

## ВЛИЯНИЕ СТОКОВ РАЗНОГО ТИПА НА РАДИАЦИОННУЮ ПОВРЕЖДАЕМОСТЬ АУСТЕНИТНЫХ Fe-Ni-СПЛАВОВ ПРИ ЭЛЕКТРОННОМ И НЕЙТРОННОМ ОБЛУЧЕНИИ

*С.Е. Данилов, В.Л. Арбузов, Б.Н. Гощицкий, А.Е. Карькин, В.А. Павлов, В.Д. Пархоменко*  
*Институт физики металлов УрО РАН, г. Екатеринбург, Россия;*  
*E-mail: danilov@imp.uran.ru*

Исследовано расслоение твердого раствора при бескаскадном электронном и каскадном нейтронном облучении в Fe-Ni-сплаве с разными типами стоков для точечных дефектов в виде дислокаций и деформационных вакансионных кластеров. Показано, что в процессе электронного облучения эффективность дислокационных стоков больше, чем эффективность деформационных вакансионных кластеров. При нейтронном облучении в области доз, когда наблюдается перекрытие каскадов смещений, эффективность действия радиационных вакансионных кластеров существенно больше, чем эффективность действия деформационных стоков. При изохронных отжигах наблюдается две подстадии диссоциации вакансионных кластеров с энергиями диссоциации 1,2 и 1,5 эВ, которые не зависят от способа создания вакансионных кластеров: деформацией, бескаскадным облучением электронами или каскадным нейтронным облучением.

### ВВЕДЕНИЕ

В сталях и сплавах в отличие от чистых металлов под действием облучения развиваются различные радиационно-индуцированные структурно-фазовые превращения (СФП), которые собственно и определяют изменения свойств материалов в процессе облучения и во многом определяют их радиационную повреждаемость. Эти процессы непосредственно связаны со свободной миграцией точечных дефектов, генерируемых облучением. При электронном облучении генерируются только свободно мигрирующие дефекты, а при нейтронном (каскадном) облучении наряду со свободно мигрирующими дефектами возникают также вакансионные кластеры. Диффузионная длина мигрирующих радиационных дефектов, определяющая эффективность облучения в осуществлении СФП, зависит от типа и концентрации стоков точечных дефектов, которыми могут служить дислокации, вакансионные кластеры, межфазные границы.

В широко использующихся аустенитных хромоникелевых сталях при облучении может происходить расслоение твердого раствора [1, 2]. Эксперименты на модельных железоникелевых сплавах показали, что при облучении происходит расслоение на две фазы различного состава – FeNi и Fe<sub>3</sub>Ni – и при дальнейшем облучении наблюдается упорядочение в этих фазах с образованием соединений [3, 4]. При таком расслоении прослеживается сильный рост электросопротивления, который может быть использован в качестве индикатора происходящего расслоения [5].

Целью данной работы является сравнение осуществления процесса расслоения твердого раствора при электронном и нейтронном облучении модельных сплавов, а также выяснение влияния различных типов стоков на эти процессы.

### МЕТОДИКА

Исследования были проведены на сплаве (Fe-34,7at.%Ni), содержащем около 0,01 ат.% углерода, закаленном от 1323 К (3). Из этого сплава пластической деформацией ( $\epsilon = 40\%$ ) был получен сплав с высокой концентрацией дислокационных стоков и вакансионных кластеров (Д) и путем отжига при 573 К после деформации – сплав, содержащий только дислокационные стоки (ДО).

Облучения 5 МэВ электронами и быстрыми нейтронами с энергией выше 0,1 МэВ были проведены на одних и тех же сплавах при одной и той же температуре (320 К) с целью сравнения воздействия различных типов облучения. Образцы отжигали изохронно со средней скоростью нагрева 1 К/мин.

В данной работе использовалось измерение остаточного электросопротивления, чувствительного к искажениям решетки не только около дефектов, но и к изменениям порядка во взаимном расположении атомов компонентов сплава в решетке. Остаточное электросопротивление измеряли стандартным четырехзондовым потенциометрическим методом с чувствительностью на уровне 0,01 нОм·см и точностью не хуже 0,05%.

### РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

При температуре облучения 320 К, выбранной в данной работе, вакансии в рассматриваемых сплавах подвижны и обеспечивают при своей миграции процессы расслоения [5]. При этом они аннигилируют на стоках, взаимодействуя друг с другом, образуют вакансионные кластеры (ВК) и участвуют в рекомбинации с межузельными атомами.

