

УДК 537.534:538.911

ВЛИЯНИЕ УЛЬТРАМЕЛКОЗЕРНИСТОЙ СТРУКТУРЫ НА ОБРАЗОВАНИЕ БЛИСТЕРОВ ПРИ ВЫСОКОДОЗНОМ ОБЛУЧЕНИИ ВОЛЬФРАМА ИОНАМИ ГЕЛИЯ С ЭНЕРГИЕЙ 30 КЭВ

© 2025 г. Р. Х. Хисамов^{a, *}, Н. Н. Андрианова^{b, c}, А. М. Борисов^{a, b, d},
М. А. Овчинников^c, И. И. Мусабилов^a, Р. Р. Тимирязев^a, Р. Р. Мулюков^a

^aИнститут проблем сверхпластичности металлов РАН, Уфа, 450001 Россия

^bМосковский авиационный институт (национальный исследовательский университет), Москва, 125993 Россия

^cНаучно-исследовательский институт ядерной физики им. Д.В. Скобельцына, Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, 119991 Россия

^dМосковский государственный технологический университет “СТАНКИН”, Москва, 127055 Россия

*E-mail: r.khisamov@mail.ru

Поступила в редакцию 16.04.2024 г.

После доработки 16.04.2024 г.

Принята к публикации 15.05.2024 г.

Исследовано влияние ультрамелкозернистой структуры вольфрама со средним размером зерен 300 нм на образование блистеров на поверхности при высокодозном облучении ионами He⁺ с энергией 30 кэВ. Для сравнительных исследований использовали мелкозернистый вольфрам. Исследована микроструктура и морфология поверхности образцов.

Ключевые слова: вольфрам, интенсивная пластическая деформация, ультрамелкозернистая структура, ионное облучение, 30 кэВ, гелий, блистеры

DOI: 10.56304/S2079562924060174

ВВЕДЕНИЕ

Вольфрам, благодаря уникальному сочетанию свойств: высокой температуре плавления (3695 K), теплопроводности (174 Вт/м · K), низкому коэффициенту линейного теплового расширения ($4.5 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$), является перспективным материалом для обращенных к плазме стенок в термоядерном реакторе. В реакторе вольфрамовые стенки будут подвергаться высокодозному облучению ионами He⁺, изотопами водорода. Экспериментальные исследования показывают, что в результате облучения ионами He⁺ на поверхности вольфрама образуются блистеры, нанопух [1–3]. Формирование этих структур на поверхности крайне вредно, т. к., они могут отслаиваться и загрязнять высокотемпературную плазму, охлаждать ее. Кроме этого, нанопух может увеличивать захват изотопов водорода [4].

Одним из возможных способов для предотвращения образования блистеров на поверхности может явиться формирование ультрамелкозернистой структуры (размер зерна менее 1 мкм) в объеме вольфрама путем интенсивной пластической деформации [5, 6]. Такое предположение основано на том, что границы зерен могут являться источниками для дефектов, сформированных под дей-

ствием облучения ионами гелия. В [7] было предположено, что миграция междоузлий, вакансий и даже пузырьков гелия к границам зерен может существенно изменить поведение повреждений в вольфраме. В [8, 9] установлено, что при температуре около 1223 K границы зерен способны удерживать гелий из-за повышения мобильности вакансий. Кроме этого, показано, что на границе зерна формируются более крупные блистеры по сравнению с телом зерна. В [10] исследовано влияние ультрамелкозернистой структуры в вольфраме, полученной интенсивной пластической деформацией методом кручения под высоким давлением, на образование блистеров при облучении ионами He⁺ с энергией 30 кэВ в гелиевом микроскопе. Отмечается, что на крупнозернистом образце блистеры образуются уже при флюенсе 10^{17} ион/см², в то время как на ультрамелкозернистом образце блистеры отсутствовали даже при флюенсе 10^{19} ион/см². В [11] получены несколько другие результаты. По сравнению с [10] ультрамелкозернистые образцы были получены так же интенсивной пластической деформацией методом кручения под высоким давлением, но из порошка вольфрама. На облучаемом участке поверхности ультрамелкозернистого образца наблюдались локальные вздутия/распухание

(свеллинг). Высота вздутий (около 50 нм) при флюенсе облучения 10^{18} ион/см² была сопоставима с высотой вздутий на монокристалле вольфрама [12].

