

**НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
НАЦІОНАЛЬНИЙ НАУКОВИЙ ЦЕНТР
«ХАРКІВСЬКИЙ ФІЗИКО–ТЕХНІЧНИЙ ІНСТИТУТ»**

Сунгуров Богдан Сергійович

УДК 669.017:539.16

**ВПЛИВ РАДІАЦІЙНО-ІНДУКОВАНИХ МІКРОСТРУКТУРНИХ
ДЕФЕКТІВ НА ПРОЦЕСИ НАКОПИЧЕННЯ ВОДНЮ
ТА ЗМІЦНЕННЯ АУСТЕНІТНОЇ СТАЛІ SS316**

01.04.07 - фізика твердого тіла

АВТОРЕФЕРАТ

дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико–математичних наук

Харків - 2018

Дисертацією є рукопис.

Робота виконана в Національному науковому центрі «Харківський фізико-технічний інститут» Національної академії наук України.

Науковий керівник: доктор фізико-математичних наук, старший науковий співробітник
Толстолицька Галина Дмитрівна,
Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України, начальник лабораторії фізики взаємодії іонних пучків з матеріалами відділу фізики радіаційних явищ і радіаційного матеріалознавства

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, професор
Петченко Олександр Матвійович,
Харківський національний університет міського господарства імені О.М.Бекетова МОН України, завідувача кафедрою фізики;

кандидат фізико-математичних наук, старший науковий співробітник

Богатиренко Сергій Іванович, Харківський національний університет імені В.Н. Каразіна МОН України, провідний науковий співробітник.

Захист дисертації відбудеться «___» _____ 2018 р. о ___ годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 64.845.01 Національного наукового центру «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України за адресою: 61108, м. Харків, вул. Академічна, 1, конференц-зал.

З дисертацією можна ознайомитись у науковій бібліотеці Національного наукового центру «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України за адресою: 61108, м. Харків, вул. Академічна, 1.

Автореферат розісланий « ___ » _____ 2018 року.

Вчений секретар
спеціалізованої вченої ради Д 64.845.01



Мануйленко О.В.

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми дисертації. В конструкційних матеріалах енергетичних установок в процесі їх експлуатації накопичуються газоподібні трансмутанти, зокрема, гелій і водень, що сприяють прояву гелієвого окрихчення, водневої крихкості і газового розпухання. Типові концентрації гелію і водню ($\text{He}/\text{зна}$, $\text{H}/\text{зна}$), що утворюються при одному зміщенні атома з його рівноважного місця в решітці (зна), складають $\ll 1$ для реакторів на швидких нейтронах, близько 10 для реакторів синтезу і ~ 100 для установок «spallation»¹⁾.

В якості основного матеріалу для внутрішньокорпусних пристроїв (ВКП) ядерних енергетичних реакторів використовуються аустенітні нержавіючі сталі: стабілізована титаном хромонікелева сталь 08X18H10T, нержавіючі сталі марок 304 і 316. Аустенітна нержавіюча сталь SS316 широко використовується як конструкційний матеріал в реакторах II і III поколінь через поєднання її хорошої стійкості до повзучості при високій температурі і опору кисневій корозії. Крім того, зі сталі типу SS316 виготовлений корпус діючих в даний час джерел нейтронів «spallation», вона обрана в якості конструкційного матеріалу для ІТЕР і вважається кандидатним конструкційним матеріалом для корпусу реактора з розплавленою сіллю (MSR) в якості теплоносія²⁾.

Вплив гелію і водню на властивості конструкційних матеріалів ядерних і термоядерних реакторів розглядається в даний час як особлива проблема фізики радіаційних ушкоджень і радіаційного матеріалознавства, яка потребує вирішення багатьох матеріалознавчих задач, зокрема, вивчення комплексного впливу на матеріали водню, гелію і радіаційних дефектів. Радіаційні дефекти і накопичення газових трансмутантів, крім зміни мікроструктури матеріалів, викликають деградацію їх механічних властивостей, зокрема, зміцнення і окрихчення.

Внесок в процеси накопичення і утримання водню в металах і сплавах дає цілий спектр різних дефектів радіаційного походження (точкові дефекти і їх кластери, дислокаційні петлі вакансійного і міжвузельного типів, виділення нової фази, вакансійні і газонаповнені пори). Однак внесок в ці процеси кожного з типів дефектів до теперішнього часу остаточно не встановлено.

Таким чином, встановлення закономірностей захоплення і накопичення водню, механізмів зміцнення сталі SS316 і впливу на ці процеси радіаційних дефектів і імплантованого гелію становлять **важливу і актуальну** задачу сучасної фізики твердого тіла.

¹⁾ P. Vladimirov and A. Möslang. Comparison of material irradiation conditions for fusion, spallation, stripping and fission neutron sources // J. of Nucl. Mater. 2004. Vol. 329-333. P. 233–237.

²⁾ P. Yvon, F. Carre. Structural materials challenges for advanced reactor systems // J. Nucl. Mater. 2009. Vol. 385. P. 217-222.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Наукові результати, які представлені в дисертації, сприяють вирішенню завдань, сформульованих у державних документах і галузевих програмах, наприклад, в «Енергетичній стратегії України на період до 2030 року», затвердженої Розпорядженням Кабінету Міністрів України від 15.03.2006 р. № 145.

Дисертаційна робота виконувалася в ННЦ ХФТІ відповідно до планів науково-дослідних робіт в рамках «Програми проведення фундаментальних досліджень з атомної науки і техніки Національного наукового центру «Харківський фізико-технічний інститут» на 2011-2020 роки, а саме:

«Дослідження фундаментальних матеріалознавчих проблем створення радіаційно-стійких функціональних матеріалів для атомно-енергетичного комплексу» 2011-2015 р., № держреєстрації 0111U009715;

«Вивчення фізичних механізмів радіаційно-індукованої деградації функціональних властивостей матеріалів діючих та перспективних атомно-генеруючих комплексів нового покоління для забезпечення енергетичної безпеки України» 2016-2020 р., № держреєстрації 0116U005094.

Окрім цього, за час роботи над дисертацією виконувався проект за темою: «Визначення критичних рівнів накопичення водню та впливу індукованих воднем мікроструктурних змін на деградацію фізико-механічних властивостей конструкційних матеріалів діючих і майбутніх ядерних енергетичних установок» 2016-2018 р., № держреєстрації 0116U006893 в рамках цільової комплексної програми «Наукове забезпечення розвитку ядерно-енергетичного комплексу та перспективних ядерних технологій 2016-2018 рр.»

Дисертант у даних роботах виступав виконавцем.

Мета й задачі дослідження. Метою роботи є встановлення фізичних закономірностей захоплення і накопичення водню, механізмів зміцнення сталі SS316 і впливу на ці процеси радіаційних дефектів і імплантованого гелію.

Для досягнення цієї мети необхідно було вирішити **наступні задачі:**

1. Дослідити вплив гелію і водню на розвиток мікроструктури сталі SS316 в широкому інтервалі доз і температур опромінення.
2. Визначити температурні інтервали десорбції і вивчити просторово-концентраційні розподіли дейтерію в об'ємі сталі після імплантації і в процесі відпалу.
3. Виконати чисельне моделювання процесів імплантації, дифузії, взаємодії з пастками і рекомбінації для визначення термодинамічних параметрів захоплення ізотопів водню в сталі SS316, і порівняти їх з параметрами для інших сталей аустенітного класу.
4. Встановити вплив дефектів радіаційного походження: точкових дефектів і їх кластерів, дислокаційних петель вакансійного і міжвузельного типів, вакансійних і газонаповнених пор на процеси накопичення водню.
5. Дослідити залежність зміцнення сталі від умов опромінення. Встановити зв'язок еволюції радіаційно-індукованої структури і імплантації гелію і водню зі зміною механічних властивостей сталі SS316.

Об'єкт дослідження - фізичні процеси в аустенітній сталі типу SS316 при опроміненні іонами ізотопів водню, гелію і аргону при різних температурах і рівнях пошкоджуваності.

Предмет дослідження – природа і механізми захоплення і накопичення ізотопів водню в сталі SS316 при іонній імплантації та мікроструктурні аспекти її зміцнення.

Методи дослідження. Для виявлення фізичних закономірностей взаємодії іонно-імплантованого водню з нержавіючою сталлю аустенітного класу SS316 використані комплексні вимірювання, що поєднують добре відомі та широко апробовані методи досліджень твердого тіла та ядерно-фізичні методи, а саме, ядерні реакції, термодесорбційну мас-спектрометрію (ТДС), просвічуючу та скануючу електронні мікроскопії, металографічні дослідження, а також методику розрахунку спектрів термоактивованого виділення водню з металів, яка ґрунтується на моделі, що дозволяє враховувати його дифузію, взаємодію з дефектами і рекомбінаційну десорбцію. Вимірювання нанотвердості виконували за допомогою наноіндентора Nanoindenter G200.

Наукова новизна отриманих результатів полягає в тому, що вперше:

1. Розроблено експериментальний підхід, що дозволяють контролювати процеси перенесення імплантованого водню як в об'ємі матеріалу, так і при його термоактивованому виході в вакуум, з можливістю реєстрації «відгуку» мікроструктури і механічних характеристик імплантованого шару матеріалу на опромінення і наступні відпали.

2. Встановлено, що при дозах пошкоджень зміщення ≤ 1 зна точкові дефекти і їх комплекси контролюють розподіл і захоплення імплантованого дейтерію. Найбільш ефективними пастками газу, які утримують атоми дейтерію до $(0,1-0,2) T_{пл}$ ($T_{пл}$ - температура плавлення), є дефекти вакансійного типу.

3. Показано, що при дозах 1...25 зна, в сталі SS316 формуються дефекти типу вакансійних пор, газонаповнених бульбашок або розвиненої дислокаційної структури. Виявлена кореляція між структурою, що розвивається при опроміненні, і рівнем накопичення дейтерію. Встановлено, що максимальний ефект на захоплення дейтерію з його утриманням до $0,35 T_{пл}$ здійснюють бульбашки інертного газу.

4. Встановлено, що низькотемпературне радіаційне зміцнення сталі SS316 обумовлене консервативною природою петель Франка, є функцією дози опромінення і досягає насичення при дозах близько 1 зна. Гелій і дейтерій підсилюють зміцнення на 20-30% при їх концентраціях більше 1 ат.%.

Практичне значення отриманих результатів. Результати, отримані в дисертаційній роботі, можуть використовуватися для аналізу закономірностей поведінки ізотопів водню в імітаційних експериментах з одночасним створенням пошкоджень і введенням домішок газових трансмутантів в нержавіючих сталях аустенітного класу.

Результати дослідження дають можливість надати ряд обґрунтованих рекомендацій експериментаторам і фахівцям-розробникам конструкційних матеріалів ядерних і термоядерних реакторів щодо врахування низькотемпературного радіаційного окрихчення та характеру поведінки водню і гелію при одночасному їх проникненні в матеріали і створенні пошкоджень.

Встановлений в дисертації механізм перерозподілу ізотопу водню - дейтерію між пастками радіаційного походження дає можливість узагальнити сучасні знання про взаємодію водню з матеріалами і вирішити проблему зниження опору корозійному розтріскуванню внутрішньокорпусних пристроїв водо-водяних реакторів і визначити технології його попередження.

Особистий внесок здобувача представлено в усіх опублікованих роботах [1-15] згідно з поставленими науковим керівником задачами, а саме: аналіз літературних даних; підготовка та проведення експериментів; розробка та налаштування експериментального обладнання; спільно зі співавторами проведення аналізу отриманих результатів; підготовка результатів до друку, написання статей та тез доповідей на конференції за темою дисертації.

В роботах [1, 6, 8] здобувач приймав безпосередню участь у дослідженні особливостей та механізмів накопичення і десорбції дейтерію, імплантованого в аустенітну нержавіючу сталь SS316, а також впливу гелію і радіаційних дефектів на процес масопереносу дейтерію.

В роботах [4, 7, 9, 11, 13] здобувач приймав безпосередню участь у дослідженні закономірностей радіаційної пошкоджуваності аустенітної нержавіючої сталі SS316 при опроміненні важкими іонами, гелієм і воднем, еволюції дислокаційних структур та характеристик дислокаційних петель, розвитку вакансійних і газонаповнених пор, їх розподілу за розмірами, залежності концентрації захоплених атомів дейтерію від розвитку дефектної структури.

