

## РАДИАЦИОННАЯ СТОЙКОСТЬ МАТЕРИАЛОВ И АППАРАТУРЫ

УДК 537.9

### ВЛИЯНИЕ ИОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ ПРИ ТЕМПЕРАТУРЕ 500°C НА МИКРОСТРУКТУРУ И МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СПЛАВА W–6Re

© 2020 г. А. А. Никитин<sup>а, б, \*</sup>, Н. П. Бобырь<sup>с</sup>, С. В. Рогожкин<sup>а, б</sup>, П. А. Федин<sup>а</sup>, И. А. Каратеев<sup>с</sup>,  
Е. В. Гладких<sup>д</sup>, П. С. Захарова<sup>а, б</sup>

<sup>а</sup>НИЦ “Курчатовский институт” – ИТЭФ,  
ул. Большая Черемушкинская 25, Москва, 117218 Россия

<sup>б</sup>Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”,  
Каширское шоссе 31, Москва, 115409 Россия

<sup>с</sup>НИЦ “Курчатовский институт”,  
пл. Академика Курчатова 1, Москва, 123182 Россия

<sup>д</sup>Московский физико-технический институт,  
Институтский пер. 9, Долгопрудный, Московская обл., 141701 Россия

\*E-mail: nikitin@itep.ru

Поступила в редакцию 21.10.2020 г.

После доработки 05.11.2020 г.

Принята к публикации 07.11.2020 г.

В работе рассмотрены результаты воздействия ионного пучка на монокристаллический сплав вольфрама, W–6Re. Такие материалы рассматриваются в качестве перспективных для использования в конструкциях термоядерных реакторов. Для моделирования радиационных эффектов и анализа радиационной стойкости материала использовалось облучение ионами Fe<sup>2+</sup> с энергией 5.6 МэВ при температуре 500°C до максимальной повреждающей дозы 8 смещений на атом. Проведено сравнение микроструктуры материала до и после облучения. Методами просвечивающей электронной микроскопии показано, что в материале происходит образование структурных дефектов, дислокационных петель с размерами 2–15 нм и объемной плотностью  $1.2 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ . Детальный анализ методами атомно-зондовой томографии обнаружил распад твердого раствора с образованием наноразмерных сегрегаций, обогащенных рением в среднем на 18 ат. %. Методами наноиндентирования определено радиационно-индуцированное упрочнение облученного слоя, которое составило 1.6 ГПа.

Ключевые слова: сплавы вольфрама, ионное облучение, моделирование радиационных повреждений, радиационное охрупчивание, атомно-зондовая томография

DOI: 10.1134/S2079562919050166

#### ВВЕДЕНИЕ

Вольфрам и его сплавы являются основными кандидатными материалами для частей термоядерного реактора, обращенных к плазме. Данный выбор обусловлен высокой температурой плавления, теплопроводностью и стойкостью к распылению при взаимодействии с плазмой. На данный момент планируется использование вольфрама в конструкциях активной зоны термоядерных реакторов ITER (крупнейший строящийся исследовательский реактор) и DEMO (первый энергетический демонстрационный реактор) [1–3]. В конструкции реактора ITER предусмотрен элемент, воспринимающий самые большие плазменные и тепловые потоки, – дивертор, который полностью будет изготовлен из вольфрама [4, 5]. В условиях работы реактора вольфрам в области дивертора должен выдержи-

вать огромные механические нагрузки, одновременно подвергаясь интенсивному воздействию радиационных потоков [6]. Ожидаемый диапазон температурных нагрузок в реакторе ITER для диверторных пластин составит 200–1000°C. Поток нейтронов будет создавать в материале не только каскады атомных смещений, но также вызывать трансмутацию вольфрама в рений (Re), а затем в осмий (Os) [7]. В случае термоядерного реактора ITER планируемая интенсивность нейтронных воздействий на материал будет значительно меньше, чем в DEMO. Повреждающие дозы не превысят одного смещения на атом, а накопление основного продукта трансмутации, рения, будет незначительным и составит не более 0.15 ат. %. Сама по себе добавка рения в количестве 3–5 ат. % повышает пластичность сплава, энергию разрушения и предел прочности, а также снижает тем-