На рис. 1 приведены результаты облучения электронами. Видно, что деформация приводит к ослаблению процессов расслоения примерно в 5 раз для сплава Д и в 4 раза для сплава ДО по сравнению со сплавом З, в котором концентрация стоков минимальна. С увеличением дозы облучения эти коэффициенты практически не меняются, что говорит о неизменном влиянии дислокационных стоков. Влияние созданных при деформации вакансионных кластеров незначительно.

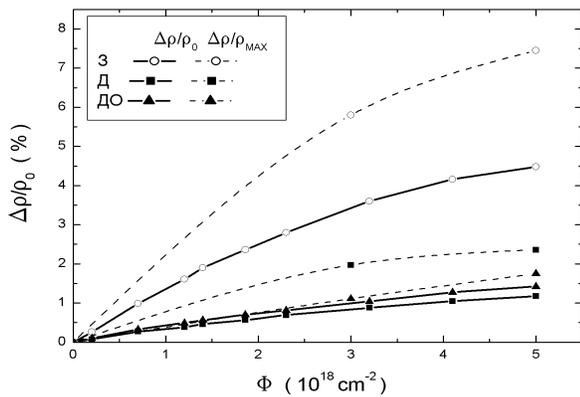


Рис. 1. Относительный прирост электросопротивления сплавов при облучении электронами при 320 К. Пунктиром показаны максимальные значения прироста, достигаемые при изохронном отжиге в районе 700 К

Можно оценить среднюю эффективность действия стоков в процессах расслоения. Для дислокаций эффективность  $k_d^2 = Z \rho_d$ , где  $Z$  – коэффициент, учитывающий различие для разных типов точечных дефектов (принимается равным 1);  $\rho_d$  – плотность дислокаций. Получаем  $k_d^2 = 5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . Для деформационных ВК эффективность  $k_v^2 = 4\pi r_v N_v$ , где  $r_v$  – радиус ВК, а  $N_v$  – концентрация ВК этого типа.

Таким образом, в сплаве Д, где существуют как дислокации, так и ВК, суммарная эффективность действия стоков равна  $k_d^2 + k_v^2$ , а для сплава ДО – только  $k_d^2$ . Таким образом, считая, что эффективность влияния стоков пропорциональна диффузионной длине свободного пробега вакансий и что скорость рекомбинации приблизительно одинакова, из соотношения эффективностей влияния стоков в этих

сплавах при облучении (см. выше) получаем эффективность ВК:  $k_v^2 = 6 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . Такая эффективность деформационных вакансионных кластеров соответствует концентрации ВК. Естественно, что в процессе облучения также образуются ВК. Но, например, в сплаве ДО образуется в несколько раз меньше ВК, чем в сплаве З [6].

На рис. 2 показаны результаты для нейтронного облучения. При низких дозах ослабление процессов расслоения составляет 4 для сплава Д и 4,5 для сплава ДО по сравнению со сплавом З. Видно, что влияние стоков разного типа при малых дозах нейтронного облучения аналогично электронному облучению. При высоких дозах нейтронного облучения эти коэффициенты уменьшаются в среднем до 1,5. Это указывает на то, что с увеличением дозы нейтронного облучения все большую роль начинают играть ВК, образующиеся в каскадах смещений, и различия между типами сплавов уменьшаются.

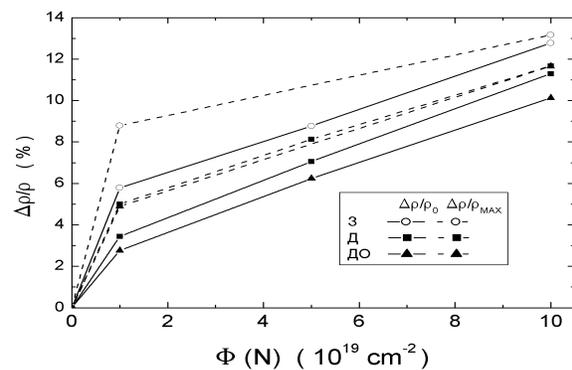


Рис. 2. Относительный прирост электросопротивления сплавов при облучении нейтронами при 320 К. Пунктиром показаны максимальные значения прироста, достигаемые при последующем изохронном отжиге в районе 700 К

Необходимо отметить, что образование ВК при электронном и нейтронном облучениях различно. При электронном облучении ВК образуются в результате миграции свободных вакансий, а при нейтронном облучении – в каскадах смещений, т.е. без миграции вакансий. Кроме этого, при накоплении ВК выше определенной дозы начинается перекрытие каскадов смещений, что еще более усложняет процесс радиационного повреждения. По данным работ [7, 8] с учетом замедления накопления вакансионных кластеров при перекрытии каскадов смещений можно оценить, что это перекрытие каскадов начинается для сплавов обоих типов при дозах выше  $(1...2) 10^{18} \text{ см}^{-2}$ . То есть все полученные нами данные лежат в области перекрытия каскадов смещений.

