; 2022 年 3 月 18 日收到修改稿)

本文基于注氢纯铁和铁基二元合金 (Fe-3%Cr、Fe-1.4%Ni 和 Fe-1.4%Mn, 质量分数) 开展常规透射电镜 (200 kV) 的原位表征观察, 揭示了材料中辐照位错环的形态、尺寸演化行为及退火温度影响, 并依据辐照损伤演化理论、退火过程中位错环平均尺寸变化推断得到空位型位错环形成温度的范围. 注氢纯铁中空位型位错环的形成温度 ( $T_c$ ) 约为 500 °C; 添加 Ni 可使  $T_c$  降低至 ~450 °C, 添加 Cr 可使  $T_c$  升高至 600 °C 以上, 而 Mn 的作用与 Cr 相似, 亦可使  $T_c$  升高. 注氢实验和热脱附谱分析进一步表明, 纯铁和铁基二元合金中空位型位错环的形成温度受氢同位素与空位结合、释放过程影响. 合金元素 Ni 对氢同位素与空位的结合、释放有促进作用, 故导致  $T_c$  降低; 而 Cr 和 Mn 均对氢同位素与空位的结合、释放产生抑制作用, 故导致  $T_c$  升高. 本文展示的有关合金元素对空位型位错环形成温度影响的研究将有助于更深刻理解铁基合金体系中损伤结构演化和辐照肿胀产生机理.

**关键词:** 铁基二元合金, 注氢/氘, 空位型位错环, 透射电镜

**PACS:** 61.72.-y, 61.72.Ff, 61.82.Bg, 68.37.Lp

**DOI:** 10.7498/aps.71.20220137

## 1 引言

低活化铁素体/马氏体 (RAFM) 钢具有低放射活化特点和良好的抗辐照肿胀性能, 被认为是聚变堆主流候选结构材料之一<sup>[1-3]</sup>. 在常规铁素体/马氏体耐热钢中添加低活化元素 Mn, W, Ta 以取代 Mo, Nb 和 Ni, 可以降低材料在堆内服役数年后的放射活度<sup>[4]</sup>. 合金元素成分和含量对低活化钢的性能也有重要影响. 例如: 传统铁素体/马氏体 12 Cr-Mo 钢通常具有较好的综合力学性能, 但 Cr 含

量过高会使材料在辐照过程中形成大尺寸  $\delta$ -铁素体相, 显著增加材料的脆性<sup>[4]</sup>. 适当的 Ta 和 Ti 含量则可有效调控材料在辐照后的断裂韧性和高温蠕变性能<sup>[5,6]</sup>. 因此, 研究不同合金元素对 RAFM 钢体系辐照损伤的影响具有重要意义.

材料在辐照过程中会形成不同辐照缺陷, 如位错环、空洞等, 从而引起辐照硬化和辐照肿胀等问题<sup>[7,8]</sup>. 位错环是最常见的辐照损伤缺陷类型, 其间隙/空位性质、柏氏矢量是影响辐照损伤组织演变的关键因素. 例如辐照硬化主要与间隙型位错环的累积有关<sup>[9]</sup>, 而辐照肿胀可能受空位型位错环影响<sup>[10]</sup>.

\* 国家自然科学基金 (批准号:11875085, 12175013) 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

在辐照过程中, 自间隙原子与空位成对产生, 但两者特性却有很大不同. 以  $\alpha$ -Fe 为例, 自间隙原子的形成能 ( $\sim 4.8$  eV<sup>[11]</sup>) 远大于空位的形成能 ( $\sim 1.4$  eV<sup>[12]</sup>), 而自间隙原子的迁移能 ( $\sim 0.3$  eV<sup>[13]</sup>) 又远小于空位的迁移能 ( $\sim 0.7$  eV<sup>[14]</sup>), 这些差异导致了点缺陷的产生偏压和陷阱偏压<sup>[14]</sup>. 间隙型位错环是材料辐照后出现陷阱偏压的主因<sup>[15]</sup>, 而不同柏氏矢量的间隙型位错环具有不同的陷阱偏压. 例如,  $\alpha$ -Fe 中的  $a\langle 100 \rangle$  间隙型位错环的陷阱偏压就比  $a/2\langle 111 \rangle$  高<sup>[16]</sup>.

过去数十年里, 有关纯铁及铁基合金辐照位错环的研究获得了广泛关注<sup>[17–19]</sup>. 1965 年, Eyre 和 Bartlett<sup>[20]</sup> 通过透射电镜首次研究了中子辐照后  $\alpha$ -Fe 中的位错环. 同年, Master<sup>[21]</sup> 在  $H^+/\text{Fe}^+$  辐照后的  $\alpha$ -Fe 中均观察到了位错环. 此后, 关于合金成分、辐照温度等因素对位错环的影响获得了广泛关注. 例如, 在  $\alpha$ -Fe 中加入 Mn 可增加位错环数密度, 辐照硬化效应增强<sup>[22]</sup>; Mn 的添加还可限制位错环的迁移速率<sup>[23]</sup>. Watanabe 等<sup>[24]</sup> 发现在  $\alpha$ -Fe 中添加 Mn 比添加 Ni、Si 更有利于间隙型位错环的形成. 而对于不同温度下的辐照过程, Horton 等<sup>[25]</sup> 在中子辐照后的  $\alpha$ -Fe 中发现, 随着辐照温度的升高, 位错环的微观形貌差异越来越显著, 由单个独立的小尺寸发展至较大尺寸的  $a\langle 100 \rangle$  位错环, 最后转变为位错线. 迄今为止, 现有文献涉及纯铁/铁基合金辐照位错环的研究主要针对间隙型<sup>[26–28]</sup>, 空位型位错环的相关工作较少报道<sup>[29,30]</sup>.