В роботах [2, 5, 10, 15] здобувач приймав участь у плануванні, підготовці та проведенні експериментів з визначення впливу радіаційних пошкоджень на зміцнення нержавіючої сталі SS316, кореляції радіаційно-індукованого зміцнення і еволюції мікроструктури сталі, та обробці отриманих результатів.

В роботах [3, 12, 14] здобувач приймав участь у дослідженні впливу гелію та водню на зміцнення сталі SS316, ранжуванні радіаційних дефектів за їх впливом на зміцнення.

Апробація результатів дисертації. Основні наукові результати дисертаційної роботи були представлені, обговорені та отримали позитивну оцінку на таких наукових конференціях: XX Міжнародна конференція з фізики радіаційних явищ та радіаційного матеріалознавства (Алушта, Україна, вересень, 2012); International Conference The Nuclear Materials (NuMat2016), Le Corum, Montpellier, France, 7–10 November 2016; XII міжнародна Науково-технічна конференція молодих учених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики» (м. Харків, Україна, 16-18 листопада 2016 р.); XII Міжнародна наукова конференція «Фізичні явища в твердих тілах» (1-4 грудня 2015 року) ХНУ ім. В.Н. Каразіна; 12-а Міжнародна конференція «Взаємодія випромінювань з твердим тілом» (19-22 вересня 2017 р., м. Мінськ, Білорусь); XIII міжнародна науково-технічна конференція молодих учених та фахівців «Проблеми сучасної ядерної енергетики», м. Харків, Україна (18-21 жовтня 2017).

Публікації. Основні результати дисертаційної роботи опубліковано в 15 наукових роботах, а саме в 7 статтях [1-7], які задовольняють вимогам ДАК МОН України до публікацій на яких ґрунтується дисертація, та 8 матеріалах і тезах доповідей на наукових конференціях [8-15]. Всі зазначені статті опубліковано у спеціалізованих фахових наукових виданнях, 1 стаття опублікована у спеціалізованому науковому виданні іноземної держави [5]. Статті [1,2,5-7] опубліковано в наукових виданнях, які включені до міжнародних наукометричних баз даних (Scopus та Web of Science).

Структура й об'єм дисертації. Дисертація складається із вступу, п'яти розділів основного тексту з 79 рисунками і 8 таблицями, висновків і списку використаних літературних джерел зі 195 найменувань та додатку. Об'єм дисертації становить 171 сторінки, з яких 18 сторінок займає список використаних джерел, 3 сторінки займає додаток.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У **Вступі** обґрунтовано актуальність вибраної теми, визначено об'єкт та предмет дослідження, мету й завдання дисертації, показано зв'язок дисертаційної роботи з науковими програмами та темами, визначено наукову новизну результатів і можливість їх практичного застосування, відображено особистий внесок здобувача в опублікованих, разом зі співавторами, наукових працях, представлено інформацію про апробацію результатів, описано структуру та обсяг дисертаційної роботи.

Розділ 1 «Огляд літератури» є оглядовим і складається з декількох підрозділів. В першому підрозділі виконано огляд літературних джерел щодо характеристики аустенітних корозійно-стійких сталей, що мають низьку межу плинності, помірну міцність, високу пластичність і гарну корозійну стійкість в окислювальних середовищах. У другому підрозділі розглянуті процеси міграції водню в твердих тілах. Процес проникнення водню крізь матеріал є багатостадійним і включає в себе: взаємодію з поверхнею (адсорбція), перехід через межу розділу газ-тверде тіло (абсорбція), розчинення і дифузію водню в об'ємі твердого тіла і вихід назад в газову фазу (десорбція). У третьому підрозділі виконано огляд літературних джерел відносно поведінки водню в умовах радіаційного впливу. Розглянуто процеси, які будуть відбуватися на матеріалах першої стінки термоядерних пристроїв, підданих бомбардуванню іонами або нейтралами ізотопів водню з енергією від кількох десятків еВ до декількох кеВ. Частинки водню з енергією вище декількох сотень еВ будуть викликати не тільки розпорошення, але і пошкодження, обумовлені зміщенням атомів матриці з положення рівноваги в ґратці. Особливість пошкодження цими частинками полягає в тому, що число впроваджуваних атомів водню можна порівняти з кількістю зміщених атомів матриці, що може змінити мікроструктурну еволюцію шляхом взаємодії водню з радіаційно-індукованими дефектами і між собою. У четвертому підрозділі розглянута взаємодія водню з радіаційними дефектами в експериментах з використанням методики іонної імплантації. Розглянуті відомі на сьогодні пастки для водню в сталях: (i) вакансії, (ii) власні міжвузельні атоми (в.м.а) і розчинені атоми, (iii) дислокації, (iv) межі зерен, (v) зовнішні поверхні, (vi) преципітати, (vii) домішки, (viii) тріщини і (ix) пори та їх вплив на концентрацію водню, що накопичується в

металі. Наведено енергії зв'язку водню з центрами захоплення. В п'ятому підрозділі обговорюються процеси термоактивованого перенесення водню в конструкційних сталях. На прикладі аустенітних нержавіючих сталей типу 18-10 обговорено термодинамічні характеристики захоплення і десорбції дейтерію і основні ефективні механізми його утримання в широкому інтервалі температур і доз імплантації. У шостому підрозділі виконано огляд літературних джерел зі зміни характеристик міцності матеріалу (напруга зсуву, межі плинності і міцності, твердість), що викликані розвитком радіаційних дефектів. Обговорено кореляцію радіаційного зміцнення зі зменшенням пластичності опромінюваних матеріалів - явищем радіаційного окрихчення. Розглянуто внесок в зміцнення металів і сплавів точкових дефектів, крайових дислокацій, петель вакансійного і міжвузельного типів, виділення нових фаз, вакансійних і газонаповнених пор.

В огляді також подано обґрунтування необхідності встановлення фізичних закономірностей захоплення і накопичення водню, механізмів зміцнення сталі SS316 і впливу на ці процеси радіаційних дефектів і імплантованих гелію і водню.

У підсумку на підставі аналізу літературних джерел сформульовано основні задачі дисертаційної роботи та напрямки їх вирішення.

Другий розділ «Методи досліджень, експериментальне обладнання та матеріали» присвячений опису матеріалів, експериментального устаткування і методів дослідження захоплення і накопичення водню, механізмів зміцнення сталі SS316 і впливу на ці процеси радіаційних дефектів і імплантованих гелію і водню.

В роботі в якості вихідного матеріалу використовували сталь SS316 с хімічним складом (ваг.%): Si - 0,67; C - 0,06; Mn - 1,77; P - 0,035; S - 0,015; Cr - 16,68; Ni - 12,01; Mo - 2,39; Ti - 0,01; Fe-залишок.

Комплекс з трьох прискорювачів заряджених частинок, пучки яких суміщені на мішені, використовувався для одночасного опромінення матеріалів пучками іонів аргону, гелію і водню, або його ізотопу - дейтерію, а також вимірювання профілів розподілу дейтерію по глибині з використанням ядерної реакції (ЯР) $D(^3\text{He}, p)^4\text{He}$ і аналізуючого пучка іонів ^3He ($E=0,3\dots 1,4$ MeV).

Прискорювальна установка «Ант» використовувалася для вивчення закономірностей імплантації, накопичення і виділення імплантованих іонів з матеріалів методом термоактивованої десорбції, яку досліджували за допомогою двох приєднаних до експериментальної камери датчиків монопольних радіочастотних мас-спектрометрів.

Зразки опромінювали пучком іонів водню або дейтерію. Заміна водню дейтерієм в деяких експериментах дозволила визначити його розподіл по глибині за допомогою методу ядерних реакцій, а також в експериментах по термодесорбції відокремити іонно-імплантовану компоненту – дейтерій (D_2), від компоненти, що виділяється за відпалів з вузлів експериментальної камери (H_2).

Для контролю дози опромінення в даній роботі використовували дві системи одиниць вимірювання. В одній системі доза задається кількістю зміщень кожного атома матриці (зна) при опроміненні, служить універсальним показником пошкоджуваності об'єкта і розраховується з урахуванням сорту і

енергії частинок, що бомбардують, а також енергії зміщення атомів матриці. Інша система орієнтована на індикацію концентраційних співвідношень імплантованих частинок і атомів матриці мішені і виражається в част/см².

Вивчення мікроструктури імплантованого шару сталей виконувалося методом просвічуючої електронної мікроскопії (ПЕМ) з використанням електронних мікроскопів EM-125 з робочою напругою 125 кВ та JEM-100CX.

Еволюцію дрібних дефектних кластерів, утворення дислокаційних петель міжвузельного і вакансійного типів, характеристики дислокаційних петель, що утворюються при опроміненні сталі іонами дейтерію і аргону, досліджували із застосуванням стандартної методології визначення векторів Бюргерса і типу дислокацій.

Вимірювання нанотвердості виконували за допомогою наноіндентора Nanoindenter G200 з використанням алмазної тригранної пірамідки Берковича. Випробовування проводили, використовуючи метод безперервного контролю жорсткості CSM (continuous stiffness measurement), з безперервним записом кривої навантаження і розвантаження.

У третьому розділі «Взаємодія дейтерію зі сталлю SS316» наведені результати експериментальних досліджень спектрів термодесорбції і еволюції профілів розподілу по глибині дейтерію, імплантованого в сталь SS316 з енергією (6 - 15) кеВ/D⁺ в діапазоні доз 4·10¹⁵...1·10¹⁷ D·см⁻². Вивчено захоплення і накопичення іонно-імплантованого дейтерію, зміни мікроструктури сталі при опроміненні і відпалі, визначені характеристики дефектів дислокаційного типу.

Спектри термодесорбції в разі опромінення сталі SS316 при 290 К до доз 4·10¹⁵...1·10¹⁷ D·см⁻² містять два слабкорозділених піки з температурами максимумів ~ 385 і 425 К (рис. 1, а). Для дослідженого інтервалу доз опромінення газовиділення дейтерію зі сталі SS316 практично закінчується при температурі 500 К.

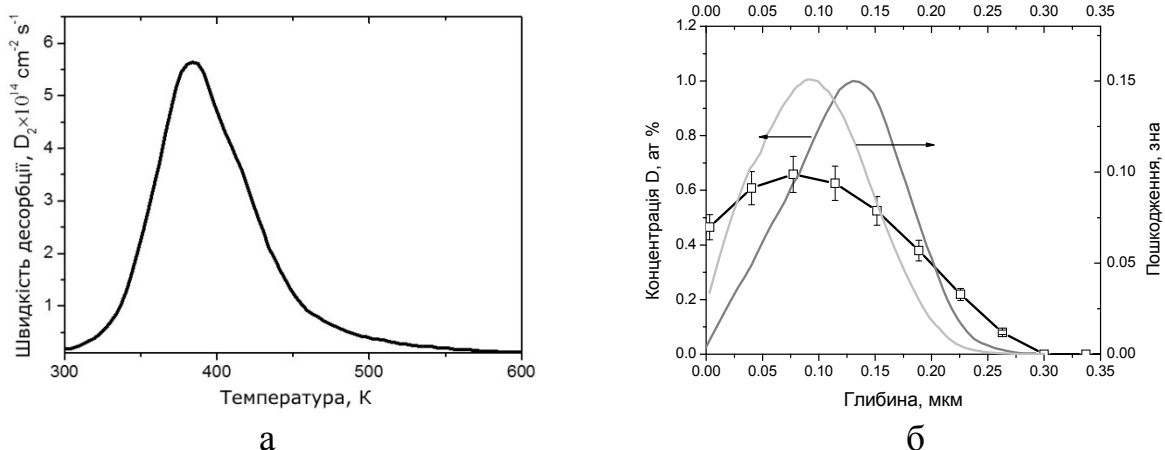


Рис. 1. Спектр термодесорбції дейтерію зі сталі SS316, опроміненої до дози 4·10¹⁵ D⁺·см⁻² (а), і профілі розподілу дейтерію експериментальний (□) і розрахункові (SRIM) профілі пробігів і пошкоджень (б).

