



## 材料辐照损伤中的点缺陷团簇与一维迁移现象

万发荣

Clusters of point defects and one-dimensional motion of clusters during irradiation damage in materials

WAN Fa-rong

引用本文:

万发荣. 材料辐照损伤中的点缺陷团簇与一维迁移现象[J]. 工程科学学报, 2020, 42(12): 1535–1541. doi: 10.13374/j.issn2095-9389.2020.02.05.001

WAN Fa-rong. Clusters of point defects and one-dimensional motion of clusters during irradiation damage in materials[J]. *Chinese Journal of Engineering*, 2020, 42(12): 1535–1541. doi: 10.13374/j.issn2095-9389.2020.02.05.001

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.13374/j.issn2095-9389.2020.02.05.001>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 高剂量氦离子辐照对新型中子增殖铍钨合金表面结构的影响

Effect of high dose helium ion irradiation on the surface microstructure of a new neutron multiplying BeW alloy  
工程科学学报. 2020, 42(1): 128 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095-9389.2019.07.08.008>

#### 楔横轧小断面收缩率轧件螺旋组织缺陷研究

Study on the spiral microstructure defect of workpiece with a small area reduction formed via cross wedge rolling  
工程科学学报. 2018, 40(2): 233 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095-9389.2018.02.014>

#### 基于改进的支持向量回归机算法的磁记忆量化缺陷反演

Metal magnetic memory quantitative inversion of defects based on optimized support vector machine regression  
工程科学学报. 2018, 40(9): 1123 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095-9389.2018.09.014>

#### 铁基非晶合金的辐照性能

Irradiation properties of Fe-based amorphous alloys  
工程科学学报. 2017, 39(9): 1372 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095-9389.2017.09.010>

#### 岩体损伤度的点荷载强度计算及分析

Analyses and calculation of point load strength on rock mass damage index  
工程科学学报. 2017, 39(2): 175 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095-9389.2017.02.002>

#### $\gamma$ 预辐照对管流冲刷条件下铍在EDM-1中腐蚀性能的影响

Corrosion of beryllium in EDM-1 fluid after  $\gamma$  pre-irradiation  
工程科学学报. 2018, 40(12): 1518 <https://doi.org/10.13374/j.issn2095-9389.2018.12.010>

# 材料辐照损伤中的点缺陷团簇与一维迁移现象

万发荣<sup>✉</sup>

北京科技大学材料科学与工程学院, 北京 100083

✉通信作者, E-mail: [wanfr@mater.ustb.edu.cn](mailto:wanfr@mater.ustb.edu.cn)

**摘 要** 材料辐照损伤是核反应堆材料、尤其是核聚变堆材料所面临的重要问题。高能粒子(中子、离子、电子)辐照在材料中会产生大量的点缺陷,即自间隙原子和空位。这些点缺陷聚集在一起会形成自间隙原子团簇和空位团簇,从而对材料结构和性能的演化产生重要影响。空位团簇包括有空洞、层错四面体、空位型位错环,而自间隙原子团簇则只有自间隙型位错环。本文介绍了两种点缺陷团簇的性质、及其对于以材料辐照肿胀为主要内容的材料辐照损伤性能的影响。作为空位团簇,比较详细介绍了具有本课题组特色的空位型位错环的研究,同时分析了合金元素和氢同位素对空位型位错环的影响。在铁试样中形成的这种空位型位错环尺寸可达 100 nm 左右,该空位型位错环具有两种柏氏矢量,  $\mathbf{b}=\langle 100 \rangle$  和  $\mathbf{b}=1/2\langle 111 \rangle$ , 前者的数密度比后者高一个数量级。对于自间隙原子团簇,则重点介绍了与其相关的一维迁移现象及其研究动态,该一维迁移性能有可能是影响高熵合金辐照性能的重要因素。

**关键词** 点缺陷; 缺陷团簇; 一维迁移; 辐照损伤; 核聚变堆材料

**分类号** TG111.2

## Clusters of point defects and one-dimensional motion of clusters during irradiation damage in materials

WAN Fa-rong<sup>✉</sup>

School of Materials Science and Engineering, University of Science and Technology Beijing, 100083 Beijing, China

✉ Corresponding author, E-mail: [wanfr@mater.ustb.edu.cn](mailto:wanfr@mater.ustb.edu.cn)

**ABSTRACT** Irradiation damage in materials for nuclear reactors, particularly for fusion reactors, is a serious problem. For example, the pressure vessel in a fission power plant becomes brittle after exposure to neutron irradiation for many years. In the case of fusion reactors, in addition to the increase in ductile-to-brittle transition temperature, irradiation-induced swelling occurs in structural materials that need to tolerate high-dose irradiation of several hundreds of displacements per atom (dpa). The irradiation of particles (such as neutrons, ions, and electrons) with high energy introduces a large number of point defects, i.e., self-interstitial atoms and vacancies, into materials. Such point defects aggregate together to form self-interstitial atom clusters as interstitial loop and vacancy clusters as void, stacking fault tetrahedra, or vacancy loop. Then, these clusters affect the microstructure and properties of materials. Moreover, these clusters play a more important role than individual point defects during the irradiation damage process. Even after research for decades, many questions about clusters remain unanswered partially because of the difficulties in irradiation test and cluster observation. This review paper explained the structures of clusters and the effect of clusters on irradiation damage in materials. As a unique research of this author's group, the formation of vacancy-type dislocation loops with sizes of up to 100 nm in iron was introduced, including the effect of hydrogen and its isotope and the effect of alloy elements on the formation of vacancy-type dislocation loops. There are two different kinds of vacancy-type dislocation loops, i.e., those having a Burgers vector of  $\mathbf{b}=\langle 100 \rangle$  and those having a Burgers vector of