离位损伤产生点缺陷, 这些点缺陷聚集在一起形成点缺陷团簇, 这是材料辐照损伤时的位错环形成机制. 不过, 还有其他一些因素会影响这些位错环的性质, 如其柏氏矢量、间隙/空位类型等. 材料在聚变堆内服役过程中, 核反应 ( $n, p$ ) 和 ( $n, \alpha$ ) 产生的氢和氦会与材料中的空位、碳原子、溶质原子等缺陷结合, 对低活化钢微观组织及其力学性能产生重大影响<sup>[31]</sup>. 在这些缺陷中, 氢原子更容易和空位结合形成氢-空位的复合团簇. 相比于倾向于形成三维结构的空位团簇, 氢-空位的复合团簇更倾向于形成二维空位型位错环<sup>[32]</sup>. 但是, 氢-空位的复合团簇并不能无限增大尺寸. 当团簇吸收过多的氢原子会导致其内部压强增大, 将过多的氢原子从团簇中推出<sup>[33]</sup>. 此外, 高浓度氢还可导致氢泡的形成, 这对位错环有一定的钉扎或融合作用. 当位错

环与之接触时, 位错环可以被其吸引、迁移运动受到阻碍. 当氢泡与位错环之间的吸引作用足够强时, 氢泡可以直接捕获位错环并相互湮灭<sup>[31]</sup>. 关于位错环与氢原子的相互作用目前已有一些研究, 但是关于铁基合金中合金元素和氢原子对位错环协同作用的研究较少.

作者所在团队针对注氢纯铁/铁基合金中空位型位错环开展了前期研究<sup>[34–38]</sup>. 将室温注氢 ( $100$  keV  $H^+$ )、剂量为  $1.5 \times 10^{21}$  ions/ $\text{m}^2$  的  $\alpha$ -Fe 试样进行  $500$  °C 退火, 可以获得直径大于  $100$  nm 的空位型位错环; 而在该温度进行超高压电镜电子辐照实验, 位错环全部表现为空位型, 遂判定注氢纯铁中空位型位错环的形成温度<sup>①</sup>约为  $500$  °C<sup>[34–36]</sup>. 相关铁基合金研究也发现: 在  $\alpha$ -Fe 中添加 Ni 可使空位型位错环形成温度降低至  $\sim 450$  °C<sup>[37]</sup>, 添加 Cr 可使空位型位错环形成温度升高至  $600$  °C 以上<sup>[38]</sup>. 由此可见, 合金元素对注氢铁基合金空位型位错环的形成温度有显著影响. 但针对空位型位错环尺寸、空间分布演化及退火温度影响等的系统研究尚未有报道, 空位型位错环的形成机理也未形成一定论. 上述研究均以超高压电镜观测到的位错环尺寸变化来判定位错环的间隙/空位性质<sup>[34–38]</sup>. 在高能 ( $\geq 1000$  keV) 电子辐照下, 材料中会持续形成新的弗兰克尔缺陷对 (自间隙原子和单空位). 在高能电子辐照下, 间隙型位错环因吸收更多、迁移速率更高的自间隙原子而长大; 而空位型位错环因吸收自间隙原子逐渐缩小. 这一判断位错环性质的方法简单直观, 但因依赖机时资源稀缺的超高压电镜实验平台而通常较难实现. 透射电镜的内衬-外衬法 (inside-outside) 也常用来判别空位型位错环与间隙型位错环<sup>[39,40]</sup>. 但若利用此法来确定本实验的空位型位错环的形成温度, 需制备大量样品, 每个样品只能用于  $1$  个退火温度, 实验与数据分析工作量较大.

本文选择与前期超高压电镜实验相同或者相似的合金元素 Cr、Ni 和 Mn 设计实验, 采用常规透射电镜对恒定时间 ( $20$  min)、不同退火温度条件下的预注氢  $\alpha$ -Fe、Fe-3%Cr、Fe-1.4%Ni 和 Fe-1.4%Mn (均为质量分数, 下文同) 合金位错环演化开展原位表征. 基于位错环平均尺寸变化推断空位型位错环形成温度, 并通过注氚实验和热脱附谱 (TDS)

①本文提到的空位型位错环形成温度定义为材料中所有可见位错环均为空位型位错环时的温度

结果分析验证了相关结论,初步探索了高温条件下注氢铁基合金中合金元素与空位型位错环的形成影响机制. 本工作一方面旨在验证部分前期基于超高压电镜实验的结果,探索基于常规透射电镜开展类似研究的可行性;另一方面有利于针对铁基合金元素进行新的分类梳理,掌握其对空位型位错环形成温度、乃至材料辐照肿胀行为的影响规律.