В настоящей работе в сравнительных экспериментальных исследованиях по влиянию ультрамелкозернистой структуры в вольфраме на образование блистеров при облучении ионами He^+ с энергией 30 кэВ использовали мелкозернистые образцы, полученные отжигом ультрамелкозернистых образцов. Площадь единовременного облучения ионами He^+ не ограничивалась микрометровыми растрами облучений, как в гелиевых ионных микроскопах в [10, 11], а была на несколько порядков больше сечения облучаемых зерен в образцах.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Материалом для исследований выбрали вольфрам марки ВА чистотой 99.93%. Исходным образцом являлся слиток, полученный аргоно-дуговой плавкой. Размер зерна в слитке достигал 1 мм. Из слитка вырезали образцы диаметром 10 мм, толщиной 1 мм. С целью формирования ультрамелкозернистой структуры использовали интенсивную пластическую деформацию [13, 14]. Деформацию образцов осуществляли методом кручения под высоким давлением на наковальнях Бриджмена с плоскими поверхностями при усилии гидравлического пресса 50 т при комнатной температуре [15, 16]. Давление составило около 6 ГПа. Число оборотов задавали равным 6. В результате деформации были получены дисковые образцы диаметром 10 мм, толщиной менее 1 мм.

Для аттестации микроструктуры и последующих экспериментов образцы подвергали механической шлифовке и полировке. Шлифовку осуществляли на SiC бумагах с понижением зернистости от #500 до #4000. Образцы полировали в электролите, состоящим из 1 вес. % NaOH + H₂O. Полировку проводили при следующих параметрах: напряжение 16.5 В, комнатная температура, плотность тока и время выдержки не более 13 мА/см² и 60 с соответственно. Качество полировки на отсутствие следов механической шлифовки оценивали с помощью оптического микроскопа.

Высокодозное облучение ионами He^+ с энергией 30 кэВ при нормальном падении ионов на поверхность образца проводили на масс-монокроматоре НИИЯФ МГУ [17]. В эксперименте использовали отполированные деформированные дисковые образцы диаметром 10 мм. Пучок ионов с током около 50 мкА и площадью сечения 0.3 см² направляли таким образом, чтобы основная интенсивность пучка приходила на половину радиуса (участок между центром и краем) дискового образца. Флюенс в процессе облучения достигал величины $1.3 \cdot 10^{18}$ ион/см². Контроль температуры осуществляли с помощью хромель-алюмелевой

термопары. Температура образца при облучении не превышала 50°C. Образцы до и после облучения взвешивали с точностью 0.01 мг для оценки коэффициента распыления.

Для сравнительных исследований использовали мелкозернистые образцы, которые получали из деформированных образцов отжигом при температуре 1500°C в течение 1 ч в вакууме при давлении не выше $5 \cdot 10^{-5}$ торр. Скорость нагрева задавали равной 12°C/мин, охлаждение вместе с печью до комнатной температуры. Образцы после отжига подвергали облучению при идентичных, как деформированных образцов, условиях, без шлифовки и полировки поверхности.

Микроструктуру образцов после деформации, отжига, а также морфологию поверхности после ионного облучения исследовали с помощью растрового электронного микроскопа (РЭМ) Tescan Miga 3 LHM при ускоряющем напряжении 20 кВ. Размер зерен оценивали методом дифракции обратно-отраженных электронов. Шаг сканирования задавали равным от 40 нм до 1 мкм.

Для контроля микроструктурных изменений образцов до и после деформации и отжига измеряли микротвердость. Измерения проводили методом Виккерса с применением четырехгранного алмазного индентора с помощью микротвердомера МНТ-10 и оптического микроскопа Carl Zeiss. Нагрузку индентора задавали от 100 до 300 г.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ОБСУЖДЕНИЕ

Исходные образцы (слиток, полученный аргоно-дуговой плавкой) имели поликристаллическую структуру с размером зерен достигающий 1 мм, рис. 1. Микротвердость образцов составляла около 390 HV.