收稿日期: 2020-02-02

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11875085, 51471026); 国家磁约束核聚变能发展研究专项(ITER 计划国内专项)资助项目(2014GB120000)

$b=1/2<111>$ . The density of the first type is approximately one order of magnitude higher than that of the second type. The one-dimensional motion of self-interstitial atom clusters and the research activities in this field were also discussed in detail, and the one-dimensional motion would be a key factor effecting the irradiation damage of high entropy alloys.

**KEY WORDS** point defect; defect cluster; one-dimension motion; irradiation damage; materials for a fusion reactor

## 1 材料的辐照损伤

材料辐照损伤是核反应堆材料、尤其是核聚变堆材料所面临的重要问题。在氘氚核聚变堆中, 所产生的 14 MeV 的中子是聚变能量的载体, 然而这一能量却不能够像热能那样立刻得到利用, 需要让中子与聚变堆结构材料进行相互作用, 从而将中子的动能传递给聚变堆结构材料。也就是说, 聚变堆结构材料必然要承受高剂量的中子辐照。

材料的辐照损伤有许多表现形式, 人们比较熟悉的有辐照脆性和辐照肿胀。辐照脆性是辐照剂量较低的核电站压力容器钢所面临的重要问题。而对于辐照剂量更高的快中子反应堆和核聚变堆的材料来说, 除了辐照脆性外, 更要面对辐照肿胀的问题。

在核能开发的初期, 人们就开始关注材料辐照损伤问题, 60 余年来获得了大量的信息和数据。目前已有一些关于材料辐照损伤的书籍<sup>[1-4]</sup>, 尤其是 Was 的著作具有较大影响, 其新版著作<sup>[1]</sup>较之旧版增加了 20% 左右的内容, 比较全面地介绍了材料辐照损伤的知识。郭立平等<sup>[3]</sup>的著作的特点则主要是从位错环的角度来介绍材料辐照损伤。然而, 仍有许多新的研究结果未能包含在这些书籍之中。在辐照损伤理论、材料辐照实验、以及抗辐照肿胀材料开发等方面, 也还存在许多重大问题有待解决。其中, 自间隙原子团簇的一维迁移现象近来比较受人关注, 正在成为材料辐照损伤基础研究领域中新的热点。

## 2 点缺陷与点缺陷团簇

高能粒子的辐照在材料中会产生弗伦克尔点缺陷对(Frenkel pair), 即间隙原子(Interstitial atom)和空位(Vacancy)。这些间隙原子与材料基体原子相同, 又可称为自间隙原子(Self interstitial atom, SIA), 以区别由那些尺寸更小的杂质原子形成的间隙原子。高能粒子辐照产生的点缺陷是产生材料辐照损伤的根源。对于形成点缺陷的级联碰撞过程, 以分子动力学为主的计算机模拟研究做出了很大贡献<sup>[5]</sup>。但是, 除了点缺陷的形成过程之外, 人们更需要知道, 这些点缺陷形成之后是如何

演化的。

### 2.1 偏压对点缺陷演化的影响

在辐照过程中, 自间隙原子与空位是成对产生的, 二者的总数量相等。自间隙原子与空位相互结合后, 晶体则会恢复到生成点缺陷之前的状态。假如自间隙原子与空位的性能基本相同, 它们之间就会很容易复合以至湮灭, 这些点缺陷就难以进一步演化成缺陷团簇, 材料辐照损伤也就不会成为严重的问题。从这个思路来说, 尽量提高弗伦克尔点缺陷对的复合比例, 是提高材料抗辐照性能的关键。

不巧的是, 自间隙原子与空位的特性有很大不同。例如, 自间隙原子的形成能远大于空位的形成能, 而自间隙原子的迁移能又远小于空位的迁移能。在辐照缺陷的形成与演化过程中, 有不少因素使得这两种点缺陷呈现很不相同的行为。这种差异一般称为偏压(Bias)。关于点缺陷的偏压有两种, 产生偏压(Production bias)和陷阱偏压(Sink bias)。在辐照级联过程所产生的自间隙原子与空位的分布区域中, 有一个很明显的特征。在这个区域中心附近的点缺陷主要是大量的空位, 而自间隙原子则分布在空位区域的周围。这样形成的空位和自间隙原子的浓度差异, 称为产生偏压。产生偏压的存在, 对于辐照肿胀时的空洞形核具有重要意义。材料中能够大量吸收点缺陷的地方称为“缺陷陷阱”(Sink, 有的文献称为“缺陷位阱”)。一般来说, 缺陷陷阱吸收自间隙原子的数量要多于空位的数量, 表征这一差异的量是陷阱偏压。陷阱偏压越大, 意味着该陷阱吸收的自间隙原子越多, 从而导致残留的空位浓度远大于自间隙原子浓度。