## 2 实 验

本文试样采用纯度为 99.99%(质量分数)的金属 Fe、Cr、Ni 和 Mn,在氩气条件下通过电弧熔炼方法分别获得  $\alpha$ -Fe、Fe-3%Cr (Fe-3Cr)、Fe-1.4%Ni (Fe-1.4Ni) 和 Fe-1.4%Mn (Fe-1.4Mn) 铸锭. 对于透射电镜 (TEM) 表征实验,将熔炼后的样品通过冷压加工获得 120  $\mu\text{m}$  厚的薄片,再经冲样、抛光、超声清洗获得  $\phi 3\text{ mm} \times 100\text{ }\mu\text{m}$  规格小圆片试样. 将试样置于管式炉中进行 1000  $^{\circ}\text{C}/24\text{ h}$  和 800  $^{\circ}\text{C}/1\text{ h}$  真空退火. 最后运用电解双喷方法获得 TEM 样品,双喷条件为:电压 20—25 V,温度低于  $-50\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,电解液为 5% 高氯酸 + 95% 甲醇溶液 (体积分数). 对于 TDS 分析实验,将熔炼后的样品通过冷压、切割、抛光获得 10 mm  $\times$  5 mm  $\times$

0.15 mm 试片,然后置于管式炉中进行 1000  $^{\circ}\text{C}/24\text{ h}$  和 800  $^{\circ}\text{C}/1\text{ h}$  真空退火,最后使用压延机对其进行 10% 的冷压处理. 利用日本九州大学离子加速器,对退火后的 TEM 样品进行室温注氢、TDS 样品进行室温注氘实验;注入离子能量均为 30 keV,注入剂量均为  $1.0 \times 10^{21}\text{ ions}/\text{m}^2$ ,如表 1 所示. 实验流程如图 1 所示. 图 1(a) 为在不同退火温度条件下 TEM 观察位错环演化的实验过程;图 1(b) 为 TDS 实验过程. TDS 实验使用电阻丝加热,由室温升至 700  $^{\circ}\text{C}$ ,升温速率 1  $^{\circ}\text{C}/\text{s}$ ,真空度为  $3.5 \times 10^{-7}\text{ Pa}$ . 由于氦气和氘气质量数均为 4,在 TDS 谱上 2 种信号会重叠,因此在 TDS 谱测量过程中利用引入的氦气来获得氘气的 TDS 谱图. 考虑到 Fe, Ni, Cr, Mn 的相对原子质量相差不大,在相同离子注入条件下,相应铁基二元合金的辐照损伤值和离子浓度随注入深度的变化关系与纯铁基本相同. 基于 SRIM 2013 软件计算得到注氢纯铁中的辐照损伤值和离子浓度随注入深度的变化分布,如图 2 所示<sup>[41,42]</sup>. 由图 2 可知,辐照损伤量 dpa 和  $\text{H}^+$  注入浓度峰值均在 150 nm 左右. 辐照损伤值 dpa 和  $\text{H}^+$  注入浓度的最大值分别为 0.28 dpa 和 9.9 at.% (原子分数). TEM 实验在 JEM-2000 上进行,加速电压 200 kV.

表 1 纯铁/铁基二元合金离子辐照条件  
Table 1. Ion irradiation conditions of Fe/Fe-based binary alloys.

材料	用途	温度/ $^{\circ}\text{C}$	注入离子	注入能量/keV	注入剂量/(ions $\cdot\text{m}^{-2}$ )
纯铁/铁基二元合金*	TEM	25	$\text{H}^+$	30	$1 \times 10^{21}$
	TDS	25	$\text{D}^+$	30	$1 \times 10^{21}$

注: \*铁基二元合金指 Fe-3Cr, Fe-1.4Ni 和 Fe-1.4Mn 合金.

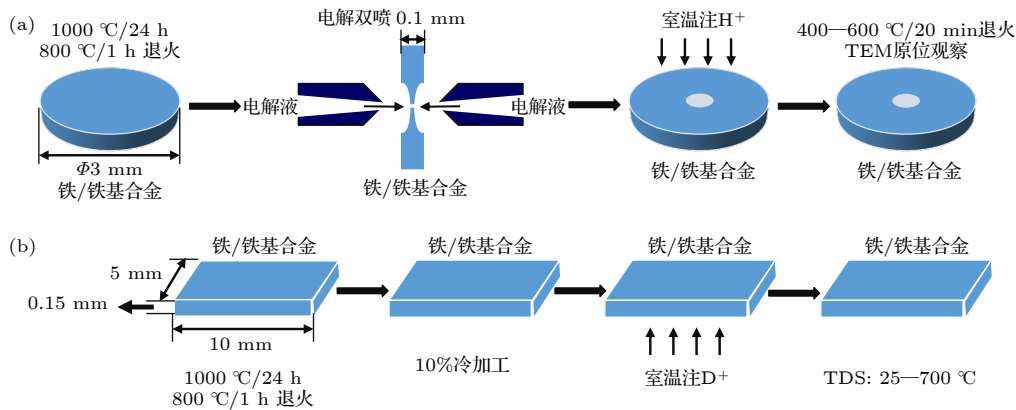


图 1 实验过程示意图 (a) 不同退火温度下位错环的 TEM 原位观察; (b) TDS 实验. 铁基合金指 Fe-3Cr, Fe-1.4Ni 和 Fe-1.4Mn  
Fig. 1. A schematic illustration of experiment procedures: (a) In-situ TEM observation of dislocation loops at different annealing temperatures; (b) TDS experiment. Fe-based binary alloys refer to Fe-3Cr, Fe-1.4Ni and Fe-1.4Mn.