Експериментальний профіль розподілу дейтерію (максимум і напівширина) в межах помилки експерименту відповідають суперпозиції розрахункових профілів пробігів і пошкоджень (рис. 1, б). Кількість дейтерію, що утримується в зразках при T_{кімн}, становить ~70% по відношенню до дози опромінення.

Зі збільшенням дози опромінення дейтерієм виділяється вже в процесі опромінення при ~ 290 К, на що вказує ненульове значення швидкості десорбції для дози $1 \cdot 10^{17} \text{ D}^+ \cdot \text{см}^{-2}$ (рис. 2, а). Ця особливість взаємодії дейтерію зі сталлю SS316 вказує на слабе захоплення дейтерію на пастках, що створюються в процесі низькоенергетичного опромінення. Підтвердженням низької ефективності захоплення є зниження більш ніж в три рази кількості дейтерію, що виділяється, після витримки зразка при температурі 290 К протягом 90 хв (рис. 2, а (вставка)) і різке зниження концентрації дейтерію в області розрахункового розподілу пробігів (рис. 2, б). Високою рухливістю обумовлено закріплення $\sim 30\%$ дейтерію на глибині 0,6-1,0 мкм, приблизно відповідній пробігам іонів аналізуючого пучка ^3He з енергіями 0,3 - 1,4 МеВ.

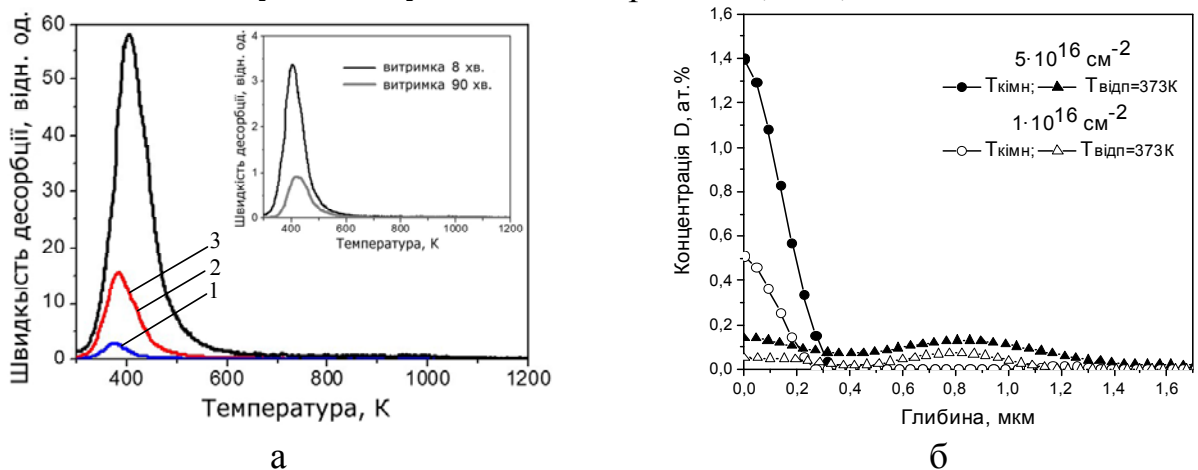


Рис. 2. Спектри термодесорбції дейтерію із сталі SS316, опроміненої до доз $4 \cdot 10^{15}$ (1), $2 \cdot 10^{16}$ (2) і $1 \cdot 10^{17} \text{ D}^+ \text{ см}^{-2}$ (3), та після витримки при $T_{\text{кімн}}$ (доза $5 \cdot 10^{16} \text{ D}^+ \text{ см}^{-2}$) (вставка) (а), еволюція профілів розподілу дейтерію при відпалі (б).

При опроміненні сталі SS316 іонами дейтерію з енергією 15 кеВ при кімнатній температурі формуються дислокаційні петлі. Було визначено тип і вектор Бюргерса петель (рис. 3, 4). Метод визначення типу петлі заснований на зміні розмірів зображення в різних дифракційних умовах при використанні двопробеневого наближення при $s > 0$ (s - вектор відхилення від точного бреггівського відображення) і варіюванні знака дифракційного вектора \mathbf{g} .

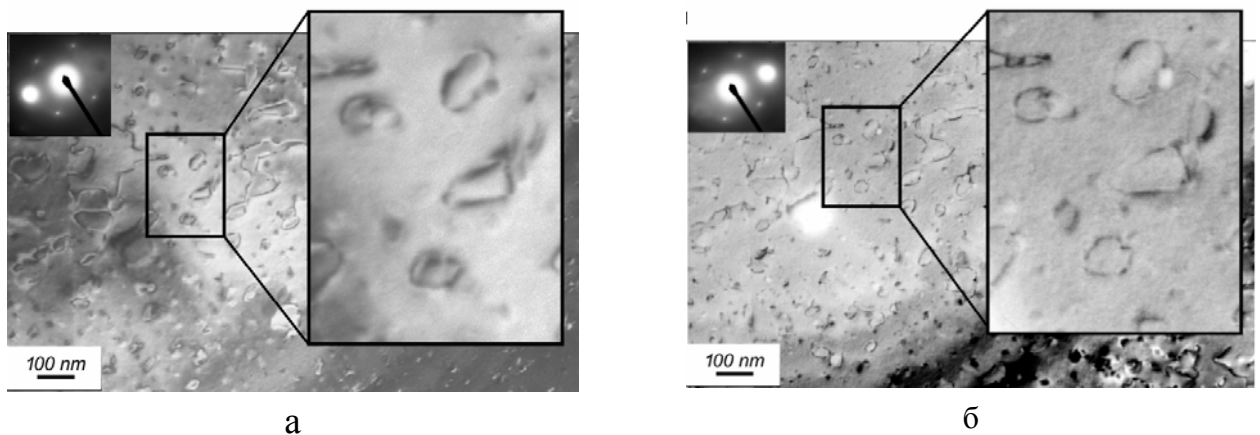


Рис. 3. Зміна розміру петель для дифракційних векторів -200 (а) і 200 (б) при збереженні $s \gg 0$ і зміні знака \mathbf{g} .

Дислокаційні петлі показали зростання при зміні знака \mathbf{g} і були ідентифіковані як петлі міжвузельного типу.

Визначення вектора Бюргера петель було засноване на зникненні контрасту при $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$. Встановлено, що петлі розташовуються на площинах $\{111\}$. Характерний контраст свідчить про наявність дефектів упаковки (рис. 4). Дефект упаковки, утворений шляхом вставки або видалення області щільно упакованої площини $\{111\}$, обрамляють часткові дислокації. Можливими частковими дислокаціями в ГЦК-матеріалах є дислокаційні петлі Франка з вектором Бюргера $\mathbf{b} = a/3\langle 111 \rangle$ і дислокаційні петлі Шоклі з вектором Бюргера $\mathbf{b} = a/6\langle 112 \rangle$ ³⁾. У поданій роботі більшість досліджених петель має вектор Бюргера типу $a/3\langle 111 \rangle$ і є петлями Франка.

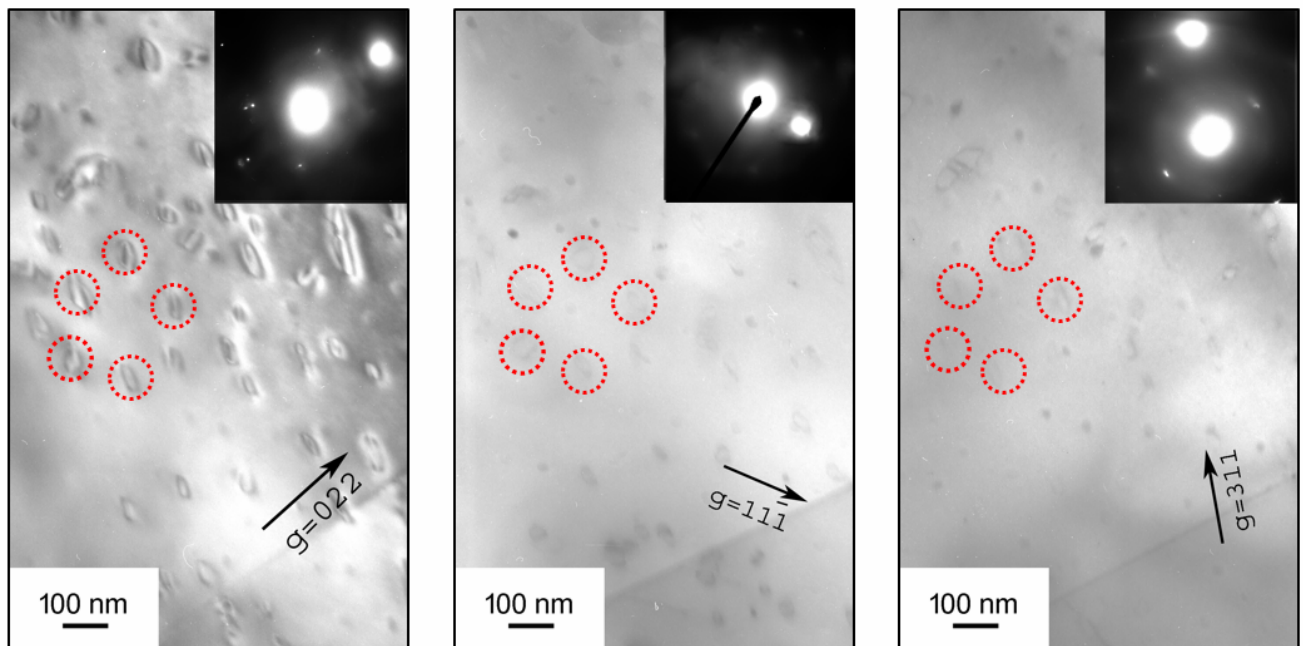


Рис. 4. Зміна контрасту зображення петель Франка при варіюванні \mathbf{g} між 022, 11-1 і 311 для зразка, опроміненого при кімнатній температурі і наступному нагріві до 920 К.

У всьому температурному діапазоні, в якому спостерігається процес десорбції газу, мікроструктура залишається практично незмінною. Зростання розмірів дислокаційних петель починається при температурах відпалу близько 1000 К (рис. 5). При цих температурах були виявлені дислокаційні петлі, які зникають при ~ 1200 К. Формування і еволюція при відпалі дефектів такого типу не корелює з температурними інтервалами утримання водню. Слід зазначити, що у загальному випадку дію одного типу дефектів може бути замасковано дією інших дефектів. Наприклад, водень може бути захоплений дефектами дислокаційного типу. Але на певних стадіях відпалу можлива дисоціація його з дислокацією і повторне захоплення більш «глибокими» пастками, наприклад, радіаційно-індукованими вакансіями та їх комплексами.

³⁾ Воеводин В.Н., Неклюдов И.М. Эволюция структурно-фазового состояния и радиационная стойкость конструкционных материалов / К.: Наукова думка, 2006. 374 с.