### 2.2 点缺陷团簇的类型

由于点缺陷周围存在着的应变场, 如果点缺陷聚集在一起形成团簇, 与单个的点缺陷相比, 将能降低应变能。空位团簇与自间隙原子团簇的行为也有着很大差异。

空位团簇的形式比较复杂, 一般有空洞、层错四面体、位错环等几种。除了辐照方法之外, 通过淬火方法形成的肖特基缺陷就是点缺陷空位, 这些肖特基缺陷也可以形成空位团簇。

在较高温度( $0.3T_m \sim 0.6T_m$ ,  $T_m$  为熔点)下, 空位点缺陷聚集在一起, 可以形成尺寸更大的三维的空洞(Void). 伴随空洞的出现, 宏观上就会出现材料密度降低, 体积膨胀, 即所谓辐照肿胀(Irradiation swelling). 有关材料辐照空洞及其引起的辐照肿胀的研究数量非常浩大, 工作也十分深入. 一般认为, 高浓度空位是空洞形核与长大的主要的热力学驱动力, 而影响这一空位浓度的主要是来自位错等陷阱对自间隙原子的吸收(偏压). 在偏压驱动体系中, 对于空位聚集及其辐照肿胀来说, 位错起着主要的作用. 另外一个有趣的现象是, 有时辐照空洞的分布状态会出现三维超点阵形式<sup>[6]</sup>. 有关空洞超点阵的形成机制也是材料辐照损伤的热点之一. 空洞点阵的对称性和晶体学方向与基体晶体点阵相一致, 空洞点阵大多在级联损伤条件(中子或离子辐照)下出现, 在纯弗伦克尔点缺陷对(电子辐照)的情况下很少出现. 这一现象说明, 它与级联过程中出现的自间隙原子团簇的一维迁移有很大关联.

由于中子辐照实验的困难, 在辐照实验中经常通过加速器的离子辐照实验来分析材料辐照肿胀行为. 传统的离子辐照实验方法简单方便, 容易控制, 且能够实现很高的剂量率, 但需要对辐照实验进行仔细规划, 对辐照结果进行小心处理, 才有可能与低剂量率的中子辐照实验进行定量对比<sup>[7]</sup>. 尤其是验证新材料的抗辐照肿胀性时, 更应该在完全相同的离子辐照条件下对已知具有大肿胀量的材料(例如 316 奥氏体不锈钢等)进行对比, 才有数据的可靠性.

在常温或低温辐照时, 层错四面体(Stacking fault tetrahedra)是面心立方晶体中常见的一种空位团簇, 而体心立方晶体则不会出现层错四面体. 如果三个空位组成一个平面三角形, 以此三角形作为四面体的底面, 位于四面体顶点位置的原子则往下移动一点位置, 就形成了一个最原始的三空位四面体的晶体缺陷. 淬火、塑性变形以及各种辐照都能够产生层错四面体. 层错四面体的四个面占据面心立方结构中的四个 $\{111\}$ 面, 因此一般情况下层错四面体一旦形成, 便非常稳定. 受到层错能的限制, 层错四面体的尺寸有一个上限, 不能无限制长大. 一般情况下, 层错四面体的边长不超过 50 nm. 通常组成层错四面体的都是空位型层错环. 虽然理论上并未排除由间隙型层错环组成层错四面体的可能性, 但实验上还未观察到这种层错四面体. 虽然时有研究说观察到了间隙型层错

四面体, 但进一步的实验仍然给予了否定. 可以说到现在为止, 所观察到的层错四面体都是空位型<sup>[8]</sup>. 关于层错四面体的形成机制至少有法兰克(Frank)空位型位错的滑移、空位团簇长大以及空洞坍塌(Void collapse)3 种说法, 一直存在争议<sup>[9-10]</sup>.