Можно оценить эффективность действия вакансионных кластеров в качестве стоков точечных дефектов в этом случае. Так, например, в аустенитной

стали Fe-Cr-Ni при облучении в таких же условиях при дозе  $1,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$  образуются ВК радиусом 2 нм и концентрацией  $2,7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$  [9]. Это соответствует эффективности стоков  $k_V^2 = 7 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$ . Исходя из этих оценок, можно сделать вывод, что в исследованном диапазоне доз нейтронного облучения влияние ВК существенно выше всех других типов стоков (дислокации, деформационные ВК). Вероятнее всего, отличия между разными типами сплавов, наблюдаемые при дозе  $1 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ , сформировались на более ранних этапах облучения, когда стоки разного типа еще оказывали свое влияние (как и при электронном облучении). В рассматриваемом диапазоне доз нейтронного облучения, когда наблюдается практически линейный рост электросопротивления с одинаковым наклоном, изменения дефектной структуры происходят практически одинаково. А линейность этих зависимостей указывает на то, что рост электросопротивления обусловлен по-прежнему свободной миграцией небольшой части образующихся вакансий на небольшие расстояния.

С целью выяснения различия в дефектной структуре, образующейся при облучении, в сплавах различного типа были проведены изохронные отжиги.

Так как при деформации образуются ВК, для выяснения особенностей дефектной структуры и структурно-фазовых изменений были проведены изохронные отжиги необлученных сплавов различного типа. Полученные результаты по изменениям сопротивления изображены на рис. 3, в нижней части графика – дифференцированные зависимости.

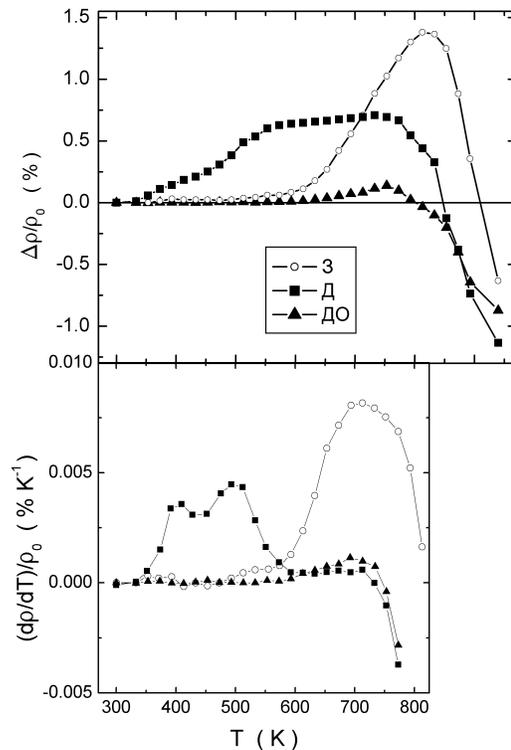


Рис. 3. Результаты изохронного отжига необлученных сталей. Нижний график – дифференцированные кривые

Как и предполагалось, диссоциация деформационных ВК приводит к росту электросопротивления начиная с 400 К в сплаве Д. Из дифференцированной кривой видно, что пик этого процесса наблюдается около 500 К. В сплаве ДО, где для устранения деформационных ВК был проведен отжиг при 573 К, как и следовало ожидать, ничего не происходит до температур 750...780 К, когда в соответствии с полученными нами в работе [10] данными начинается отжиг дислокационной структуры в этом сплаве. В закаленном сплаве 3 сопротивление не меняется до 680 К, когда усиление термической диффузии обуславливает процессы гомогенизации либо образование фазы  $\alpha\text{-Fe}$  и последующее ее растворение [4, 11].

На рис. 4 показаны результаты изохронного отжига для облученных электронами сплавов. В нижней части рисунка приведены дифференцированные зависимости.