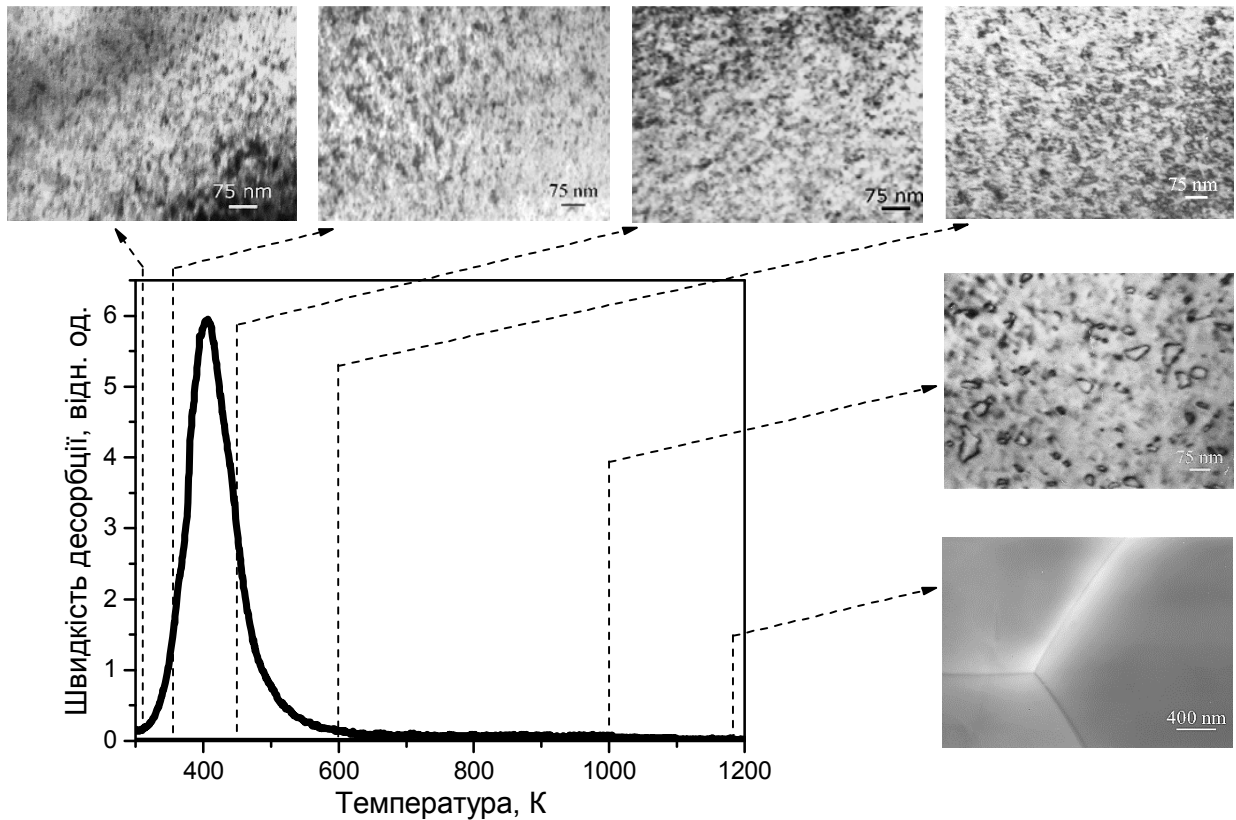


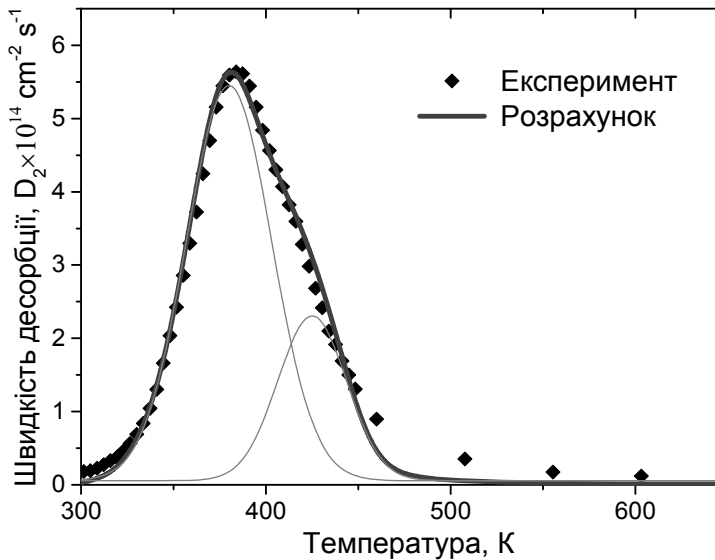
Рис. 5. Еволюція мікроструктури і термічна десорбція дейтерію зі сталі SS316, опроміненою дозою $3 \cdot 10^{16} D^+ \cdot \text{см}^{-2}$ при $T = 290 \text{ K}$.

Пасивуюча окисна плівка, що утворюється на поверхні сталі SS316 при її зберіганні на повітрі, зміщує інтервал десорбції дейтерію зі сталі на 200 ... 300 градусів в область більш високих температур.

Розділ 4 «Еволюція мікроструктури і утримання дейтерію в сталі SS316 при опроміненні іонами аргону, гелію і дейтерію» містить результати експериментів з вивчення впливу типу дефектів: вакансій, дислокацій, вакансійних пор і газових бульбашок на рівні накопичення і температурні інтервали утримання ізотопу водню - дейтерію в аустенітній сталі SS316.

З метою визначення енергії зв'язку дейтерію з пастками, були змодельовані процеси його імплантації, дифузії, захоплення, вивільнення і рекомбінації. Розрахунок являє собою чисельне рішення рівняння дифузії дейтерію в полі дефектів з використанням моделі, що враховує можливість пере захоплення атомів дейтерію, які дифундують.

Гарний збіг експериментального і розрахункового спектрів десорбції отримано за припущення про захоплення одного атома дейтерію пасткою для високотемпературної стадії десорбції ($T_{\text{макс}} = 425 \text{ K}$), і до шести атомів дейтерію пасткою для низькотемпературного піка ($T_{\text{макс}} = 385 \text{ K}$) при енергії зв'язку $(0,28 \pm 0,04)$ і $(0,39 \pm 0,05)$ еВ для піків 385 та 425 K, відповідно (рис. 6). Величина 0,39 еВ добре узгоджується зі значенням енергії зв'язку водню з моновакансією в ГЦК-металах.



Попереднє впровадження гелію призводить до утримання дейтерію до температур, що перевищують 600 К. У цьому випадку профілі розподілу дейтерію в межах помилки експерименту не змінюються аж до температури відпалу ~ 400 К (рис. 7), а при відпалі до температури ~ 500 К концентрація дейтерію знижується всього до 70% від значення при $T_{\text{кімн}}$. Ці факти свідчать про більш сильне утримання дейтерію пастками, які асоціюються з гелієм. Результати електронномікроскопічних досліджень показали, що такими пастками є гелієві бульбашки.

Особливістю еволюції мікроструктури SS316 сталі після опромінення зразків 1,4 MeV іонами аргону (доза $1 \cdot 10^{17}$ Ar \cdot см $^{-2}$) є створення різної пошкодженості в двох зонах. В одній зоні (0-200 нм) створюються, в основному, пошкодження типу зміщення на рівні 25 зна і практично відсутні домішки інертного газу, в іншій (400-600 нм) - доза пошкоджень становить ~ 60 зна, а концентрація аргону досягає ~ 5 ат.%. Зміною температури опромінення ($T_{\text{кімн}}$ и 920-1000 К) в цих зонах створювали різні радіаційно-індуковані структури.

Опромінення при $T_{\text{кімн}}$ призводить до розвитку в першому шарі дислокаційної сітки ($\rho_d = 5 \cdot 10^{10}$ см $^{-2}$). У той же час в шарі 400 - 600 нм формується бульбашкова структура з щільністю 8×10^{15} см $^{-3}$ і середнім діаметром бульбашок 5 нм. Опромінення при підвищених температурах призводить до створення в першому шарі пористої структури з середнім діаметром пор в максимумі розпухання ~ 90 нм і щільністю $\sim 2,5 \cdot 10^{15}$ см $^{-3}$. У другому шарі, також як і при $T_{\text{кімн}}$, розвивається бульбашкова структура з середнім діаметром бульбашок ~ 10 нм.

Отримані результати свідчать, що при дозах 0,1-1 зна ймовірними місцями захоплення атомів дейтерію в аустенітній нержавіючій сталі SS316 є дефекти вакансійного типу.

Рис. 6. Експериментальний і розрахунковий спектри десорбції дейтерію зі сталі SS316, опроміненої при температурі 290 К до дози 1×10^{16} D $^{+}$ ·см $^{-2}$.

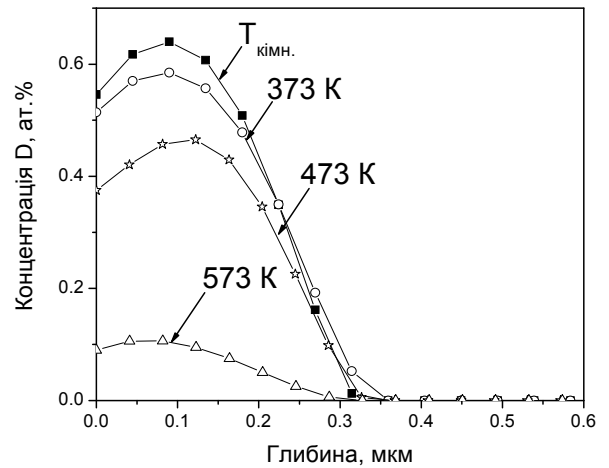


Рис. 7. Профілі розподілу дейтерію в зразках, попередньо імплантованих гелієм.

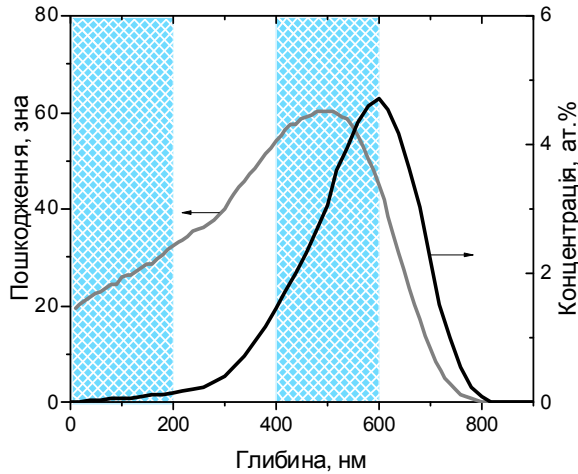


Рис. 8. Розрахункові профілі пробігів і дефектів 1,4 MeV іонів аргону, імплантованих до дози $1 \cdot 10^{17} \text{ Ar} \cdot \text{см}^{-2}$.

Зміна загальної кількості дейтерію при відпалі (рис. 10) показує майже ідентичне утримання його на дефектних структурах, створених при попередньому опроміненні іонами гелію або аргону.

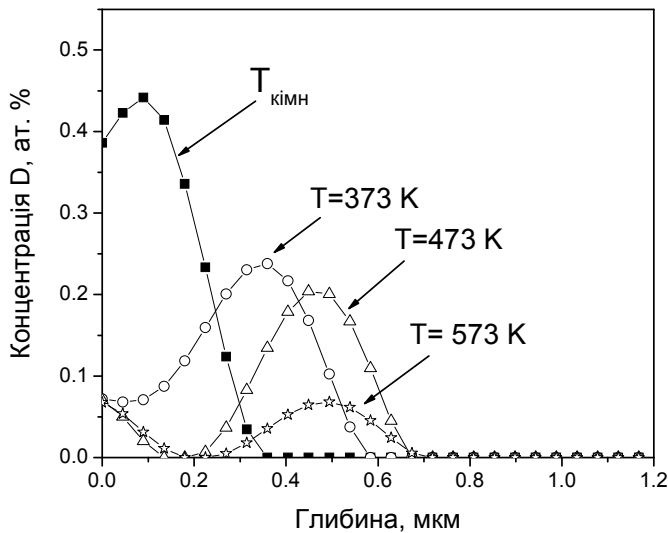


Рис. 9. Профілі розподілу дейтерію в зразках з попередньо створеною пористою/бульбашковою структурою.

Температурні інтервали утримання дейтерію в кожній системі пасток відрізняються. Зменшення концентрації дейтерію, який був спочатку захоплений пастками типу пор або дислокацій відбувається при 373 К. При цьому дейтерій, що вивільнився з пасток, переміщується в об'єм, де відбувається повторне його захоплення на аргонних і гелієвих газових бульбашках (рис. 11).

Таким чином, отримані результати свідчать, що бульбашки, заповнені інертним газом (гелій або аргон), є сильними пастками для імплантованого в нержавіючу сталь дейтерію. Дейтерій утримується в бульбашках до температур відпалу, що перевищують $\sim 600 \text{ K}$.

Еволюція профілів розподілу дейтерію, імплантованого з енергією 15 keV/D до дози $1 \cdot 10^{16} \text{ D}^+ \cdot \text{см}^{-2}$ при $T_{\text{кімн}}$ в сталь SS316, попередньо опромінену аргонем з метою створення різних радіаційно-індукованих структур, і після наступних відпалів при 300 - 573 К, свідчить, що при відпалі відбувається відтік дейтерію із зони впровадження вглиб зразка - в зону великих пошкоджень і концентрацій аргону (рис.9).