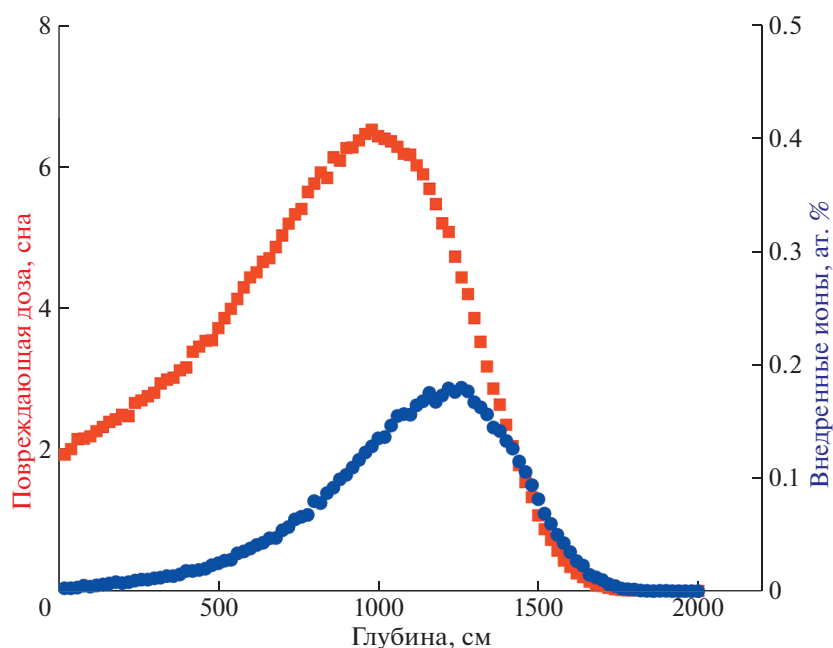


Рис. 1. Профиль внедрения ионов и создаваемых ими повреждений, рассчитанный в программе SRIM 2008.

пературу вязко-хрупкого перехода [8], что носит название “эффект рения”. Результаты исследования радиационной стойкости вольфрама и сплавов W–Re показывают, что после облучения происходит увеличение твердости сплава [9–13].

Данная работа направлена на исследование радиационной стойкости сплава W–6Re и развитие моделей радиационной деградации материалов и взаимосвязи наблюдаемых радиационно-индуцированных изменений в микроструктуре с механическими свойствами. При этом радиационные эффекты в сплаве создавались путем облучения на ионном ускорителе. Эта методика получила довольно сильное развитие в последнее время благодаря тому, что исследуемый материал облучается до высоких повреждающих доз, порядка десятков смещений на атом, за сравнительно короткое время, порядка нескольких часов. При этом отсутствует наведенная активность, что дает возможность исследования образцов непосредственно сразу после облучения [14, 15].

## 1. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследованный в работе сплав вольфрама с добавлением 6 ат. % рения был изготовлен методом электроннолучевой плавки в вакууме на производстве ФГУП “НИИ НПО “ЛУЧ” (Росатом). Сплав представляет собой монокристалл с очень низким содержанием примесей. Образцы для

облучения были изготовлены методом электроискровой резки и отполированы механически в несколько стадий с изменением шага зерна шлифовальной бумаги. Финишная полировка производилась в 5% растворе NaOH.

Облучение производилось в ускорительном центре НИЦ “Курчатовский институт” – ИТЭФ на тяжелоионном ускорителе ТИПр [16, 17]. Линейный ускоритель ТИПр разработан для ускорения тяжелых ионов до энергий 101 кэВ/нуклон с отношением массы к заряду до 60 [18]. Облучение производится импульсным пучком с длительностью импульса 450 мкс при частоте повторения до одного импульса в две секунды. Облучение образцов сплава W–6Re осуществлялось ионами  $\text{Fe}^{2+}$  с энергией 5.6 МэВ при температуре 500°C. Интегральный флюенс ионов на образце составил  $10^{16} \text{ см}^{-2}$ . Моделирование пробега ионов и потерь энергии производилось в программе SRIM 2008. Пересчет тока ионов в единицы смещений на атом осуществлялся согласно рекомендациям, указанным в работе [19]. В качестве пороговой энергии смещения атома вольфрама из кристаллической решетки бралась величина  $E_d = 90 \text{ эВ}$ . На рис. 1 представлен профиль внедрения ионов и создаваемых ими повреждений в единицах смещений на атом (сна).