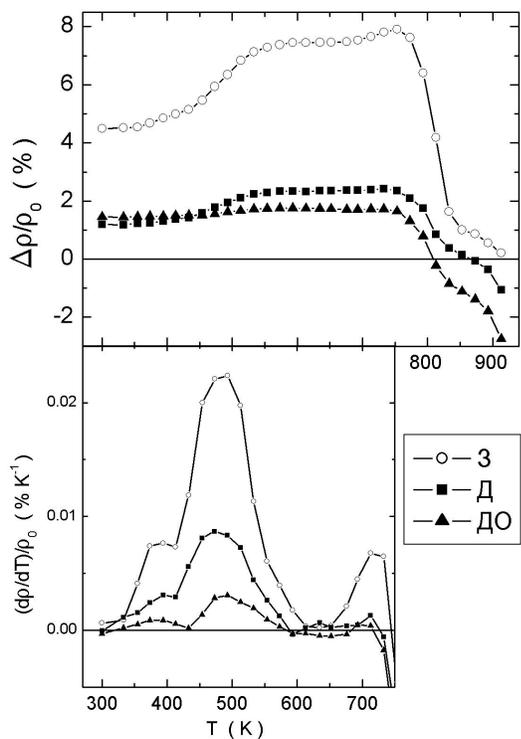


Рис. 4. Результаты изохронного отжига облученных электронами сталей. В нижней части рисунка – дифференцированные кривые

Из этого рисунка видно, что отжиг после облучения приводит к дальнейшему росту электросопротивления начиная с 350 К во всех трех сплавах с максимумом роста около 480 К, причем этот рост наиболее значителен в закаленном сплаве. В сплаве Д рост больше, чем в сплаве ДО. Эти особенности подтверждают, что в этом интервале температур происходит диссоциация вакансионных кластеров. В сплаве ДО происходит только диссоциация ВК, образовавшихся при облучении, а в сплаве Д к этому добавляется диссоциация ВК, созданных деформацией. Однако действие освобождающихся вакансий на расслоение твердого раствора в сплавах Д и ДО происходит на фоне высокой концентрации дислокационных стоков, что ограничивает путь миграции вакансий. Существенно больший эффект наблюдается в сплаве З, где концентрация дислокаций существенно ниже, и путь миграции вакансий существенно больше.

По величине прироста электросопротивления на этом этапе, сравнивая с данными, приведенными на рис. 3, можно оценить количество вакансий, освобождающихся при диссоциации в сплаве Д и ДО. Такое сравнение дает, что количество освобождающихся при диссоциации вакансий в облученном сплаве Д примерно в 4 раза больше, чем в облученном сплаве ДО, и при этом в 2 раза больше количества вакансий, освобождающихся при

диссоциации в необлученном сплаве Д. Из этого следует, что накопление вакансий при облучении в сплаве Д больше примерно в 2 раза, чем в сплаве ДО. Следовательно, деформационные ВК в процессе облучения работают как внутренние стоки, и на них происходит накопление генерированных облучением вакансий.

Из дифференцированных кривых на рис. 4 видно, что кроме основного пика в районе 480 К есть небольшой пик при 380 К, который присутствует также и при отжиге необлученного сплава Д. Таким образом, структура ВК не зависит от способа их создания и наличия стоков. Можно оценить энергии диссоциации ВК, соответствующие этим пикам. Она составляет 1,2 эВ для пика при 380 К и 1,5 эВ для пика при 480 К.

На облученном сплаве З, так же как и в необлученном, присутствует пик при 700 К, и его величина примерно та же. Следовательно, он не связан с облучением и определяется, как и говорилось раньше, термической диффузией и фазовой диаграммой.

Результаты изохронного отжига для сплавов, облученных нейтронами, приведены на рис. 5.

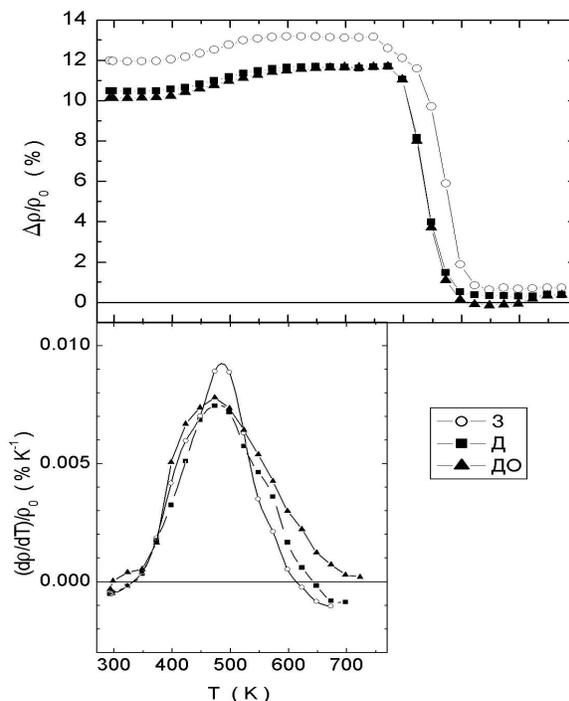


Рис. 5. Результаты изохронного отжига облученных нейтронами сталей. В нижней части рисунка – дифференцированные кривые