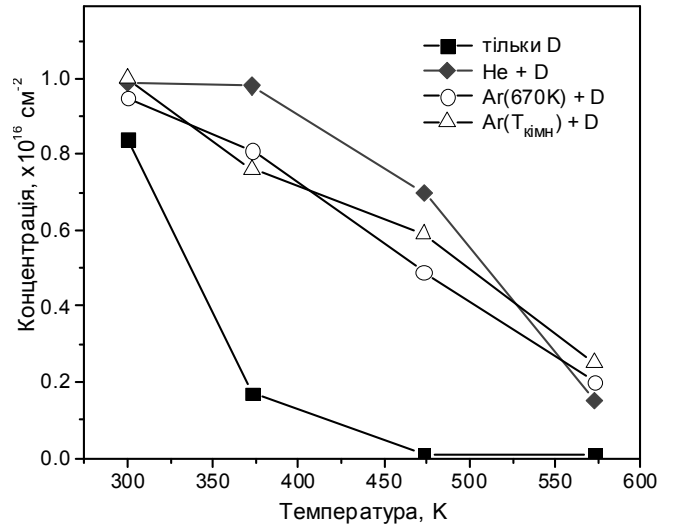


Рис. 10. Залежність концентрації дейтерію, захопленого пастками, від температури.

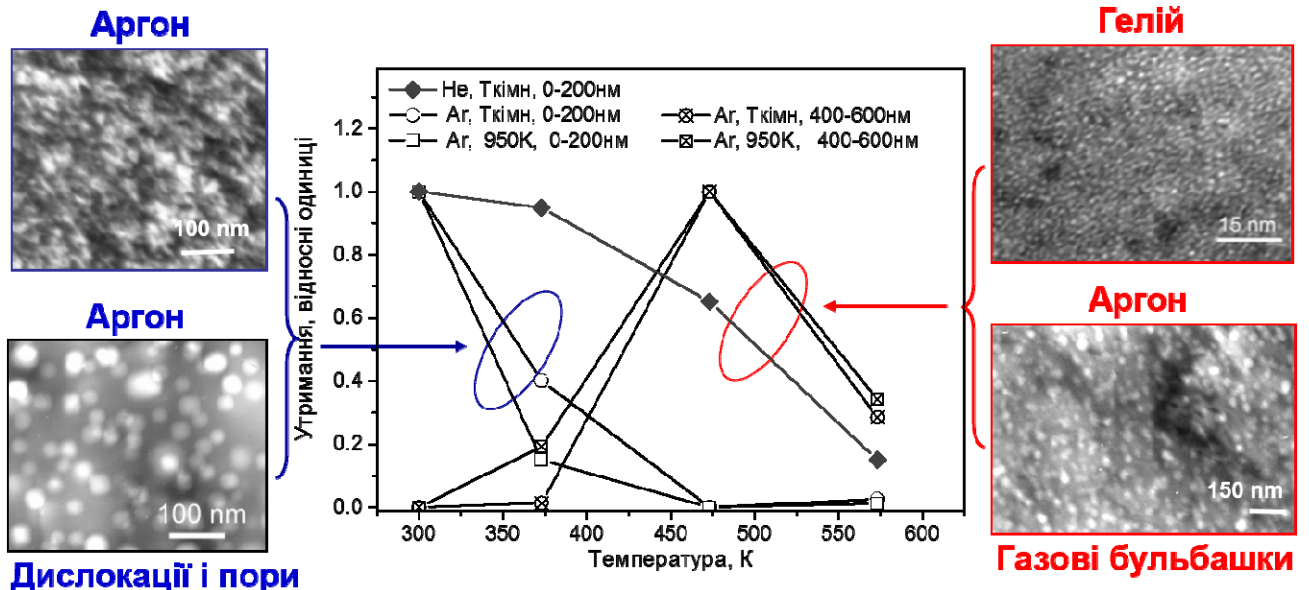


Рис. 11. Кількість дейтерію, що утримується на різних дефектних структурах в двох шарах 0-200 та 400-600 нм.

У п'ятому розділі «Радіаційне зміцнення нержавіючої сталі SS316, індуковане опроміненням іонами аргону» наведені дані з вивчення кореляції радіаційно-індукованого зміцнення нержавіючої сталі SS316 і еволюції її мікроструктури при опроміненні іонами аргону з енергією 1,4 MeV в інтервалі середніх доз 0-40 зміщень на атом при температурах 300 і 900 K, а також імплантації гелію і водню в широкому інтервалі доз і температур опромінення.

Залежності нанотвердості ($H_{\text{опр}}$) від глибини інденування в сталі SS316 після опромінення іонами аргону з енергією 1,4 MeV при кімнатній температурі демонструють приріст твердості, що становить 1-2 ГПа в діапазоні доз опромінення 0,1-10 зна, в порівнянні з нанотвердістю неопроміненого матеріалу ($H_{\text{неопр}}$). Максимум твердості спостерігається на глибинах 100-200 нм з подальшим монотонним зниженням по мірі збільшення глибини інденування, обумовленим ефектом м'якої підкладки⁴⁾ (рис. 12).

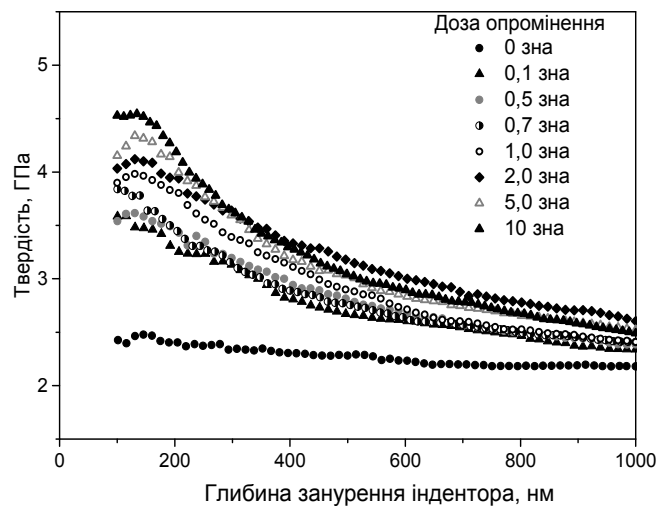


Рис. 12. Профілі твердості в сталі SS316 після опромінення іонами аргону в інтервалі доз 0,1...10 зна.

⁴⁾ Kasada R. et. al. A new approach to evaluate irradiation hardening of ion-irradiated ferritic alloys by nano-indentation techniques // Fusion Engineering and Design 2011. Vol.86. P. 2658–2661.

Зміцнення визначено з відносини $H_{опр}/H_{неопр}$ (рис. 13). Оцінка зміцнення виконана для області глибин 100-200 нм, для яких радіус напівсферичної зони впливу наноіндентора знаходиться в межах профілю пошкоджень, створених опроміненням іонами аргону, що дозволяє знехтувати ефектом м'якої підкладки. Зміцнення становить $\sim 50-80\%$ для доз опромінення 0,5-10 зна.

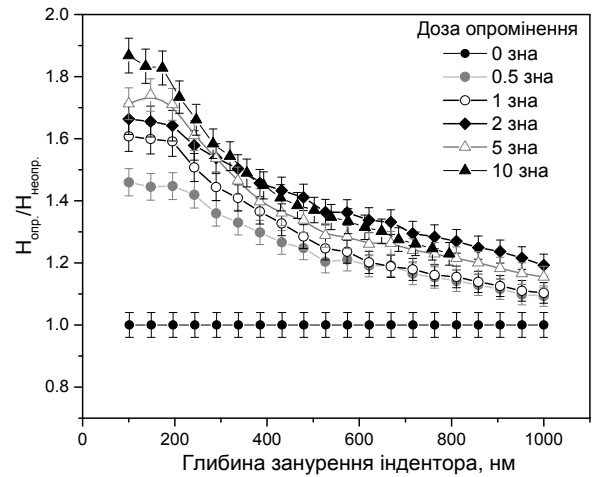


Рис. 13. Залежність зміцнення від глибини занурення індентора.

Із застосуванням традиційної обробки методом Нікса-Гао-Касади⁴⁾ профілів нанотвердості отримані залежності $H_{обл}^2=f(1/h)$ для зразків сталі SS316, опромінені іонами Ar (рис. 14).

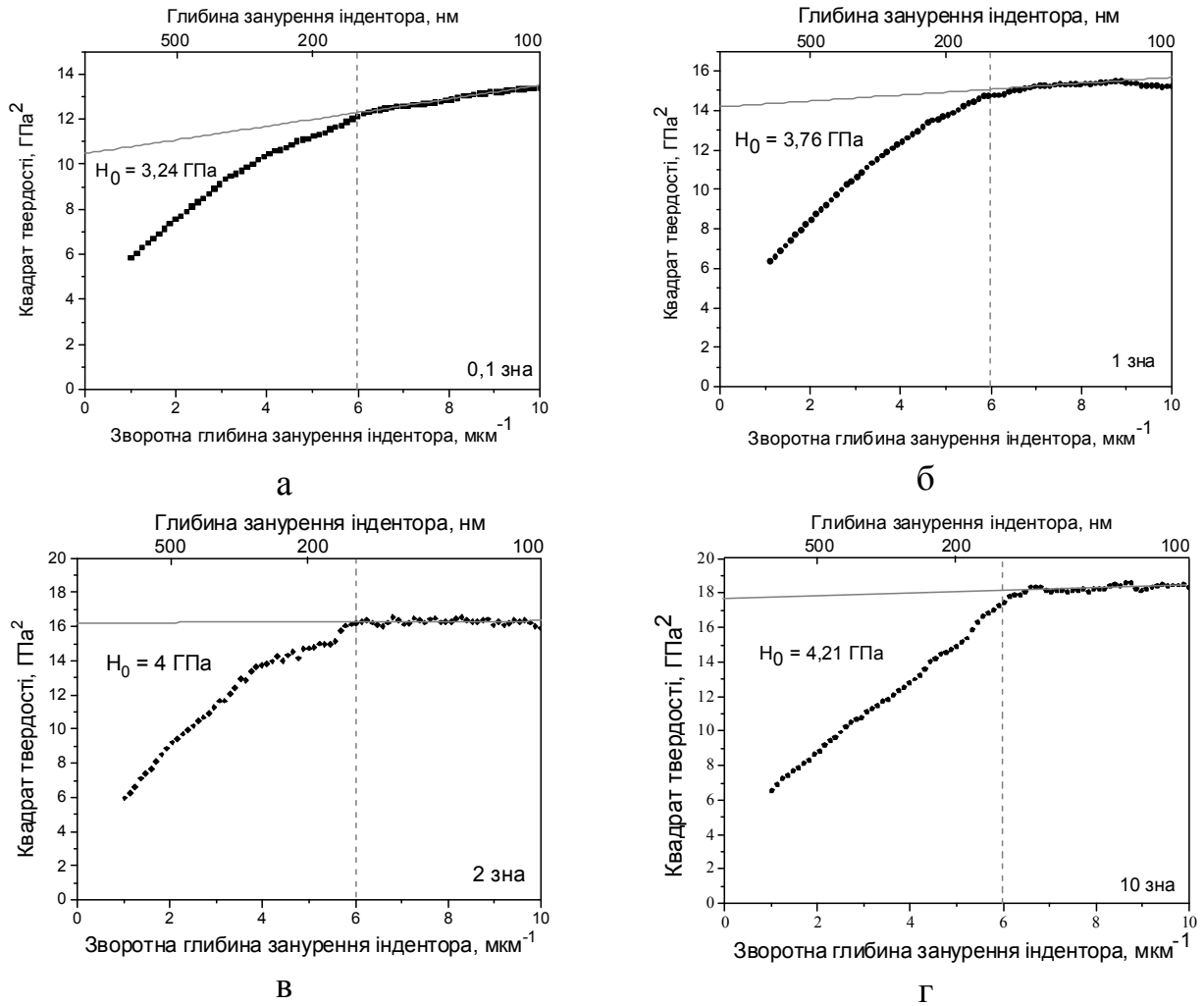


Рис. 14. Залежності квадрата твердості від зворотної глибини для зразків сталі SS316, опроміненої іонами аргону до доз 0,1 (а), 1,0 (б), 2,0 (в) і 10,0 зна (г) при кімнатній температурі.