### 2.3 空位型位错环

空位型位错环常见形成于碰撞级联过程的空位团簇坍塌过程, 但此时的空位型位错环的尺寸一般很小, 只有几个纳米<sup>[11]</sup>. 当数量更多的空位聚集时, 更趋向于形成表面能较小的三维尺寸的空洞, 而不是表面能较大的二维尺寸的空位型位错环. 然而作者的课题组研究发现, 在氢离子辐照铁的实验中, 那些捕获有氢原子的空位通过高温扩散, 能够沿着一定的二维平面, 聚集成尺寸很大的空位型位错环<sup>[12]</sup>. 此时位错环的尺寸可达 100 nm 以上. 通过透射电镜的内衬-外衬法(Inside-outside 法), 确认了这些空位型位错环的性质和柏氏矢量<sup>[12]</sup>. 该空位型位错环具有两种柏氏矢量,  $b = \langle 100 \rangle$  和  $b = 1/2 \langle 111 \rangle$ , 前者的数密度比后者高一个数量级. 在高压电镜的原位辐照观察实验中, 可以看到由于吸收电子束辐照产生的自间隙原子, 这些空位型位错环会不断缩小以至消失, 如图 1 所示<sup>[13]</sup>. 这与一般间隙型位错环在电子束辐照下不断长大的现象, 形成了鲜明对比. 要指出的是, 这里的高压电镜辐照实验的作用是验证是否为空位型位错环. 除了氢原子外, 捕获了氦原子的空位也能形成这种空位型位错环<sup>[14-15]</sup>. 不过由氦原子与空位的复合体形成的空位型位错环, 在电子束辐照下出现的缩小速度比氢的情况要小一个数量级<sup>[16-17]</sup>. 这一现象表明, 氦与空位的复合体形成的位错环的陷阱偏压要小于氢与空位的复合体形成的位错环的陷阱偏压. 根据这一氢同位素效应, 可以推测氦原子与空位的复合体形成的空位型位错环, 将具有更小的偏压. 这对于研究在核聚变堆环境下服役的铁素体钢来说, 当然是一个好消息. 对于纯铁来说, 这种空位型位错环的形成温度为 500 °C. 然而, 加入合金元素 Ni 会降低空位型位错环的形成温度, 而 Cr 则会提高空位型位错环的形成温度. 根据合金元素对于空位型位错环形成温度的影响不同, 可以提出一种新的对于钢中合金元素影响进行分类的方法<sup>[13,18]</sup>. 氢原子在形成这种空位型位错环时所起的作用, 是一个令人感兴趣的问题. 另外, 除了上述氢离子注入铁的情况, 还不清楚在其它情况下是否也会形成这种尺寸为 100 nm 的空位型位错环.

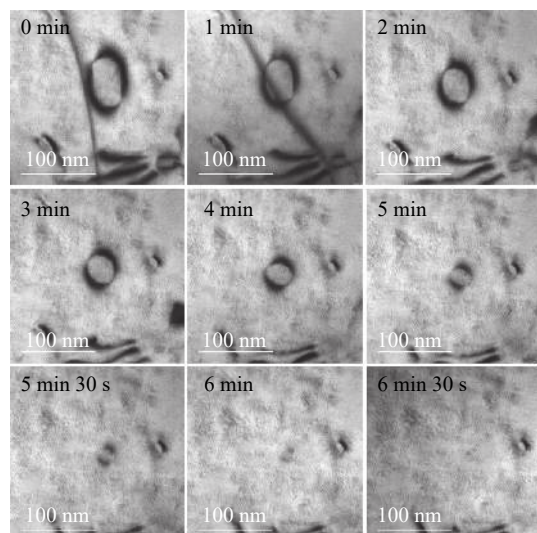


图 1 电子束辐照时的位错环变化

Fig.1 Change of dislocation loops under electron irradiation

## 2.4 间隙型位错环

与空位相比, 自间隙原子更容易扩散迁移, 也更容易聚集形成团簇。与多种形式的空位团簇不同, 自间隙原子形成的团簇形式比较单一, 只有间隙型位错环。只有通过辐照的方法才可以形成间隙型位错环。对于致密度高的金属材料来说, 除了辐照实验外, 还没有什么其它方法能够在材料中大量形成点缺陷自间隙原子。也就是说, 要通过实验来研究自间隙原子的性质, 辐照实验是唯一的方法。如果利用一般的热时效方法来模拟研究诸如核电站压力容器钢的辐照脆性问题, 则需要格外注意那些由于自间隙原子引起的特殊现象。

辐照产生的间隙型位错环是辐照损伤过程中的陷阱偏压的主要来源。不同柏氏矢量的间隙型位错环所具有的陷阱偏压也不同。例如, 在体心立方结构材料中的间隙型位错环, 主要有两种柏氏矢量,  $b=1/2\langle 111 \rangle$  和  $b=\langle 100 \rangle$ 。影响这样两种位错环的数量比例的因素有很多, 例如合金成分、辐照温度、辐照方式(中子、电子、不同离子)等。

Konobeev 等对 Fe-Cr 二元合金在 400 °C 进行高剂量中子辐照(离位原子概率即 dpa 等于 25.8) [19], 发现所有位错环均为  $b=\langle 100 \rangle$  类型。Lavrentiev 等 [20] 通过第一性原理计算方法, 研究了 Fe-Cr 合金中空位及空位与 Cr 原子的相互作用。研究结果显示, Cr 原子可以和空位结合在一起, 形成稳定的结构, Cr 原子在该结构中占据能量最低的位置。在其中的一种 Cr 与空位组成的结构中包含两个 Cr 原子和两个空位, 此时两个 Cr 原子沿  $\langle 100 \rangle$  方向排列能量最低。他们的计算结果在一定程度上与本实验的实验结果相一致。另一方面,