Для дальнейшего исследования методами просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) были изготовлены образцы поперечных срезов.

Для этого использовался сканирующий электронно-ионный микроскоп Helios Nanolab 600i (Thermo Fisher Scientific, США). Для напыления защитных слоев и подготовки ламели использовалось ускоряющее напряжение ионного пучка 30 кВ. Это же напряжение использовалось на начальном этапе утонения ламели до толщины  $\sim 200$  нм, затем использовалось напряжение 5 кВ, для уменьшения толщины поврежденного слоя, до финальной толщины  $\sim 50$  нм.

Исследования микроструктуры материала осуществлялись на просвечивающем электронном микроскопе Titan 80–300 TEM/STEM (Thermo Fisher Scientific, США), оборудованном корректором сферических aberrаций, при ускоряющем напряжении 300 кВ. Большая часть изображений получена в режиме просвечивающей растровой электронной микроскопии (ПРЭМ) с регистрацией на высокоугловой кольцевой детектор темного поля (Fischione, США). Использование электронов, рассеянных на большие углы, для формирования изображения, обеспечивает усиленный Z-контраст на изображении, а также облегчает визуализацию дислокационных петель. Для выполнения элементного картирования использовалась приставка для рентгеновского энергодисперсионного микроанализа (EDAX, США).

Для исследования методами атомно-зондовой томографии (АЗТ) извлекался объем материала с глубины 700 нм. Эффективная повреждающая доза в данном объеме согласно расчетам составила 6 сна (см. рис. 1). Анализ локального распределения химических элементов в материале производился на томографическом атомно-зондовом микроскопе ПАЗЛ-3D [20]. Температура образца в процессе исследования была стабилизирована на уровне 40 К.

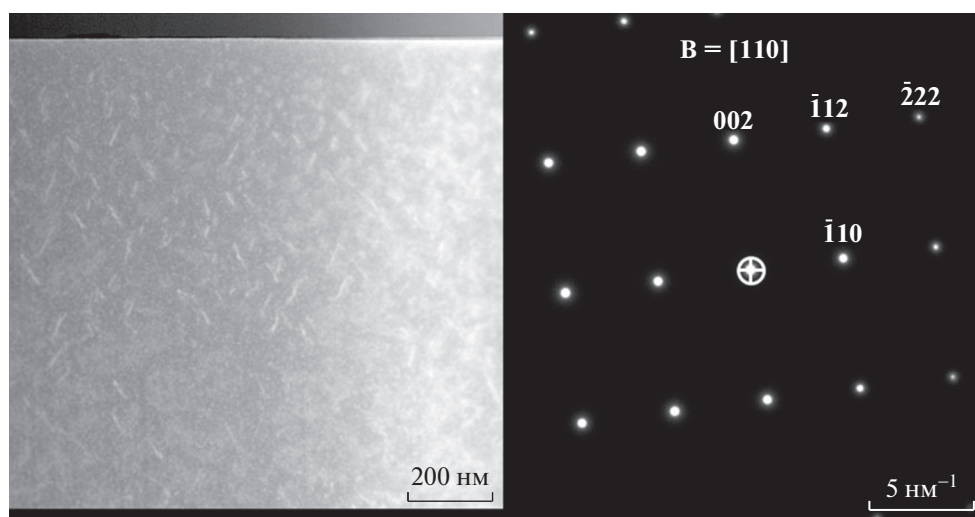
Исследование механических характеристик поврежденного ионами слоя проводилось на сканирующем твердомере “Наноскан-4D” с использованием алмазного наконечника в виде трехгранной пирамиды типа Берковича. Измерения осуществлялись в режиме динамического инструментального индентирования. Данный метод заключается в непрерывном вдавливании индентора с одновременным колебательным движением: такой процесс аналогичен множеству циклов нагрузки–разгрузки и дает значения твердости и модуля упругости как практически непрерывные зависимости от глубины внедрения индентора. Метод динамического инструментального индентирования широко используется для контроля твердости облученных ионами образцов за счет простоты в постановке эксперимента и высокой скорости проведения испытаний [21].