Для іонно-опроміненої сталі SS316 спостерігається зміна кута нахилу дотичної на глибині близько 6 мкм^{-1} ($h_c = 167 \text{ нм}$) пов'язане з проявом ефекту м'якої підкладки. При цьому простежується приблизно лінійна залежність квадрата твердості від зворотної глибини в діапазоні глибин між положенням зміни нахилу і 100 нм .

Границя ефекту м'якої підкладки, що проходить поблизу 167 нм , складає близько $1/5$ від глибини, де розташована межа між областю впровадження аргону і неушкодженою підкладкою (близько 800 нм , див. рис. 7), що збігається із величиною цього співвідношення для різних матеріалів і різних умов опромінення, яка становить від $1/3$ до $1/7$ ⁴⁾. У проміжку глибин $100 - 167 \text{ нм}$ була виконана лінійна апроксимація даних методом найменших квадратів, що дозволила визначити значення об'ємної твердості сталі H_0 за різних доз опромінення при кімнатній температурі (рис. 15).

Нанотвердість збільшується з ростом дози пошкоджень у всьому дослідженому інтервалі доз опромінення. Зміцнення ($H_{\text{опр}} - H_{\text{неопр}}$) виходить на квазінасичення за доз близько 1 зна . При цьому спостерігається швидке наростання зміцнення вже при дозі $0,1 \text{ зна}$ до значення, що становить половину від значення при насиченні. Апроксимація отриманих значень твердості ступеневою функцією виду $\Delta H \propto (dpa)^p$ дає гарний збіг з експериментальними даними при $p = 0,43$ і $0,17$ для нізкодозної і високодозної стадій зміцнення, відповідно.

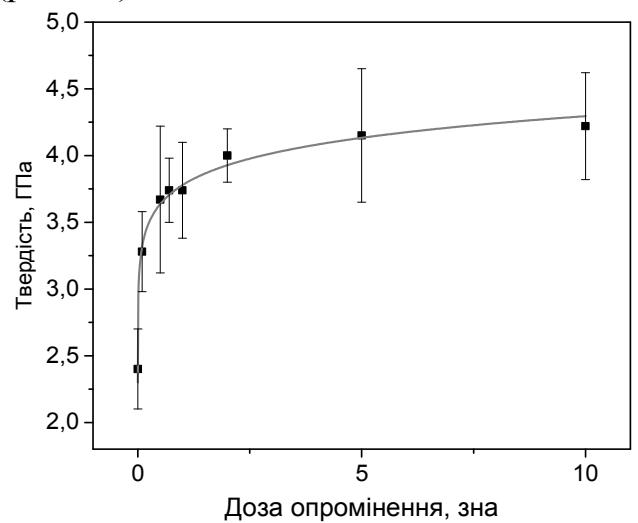


Рис. 15. Залежність твердості сталі від дози опромінення при $T_{\text{кімн}}$.

Еволюція мікроструктури під опроміненням йде від «чорних крапок» до петель дислокацій і далі до комплексної структури, утвореної переплетеннями дислокацій (рис 16).

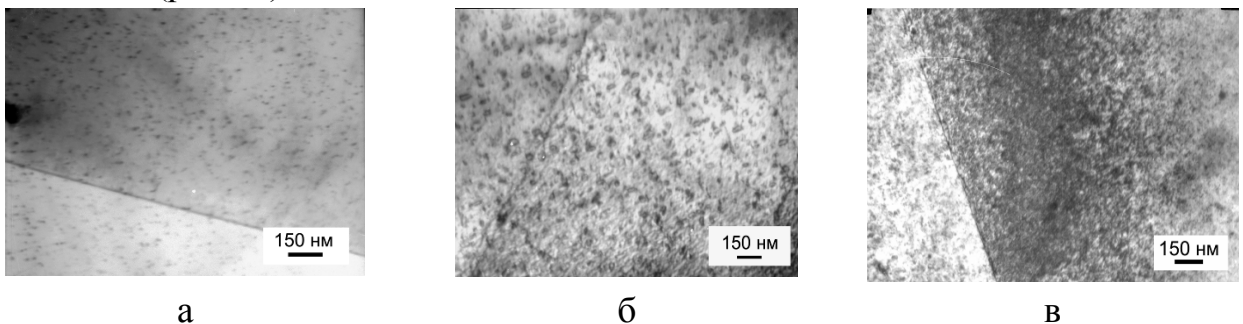


Рис. 16. Мікроструктура сталі SS316 після опромінення іонами Ar^+ з енергією $1,4 \text{ MeV}$ до доз $0,3$ (а), 1 (б) і 5 зна (в) при кімнатній температурі.

З порівняння рис 15 і 16 випливає, що найбільший відносний приріст нанотвердості (зміцнення) дає фаза утворення дрібних дефектних кластерів і петель дислокацій. Подальша еволюція цих дефектів в «клубки» дислокацій має менш виражений вплив на зміцнення сталі.

Дислокаційні петлі, що формуються в сталі SS316 при опроміненні іонами аргону з енергією 1,4 MeV при кімнатній температурі, були ідентифіковані як петлі Франка міжвузольного типу з вектором Бюргерса $\mathbf{b} = a/3[111]$. Дислокація Франка є сидячою, так як її ковзання викликало б ефект з високою енергією. Петля Франка, обмежуючи дефект упаковки і маючи вектор Бюргерса, перпендикулярний площині петлі, може тільки збільшувати довжину часткової дислокації, що її обмежує, шляхом абсорбції міжвузельних атомів. Абсорбція міжвузельних атомів призводить до зростання дефектних петель Франка.

При формуванні в кристалічній ґратці великого числа сидячих дислокацій досягається дислокаційне зміцнення. При низькотемпературному опроміненні ($T_{\text{кімн}} \dots 500 \text{ K}$) ефект зміцнення обумовлений консервативною природою петель Франка, що стримують рух дислокацій.

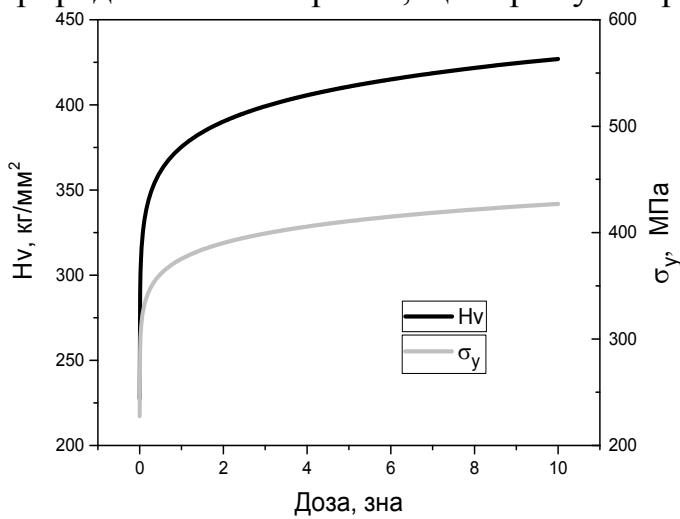


Рис. 17. Дозова залежність твердості по Віккерсу (H_v) і межі плинності (σ_y) для сталі SS316, опроміненої 1,4 MeV Ar.

Визначена нанотвердість сталі SS316 після опромінення при $T_{\text{кімн}}$ іонами гелію з енергією 30 кеВ до дози $5 \cdot 10^{16} \text{ He} \cdot \text{см}^{-2}$ і 30 кеВ (15кеВ/D) іонами дейтерію до дози $3 \cdot 10^{17} \text{ D} \cdot \text{см}^{-2}$. Енергії і дози опромінення гелієм і дейтерієм вибиралися таким чином, щоб забезпечити однаковий рівень пошкоджень на глибині 0 ... 200 нм. Розрахований рівень пошкоджень He і D становив $\sim 0,75 \text{ зна}$. При цьому максимальний розрахунковий профіль концентрації дейтерію майже в 6 разів перевищував максимальну концентрацію гелію - 25,3 і 4,22 ат.%, відповідно. Слід зазначити, що концентрація в експериментально виміряному профілі дейтерію в області глибин 0-200 нм всього в два рази більше, в порівнянні з гелієм і становить $\sim 8 \text{ ат.}\%$.

Твердість при опроміненні з енергіями 15 кеВ/D^+ і 30 кеВ/He^+ (в обох випадках дози $\sim 0,75 \text{ зна}$) становить 4,25 і 4,35 ГПа, відповідно, в порівнянні з 3,6 ГПа тільки для пошкоджень, що зміщують, при тій же дозі (рис. 18).

Використовуючи дані з нанотвердості, можна отримати твердість по Віккерсу H_v і межу плинності σ_y з рівнянь $H_0 = 0,01H_v + 0,025$ і $\sigma_y = 3,03H_v$ ⁵⁾. Результати отриманих оцінок наведені на рис. 17.

Порівняння отриманих значень приросту межі плинності з даними, наведеними в літературі, з опромінення сталі SS316 нейтронами і протонами, показало хороший збіг в межах розкиду значень і експериментальної помилки.

⁵⁾ J.T. Busby, M.C. Hash, G.S. Was. The relationship between hardness and yield stress in irradiated austenitic and ferritic steels // J. Nucl. Mater. 2005. Vol. 336. P. 267-278.

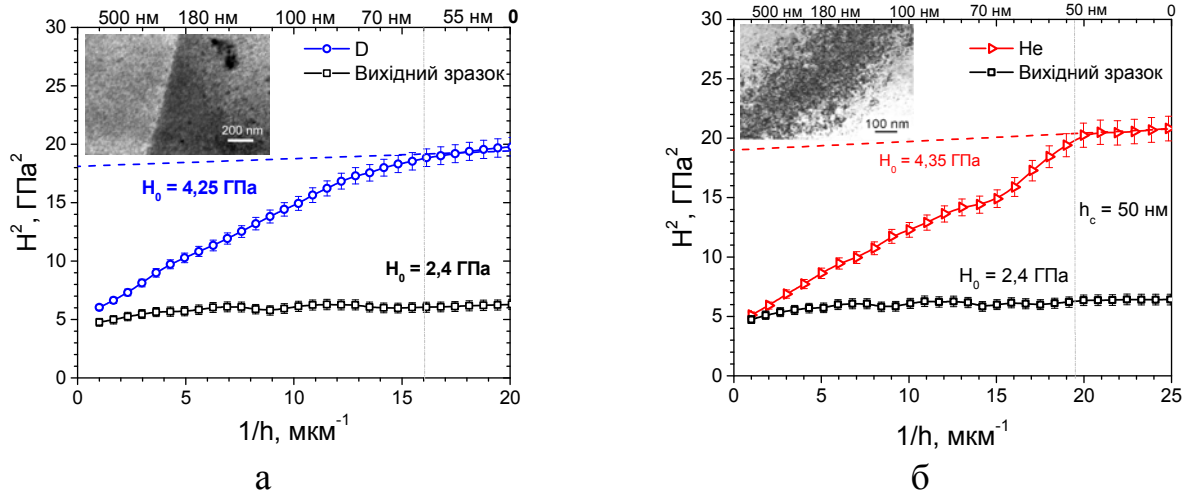


Рис. 18. Залежності квадрата твердості від зворотної глибини для сталі SS316, опроміненій при $T_{\text{кімн}}$ іонами дейтерію (а) та гелію (б).

Таким чином, гелій і дейтерій при їх концентраціях більше 1 ат.% підсилюють зміцнення, обумовлене петлями Франка, на 20-30%. Слід зазначити, що за опромінення дейтерієм розвивається сітка дислокацій, яка створюється під час відсутності водню при дозі на порядок більшої (рис. 16, в і 18, а). Можна вважати, що вакансії взаємодіють з дейтерієм, утворюючи дейтерієво-вакансійні комплекси, а вільні міжвузельні атоми формують петлі, які ростуть з дозою опромінення і трансформуються в дислокаційну сітку з високою щільністю перетинів.