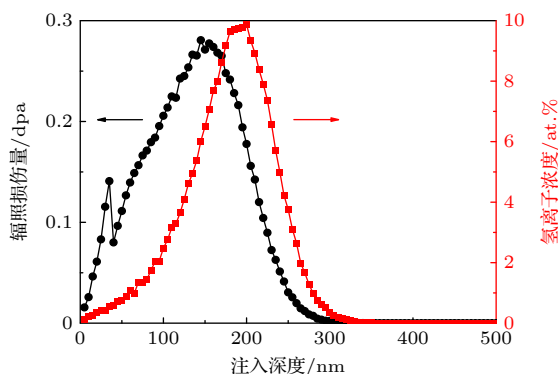


图2 SRIM 2013 模拟注氢纯铁的辐照损伤量 (dpa) 和氢离子浓度 (H, at.%) 随注入深度的分布情况. 纯铁离位阈能为 40 eV<sup>[43]</sup>. 辐照条件: 30 keV H<sup>+</sup>,  $1.0 \times 10^{21}$  ions /m<sup>2</sup>

Fig. 2. SRIM 3013 calculated depth profiles of displacement damage (dpa) and hydrogen concentration (H, at.%) in H<sup>+</sup> ion implanted pure Fe. Displacement threshold energy of pure Fe: 40 eV<sup>[43]</sup>. Irradiation condition: 30 keV H<sup>+</sup>,  $1.0 \times 10^{21}$  ions /m<sup>2</sup>.

图3为恒定时间 (20 min)、不同退火温度下纯铁/铁基合金辐照位错环演化过程示意图. 阶段 II-IV 对应辐照缺陷的第 II 至 IV 热回复阶段. 在阶段 II, 间隙原子聚集形成团簇; 在阶段 III, 单空位开始迁移并与间隙原子团簇结合, 从而使间隙原子团簇减少; 在阶段 IV, 空位聚集形成团簇<sup>[44]</sup>. 在阶段 II 及以下温度退火, 由于间隙原子和空位迁移能差异, 间隙型位错环会与间隙原子相互吸引结合而逐渐长大, 而空位还未聚集形成空位型位错环, 此时位错环的平均尺寸将逐渐增大, 如图 3(b) 所示. 随着退火温度的升高 (图 3(c)), 在低温过程中未完全长大的间隙型位错环继续长大、乃至与样品表面作用发生湮灭消失. 此时少量空位型位错环逐渐形成, 位错环平均尺寸出现下降趋势. 达到空位型位错环形成温度  $T_c$  时, 间隙型位错环将被完全移除, 损伤组织中仅剩空位型位错环, 如图 3(d) 所

示. 若上一阶段退火结束 (20 min) 后仍存在未完全长大的间隙型位错环, 它们将在本阶段继续长大乃至湮灭消失, 同时大量空位型位错环也逐渐形成. 因此在  $T_c$  退火一定时间后可能出现位错环平均尺寸的一个低谷值. 当温度高于  $T_c$  时, 空位型位错环吸收空位继续长大, 位错环平均尺寸再次升高, 如图 3(e) 所示. 基于图 3 展示的位错环演化过程, 本文提出运用常规透射电镜观察不同退火温度下位错环平均尺寸变化的方法来推断空位型位错环的形成温度  $T_c$ .

### 3 结果与讨论

#### 3.1 恒定时间、不同退火温度条件下的位错环演化

图 4 展示了注氢纯铁和铁基二元合金 (Fe-3Cr, Fe-1.4Ni 和 Fe-1.4Mn) 中辐照位错环在恒定时间 (20 min)、不同退火温度下 (400—600 °C) 的演变过程, 而图 5 展示了图 4 中位错环平均尺寸随退火温度升高的数值变化. 由图 4 和图 5 可知, 相比于辐照态, 退火后纯铁和铁基合金中辐照位错环的平均尺寸均出现大幅升高趋势. 这主要源于在退火过程中, 辐照缺陷迁移速率加快, 部分小尺寸辐照缺陷团簇逐渐聚合形成较大尺寸位错环<sup>[38]</sup>. 随着退火温度的升高, 位错环的平均尺寸也发生变化. 位错环可以作为点缺陷陷阱来捕获间隙原子和空位. 由于间隙原子具有更小的迁移能和更大的应力场作用体积, 相比空位总是有更多的间隙原子与位错环发生相互作用. 因此, 随着退火温度的升高, 间隙型位错环逐渐吸收间隙原子而长大, 直至与样品表面作用发生湮灭消失. 而在某一温度条件下, 间隙原子可能已完全被间隙型位错环吸收或者迁移