В результате интенсивной пластической деформации методом кручения под высоким давлением в образцах сформировалась поликристаллическая структура с неоднородным распределением размера зерна в зависимости от центра к краю дисковых образцов. В центре образцов диаметром около 1 мм наблюдалась недостаточно деформированная структура с относительно крупными зернами. С увеличением радиуса от центра к краю образцов структура становилась более измельченной. Это обусловлено тем, что при деформации кручением в центре образца степень деформации минимальная, с увеличением радиуса от центра к краю степень деформации повышается. На участке образцов от половины радиуса до его края сформировалась ультрамелкозернистая структура, рис. 2. Наблюдались области как с относительно равноосными, так и вытянутыми зернами. Распределение зерен по размеру составило от 50 нм до 1 мкм при среднем значении 300 нм. Микротвердость соста-

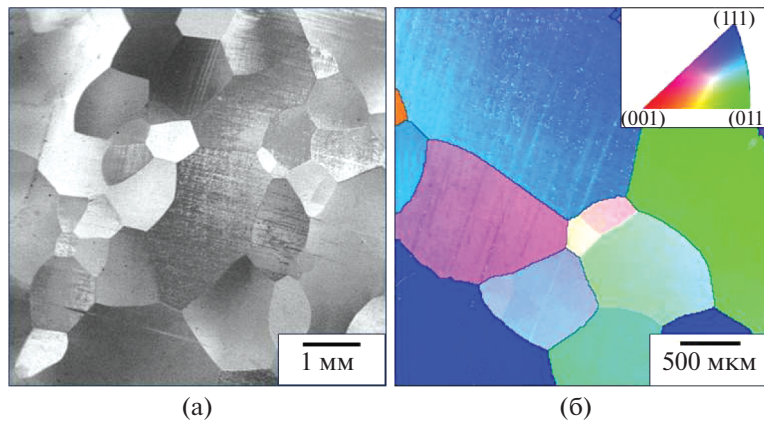


Рис. 1. РЭМ изображения микроstructures исходного вольфрама (слиток) снятых при различных режимах съемки: (а) обратно рассеянные электроны, (б) дифракция отраженных электронов.

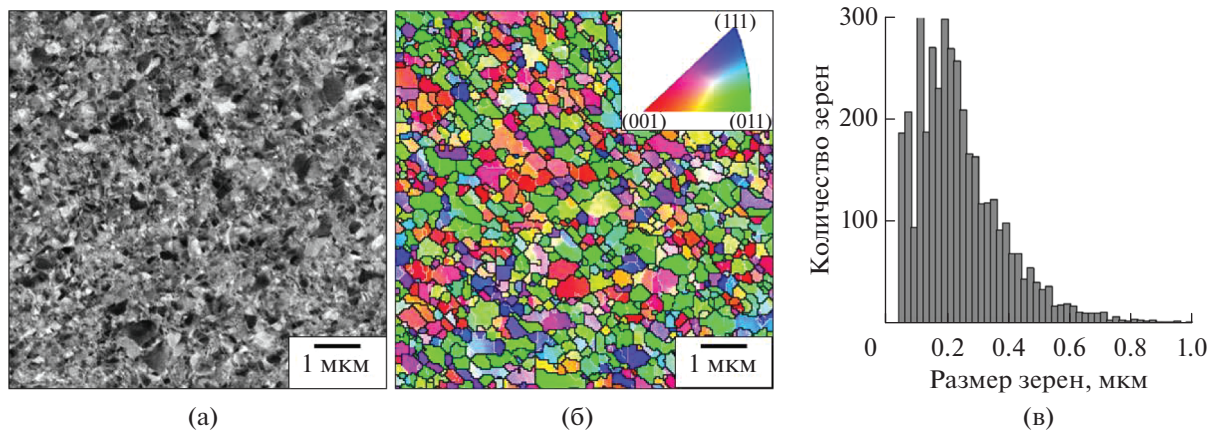


Рис. 2. РЭМ изображения микроstructures ультрамелкозернистого вольфрама снятых при различных режимах съемки: (а) обратно рассеянные электроны, (б) дифракция отраженных электронов и (v) распределение зерен по размеру.