Fe-Cr 合金在 450 °C 以上温度电子辐照产生的位错环类型主要是  $b=\langle 100 \rangle$  型。但是也有不同的研究结果。有研究 [21] 通过铁离子辐照实验研究了高纯铁和 Fe-9Cr 样品中的两种位错环的数量比例, 发现纯铁中  $b=\langle 100 \rangle$  的位错环更多, 并认为这是  $b=1/2\langle 111 \rangle$  的位错环更容易滑移的结果。而在铁铬中, 铬的存在阻碍了  $b=1/2\langle 111 \rangle$  的位错环的滑移, 使得所观察到的  $b=\langle 100 \rangle$  的位错环的数量比例降低。作为核聚变堆材料的候选材料, 钒合金受到关注 [22]。对于同样为体心立方结构的钒, 分析了氢离子辐照后形成的位错环, 发现在所分析的 76 个位错环中,  $b=1/2\langle 111 \rangle$  的位错环有 70 个, 柏氏矢量  $b=\langle 110 \rangle$  的位错环只有 6 个 [23]。

间隙型位错环的形成, 与自间隙原子的结构、如哑铃型 (Dumb-bell)、挤列型 (Crowdion)、以及它们的取向有关。通过研究不同类型的间隙型位错环的比例与材料辐照肿胀量的关系, 是提高材料的抗辐照肿胀性能的思路之一。

晶体缺陷理论一直是金属物理中的传统内容, 而对于非辐照环境的传统材料来说, 传统位错理论已经发展到非常成熟的阶段。但是, 辐照环境下的位错, 尤其是由自间隙原子团簇构成的位错环, 具有许多特殊问题, 需要认真分析。

## 3 自间隙原子团簇的一维迁移

最近, 自间隙原子团簇的一维迁移 (One dimension motion) 是一个比较热门的话题 [24]。作为单个点缺陷, 自间隙原子与空位的迁移能之间存在巨大差异, 这种差异也是引起材料辐照损伤的主要原因。关于点缺陷团簇的情况, 一般来说空位团簇的迁移性能远低于单个的空位。但是, 自间隙原子聚集在一起形成团簇后, 会出现一维迁移现象, 它所具有的自间隙原子输送能力远超过单个点缺陷的三维扩散所能够实现的自间隙原子输送能力, 因此有可能持续地将自间隙原子输送到晶界或材料表面, 从而加剧了基体内两种点缺陷浓度之间的不平衡, 对材料辐照损伤的影响不容忽视。

上述提到的两种偏压、即“陷阱偏压”与“产生偏压”的区别在于, 前者是通过三维运动吸收单个的自间隙原子, 后者则通过一维迁移方式吸收自间隙原子团簇。在中子辐照时, 两种偏压都会发挥作用, 但二者作用各占的比例大小则与材料基体状态有关。按照从纯金属、简单合金、实用钢种的顺序, 自间隙原子团簇的一维迁移的平均距离会逐渐减小, 因此“产生偏压”的重要性也随之降低。

图2表示的是在辐照级联过程中出现的自间隙原子团簇的一维迁移现象<sup>[25]</sup>。当自间隙原子团簇通过一维移动离开级联损伤区域后,自间隙原子浓度与空位浓度之间的差距进一步增大,其结果是增大了所谓的“产生偏压”。此时,空位的扩散方式是单个空位逐个晶格的随机运动,而自间隙原子成为团簇,以直线的一维迁移方式从级联区域迅速扩散出去。这样,空位更加容易残留在级联区域,从而使得空洞更容易形核和长大。以前一般认为,刃型位错具有的位错偏压效应才是空洞形成的主要原因。然后实际上在那些没有观察到刃型位错的地方,也可能有空洞形成,此时的空洞形成原因就是自间隙原子团簇的一维迁移。

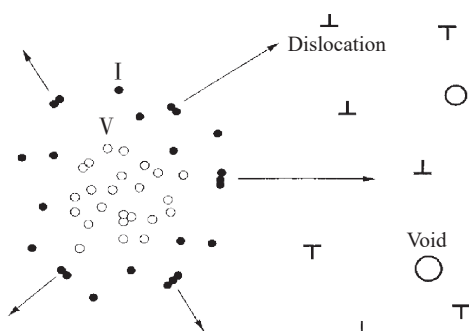


图2 级联过程中的自间隙原子团簇的一维迁移

Fig.2 One-dimensional motion of self-interstitial atom clusters during the cascade process

虽然自间隙原子团簇会形成一个位错环,但一维迁移现象中所包含的原子协同扩散机制在传统的位错理论中并没有涉及。因为一个位错环中相向部分的位错线段的性质总是相反的,因此不可能在剪应力作用下,整个位错环朝着同一个方向滑移。由于位错环各处的柏氏矢量相同,如果对于位错环的左右两端施加剪应力,位错环会随着应力方向变形,而位错环的重心则不能移动。然而在一维迁移过程中,由于热激活的原因,构成位错环的自间隙原子(挤列)沿着柏氏矢量方向移动。这种一维迁移的方向,在面心立方金属中为 $\langle 110 \rangle$ 方向,而在体心立方金属中则为 $\langle 111 \rangle$ 方向。另外,在传统的位错理论中,认为位错的移动需要克服皮尔斯-纳巴罗(Peierls-Nabarro)阻力。这一看法也阻碍了对于自间隙原子团簇的一维迁移现象的理解。有研究发现,即使没有用以驱动位错环的应力, $\alpha$ 铁中的 $b=1/2\langle 111 \rangle$ 的纳米尺度的位错环也会出现一维迁移<sup>[26]</sup>。团簇尺寸与一维迁移之间存在密切的关系,只有那些尺寸很小的自间隙位错环才能够发生一维迁移,其迁移性与团簇中的自间