В данной работе максимальная глубина индентирования составляла 2 мкм, амплитуда колебания индентора — 10 нм, частота — 10 Гц, время проведения одного измерения — 60 с. Перед проведением измерений образцов сплава вольфрама была осуществлена процедура калибровки формы индентора, обязательная для метода инструментального индентирования, в диапазоне нагрузок от 0.5 до 500 мН. В качестве стандартного образца с известными твердостью и модулем упругости был взят плавленый кварц.

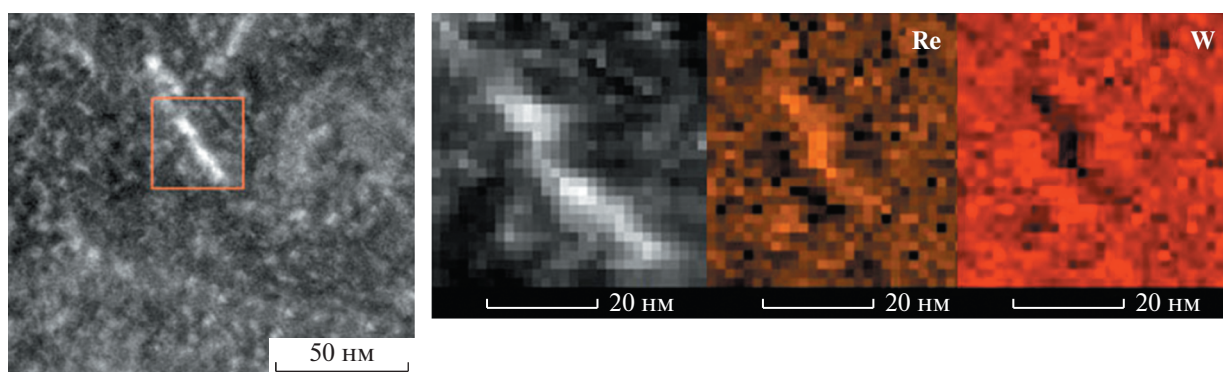
## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ МИКРОСТРУКТУРЫ МЕТОДОМ ПРОСВЕЧИВАЮЩЕЙ ЭЛЕКТРОННОЙ МИКРОСКОПИИ

Результаты анализа микроструктуры облученного сплава показали, что основная масса дефектов залегает до глубины 1.5 мкм. Характер дефектов вблизи поверхности и рядом с зоной внедрения отличается от остального слоя. Это обусловлено тем, что сама по себе поверхность играет роль сильного стока точечных радиационных дефектов, а зона внедрения ионов, из-за высокой плотности атомов, содержит сильные механические напряжения. Детальный анализ микроструктуры проводился в зоне, близкой к 700 нм. При исследовании кристалл материала был ориентирован по направлению близкому к  $B = [110]$ . Толщина ламели, используемая при расчетах объемной концентрации дефектов, определялась методами спектроскопии характеристических потерь энергии электронов. На основании оценки величины ослабления пика нулевых потерь среднее значение толщины образца в наблюдаемой области составило 40 нм. В облученной области материала обнаружены два типа дефектов. Первый — это вытянутые сегрегации. Сопоставление с электронограммой показало, что они залегают в семействе плоскостей  $\{111\}$  (рис. 2).

С помощью энергодисперсионного детектора было проведено элементное картирование данных особенностей. Элементный анализ показал обогащение сегрегаций по рению (рис. 3). Объемная плотность данных областей  $2 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ . Размер данных образований составил 20–60 нм. Второй тип дефектов — это дислокационные петли, и, в основном, дефекты в виде точечного черного контраста с размерами 2–15 нм. Объемная плотность дислокационных петель  $1.2 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ . Предположительно большинство петель располагается в плоскостях типа  $\{100\}$ .