Видно, что характер отжига на всех сплавах практически одинаков и не зависит от исходного состояния. Проявляется один широкий пик при той же температуре, что и при электронном облучении, 480 К, которой соответствует энергия диссоциации ВК – 1,5 эВ. Несомненно, кратность ВК при нейтронном

облучении существенно больше (в 10...100 раз), чем при электронном облучении, однако энергия диссоциации та же самая. Таким образом, при создании ВК разными способами (деформационным, электронным бескаскадным и нейтронным каскадным облучением) энергия диссоциации ВК получается одинаковой.

На рис. 1 и 2 показаны дозовые зависимости максимальных значений прироста электросопротивления в процессе изохронных отжигов (пунктир). С увеличением дозы облучения электронами максимальное значение для всех трех сплавов увеличивается, причем величина  $\Delta\rho_{\text{МАХ}}-\Delta\rho_0$  также увеличивается, что указывает на то, что число сохранившихся при облучении вакансий в виде ВК увеличивается. Необходимо отметить, что ослабление суммарного (при облучении и при отжиге) эффекта в сплавах Д и ДО относительно З составляет 3,5 и 4,7 соответственно. Это отвечает механизму диссоциации при отжиге облученных электронами сплавов, описанному выше.

При нейтронном облучении в отличие от электронного величина  $\Delta\rho_{\text{МАХ}}-\Delta\rho_0$ , не увеличивается, а уменьшается. Это указывает на то, что перекрытие каскадов и более крупная величина ВК могут приводить к формированию вакансионных петель как при облучении, так и при отжиге, укорачивая путь свободно мигрирующих вакансий. Из сравнения с данными, изображенными на рис. 1, видно, что эффективное действие освобождающихся при диссоциации вакансий существенно меньше в облученных нейтронами сплавах.

## ВЫВОДЫ

1. Из полученных результатов следует, что в процессе электронного облучения дислокации и деформационные вакансионные кластеры работают как стоки для радиационных дефектов, причем эффективность дислокационных стоков больше.
2. При нейтронном облучении в области доз, когда наблюдается перекрытие каскадов смещений, влияние деформационных стоков меньше влияния стоков в виде образующихся в каскадах вакансионных кластеров.
3. При изохронных отжигках облученных и деформированных сплавов наблюдается две подстадии диссоциации вакансионных кластеров с энергиями диссоциации 1,2 и 1,5 эВ. Эти энергии не зависят от способа создания вакансионных кластеров (деформацией, бескаскадным облучением электронами или каскадным нейтронным облучением).
4. Эффективность свободно мигрирующих вакансий при диссоциации ВК с увеличением дозы при электронном облучении увеличивается, а при

нейтронном – уменьшается, вероятно, в результате образования вакансионных петель.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проекты № 04-02-16053 и № 04-02-96089-Урал)