За опромінення гелієм розвивається бульбашкова структура. З метою визначення впливу розвитку петель і сітки дислокацій, пористої і бульбашкової структур на зміцнення були отримані профілі нанотвердості за опромінення іонами 1,4 МеВ аргону при $T_{\text{кімн}}$ і 873 К (рис. 19).

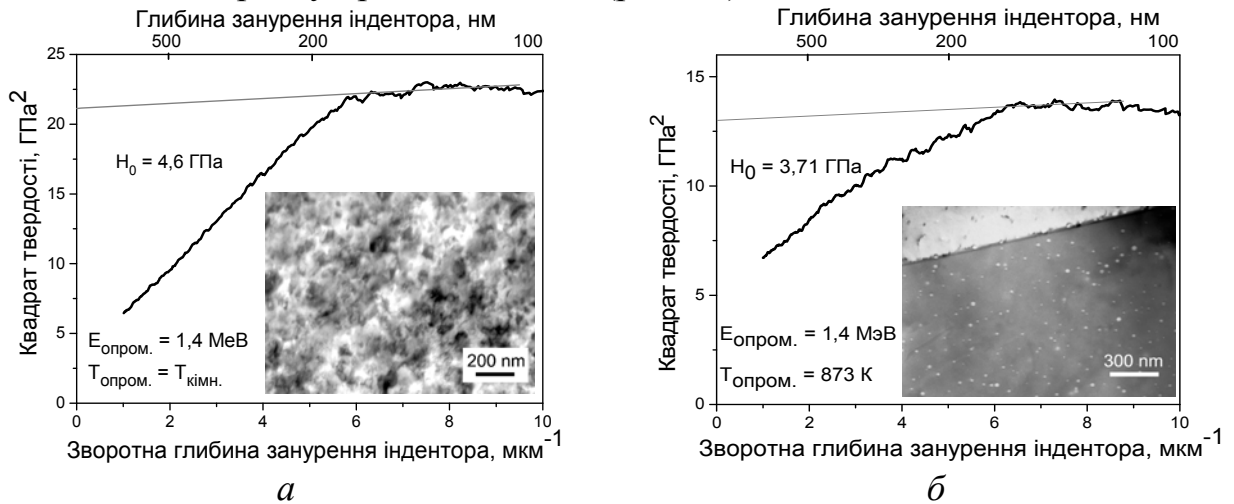


Рис. 19. Залежність квадрата твердості від зворотної глибини для сталі SS316, опроміненої іонами аргону до середньої дози 25 зна з енергією 1,4 МеВ при кімнатній температурі (а) і 873 К (б), а також її структура після опромінення.

⁶⁾ E.H. Lee, J.D. Hunn, N. Hashimoto, L.K. Mansur. Hardness and defect structures in EC316LN austenitic alloy irradiated under a simulated spallation neutron source environment using triple ion-beams // J. Nucl. Mater. 2000. Vol. 278. P. 266-272.

Опромінення при $T_{\text{кімн}}$ призводить до утворення дислокаційно/бульбашкової структури, а при підвищених температурах - пористо/бульбашкової. Радіаційно-індуковане зміцнення виявляється в 1,3 рази меншим при температурі опромінення 873 К у порівнянні з $T_{\text{кімн}}$ (3,71 і 4,6 ГПа, відповідно). Зниження зміцнення після опромінення при підвищених температурах свідчить про більш слабкий внесок бульбашкової і пористої структур в зміцнення сталі SS316.

Порівняння результатів цієї роботи з результатами роботи ⁶⁾, в якій досліджено вплив на нержавіючу сталь типу 316LN потрійного опромінення при 500 К іонами Fe, He і H з енергіями 3,5, 0,36 і 0,18 MeV, відповідно, також показало неефективний вплив гелію при концентраціях менших 1 ат. % (рис.20).

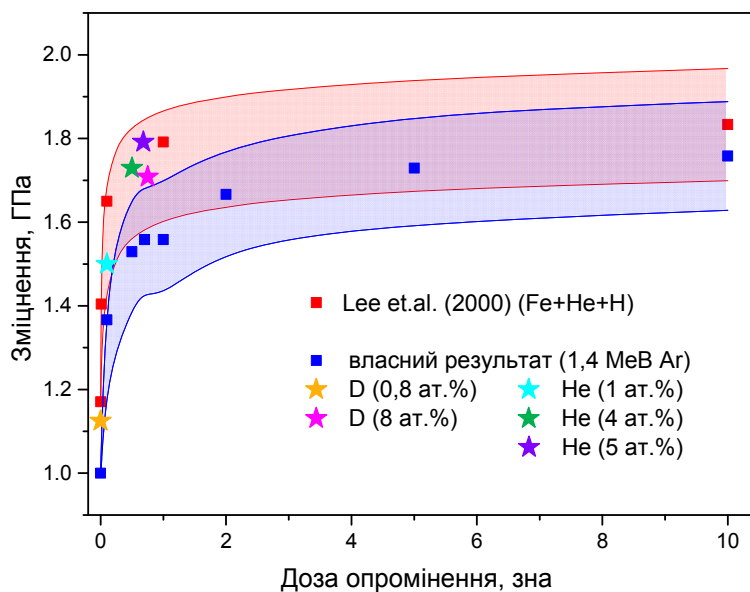


Рис. 20. Порівняння дозових залежностей зміцнення сталі 316 після опромінення іонами 1,4 MeV Ar⁺ (●) і трійним пучком (■) ⁶⁾.

Бульбашки гелію можуть впливати на твердість двома способами ⁶⁾. Перший - бульбашки є прямим бар'єром для руху дислокацій. Інший - це піннінг (закріплення) дефектних петель Франка, які виявляються в такому стані більш високим бар'єром для руху дислокацій, в порівнянні з просто дефектними петлями Франка, що утворюються при опроміненні.

При концентраціях гелію до 1 ат. % вплив сидячих петель Франка є таким, що превалує. При концентраціях гелію, які перевищують 1 ат. %, дислокації, ковзаючи через хаотично розташовані нерухомі дислокації і газові бульбашки, гальмуються ними, або огинають їх, що в результаті гальмує процес пластичної деформації і призводить до зміцнення сталі SS316 в 1,8 рази.

Грунтуючись на даних, отриманих в даній роботі, і даних з потрійним (Fe, He і H) і нейтронним низькотемпературним опроміненням, наведених в літературі, можна вважати, що значна втрата пластичності аустенітних сталей серії 300 буде очікуватися поблизу доз 1 - 5 зна, при яких спостерігається насичення щільності петель дислокацій, а накопичення He/H стає значним.

ВИСНОВКИ

У дисертаційній роботі вирішена важлива наукова задача встановлення фізичних закономірностей захоплення та накопичення водню в аустенітній неіржавіючій сталі SS316 і впливу на ці процеси радіаційних дефектів та імплантованого гелію, а також визначення механізмів зміцнення сталі при радіаційному впливі.

Систематичне дослідження взаємодії водню і його ізотопу - дейтерію зі сталлю типу SS316 в широкому інтервалі температур і доз імплантації з використанням комплексу експериментальних методик, що надають можливість чисельно контролювати кінетику накопичення, розподіл в об'ємі і термоактивовану десорбцію іонно-імплантованих атомів газу, дозволило встановити наступне:

1. Поведінка водню, його масоперенос і накопичення визначаються комплексним впливом радіаційно-індукованої структури, станом поверхні, наявністю гелію.

2. При опроміненні характерними для термоядерних пристроїв низькоенергетичними (~ 10 кеВ) іонами ізотопів водню до доз $0,1 - 1$ зна в сталі SS316 формуються дефекти типу "black dots" - чорних крапок ($0,2$ зна) і дислокаційних петель ($0,5-2$ зна)). Показано, що більшість дефектів є петлями Франка і мають вектор Бюргерса типу $a/3\langle 111 \rangle$. Вперше встановлено, що кореляція між еволюцією петель дислокацій при відпалі, яка починається при 1000 К, і температурними інтервалами термодесорбції, яка закінчується при 600 К, відсутня.

3. За допомогою чисельного моделювання процесів імплантації, дифузії, взаємодії з пастками і рекомбінації, та визначення термодинамічних параметрів захоплення ізотопів водню, показано, що найбільш ефективними пастками газу при дозах опромінення $0,1 - 1$ зна, які утримують атоми дейтерію до $0,1 - 0,2 T_{пл}$ ($T_{пл}$ - температура плавлення), є дефекти вакансійного типу. Значення енергій зв'язку дейтерію з цими пастками залежать від ступеня заселеності дефекту атомами дейтерію і складають $0,28 - 0,39$ еВ.

4. Залежно від режиму опромінення (температура, щільність потоку, сорт і енергія іонів) при флюенсах $1 - 25$ зна в сталі SS316 в різних просторових і концентраційних співвідношеннях формуються дефекти типу розвиненої дислокаційної структури, вакансійних пор або газонаповнених бульбашок. Вперше встановлена кореляція між структурою, що розвивається при опроміненні, та рівнем накопичення дейтерію, і показано, що максимальний вплив на захоплення дейтерію з його утриманням до $0,35 T_{пл}$ мають бульбашки інертного газу.

5. Встановлено, що радіаційне зміцнення сталі SS316 є функцією дози опромінення і досягає квазінасичення при флюенсах близько 1 зна. Ефект зміцнення обумовлений консервативною природою петель Франка, що стримують рух дислокацій.

6. Вперше показано, що закріплення дислокацій, що призводить до зміцнення сталі, більш ефективно на дислокаційних петлях діаметром до 15 нм, в порівнянні з газовими бульбашками. Гелій і водень при імплантації їх до

концентрацій більше 1 ат.% підсилюють зміцнення, обумовлене дислокаційною компонентою, на 20-30%. Два ці фактори - петлі Франка та гелій/водень підвищують межі міцності і плинності в 1,8 рази.

Сукупність одержаних результатів про фізичну природу захоплення водню, механізми зміцнення аустенітної сталі SS316, а також вплив на ці процеси радіаційних дефектів і імплантованого гелію становлять безпосередній інтерес не тільки для оцінки накопичення ізотопів водню і розвитку низькотемпературного окрихчення, але також є сходинкою для створення фундаментальних основ взаємозв'язку механічних властивостей і радіаційно-індукованої мікроструктури матеріалів, що розвивається при різних радіаційних впливах.

СПИСОК ПРАЦЬ, ОПУБЛІКОВАНИХ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. Сунгуров Б.С., Толстолицкая Г.Д., Карпов С.А., Копанец І.Е., Ружицкий В.В., Никитин А.В., Толмачева Г.Н. Взаимодействие дейтерия с аустенитной нержавеющей сталью SS316 // Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение (105). 2015. №2(96). С. 29-34.

2. Толмачёва Г.Н., Толстолицкая Г.Д., Карпов С.А., Сунгуров Б.С., Василенко Р.Л. Применение метода наноидентификации для исследования радиационной повреждаемости стали 316 // Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение (106). 2015. №5(99). С. 168-173.

3. Tolstolutskaia G.D., Karpov S.A., Rostova G.Y., Sungurov B.S., Tolmachova G.N. The effect of irradiation with inert gas and hydrogen ions on nanohardness of SS316 stainless steel // 2015. Вісник ХНУ. Фізика. №1137. Вип. 23. С.66-70.

4. Karpov S.A., Kopanets I.E., Sungurov B.S., Tolstolutskaia G.D., Kalchenko A.S. Microstructure evolution and deuterium retention in SS316 steel irradiated with heavy ions, helium and hydrogen // East European Journal of Physics. 2015. Vol. 2. № 4. P.72 – 79.

5. Karpov S.A., Tolstolutskaia G.D., Sungurov B.S., Rostova A.Yu., Tolmacheva G. N., Kopanets I.E. Hardening of SS316 Stainless Steel Caused by the Irradiation with Argon Ions // Materials Science, November 2016. Volume 52, Issue 3. P 377–384.

6. Karpov S.A., Tolstolutskaia G.D., Sungurov B.S., Ruzhytskiy V.V. Microstructure evolution and deuterium trapping in low-energy cascades after irradiation of SS316 stainless steel // Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение (109). 2017. №2(108). С. 36-40.