вила 930–970 *HV*. Увеличение микротвердости связано с уменьшением размера зерен в вольфраме при интенсивной пластической деформации [14].

Отжиг ультрамелкозернистых образцов при температуре 1500°C в течение 1 ч в вакууме привел к росту размера зерна и формированию мелкозернистой структуры, рис. 3. Размер зерна составил от 1 до 25 мкм при среднем значении 7 мкм. Микротвердость образцов после отжига уменьшилась до 410–460 *HV*, что следует из известного соотношения Холла-Петча между размером зерна и микротвердостью металлов.

В результате высокодозного облучения ионами He^+ с энергией 30 кэВ с флюенсом $1.3 \cdot 10^{18}$ ион/см² на поверхности мелкозернистых образцов образовались вздутия — куполообразные блистеры, рис. 4а. Блистеры располагались на зернах, они покрывали всю их поверхность и не выходили за пределы зерен. На границах зерен блистеров не обнаруживалось. На некоторых зернах наблюда-

лось отщепление купола блистеров. Диаметр блистеров достигал 1 мкм и не зависел от размера зерна. Появление блистеров с разным диаметром, а также плотностью распределения блистеров на зернах при одинаковых условиях облучения связано с различной кристаллографической ориентировкой зерен [18, 19].

На поверхности облученных ультрамелкозернистых образцов образовались вздутия, которые, скорее всего, являются блистерами, рис. 4б. Вздутия практически равномерно распределялись по поверхности образца. Диаметр вздутий составляет от нескольких сотен нм до 1 мкм, что сопоставимо с размером зерен. В отличие от мелкозернистых образцов, вздутия не имели отщеплений куполов.

Измерение веса образцов до и после облучения ионами He^+ с энергией 30 кэВ с флюенсом $1.3 \cdot 10^{18}$ ион/см² не привело к заметным изменениям. Вес в пределах точности измерения 0.01 мг

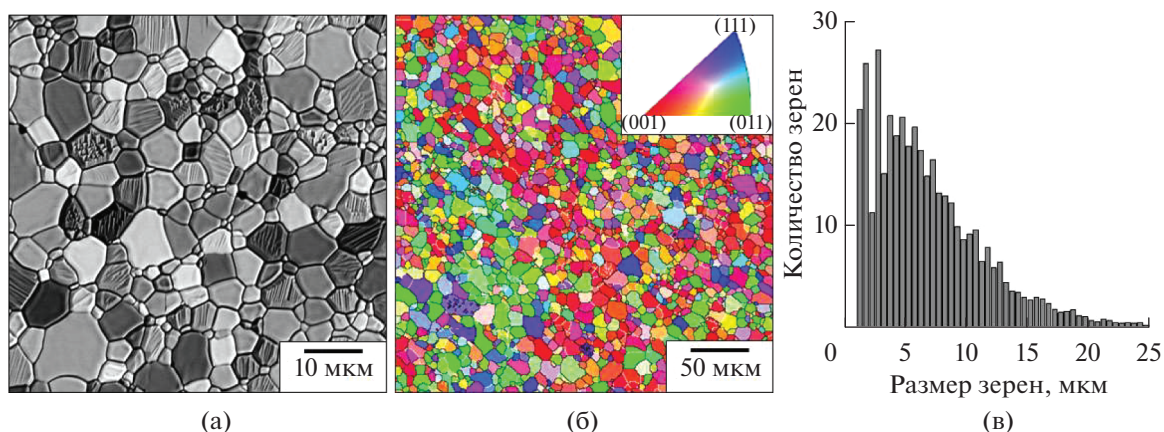


Рис. 3. РЭМ изображения микроструктуры мелкозернистого вольфрама снятых при различных режимах съемки: (а) обратно рассеянные электроны, (б) дифракция отраженных электронов и (в) распределение зерен по размеру.