**Рис. 2.** Микроструктура поврежденного ионами слоя образца W–6Re и снятая с нее электронограмма дифракции электронов.



**Рис. 3.** Элементная карта сегрегации рения в облученном сплаве W–6Re, полученная с помощью детектора характеристического рентгеновского излучения.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЙ АТОМОВ ХИМИЧЕСКИХ ЭЛЕМЕНТОВ МЕТОДОМ АТОМНО-ЗОНДОВОЙ ТОМОГРАФИИ

Атомные карты сплава до и после облучения представлены на рис. 4. Помимо основных компонент в материале обнаружен кремний до 0.15 ат. %. Данный элемент является технической примесью и был внесен на этапе переплава сплава. В исследованном объеме сплава до облучения все компоненты твердого раствора распределены равномерно, в то время как в облученном образце отчетливо наблюдаются наноразмерные кластеры Re. Дополнительно наблюдается обогащение кластеров кремнием.

Форма кластеров делится на два типа: сферическую и тороидальную. Кластеры тороидальной формы предположительно являются сегрегациями рения на дислокационные петли. Размеры

кластеров лежат в пределах 1–8 нм. Объемная плотность обнаруженных кластеров составляет  $\sim 3 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$ . Анализ концентраций химических элементов в обнаруженных кластерах показал, что кластеры обогащены рением в среднем на 18 ат. % (рис. 5). На аналогичную величину наблюдается обеднение кластеров по вольфраму. В некоторых кластерах обнаружено содержание атомов Si, в 3–5 раз превышающее содержание Si в твердом растворе.

### 4. ИЗМЕРЕНИЕ ТВЕРДОСТИ МЕТОДАМИ НАНОИНДЕНТИРОВАНИЯ

Полученные зависимости твердости от глубины погружения индентора представлены на рис. 6. На малых глубинах наблюдается нелинейный характер полученных данных, обусловленный так называемым размерным эффектом [21]. Для

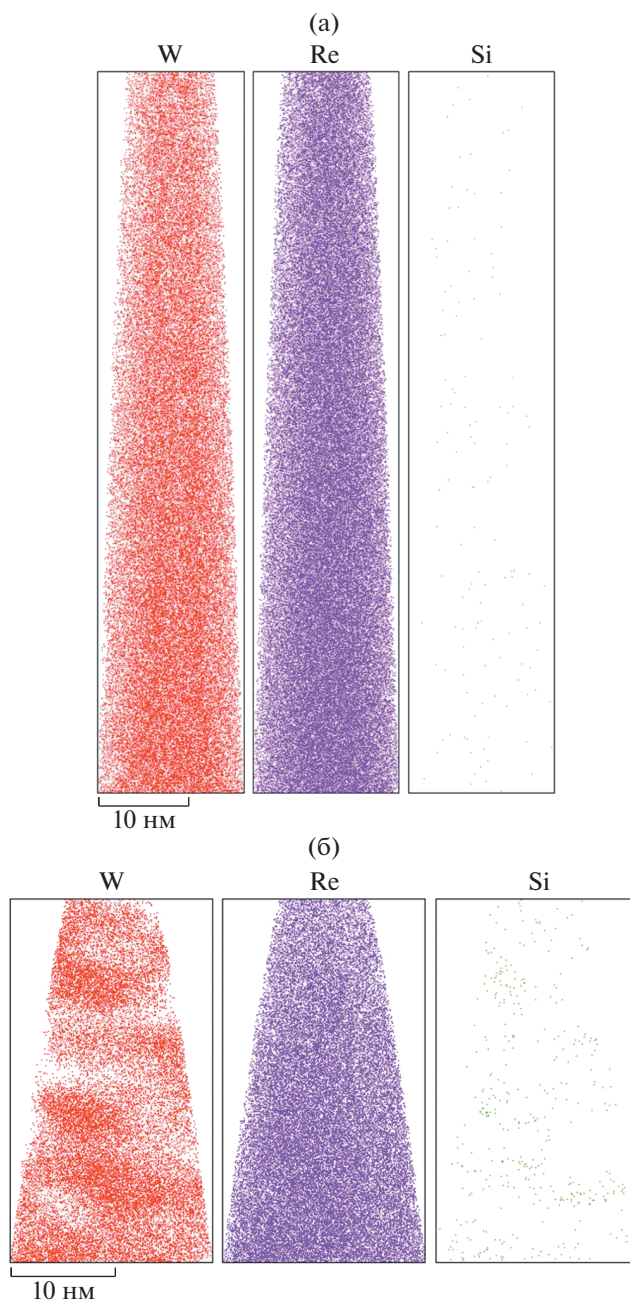


Рис. 4. Атомные карты (а) исходного и (б) облученного сплава W–6Re.