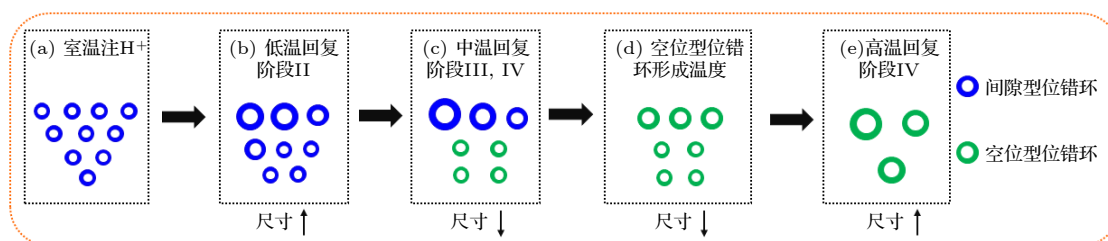


图3 辐照位错环在恒定时间内 (本文指 20 min)、不同退火温度下的形态和尺寸演化示意图. 尺寸表示位错环的平均尺寸, 阶段 II-IV 指辐照缺陷的第 II 至 IV 热回复阶段<sup>[44]</sup>

Fig. 3. A schematic diagram illustrating the morphology/size evolution of irradiation-induced dislocation loops during post-irradiation isochronal annealing for 20 min. 'Loop size' refers to the average size of dislocation loops. Stages 'II-IV' refer to the thermal recovery stages of radiation defects<sup>[44]</sup>.

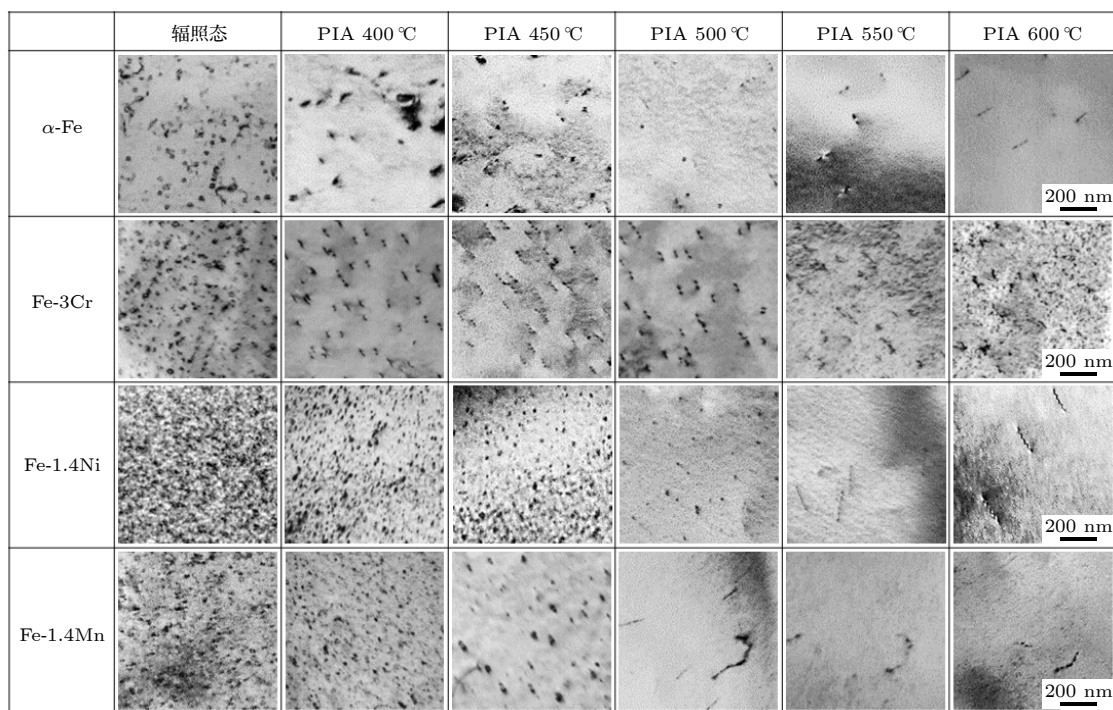


图 4 注氢纯铁/铁基二元合金中位错环在辐照后退火过程中的演化. 辐照条件: 30 keV  $H^+$ ,  $1.0 \times 10^{21}$  ions/ $m^2$ , 25 °C; 辐照后退火条件: 400—600 °C, 20 min; 成像条件: 双束运动学明场像,  $g = 200$

Fig. 4. Loop evolution in  $H^+$  ion implanted Fe/Fe-based binary alloys during post-irradiation annealing (PIA) treatment. Irradiation condition: 30 keV  $H^+$ ,  $1.0 \times 10^{21}$  ions/ $m^2$ , 25 °C. PIA condition: 400–600 °C, 20 min. Imaging condition: two-beam kinematical bright-field,  $g = 200$ .

到样品表面而消失, 使空位型位错环逐渐吸收更多的空位而长大. 因此由图 3 可知, 经过一定时间退火后, 位错环的平均尺寸可能随着退火温度的升高呈现先增大、后降低、然后再次增大的变化趋势, 在空位型位错环形成温度  $T_c$  附近出现一个平均尺

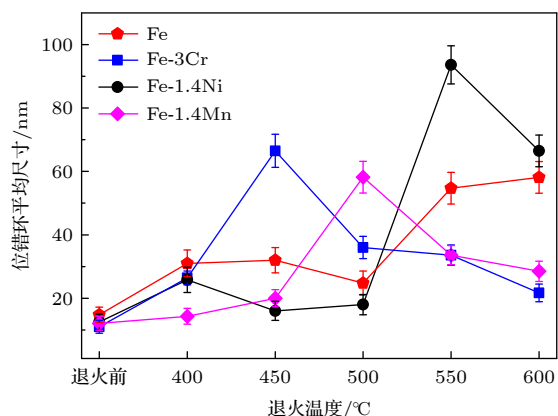


图 5 注氢纯铁/铁基二元合金中位错环在辐照后退火过程中的平均尺寸变化. 辐照条件: 30 keV  $H^+$ ,  $1.0 \times 10^{21}$  ions/ $m^2$ , 25 °C. 辐照后退火条件: 400—600 °C, 20 min.