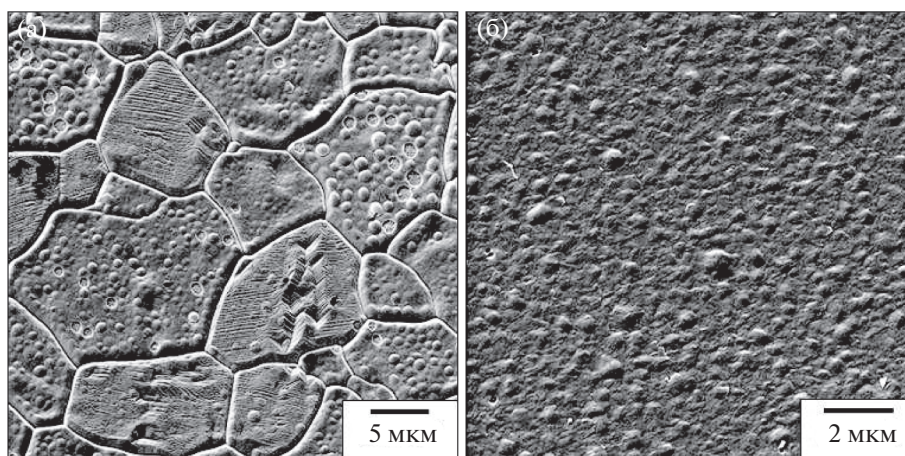


Рис. 4. РЭМ изображения во вторичных электронах поверхности мелкозернистого (а) и ультрамелкозернистого (б) вольфрама, после облучения ионами He^+ с энергией 30 кэВ с флюенсом $1.3 \cdot 10^{18}$ ион/см². Угол съемки 45°.

оставался одинаковым даже для мелкозернистых образцов, где наблюдались отщепления куполов блистеров.

Рассмотрим различие вздутий/блистеров на образцах с разным размером зерна. Известно, что диаметр блистеров зависит от энергии ионов, флюенса облучения, температуры [20]. Влияние размера зерна на диаметр блистера подробно не анализировали. Это, вероятно, обусловлено тем, что наблюдения блистеров проводили, в основном, на мелко- или крупнозернистых металлах, где множество блистеров одинакового диаметра располагались на зернах и размер зерна не оказывал влияние на диаметр блистеров. Это отчетливо можно увидеть и в нашем эксперименте на мелкозернистом образце, где на каждом отдельном зерне образовались блистеры практически одинакового диаметра. Диаметр блистера при одинаковых условиях облучения зависит лишь от кристаллографиче-

ской ориентации зерна [18, 19]. Однако, если размер зерна меньше, чем диаметр блистера как на отдельном крупном зерне поликристалла или на монокристалле то, можно ожидать, что размер зерна будет оказывать влияние на диаметр вздутия/блистера.

В [12] проведен эксперимент по облучению грани (001) монокристалла вольфрама ионами He^+ с энергией 25 кэВ с помощью гелиевого ионного микроскопа. Показано, что если облучать площадку на поверхности монокристалла в виде квадрата со сторонами 2 мкм, то при флюенсе $7 \cdot 10^{17}$ ион/см² образуется 4 блистера, каждый из которых диаметром до 1 мкм. Облучение площадки со сторонами 1 мкм привело к образованию лишь одного блистера диаметром 1 мкм. Уменьшение стороны площадки облучаемого квадрата меньше 1 мкм приводило к образованию блистера диаметром меньше 1 мкм. При этом блистер не выходил за пределы облуча-

емой площадки, его диаметр соответствовал стороне этой площадки. В нашем случае вздутия на ультрамелкозернистом образце с диаметром от нескольких сотен нм до 1 мкм, располагаются, скорее всего, на отдельных зернах. В пользу этого предположения свидетельствует то, что диаметры вздутий сопоставимы с размером зерен на ультрамелкозернистом образце.

В [20] показано, что диаметр блистеров d соотносится с толщиной крышки блистера t как: $d \propto t^\nu$. Показатель степени ν зависит от механических свойств металла и может принимать значения от 0.9 до 1.5. С учетом этого выражения, и того, что диаметр вздутия на ультрамелкозернистом образце в среднем меньше, чем диаметр блистера на мелкозернистом образце, можно предположить, что толщина крышки вздутия на ультрамелкозернистом образце также меньше, чем на мелкозернистом образце.