隙原子数量的平方根成反比<sup>[27]</sup>。单质金属如 $\alpha$ 铁中,尺寸较大(大于5.9 nm)的自间隙位错环在热激发下也能发生一维迁移<sup>[26]</sup>。

一般来说,很难在实验中观察到图2所示的级联过程中的一维迁移现象。现在的一维迁移研究大多采用分子动力学等计算机模拟方法<sup>[27-28]</sup>。Kuramoto(藏元英一)<sup>[29]</sup>利用静态弛豫法计算了自间隙原子位错环的迁移能,发现当位错环很小时,其迁移能小于单个的自间隙原子的迁移能,表明这种位错环的移动确实属于热激活过程的原子团簇运动。

对于自间隙位错团簇的一维迁移与空洞长大之间的相关性,实验上的直接证明不多。以前发现附近没有位错的晶界旁边也会出现空洞长大,因为无法利用位错偏压的机制来说明,从而需要利用一维迁移机制来解释。还有,对于目前比较热门的高熵合金,Lu等<sup>[30-31]</sup>认为,自间隙型位错环的一维迁移性能的降低,即自间隙原子团簇从长程一维迁移变为短程三维迁移,将会抑制辐照损伤。这是高熵合金抗辐照性能得以提高的原因。关于高熵合金中的自间隙原子团簇一维迁移现象,除了计算机模拟计算研究<sup>[30-31]</sup>,也在原位离子辐照实验中获得了初步结果<sup>[32]</sup>。

超高压透射电镜在自间隙原子团簇的一维迁移观察实验中发挥了很大作用。此时利用电子束辐照产生自间隙原子团簇(位错环),然后利用录像原位观察这些位错环的变化。对于铁等一般材料来说,使用的是加速电压为1000 keV的高压电镜。而对于钨,由于其离位能高( $E_d > 40$  eV),需要使用加速电压为2000 keV的高压电镜<sup>[33]</sup>。在铁试样电子辐照实验中,观察到自间隙原子团簇会出现瞬发的不规则的一维迁移(沿一个方向的移动或往复运动)。产生这种一维迁移现象的原因是,在自间隙原子团簇处被捕获的杂质原子(柯垂尔气团, Cottrell atmosphere)受到高能电子辐照后,从这些团簇脱离出去,从而使得原本静止的自间隙原子团簇能够迁移。通过不同纯度的铁试样,发现这种一维迁移受到杂质原子的影响<sup>[34-35]</sup>。就铁中合金元素的影响来说,硅和铜都会减少这种一维迁移的频率和行程<sup>[35]</sup>。纯钒和V-5Ti合金的实验发现,关于自间隙原子位错环一维迁移的影响程度,V-5Ti合金要小于纯钒<sup>[36]</sup>。随着温度的降低,一维迁移的移动距离显著变短。在250~300 K范围内钉扎位错环的是杂质原子,而在110~200 K范围内钉扎位错环的则是高浓度空位<sup>[37]</sup>。

对于国内缺乏超高压透射电镜实验条件的人来说, 普通的加速电压为 200 keV 的低压透射电镜也有可能作为电子束辐照源。例如, 纯铝的击出阈值  $E_d$  为 16 eV, 而能量为 200 keV 的电子在铝中能够产生的最大损伤能量为 19.5 eV<sup>[38]</sup>。实际上利用低压透射电镜在铝中观察到了辐照产生的位错环<sup>[39]</sup>。从这点来说, 有可能利用一般的低压透射电镜和纯铝样品, 开展自间隙原子团簇的一维迁移实验的观察实验。

另一种观察一维迁移现象的实验方法是利用离子加速器与低压透射电镜的联机装置进行原位离子辐照。离子加速器的离子辐照用于产生位错环, 并促进位错环脱离钉扎位置进行一维迁移。低压透射电镜则可以对位错环进行原位观察, 记录所发生的一维迁移现象<sup>[32]</sup>。随着国内同类装置的投入运行<sup>[40]</sup>, 将有可能推进国内的此项研究。

以前一般认为, 只有自间隙原子团簇才会出现一维迁移现象。但是, 现在也有关于空位型位错环的一维迁移现象的论文<sup>[41]</sup>。该研究发现, 一个空位团簇在两个空位型层错四面体之间来回进行一维迁移, 最后本身也成为层错四面体。根据该论文的估算, 金中的单个空位的迁移能为 0.85 eV, 空位型位错环一维迁移的有效迁移能为 0.22 ~ 0.23 eV, 可见空位型位错环一维迁移的有效迁移能远低于单个空位的迁移能, 表明该空位型位错环的一维迁移确实与单个空位的运动无关。产生一维迁移的自间隙原子团簇是由挤列构成的, 虽然空位型位错环不会有挤列, 仍可以认为它们会出现与挤列类似的(稀疏排列的“疏列”, Voidion)原子结构。