## ЛИТЕРАТУРА

1. С. Dimitrov, O. Dimitrov. Composition dependence of defect properties in electron irradiated Fe-Cr-Ni solid solutions // *J.Phys. F: Metal Phys.* 1984, v. 14, p. 793–811.
2. S. Mantl, B.D. Sharma, G. Antesberger. Positron annihilation studies on electron- and alpha-particle – irradiated 75Ni13Cr12Fe alloys // *Phil. Mag. A.* 1979, v. 39, N 4, p. 389–397.
3. С.С. Алиев, П.Л. Грузин, А.З. Меньшиков, Б.М. Могутнов, Ю.Л. Родионов, Н.Г. Шапошников. Низкотемпературные фазовые превращения в железоникелевых сплавах при облучении электронами // *Металлофизика.* 1985, т. 7, №5, с. 80–86.
4. Chamberod, J. Laugier and J.M. Penisson. Electron irradiation effects on iron – nickel invar alloys // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials.* 1979, v. 10, p. 139–144.
5. V.L. Arbuzov, A.P. Druzhkov, S.E. Danilov. Effect of phosphorous on defects accumulation and annealing in electron-irradiated Fe-Ni austenitic alloys // *J. Nucl. Mater.* 2001, v. 295, p. 273–280.
6. A.P. Druzhkov, V.L. Arbuzov, D.A. Perminov. Accumulation and Annealing of Radiation Defects in Deformed Austenitic Alloys // *The Physics of Metals and Metallography.* 2002, v. 94, N 1, p. 68–72.
7. В.А. Ивченко, А.В. Козлов, Е.В. Попова. Атомная структура радиационных кластеров в ГЦК-материалах при нейтронном облучении // *Труды XIV Международного совещания «Радиационная физика твердого тела», г. Севастополь, 2004, с. 44.*
8. B.N. Goshchitskii, V.V. Sagaradze, V.L. Arbuzov, S.S. Lapin, V.D. Parkhomenko, A.V. Kozlov. The formation of clusters in displacement cascades during low-temperature (77R) neutron irradiation and their effect on the properties of stainless steels // *Proceedings of Topical Symposium VII – “Innovative Materials in Advanced Energy Technologies” of 9<sup>th</sup> Cimtec World Forum on New Materials.* Advances in Science and Technology, 24, TECHNА, Faenza, Italy, 1999, p. 499–506.
9. D. Huguenin, P. Moser and F. Vanoni Vacancy clustering in electron – irradiated FeNiCr austenitic alloys? // *J. Nucl. Mater.* 1989, v. 169, p. 73–78.
10. В.Л. Арбузов, С.Е. Данилов, А.П. Дружков, Д.А. Перминов. Влияние пластической деформации и радиационных дефектов на структурно-фазовые превращения в аустенитных

сплавах Н36 и Н36Т2 // *Физика металлов и металловедение*. 2004, т. 98, №5, с. 64–69.

11. О. Кубашевски. *Диаграммы состояния двойных систем на основе железа*: Справочник / Пер. с англ. М.: «Металлургия», 1985, 183 с.

## **ВПЛИВ СТОКІВ РІЗНОГО ТИПУ НА РАДІАЦІЙНУ УШКОДЖУВАНІСТЬ АУСТЕНІТНИХ Fe-Ni-СПЛАВІВ ПРИ ЕЛЕКТРОННОМУ ТА НЕЙТРОННОМУ ОПРОМІНЕННІ**

*С.Є. Данілов, В.Л. Арбузов, Б.М. Гошицький, О.Є. Карькін, В.О. Павлов, В.Д. Пархоменко*

Досліджено розшарування твердого розчину при безкаскадному електронному та каскадному нейтронному опроміненні в Fe-Ni-сплаві з різними типами стоків для точкових дефектів у вигляді дислокацій та деформаційних вакансійних кластерів. Показано, що у процесі електронного опромінення ефективність дислокаційних стоків більше, ніж ефективність деформаційних вакансійних кластерів. При нейтронному опроміненні в межах доз, коли спостерігається перекриття каскадів зміщень, ефективність дії радіаційних вакансійних кластерів суттєво більша, ніж ефективність дії деформаційних стоків. При ізохронних відпалах спостерігаються дві підстадії дисоціації вакансійних кластерів з енергіями дисоціації 1,2 та 1,5 еВ, які не залежать від способу створення вакансійних кластерів: деформацією, безкаскадним опроміненням електронами або каскадним нейтронним опроміненням.

## **EFFECT OF DIFFERENT TYPES OF SINKS ON RADIATION DAMAGE OF AUSTENITIC Fe-Ni ALLOYS UNDER ELECTRON AND NEUTRON IRRADIATION**

*S.E. Danilov, V.L. Arbutov, B.N. Goshchitskii, A.E. Karkin, V.A. Pavlov, V.D. Parkhomenko*

The study deals with the decomposition of the solid solution during non-cascade electron and cascade neutron irradiation in the Fe-Ni alloy containing different types of sinks for point defects in the form of dislocations and deformation vacancy clusters. It was shown that dislocation sinks were more efficient than deformation vacancy clusters during electron irradiation. In the case of neutron irradiation at doses when displacement cascades overlapped, radiation vacancy clusters were much more efficient than deformation sinks. In the case of isochronal annealing, the dissociation of vacancy clusters had two substages with dissociation energies of 1.2 and 1.5 eV. They were independent of the method used for creation of vacancy clusters: deformation, non-cascade electron or cascade neutron irradiation.