ВЫВОДЫ

Проведено высокодозное облучение ультра- и мелкозернистого вольфрама ионами He^+ с энергией 30 кэВ с флюенсом $1.3 \cdot 10^{18}$ ион/см². Ультрамелкозернистую структуру в образцах с размером зерен от 50 нм до 1 мкм при среднем значении 300 нм получили интенсивной пластической деформацией методом кручения под высоким давлением 6 ГПа. Мелкозернистую структуру со средним размером зерна 7 мкм получили отжигом ультрамелкозернистых образцов при температуре 1500°C.

Облучение мелкозернистых образцов привело к образованию вздутий — куполообразных блистеров на поверхности. Блистеры диаметром до 1 мкм располагались на зернах, они покрывали всю их поверхность и не выходили за пределы зерен. При этом, на границах зерен блистеров не обнаруживалось. Размер зерна на мелкозернистом образце не оказывал влияния на диаметр блистера. На ультрамелкозернистых образцах при идентичных условиях облучения образовались вздутия, которые, скорее всего, являются блистерами. Диаметр вздутий составлял величину от нескольких сотен нм до 1 мкм, что сопоставимо с размером зерен в ультрамелкозернистом образце.

На мелкозернистых образцах для части блистеров наблюдалось отщепление куполов. На ультрамелкозернистых образцах отщепление куполов не наблюдалось.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа А.М. Борисова поддержана РНФ (проект № 21-79-30058), работа Р.Х. Хисамова, И.И. Мусабинова, Р.Р. Тимиряева выполнена в рамках государственного задания Института проблем сверхпластичности металлов РАН. Работа Р.Р. Мулюкова

поддержана Евразийским научно-образовательным центром Республики Башкортостан. Электронно-микроскопические исследования проведены на оборудовании ЦКП “Структурные и физико-механические исследования материалов” ИПСМ РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Martynenko Yu.V., Nagel M.Yu. // Plasma Phys. Rep. 2012. V. 38. P. 996.
<https://doi.org/10.1134/S1063780X12110074>
2. Kajita S., Kawaguchi S., Ohno N., Yoshida N. // Sci. Rep. 2018. V. 8. P. 56.
<https://doi.org/10.1038/s41598-017-18476-7>
3. Budaev V.P., Fedorovich S.D., Dedov A.V., Karpov A.V., Martynenko Yu.V., Kavyrshin D.I., Gubkin M.K., Lukashovsky M.V., Lazukin A.V., Zakharenkov A.V., Sliva A.P., Marchenkov A.Yu., Budaeva M.V., Tran Q.V., Rogozin K.A., Konkov A.A., Vasilyev G.B., Burmistrov D.A., Belousov S.V. // Fusion Sci. Technol. 2023. V. 79 (4). P. 404.
<https://doi.org/10.1080/15361055.2022.2118471>
4. Harutyunyan Z.R., Ogorodnikova O.V., Aksenova A.S., Gasparyan Yu.M., Efimov V.S., Kharkov M.M., Kaziev A.V., Volkov N.V. // J. Surf. Investig. 2020. V. 14 (6). P. 1248.
<https://doi.org/10.1134/S1027451020060245>
5. Mulyukov R.R. // J. Vac. Sci. Technol. B. 2006. V. 24. P. 1061.
<https://doi.org/10.1116/1.2174024>
6. Wu Y.-C., Hou Q.-Q., Luo L.-M., Zan X., Zhu X.-Y., Li P., Xu Q., Cheng J.-G., Luo G.-N., Chen J.-L. // J. Alloys Compd. 2019. V. 779. P. 926.
<https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2018.11.279>
7. Efe M., El-Atwani O., Guo Y., Klenosky D.R. // Scr. Mater. 2014. V. 70. P. 31–34.
<https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2013.08.013>
8. El-Atwani O., Hattar K., Hinks J.A., Greaves G., Harilal S.S., Hassanein A. // J. Nucl. Mat. 2015. V. 458. P. 216.
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2014.12.095>
9. El-Atwani O., Cunningham W.S., Perez D., Martinez E., Trelewicz J.R., Li M., Maloy S.A. // Scr. Mater. 2020. V. 180. P. 6–10.
<https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2020.01.013>
10. Chen Z., Niu L.-L., Wang Z., Tian L., Kecskes L., Zhu K., Wei Q. // Acta Mater. 2018. V. 147. P. 100–112.
<https://doi.org/10.1016/j.actamat.2018.01.015>
11. Wurmschuber M., Doppermann S., Wurster S., Jakob S., Balooch M., Alfreider M., Schmuck K., Bodlos R., Romaner L., Hosemann P., Clemens H., Maier-Kiener V., Kiener D. // Int. J. Refract. Met. Hard Mater. 2023. V. 111. P. 106125.
<https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2023.106125>
12. Allen F.I., Hosemann P., Balooch M. // Scr. Mater. 2020. V. 178. P. 256.
<https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2019.11.039>
13. Nazarov K.S., Korznikova G.F., Khisamov R.K., Timiryazev R.R., Korznikova E.A., Khalikova G.R., Shayakhmetov R.U., Sergeyev S.N., Kabirow R.R., Mulyukov R.R. // Lett. Mater. 2022. V. 12 (4). P. 360.
<https://doi.org/10.22226/2410-3535-2022-4-360-366>