устранения этого эффекта производился пересчет полученных значений в координаты  $H^2$  от  $1/h$  (диаграмма Никса–Гао [22]). По полученным графикам определялись точки пересечения графика с осью ординат согласно формуле:

$$H = H_0 (1 + (h^*/h))^{-0.5},$$

где  $H$  – измеренная твердость,  $h$  – глубина измерений,  $H_0$  – эквивалент твердости для массивного образца. Значения твердости  $H_{0\text{иг}}$  для облученного и  $H_0$  необлученного слоя определялись построе-

нием линейной аппроксимации методом наименьших квадратов. Расчет величины упрочнения производился по эмпирической формуле  $\Delta\sigma = 0.364 \Delta H_0$ . Итоговое приращение прочности составило  $(1.6 \pm 0.2)$  ГПа.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе методами просвечивающей электронной микроскопии и атомно-зондовой томографии была исследована структура моно-

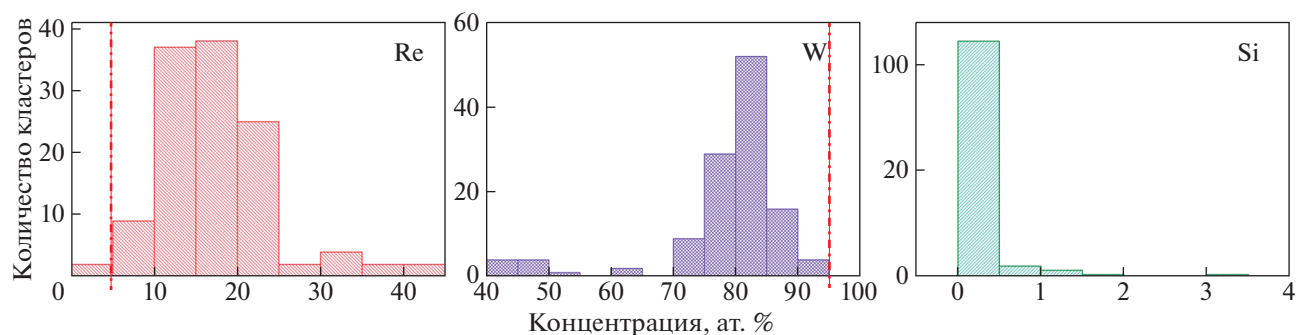


Рис. 5. Химический состав кластеров рения в облученном сплаве W-6Re.