Fig. 5. Average loop size changes in  $H^+$  ion implanted Fe/Fe-based binary alloys during post-irradiation annealing (PIA) treatment. Irradiation condition: 30 keV  $H^+$ ,  $1.0 \times 10^{21}$  ions/ $m^2$ , 25 °C. PIA condition: 400–600 °C, 20 min.

寸低谷. 因此, 通过图 5 中位错环平均尺寸的变化趋势, 可以推断出纯铁中  $T_c$  在 500 °C 左右. 相应地, 在 Fe-1.4Ni 合金中  $T_c$  在 450 °C 左右, 在 Fe-3Cr 合金中  $T_c$  达到 600 °C 以上. 这些发现均与前期超高压电镜实验结果一致 [34,35,37,38]. 对于 Fe-1.4Mn 合金而言, 空位型位错环形成温度  $T_c \geq 600$  °C, 高于纯铁的空位型位错环的形成温度. 换言之, 在 Fe 中添加 Mn 可有效提高空位型位错环的形成温度.

### 3.2 注氢纯铁/铁基二元合金的热脱附谱

图 6 为冷加工 10% 的纯铁和铁基二元合金 (Fe-3Cr、Fe-1.4Ni 和 Fe-1.4Mn) 注氢后的 TDS 谱. 由图 6 可知, 纯铁和铁基二元合金均有 2 个较大的释放峰, 分别在 100 °C 和 320 °C 左右. 由于氢离子注入过程极易在样品浅表面引入过饱和的氢同位素, 低温 100 °C 处释放峰可能与其释放相关 [45]. 文献研究发现 320 °C 左右的释放峰属于与空位型位错环所结合的氢同位素 [45,46], 而在 600 °C 左右的小波峰可能为位错、晶界或者空洞所束缚的氢同位素释放所致 [47,48].

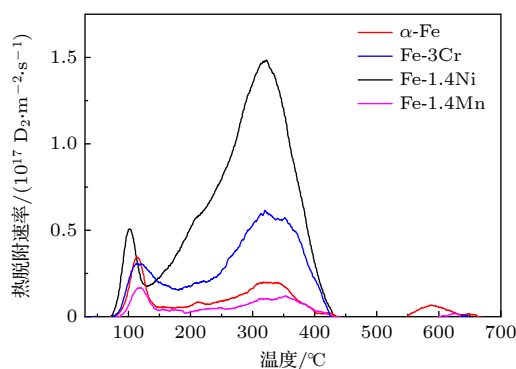


图6 注氘纯铁/铁基二元合金的热脱附谱图. 辐照条件: 30 keV D<sup>+</sup>,  $1.0 \times 10^{21}$  ions/m<sup>2</sup>, 25 °C.

Fig. 6. Thermal desorption spectra of deuterium in D<sup>+</sup> ion implanted Fe/Fe-based binary alloys. Irradiation condition: 30 keV D<sup>+</sup>,  $1.0 \times 10^{21}$  ions/m<sup>2</sup>, 25 °C.

对比纯铁和不同铁基二元合金与空位型位错环结合的氢同位素释放峰 (~320 °C) 发现, Fe-1.4Ni 合金的释放峰温度略低于纯铁, 而 Fe-3Cr 和 Fe-1.4Mn 合金则略高. 这说明合金元素 Ni 对氢同位素与空位的结合、释放有促进作用, 故导致  $T_c$  降低; 而 Cr 和 Mn 均对氢同位素与空位的结合、释放产生抑制作用, 故导致  $T_c$  升高.

## 4 结 论

本文采用加速电压为 200 kV 的常规透射电镜, 对恒定时间 (20 min)、不同退火温度条件的注氢纯铁和铁基二元合金开展辐照位错环演化过程的原位表征. 基于辐照损伤演化理论和位错环平均尺寸随退火温度的依存关系, 推断得到 Fe-1.4Ni,  $\alpha$ -Fe, Fe-3Cr 中空位型位错环形成温度分别为 450 °C, 500 °C 和  $\geq 600$  °C; Mn 与 Cr 的影响相似, 在 Fe 中添加 Mn 可以升高空位型位错环的形成温度. 因此, 运用常规透射电镜观察方法获得位错环平均尺寸随退火温度的变化可以有效推断空位型位错环的形成温度, 结果与前期超高压电镜实验结果一致. 注氘纯铁/铁基二元合金的氘热脱附谱说明在纯铁中添加 Ni 可促进氢同位素与空位的结合, 从而形成空位型位错环; 添加 Mn 和 Cr 则抑制了氢同位素与空位的结合, 阻碍空位型位错环形成.