14. Mulyukov R.R., Khisamov R.Kh., Borisov A.M., Baimiev A.Kh., Ovchinnikov M.A., Timiryayev R.R., Vladimirova A.A. // Lett. Mater. 2023. V. 13 (4). P. 373. <https://doi.org/10.22226/2410-3535-2023-4-373-376>
15. Khisamov R.K., Timiryayev R.R., Safarov I.M., Mulyukov R.R. // Lett. Mater. 2020. V. 10 (2). P. 223. <https://doi.org/10.22226/2410-3535-2020-2-223-226>
16. Хисамов Р.Х., Андрианова А.А., Борисов А.М., Овчинников М.А., Тимирязев Р.Р., Мусабилов И.И., Мулюков Р.Р. // Ядерн. физ. инжинир. 2024. Т. 15 (3). С. 232. <https://doi.org/10.56304/S2079562923030193> [Khisamov R.Kh., Andrianova A.A., Borisov A.M., Ovchinnikov M.A., Timiryayev R.R., Musabirov I.I., Mulyukov R.R. // Phys. At. Nucl. 2023. V. 86 (10). P. 2198. <https://doi.org/10.1134/S1063778823100228>].
17. Mashkova E.S., Molchanov V.A. Medium-Energy Ion Reflection from Solids. 1985. Amsterdam: North-Holland.
18. Xiao S., Ma Y., Tian L., Li M., Qi C., Wang B. // Nucl. Mater. Energy. 2020. V. 23. P. 100746. <https://doi.org/10.1016/j.nme.2020.100746>
19. Zhang M., Zhao J., Meng X., Chen Z., Wang Q., Guan X., Wang T. // J. Nucl. Sci. Technol. 2021. V. 58 (10). P. 1071. <https://doi.org/10.1080/00223131.2021.1911872>
20. Guseva M.I., Martynenko Yu.V. // Sov. Phys. Usp. 1981. V. 24. P. 996. <https://doi.org/10.1070/PU1981v024n12ABEH004758>

Influence of an Ultrafine-Grained Structure on the Formation of Blister Under High-Dose Irradiation of Tungsten by 30-keV He⁺ Ions

R. Kh. Khisamov^{1, *}, N. N. Andrianova^{2, 3}, A. M. Borisov^{1, 2, 4}, M. A. Ovchinnikov³,
I. I. Musabirov¹, R. R. Timiryayev¹, and R. R. Mulyukov¹

¹ Institute for Metals Superplasticity Problems, Russian Academy of Sciences, Ufa, 450001 Russia

² Moscow Aviation Institute (National Research University), Moscow, 125993 Russia

³ Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia

⁴ Moscow State Technological University STANKIN, Moscow, 127994 Russia

*e-mail: r.khisamov@mail.ru

Received April 16, 2024; revised April 16, 2024; accepted May 15, 2024

Abstract—The influence of an ultrafine-grained tungsten structure with an average grain size of 300 nm on the formation of blisters on the surface under high-dose irradiation by 30-keV He⁺ ions has been studied. Fine-grained tungsten has been used for comparative studies. The microstructure and surface morphology of the samples have been investigated.

Keywords: tungsten, severe plastic deformation, ultrafine-grained structure, ion irradiation, 30 keV, helium, blisters