关于点缺陷团簇的一维迁移, 还存在太多的未知问题, 有待今后的实验进一步探明。

## 4 小结

材料辐照损伤的直接原因是高能粒子产生的点缺陷。但是, 点缺陷聚集在一起形成的点缺陷团簇, 更是影响材料辐照损伤性能的重要因素。空位团簇种类较多, 自间隙原子团簇则只有位错环一种。纳米尺度的空位型位错环多形成于空位团簇的坍塌过程, 如果满足一定条件(例如氢原子的介入), 也能够通过空位沿二维平面聚集来形成尺寸大得多的空位型位错环。另一方面, 自间隙原子团簇(位错环)的一维迁移行为, 从深化材料物理基础理论和开发抗辐照损伤材料两方面来说, 都是极具前沿性的课题, 今后将会得到更广泛的关注。

## 致谢

此论文修改时, 武汉大学郭立平、西安交通大学卢晨阳提出了宝贵意见。

## 参 考 文 献

- [1] Was G S. *Fundamentals of Radiation Materials Science-Metals and Alloys*. 2nd Ed. New York: Springer Science+Business Media, 2017
- [2] Ishino S. *Irradiation Damage*. Tokyo: University of Tokyo Press, 1979
- [3] Wan F R. *Irradiation Damage in Metals*. Beijing: Science Press, 1993  
(万发荣. 金属材料的辐照损伤. 北京: 科学出版社, 1993)
- [4] Guo L P, Luo F F, Yu Y X. *Dislocation Loops in Irradiated Nuclear Materials*. Beijing: National Defense Industry Press, 2017  
(郭立平, 罗凤凤, 于雁霞. 核材料辐照位错环. 北京: 国防工业出版社, 2017)
- [5] Nordlund K. Historical review of computer simulation of radiation effects in materials. *J Nucl Mater*, 2019, 520: 273
- [6] Ipatova I, Wady P T, Shubeita S M, et al. Radiation-induced void formation and ordering in Ta-W alloys. *J Nucl Mater*, 2017, 495: 343
- [7] Zinkle S J, Snead L L. Opportunities and limitations for ion beams in radiation effects studies: bridging critical gaps between charged particle and neutron irradiations. *Scripta Mater*, 2018, 143: 154
- [8] Saka H. *Dislocation in Crystals*. Tokyo: Muruzen Press, 2015
- [9] Schibli R, Schäublin R. On the formation of stacking fault tetrahedra in irradiated austenitic stainless steels—a literature review. *J Nucl Mater*, 2013, 442: S761
- [10] Loretto M H, Phillips P J, Mills M J. Stacking fault tetrahedra in metals. *Scripta Mater*, 2015, 94: 1
- [11] Yi X O, Jenkins M L, Kirk M A, et al. *In-situ* TEM studies of 150 keV W<sup>+</sup> ion irradiated W and W-alloys: damage production and microstructural evolution. *Acta Mater*, 2016, 112: 105
- [12] Huang Y N, Wan F R, Jiao Z J. The type identification of dislocation loops by TEM and the loop formation in pure Fe implanted with H<sup>+</sup>. *Acta Phys Sin*, 2011, 60(3): 036802-1  
(黄依娜, 万发荣, 焦治杰. 利用透射电镜衬度像变化判定位错环类型及注氢纯铁中形成的位错环分析. *物理学报*, 2011, 60(3): 036802-1)
- [13] Du Y F, Cui L J, Han W T, et al. Formation of vacancy-type dislocation loops in hydrogen-ion-implanted Fe—Cr alloy. *Acta Metall Sin Engl Lett*, 2019, 32(5): 566
- [14] Liu P P, Zhu Y M, Zhao M Z, et al. The effect of isotope on the dynamic behavior of <100> vacancy-type dislocation loop in deuterium-implanted Fe. *Fusion Eng Des*, 2015, 95: 20
- [15] Jiang S N, Wan F R, Long Y, et al. Effects of helium and deuterium on irradiation damage in pure iron. *Acta Phys Sin*, 2013, 62(16): 166801-1  
(姜少宁, 万发荣, 龙毅, 等. 氦、氘对纯铁辐照缺陷的影响. *物理*