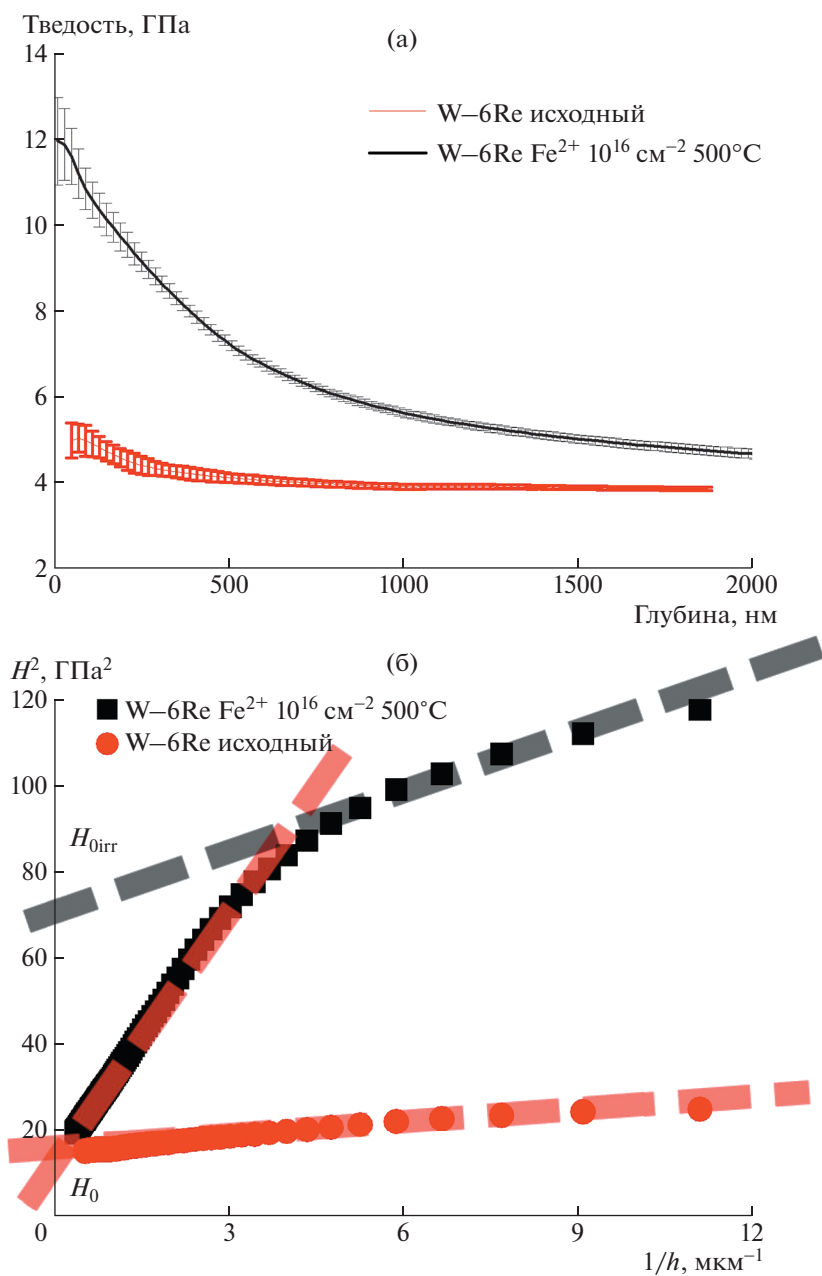


Рис. 6. (а) Кривые зависимости твердости от глубины для исходного и облученного сплава W-6Re и (б) соответствующая им диаграмма Никса-Гао.

кристаллического сплава W–6Re до и после облучения ионами Fe<sup>2+</sup> с энергией 5.6 МэВ при температуре 500°C.

В поврежденном слое материала обнаружено три типа радиационных дефектов:

– дислокационные петли с размерами 3–15 нм и объемной плотностью  $1.2 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ ;

– ориентированные по кристаллографическим направлениям сегрегации рения с размерами 10–60 нм и объемной плотностью  $2 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ ;

– наноразмерные кластеры, обогащенные рением и кремнием, с размерами 1–8 нм и объемной плотностью  $3 \cdot 10^{24} \text{ м}^{-3}$ .

Результаты исследования механических характеристик облученного ионами слоя показали, что происходит упрочнение сплава, которое составило  $(1.6 \pm 0.2)$  ГПа. Данное увеличение является следствием образования наблюдаемых радиационно-индуцированных дефектов микроstructures.