## 参考文献

[1] Kano S, Yang H L, Suzue R, Matsukawa Y, Satoh Y, Sakasegawa H, Tanigawa H, Abe H 2016 *Nucl. Mater. Energy* **9** 331

[2] Hishinuma A, Kohyama A, Klueh R, Gelles D, Dietz W, Ehrlich K 1998 *J. Nucl. Mater.* **258–263** 193  
 [3] Sojak S, Slugeň V, Petriska M, Vetrníková JŠ, Stacho M, Sabelová V 2013 *22nd International Conference Nuclear Energy for New Europe* Bled, Slovenia September 8–13, 2013 p314  
 [4] Du Y F 2019 *Ph. D. Dissertation* (Beijing: University of Science and Technology Beijing) (in Chinese) [杜玉峰 2019 博士学位论文 (北京: 北京科技大学)]  
 [5] Kohno Y, Kohyama A, Hirose T, Hamilton M, Narui M 1999 *J. Nucl. Mater.* **272** 145  
 [6] Klueh R, Alexander D, Rieth M 1999 *J. Nucl. Mater.* **273** 146  
 [7] Sacksteder I, Schneider H C, Materna-Morris E 2011 *J. Nucl. Mater.* **417** 127  
 [8] Schaublin R, Henry J, Dai Y 2008 *Cr. Phys.* **9** 389  
 [9] Dubinko V I, Kotrechko S A, Klepikov V F 2009 *Radiat. Eff. Defect. S.* **164** 647  
 [10] Jiang S N, Wan F R, Long Y, Liu C X, Zhan Q, Ohnuki S. 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 166801 (in Chinese) [姜少宁, 万发荣, 龙毅 刘传歆, 詹倩, 大貫惣明 2013 物理学报 **62** 166801]  
 [11] Osetsky Y N, Serra A, Singh B N, Golubov S I 2000 *Philos. Mag. A* **80** 2131  
 [12] Kim S M, Buyers W 1978 *J. Phys. F: Metal Physics* **8** L103  
 [13] Willaime F, Fu C C, Marinica M C, Dalla Torre J 2005 *Nucl. Instrum. Meth. B* **228** 92  
 [14] Hashimoto N, Sakuraya S, Tanimoto J, Ohnuki S 2014 *J. Nucl. Mater.* **445** 224  
 [15] Wan F R 2020 *Chinese J. Eng.* **42** 1535 (in Chinese) [万发荣 2020 工程科学学报 **42** 1535]  
 [16] Hoelzer D T, Ebrahimi F 1994 *MRS Online Proceedings Library* **373** 57  
 [17] Ward A, Fisher S B 1989 *J. Nucl. Mater.* **166(3)** 227  
 [18] Chen L, Murakami K, Chen D, Abe H, Li Z, Sekimura N 2020 *Scripta Mater.* **187** 453  
 [19] Mizandrontsev D B, Vasiliev A A 2000 *Proceedings of SPIE-The International Society for Optical Engineering* **4064** 220  
 [20] Eyre B L, Bartlett A F 1965 *Philos. Mag.* **12** 261  
 [21] Masters B C 1965 *Philos. Mag.* **11** 881  
 [22] Yabuuchi K, Saito M, Kasada R, Kimura A 2011 *J. Nucl. Mater.* **414** 498  
 [23] Yabuuchi K, Kasada R, Kimura A 2013 *Acta Mater.* **61** 6517  
 [24] Watanabe H, Masaki S, Masubuchi S, Yoshida N, Dohi K 2013 *J. Nucl. Mater.* **439** 268  
 [25] Horton L L, Bentley J, Farrell K 1982 *J. Nucl. Mater.* **108** 222  
 [26] Wirth B D, Odette G R, Maroudas D, Lucas G E 2000 *J. Nucl. Mater.* **276** 33  
 [27] Terentyev D, Grammatikopoulos P, Bacon D J, Osetsky Y N 2008 *Acta Mater.* **56** 5034  
 [28] Zhang W P, Song L G, Zhu T, Xiong Y, Ma H L, Yan Q Z, Cao X Z, Wang B Y, Jin S X 2021 *J. Nucl. Mater.* **548** 152862  
 [29] Gao N, Perez D, Lu G H, Wang Z G 2018 *J. Nucl. Mater.* **498** 378  
 [30] Kiritani M, Yoshiie T, Iseki M, Kojima S, Hamada K, Horiki M, Kizuka Y, Inoue H, Tada T, Ogasawara Y 1994 *J. Nucl. Mater.* **212** 241  
 [31] Wei Y X, Gao N, Shen Z Y, Chen C, Xie Z Y, Guo L P 2020 *Comp. Mater. Sci.* **180** 109724  
 [32] Pan X D, Lu T, Lyu Y M, Xu Y P, Zhou H S, Yang Z S, Niu G J, Li X C, Gao F, Luo G N 2020 *J. Nucl. Mater.* **542** 152500  
 [33] Wei Y X, Gao N, Wang D, Chen C, Guo L P 2019 *Nucl.*