- 学报, 2013, 62(16): 166801-1)
- [16] Huang Y N, Wan F R, Xiao X, et al. The effect of isotope on the interaction between hydrogen and irradiation defect in pure iron. *Fusion Eng Des*, 2010, 85(10-12): 2203
- [17] Jiang S N, Wan F R, Long Y, et al. Effect of isotope on irradiation damage in pure iron. *J Funct Mater*, 2013, 44(2): 262  
(姜少宁, 万发荣, 龙毅, 等. 同位素效应对铁中辐照损伤的影响. *功能材料*, 2013, 44(2): 262)
- [18] Wan F R, Zhan Q, Long Y, et al. The behavior of vacancy-type dislocation loops under electron irradiation in iron. *J Nucl Mater*, 2014, 455(1-3): 253
- [19] Konobeev Y V, Dvoriashin A M, Porollo S I, et al. Swelling and microstructure of pure Fe and Fe-Cr alloys after neutron irradiation to ~26 dpa at 400 °C. *J Nucl Mater*, 2006, 355(1-3): 124
- [20] Lavrentiev M Y, Nguyen-Manh D, Dudarev S L. Chromium-vacancy clusters in dilute bcc Fe-Cr alloys: an ab initio study. *J Nucl Mater*, 2018, 499: 613
- [21] Yao Z, Hernandez-Mayoral M, Jenkins M L, et al. Heavy-ion irradiations of Fe and Fe-Cr model alloys Part 1: damage evolution in thin-foils at lower doses. *Philos Mag*, 2008, 88(21): 2851
- [22] Zhang G W, Wan F R, Jiang S N, et al. Effect of hydrogen implantation at high temperature on the microstructural evolution of vanadium alloys. *Chin J Eng*, 2016, 38(3): 385  
(张高伟, 万发荣, 姜少宁, 等. 高温注氢对钒合金微观结构的影响. *工程科学学报*, 2016, 38(3): 385)
- [23] Cui L J, Gao J, Du Y F, et al. Characterization of dislocation loops in hydrogen-ion irradiated vanadium. *Acta Phys Sin*, 2016, 65(6): 066102-1  
(崔丽娟, 高进, 杜玉峰, 等. 氢离子辐照纯钒中形成的位错环. *物理学报*, 2016, 65(6): 066102-1)
- [24] Wirth B D. How does radiation damage materials. *Science*, 2007, 318(5852): 923
- [25] Ishino S, Kuramoto E, Soneda N. Radiation damage on fusion reactor materials 3. displacement of atoms and radiation induced defects. *J Plasma Fusion Res*, 2008, 84(5): 258
- [26] Arakawa K, Ono K, Isshiki M, et al. Observation of the one-dimensional diffusion of nanometer-sized dislocation loops. *Science*, 2007, 318(5852): 956
- [27] Derlet P M, Gilbert M R, Dudarev S L. Simulating dislocation loop internal dynamics and collective diffusion using stochastic differential equations. *Phys Rev B*, 2011, 84(13): 134109
- [28] Li Y, Boleining M, Robertson C, et al. Diffusion and interaction of prismatic dislocation loops simulated by stochastic discrete dislocation dynamics. *Phys Rev Mater*, 2019, 3(7): 073805
- [29] Kuramoto E. Computer simulation of fundamental behaviors of interstitial clusters in Fe and Ni. *J Nucl Mater*, 2000, 276(1-3): 143
- [30] Lu C Y, Niu L L, Chen N J, et al. Enhancing radiation tolerance by controlling defect mobility and migration pathways in multicomponent single-phase alloys. *Nat Commun*, 2016, 7: 13564
- [31] Lu C Y, Yang T N, Niu L L, et al. Interstitial migration behavior and defect in ion irradiated pure nickel and Ni-xFe binary alloys. *J Nucl Mater*, 2018, 509: 237
- [32] Shi S, Bei H B, Robertson I M. Impact of alloy composition on one-dimensional glide of small dislocation loops in concentrated solid solution alloys. *Mater Sci Eng A*, 2017, 700: 617
- [33] Amino T, Arakawa K, Mori H. Detection of one-dimensional migration of single self-interstitial atoms in tungsten using high-voltage electron microscopy. *Sci Rep*, 2016, 6: 26099
- [34] Satoh Y, Matsui H, Hamaoka T. Effects of impurities on one-dimensional migration of interstitial clusters in iron under electron irradiation. *Phys Rev B*, 2008, 77(9): 094135
- [35] Hamaoka T, Satoh Y, Matsui H. One-dimensional motion of interstitial clusters in iron-based binary alloys observed using a high-voltage electron microscope. *J Nucl Mater*, 2013, 433(11-3): 180
- [36] Hayashi T, Fukumoto K, Matsui H. *In situ* observation of glide motions of SIA-type loops in vanadium and V-5Ti under HVEM irradiation. *J Nucl Mater*, 2002, 307-311: 993
- [37] Satoh Y, Abe Y, Abe H, et al. Vacancy effects on one-dimensional migration of interstitial clusters in iron under electron irradiation at low temperatures. *Philos Mag*, 2016, 96: 2219
- [38] Williams D B, Carter C B. *Transmission Electron Microscopy*. 2nd Ed. New York: Springer, 2009
- [39] Li J, Gao J, Wan F R. The change of microstructure in deuteron-implanted aluminum under electron irradiation. *Acta Phys Sin*, 2016, 65(2): 026102-1  
(李杰, 高进, 万发荣. 电子束辐照下的注氦铝的结构变化. *物理学报*, 2016, 65(2): 026102-1)
- [40] Huang M J, Li Y P, Ran G, et al. Cr coated Zr-4 alloy prepared by electroplating and its *in-situ* He<sup>+</sup> irradiation behavior. *J Nucl Mater*, 2020, 538: 152240
- [41] Matsukawa Y, Zinkle S J. One-dimensional fast migration of vacancy clusters in metals. *Science*, 2007, 318(5852): 959