## 6. БЛАГОДАРНОСТИ

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта No. 18-32-20174 на оборудовании центра коллективного пользования КАМИКС (<http://kamiks.itep.ru/>) НИЦ “Курчатовский институт”—ИТЭФ.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Rieth M. et al. // J. Nucl. Mater. 2013. V. 432. P. 482–500.
2. Qi Y. et al. // Mater. Lett. 2019. V. 242. P. 115–118.
3. Sukuba I. et al. // Eur. Phys. J. D. 2016. V. 70. P. 11.
4. Merola M. et al. // Fusion Eng. Des. 2015. V. 96–97. P. 34–41.
5. Pitts R.A. et al. // J. Nucl. Mater. 2013. V. 438. P. S48–S56.
6. Pintsuk G. Tungsten as a Plasma-Facing Material. Comprehensive Nuclear Materials. 2012. Amsterdam: Elsevier. P. 551–581.
7. Gilbert M.R., Sublet J.-Ch. // Nucl. Fusion. 2011. V. 51. P. 043005.
8. Watanabe Sh., Nogami Sh., Reiser J., Rieth M., Sickinger S., Baumgärtner S., Miyazawa T., Hasegawa A. // Fusion Eng. Des. 2019. V. 148. P. 111323.
9. Xu A. et al. // Acta Mater. 2015. V. 87. P. 121–127.
10. Xu A. et al. // Acta Mater. 2017. V. 124. P. 71–78.
11. Hasenhuettl E. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2017. V. 397. P. 11–14.
12. Armstrong D.E.J. et al. // J. Nucl. Mater. 2013. V. 432. P. 428–436.
13. Hasegawa A. et al. // J. Nucl. Mater. 2016. V. 471. P. 175–183.
14. Kulevoy T., Chalykh B., Fedin P., Kozlov A. et al. // Rev. Sci. Instrum. 2016. V. 87. P. 02C102.
15. Spitsyn A., Bobyr N., Kulevoy T., Fedin P., Semennikov A., Stolbunov V. // Fusion Eng. Des. 2019. V. 146. P. 1313–1316.
16. Рогожкин С.В., Никитин А.А., Хомич А.А. и др. // Ядерная физика и инжиниринг 2018. Т. 9. № 3. С. 245–258.
17. Kulevoy T., Aleev A., Ivanov S., Kozlov A., Kropachev G., Kuibeda R., Nikitin A., Rogozhkin S., Semennikov A., Sharkov B., Zaluzhny A. // Proc. Intl. Topical Meeting on Nuclear Research Applications and Utilization of Accelerators. 2009. V. AP/P5 07. P. 1.
18. Kashinsky D., Kolomiets A., Kulevoy T., Kuybida R., Kuzmichov V., Minaev S., Pershin V., Sharkov B., Vengrov R., Yaramishev S. // Proc. EPAC. 2000. P. 854.
19. Stoller R.E., Toloczko M.B., Was G.S., Certain A.G., Dwaraknath S.D., Garner F.A. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2013. V. 310. P. 75–80.
20. Рогожкин С.В., Алеев А.А., Лукьянчук А.А., Шутков А.С., Разницын О.А., Кириллов С.Е. // Приборы и техника эксперимента. 2017. № 3. С. 129–134.
21. Cheng Y.-T., Cheng C.-M. // Mater. Sci. Eng. R. 2004. V. 44. P. 91–149.  
<https://doi.org/10.1016/j.mser.2004.05.001>
22. Nix W.D., Gao H. // J. Mech. Phys. Solids. 1998. V. 46. P. 411–425.

## Ion Radiation Impact on Microstructure and Mechanical Properties of W–6Re Alloy at 500°C

A. A. Nikitin<sup>1, 2,\*</sup>, N. P. Bobyr<sup>3</sup>, S. V. Rogozhkin<sup>1, 2</sup>, P. A. Fedin<sup>1</sup>, I. A. Karateev<sup>3</sup>,  
E. V. Gladkih<sup>4</sup>, and P. S. Zakharova<sup>1, 2</sup>

<sup>1</sup>Alikhanov Institute for Theoretical and Experimental Physics, National Research Center “Kurchatov Institute”, Moscow, 117218 Russia

<sup>2</sup>National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

<sup>3</sup>National Research Center “Kurchatov Institute”, Moscow, 123182 Russia

<sup>4</sup>Moscow Institute of Physics and Technology (National Research University), Dolgoprudnyi, Moscow oblast, 141701 Russia

\*e-mail: [nikitin@itep.ru](mailto:nikitin@itep.ru)

Received October 21, 2020; revised November 5, 2020; accepted November 7, 2020

**Abstract**—The paper reports the results of the ion irradiation impact on a monocrystalline tungsten alloy, W–6Re. This material is considered for use in the design of fusion reactors. Irradiation was carried out in order to simulate radiation effects and analyze the radiation resistance of the fusion reactor material. Specimens

were irradiated with 5.6 MeV Fe ions at 500°C up to a maximum damage dose of 8 dpa. Microstructure of W–6Re was analyzed before and after irradiation. It is shown with transmission electron microscopy that the formation of structural defects, dislocation loops with sizes of 2–15 nm and a number density of  $1.2 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$  occurs as a result of irradiation. Detailed analysis by atomic probe tomography microscope revealed the decomposition of the solid solution with the formation of nanoscale segregations enriched in rhenium by 18 at %. The radiation-induced hardening of the irradiated layer is determined by nanoindentation. The strength increment was 1.6 GPa.

*Keywords:* tungsten alloys, ion irradiation, radiation damage simulation, radiation embrittlement, atom probe tomography