- Instrum. Meth. B* **461** 83
- [34] Huang Y N, Wan F R, Xiao X, Shi S, Long Y, Ohnuki S, Hashimoto N 2010 *Fusion Eng. Des.* **85** 2203
- [35] Wan F R, Ohnuki S, Takahashi H, Takeyama T, Nagasaki R 1986 *Philos. Mag. A* **53** L21
- [36] Gao J, Du Y, Ohnuki S, Wan F 2016 *J. Nucl. Mater.* **481** 81
- [37] Wan F R, Zhan Q, Long Y, Yang S W, Zhang G W, Du Y F, Jiao Z J, Ohnuki S 2014 *J. Nucl. Mater.* **455** 253
- [38] Du Y F, Cui L J, Han W T, Wan F R 2019 *Acta Metall. Sin-Engl.* **32** 566
- [39] Foll H, Wilkens M 1975 *Phys. Status Solidi A* **31** 519
- [40] Huang Y N, Wan F R, Jiao Z J 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 509 (in Chinese) [黄依娜, 万发荣, 焦治杰 2011 物理学报 **60** 509]
- [41] Stoller R E, Toloczko M B, Was G S, Certain A G, Dwaraknath S, Garner F A 2013 *Nucl. Instrum. Meth. B* **310** 75
- [42] ASTM-Committee 2003 *Standard Practice for Neutron Radiation Damage Simulation by Charged-particle Irradiation* (West Conshohocken: Copyright © ASTM International) p8
- [43] Yan Q 2017 *Ph. D. Dissertation* (Harbin: Harbin Engineering University) (in Chinese) [颜强 2017 博士学位论文 (哈尔滨: 哈尔滨工程大学)]
- [44] Wan F R 1993 *Irradiation Damage of Metal Materials* (Beijing: Science Press) p85 (in Chinese) [万发荣 1993 金属材料的辐照损伤 (北京: 科学出版社) 第85页]
- [45] Morishita K, Sugano R, Wirth B D, de La Rubia T D 2003 *Nucl. Instrum. Meth. B* **202** 76
- [46] Xu Y P 2017 *Ph. D. Dissertation* (Hefei: University of Science and Technology of China) (in Chinese) [徐玉平 2017 博士学位论文 (合肥: 中国科学技术大学)]
- [47] Sugano R, Morishita K, Iwakiri H, Yoshida N 2002 *J. Nucl. Mater.* **307** 941
- [48] Sugano R, Morishita K, Kimura A, Iwakiri H, Yoshida N 2004 *J. Nucl. Mater.* **329** 942



# Evolution of dislocation loops and effect of annealing temperature on hydrogen-ion-implanted Fe-based binary alloys\*

Li Ran-Ran<sup>1)2)</sup> Yin Yu-Peng<sup>1)</sup> Hideo Watanabe<sup>3)</sup> Yi Xiao-Ou<sup>1)†</sup>  
 Han Wen-Tuo<sup>1)</sup> Liu Ping-Ping<sup>1)</sup> Zhan Qian<sup>1)</sup> Wan Fa-Rong<sup>1)</sup>

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

2) (*College of Nuclear Equipment and Nuclear Engineering, Yantai University, Yantai 264005, China*)

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

( Received 19 January 2022; revised manuscript received 18 March 2022 )

## Abstract

Reduced activation ferritic/martensitic (RAFM) steels have been considered as a family of prime candidate structural materials for fusion reactors due to low radioactivity and good resistance to irradiation swelling. Various types of defects such as dislocation loops can form in these materials during irradiation. Effects of alloying elements in iron on the formation and migration of dislocation loops have been widely investigated. However, most studies dealt with interstitial-type dislocation loops in iron alloys, while very few focused on vacancy-type dislocation loops. Previous high voltage electron microscope (HVEM) studies from the authors' group have shown that interstitial loops are fully eliminated in hydrogen-ion-implanted  $\alpha$ -Fe at 500 °C, only vacancy loops remain and can achieve up to 100 nm in size. The addition of Ni in  $\alpha$ -Fe can reduce the formation temperature of vacancy-type dislocation loops ( $T_c$ ) to ~450 °C, while the addition of Cr can increase the temperature to above 600 °C. However, these experiments are usually difficult to perform due to the scarce resource of HVEM facilities. In this work, in-situ observations by conventional transmission electron microscope (CTEM, 200 kV) are systematically carried out on the hydrogen-ion-implanted  $\alpha$ -Fe and Fe-based binary alloys (Fe-3wt.%Cr, Fe-1.4wt.%Ni and Fe-1.4wt.%Mn). The evolutions of morphology and average size of dislocation loops under different annealing temperatures are investigated. The formation temperatures of vacancy-type dislocation loops are determined from the change of average loop size with annealing temperature. The results are consistent with previous studies by HVEM. The effect of Mn atoms in  $\alpha$ -Fe is similar to that of Cr atoms, which leads to  $T_c$  increase, and the addition of Ni in  $\alpha$ -Fe can reduce  $T_c$ . Furthermore, the results of D thermal desorption spectrum analysis show that  $T_c$  is affected by the binding and release process of hydrogen isotopes to vacancies in  $\alpha$ -Fe. Alloying element Ni promotes the binding and release of hydrogen isotopes to vacancies, which leads to  $T_c$  decrease. Cr and Mn inhibit the binding and release of hydrogen isotopes to vacancies, causing  $T_c$  to increase.

**Keywords:** Fe-based binary alloy, H<sup>+</sup>/D<sup>+</sup> ion implantation, vacancy-type dislocation loop, TEM

**PACS:** 61.72.-y, 61.72.Ff, 61.82.Bg, 68.37.Lp

**DOI:** 10.7498/aps.71.20220137

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos.11875085, 12175013) and the China Scholarship Council (Grant No.201806460050).

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