7. Sungurov B.S., Tolstolutskaia G.D., Karpov S.A., Ruzhytskiy V.V., Voyevodin V.N. Characterization of dislocation type defects formed at low-energy deuterium irradiation of SS316 stainless steel // Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение (112). 2018. №2(114). С. 8-12.

8. Толстолицкая Г.Д., Копанец И.Е., Никитин А.В., Карпов С.А., Ружицкий В.В., Сунгуров Б.С. Накопление ионно-имплантированного дейтерия в сталях при повышенных температурах облучения // Труды XX Международной конференции по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению (Алушта, сентябрь, 2012). С.87-88.

9. Толстолицкая Г.Д., Воеводин В.Н., Копанец И.Е., Ружицкий В.В., Карпов С.А., Никитин А.В., Сунгуров Б.С. Механизмы удержания дейтерия в конструкционных сталях в условиях радиационного воздействия // Труды XX Международной конференции по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению (Алушта, сентябрь, 2012). С.85-86.

10. Tolstolutskaia G.D., Karpov S.A., Sungurov B.S., Rostova G.Y., Tolmachova G.N. The effect of gas ions irradiation on microstructure evolution and radiation-induced hardening of SS316 stainless steel // Intern. Conference The Nuclear Materials (NuMat2016), Le Corum, Montpellier, France, 7–10 November 2016. Proceeding of conference. Montpellier, France, 2016. Abstract # 0275.

11. Сунгуров Б.С., Карпов С.А., Толстолицкая Г.Д., Копанец И.Е., Ружицкий В.В. Эволюция микроструктуры и удержание дейтерия в стали SS316 при облучении тяжелыми ионами, гелием и водородом // Сборник тезисов XII международной Научно-технической конференции молодых ученых и специалистов «Проблемы современной ядерной энергетики» г. Харьков, Украина (16 – 18 ноября 2016 г.). С.15.

12. Tolstolutskaia G.D., Ростова Г.Ю., Карпов С.О., Сунгуров Б.С., Толмачова Г.М. Вплив опромінення іонами інертних газів і водню на нанотвердість сталі SS-316 // Збірник тез XII Міжнародної наукової конференції «Фізичні явища в твердих тілах», г. Харків, Україна (1-4 грудня 2015 року) ХНУ ім. В.Н. Каразіна. С.122.

13. Карпов С.А., Копанец И.Е., Сунгуров Б.С. Закономерности радиационной повреждаемости стали SS316 при облучении тяжелыми ионами, гелием и водородом // Збірник тез XII Міжнародної наукової конференції «Фізичні явища в твердих тілах», г. Харків, Україна (1-4 грудня 2015 року) ХНУ ім. В.Н. Каразіна С. 119.

14. Сунгуров Б.С., Толстолицкая Г.Д., Карпов С.А., Ружицкий В.В., Копанец И.Е. Влияние дефектной микроструктуры на механические свойства и накопление водорода в стали SS316 // Материалы 12-й Междунар. конф., Взаимодействие излучений с твердым телом, Беларусь, 19-22 сент. 2017, г. Минск, Изд. центр БГУ 2017. С.181-184.

15. Сунгуров Б.С., Толстолицкая Г.Д., Карпов С.А., Толмачева Г.Н., Копанец И.Е. Роль дефектов микроструктуры и газовых примесей в радиационном упрочнении стали SS316 // Сборник тезисов XIII международной Научно-технической конференции молодых ученых и специалистов «Проблемы современной ядерной энергетики» г. Харьков, Украина (18 –20 жовтня 2017 г.). С.66.

АНОТАЦІЯ

Сунгуров Б.С. «Вплив радіаційно-індукованих мікроструктурних дефектів на процеси накопичення водню і зміцнення аустенітної сталі SS316». – Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук зі спеціальності 01.04.07 - фізика твердого тіла. Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут». Харків, 2018.

У дисертаційному дослідженні вирішена важлива наукова задача - встановлення фізичних закономірностей захоплення і накопичення водню, механізмів зміцнення сталі SS316 і впливу на ці процеси радіаційних дефектів і імплантованого гелію.

Десорбція дейтерію вже в процесі опромінення при $T_{\text{кімн}}$, зниження кількості дейтерію, що виділяється, на порядок після відпалу при 373 К і більш ніж в три рази в результаті витримки при температурі 290 К протягом 90 хв свідчать про слабке захоплення дейтерію на вакансіях, що утворюються в процесі низькоенергетичного опромінення. Кореляція між еволюцією дефектних петель Франка міжвузельного типу і термічно активованим вивільненням дейтерію відсутня.

Встановлено, що бульбашки інертного газу або поля напружень навколо них є сильними пастками імплантованого дейтерію. Бульбашкова структура утримує дейтерій до температур понад 600 К.

Визначено, що радіаційне зміцнення сталі SS316 є функцією дози опромінення, досягає насичення за доз близько 1 зна і становить $2,0 \pm 0,3$ ГПа. Показано, що закріплення дислокацій, що призводить до зміцнення сталі SS316, більш ефективно відбувається на дислокаційних петлях Франка міжвузельного типу діаметром до 15 нм в порівнянні з газовими бульбашками. Ефект зміцнення обумовлений консервативною природою петель Франка, що стримують рух дислокацій. Гелій і водень підсилюють зміцнення на 20-30% при їх концентраціях більше 1 ат.%. Два ці фактори - петлі Франка та газові домішки обумовлюють приріст межі міцності і плинності в 1,8 рази.

Ключові слова: сталь SS316, водень, гелій, високоенергетичний аргон, термодесорбція, концентраційні профілі, вакансії, петлі Франка, дислокації, пори, газові бульбашки, нанотвердість, зміцнення.

АННОТАЦИЯ

Сунгуров Б.С. «Влияние радиационно-индуцированных микроструктурных дефектов на процессы накопления водорода и упрочнения аустенитной стали SS316». – Рукопись.

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.07 - физика твердого тела. Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт», Харьков, 2018.

В диссертационном исследовании решена важная научная задача – установление физических закономерностей захвата и накопления водорода, механизмов упрочнения стали SS316 и влияния на эти процессы радиационных дефектов и имплантированного гелия.

Изучение взаимодействия дейтерия со сталью типа SS316 в широком интервале температур и доз имплантации с использованием экспериментальных методик, которые дают возможность численно контролировать кинетику накопления, распределение в объеме и термоактивированную десорбцию ионно-имплантированных изотопов водорода, позволило впервые установить, что особенности поведения водорода, его массоперенос и накопление определяются комплексным воздействием радиационно-индуцированной структуры, состоянием поверхности и наличием гелия.

Экспериментально исследованы закономерности захвата и накопления ионно-имплантированного дейтерия, а также эволюции структуры стали SS316 при имплантации дейтерия с энергией 15 кэВ/D при комнатной температуре в диапазоне доз $4 \times 10^{15} \dots 1 \times 10^{17} \text{ D} \cdot \text{см}^{-2}$. Результаты выполненных исследований показали, что десорбция дейтерия наблюдается уже в процессе облучения при $T_{\text{комн}}$. Снижение количества выделяющегося дейтерия на порядок после отжига при 373 К и более чем в три раза в результате выдержки при температуре 290 К в течение 90 мин указывают на слабый захват дейтерия на ловушках, создаваемых в процессе низкоэнергетичного облучения. Экспериментальные данные для низкоэнергетичного облучения хорошо описываются с помощью модели диффузии водорода в присутствии двух типов ловушек: захват одного атома дейтерия на ловушку для высокотемпературной стадии десорбции и до шести атомов дейтерия на ловушку для низкотемпературного пика. Хорошее совпадение экспериментального и расчетного спектров десорбции получено при энергии связи $(0,28 \pm 0,04)$ и $(0,39 \pm 0,05)$ эВ для пиков при температурах 385 и 425 К, соответственно. Имплантация дейтерия в сталь SS316 сопровождается созданием дефектных петель Франка. Установлена неизменность параметров радиационно-индуцированных дислокаций во всем температурном диапазоне, где наблюдается процесс десорбции газа. Установлено, что корреляция между эволюцией петель дислокаций при отжиге, которая начинается при 1000 К, и температурными интервалами термодесорбции, которая заканчивается при 600 К, отсутствует. Показано, что среди радиационно-индуцированных структур: дислокаций, пор и пузырьков в аустенитной SS316 стали пузырьки инертного газа, или поля напряжений вокруг них, являются сильными ловушками имплантированного дейтерия. Пузырьковая структура удерживает дейтерий до температур более 600 К.

Методами наноиндентирования и электронной микроскопии исследованы упрочнение нержавеющей стали SS316 и эволюция ее микроструктуры после облучения ионами аргона с энергией 1,4 МэВ в интервале доз 0-30 сна при температурах 300 и 873 К, ионами гелия с энергиями 30 и 1400 кэВ и ионами дейтерия с энергией 15 кэВ/D. С использованием эмпирических моделей, учитывающих размерный эффект и, так называемый, эффект мягкой подложки, определены по данным наноиндентирования значения объемной твердости стали SS316 после ионного облучения. Установлено, что радиационное упрочнение стали SS316 является функцией дозы облучения, достигает насыщения при флюенсах около 1 сна и составляет $2,0 \pm 0,3$ ГПа.

Установлена корреляция между эволюцией микроструктуры и изменением твердости облученного слоя стали. Показано, что закрепление дислокаций,

приводящее к упрочнению стали SS316, происходит более эффективно на дислокационных петлях междуузельного типа диаметром до 15 нм по сравнению с газовыми пузырьками. Определены вектор Бюргерса и тип дислокационных петель. Показано, что основным фактором упрочнения стали SS316 при облучении является формирование дислокационных петель Франка междуузельного типа. Эффект упрочнения обусловлен консервативной природой петель Франка, препятствующих движению дислокаций.

Гелий и водород усиливают упрочнение на 20-30% при их концентрациях более 1 ат.%. Два этих фактора – петли Франка и газовые примеси обуславливают прирост предела прочности и текучести в 1.8 раза. Данные, полученные в настоящей работе, свидетельствуют, что значительная потеря пластичности аустенитных сталей серии 300 будет ожидаться вблизи доз 1-5 сна, при которых наблюдается насыщение плотности петель дислокаций, а накопление He / H становится значительным.

Ключевые слова: сталь SS316, водород, гелий, высокоэнергетичный аргон, термодесорбция, концентрационные профили, вакансии, петли Франка, дислокации, поры, газовые пузырьки, нанотвердость, упрочнение.

SUMMARY

Sungurov B.S. «Effect of radiation-induced microstructural defects on processes of accumulation of hydrogen and hardening of SS316 austenitic steel». – Manuscript.

Thesis for the degree of candidate of physical and mathematical sciences, specialty 01.04.07 - solid state physics. National Scientific Center "Kharkov Institute of Physics and Technology". Kharkov, 2018.

The thesis presents important task solution: the establishment of physical laws for the trapping and accumulation of hydrogen, mechanisms for hardening SS316 steel, and the influence of radiation defects and implanted helium on these processes. Desorption of deuterium already during irradiation at T_{room} , a decrease in the amount of released deuterium by an order of magnitude after annealing at 373 K and more than three times as a result of aging at a temperature of 290 K for 90 min indicates a weak trapping of deuterium at vacancies created in the process of low-energy irradiation. It is shown that there is no clear correlation between the evolution of faulted Frank loops of interstitial type and the thermally activated deuterium release. It has been established that bubbles of an inert gas or stress fields near them are strong traps of implanted deuterium. The bubble structure retains deuterium to temperatures over 600 K. It is determined that the radiation hardening of SS316 steel is a function of the radiation dose, reaches saturation at fluence of about 1 dpa and is 2.0 ± 0.3 GPa. It is shown that the impediment of motion dislocations, leading to hardening steel SS316, more efficiently compared to the gas bubbles occurs on Frank interstitial dislocation loops type in diameter to 15 nm. The effect of hardening is due to the conservative nature of Frank loops, which impede motion of dislocations. Helium and hydrogen enhance hardening by 20-30% at concentrations of more than 1 at.%. Two of these factors - the Frank loops and gas impurities account for a 1.8-fold increase in the strength and yield strength.

Key words: SS316 steel, hydrogen, helium, high-energy argon, thermal desorption, concentration profiles, vacancies, Frank loops, dislocations, voids, gas bubbles, nanohardness and hardening.