

РАДИАЦИОННОЕ УПРОЧНЕНИЕ ОБЛУЧЕННЫХ ЭЛЕКТРОНАМИ СПЛАВОВ Н36 И Н36Т2

*С.Е. Данилов, В.Л. Арбузов, А.П. Дружков, Д.А. Перминов, В.В. Сагарадзе,
К.В. Шальнов*

Институт физики металлов УрО РАН, г. Екатеринбург, Россия

Исследованы механические свойства сплавов Н36 и Н36Т2 после электронного облучения при 423К. Рассмотрена связь между радиационным упрочнением, радиационными дефектами и радиационно-индуцированными структурно-фазовыми превращениями.

ВВЕДЕНИЕ

Одним из основных критериев применимости реакторных конструкционных материалов являются их механические свойства, которые могут изменяться при облучении высокоэнергетическими частицами. При облучении, как правило, наблюдается радиационное упрочнение материалов. На изменение предела текучести σ_{02} влияет целый ряд факторов: вид облучения, доза, температура облучения. Радиационное упрочнение металлов может быть обусловлено кластерами радиационных дефектов, вакансионными порами, дислокационными петлями и т.д. [1,2,3]. В сплавах и сталях изменение механических свойств может быть вызвано дополнительными причинами, а именно структурно-фазовыми изменениями. Так, например, в дисперсионно-твердеющих аустенитных сталях при нейтронном облучении наблюдается радиационно-индуцированное образование упрочняющих выделений, эволюция которых связана с каскадами смещений [4].

В данной работе делается попытка выяснения природы радиационного упрочнения сплавов Н36 и Н36Т2 при электронном облучении, когда каскады смещений не образуются. В этом случае упрочнение может быть обусловлено только лишь радиационно-индуцированными структурно-фазовыми превращениями или радиационными дефектами. Эти сплавы представляют собой очень удобные модельные системы для выявления роли радиационно-индуцированных явлений, в которых наряду с накоплением радиационных дефектов достаточно ярко проявляются радиационно-индуцированные структурно-фазовые превращения: расслоение твердого раствора и образование выделений интерметаллидной фазы Ni_3Ti . Кроме того, эти сплавы являются инварными, и радиационная модификация их свойств представляет самостоятельный интерес.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКА

Сплавы Fe + 36.5 мас.%Ni (Н36) и Fe +36.5 мас.% Ni +2.5 мас.% Ti (Н36Т2) были выплавлены из исходных материалов высокой чистоты. После прокатки, резки или волочения и далее электрополировки проводили гомогенизирующий отжиг образ-

цов сплавов в вакууме 10^{-5} Па. Образцы сплава Н36Т2 закачивали от 1473 или от 1273 К в воду со скоростью ~ 500 К/с, а образцы сплава Н36 быстро охлаждали от 1373 К (50...100 К/с). Рентгеноструктурный анализ показал наличие одной аустенитной фазы в обоих сплавах. Согласно данным по растворимости, закаленный сплав Н36Т2 является пересыщенным твердым раствором по отношению к титану. В сплавах, закаленных от 1273 К, уже в исходном состоянии присутствовали очень мелкодисперсные выделения второй фазы. Исследования механических свойств и измерения электросопротивления проводились на проволоках диаметром 0,4 мм (Н36) или 0,21 мм (Н36Т2). СТМ-исследования и исследования аннигиляции позитронов проводились на пластинках толщиной 0,2...0,3 мм.

Сплавы облучались электронами с энергией 5 МэВ при 423 К. В этих условиях, как было установлено ранее, структурно-фазовые превращения проявляются достаточно хорошо.

Механические испытания проводились при комнатной температуре со скоростью деформации $1,5 \cdot 10^{-3} \text{ с}^{-1}$ на машине FP-100. Предел текучести, прочности и удлинение рассчитывались по диаграмме растяжения с учетом геометрических размеров образца.

Измерения параметров аннигиляции позитронов проводили при комнатной температуре на установке угловой корреляции аннигиляционного излучения. В качестве характеристики сплава использовался S-параметр, чувствительный к дефектам вакансионного типа.

Для измерения остаточного электросопротивления применяли стандартный четырехконтактный метод с погрешностью измерения 0.02%.

СТМ-исследования проводились на сканирующем туннельном микроскопе марки STM-U1. Погрешность в измерении размеров выделений составляла 15...20%. Для исследования на СТМ образцы обрабатывались в режиме электрохимического травления на глубину нескольких микрометров для удаления поверхностных загрязнений и выявления микроструктуры. Получающийся после травления рельеф поверхности образца отражает пространствен-

ные характеристики имеющихся в материале выделений [5].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 показаны результаты измерения механических свойств сплава НЗ6 в зависимости от дозы облучения. Данные для исходного состояния (до облучения) совпадают с известными литературными данными для такого сплава [6]. Как видно из рисунка, наблюдается радиационное упрочнение этого сплава. Скорость увеличения предела текучести с увеличением дозы уменьшается. Аналогичное поведение наблюдается и для предела прочности. Пластичность этого сплава сначала падает, а потом практически не меняется. Такое поведение механических свойств качественно совпадает с поведением механических свойств аустенитной нержавеющей стали при низкотемпературном (80 К) нейтронном облучении, которое было объяснено появлением вакансионных кластеров (ВК) в каскадах смещений [4].

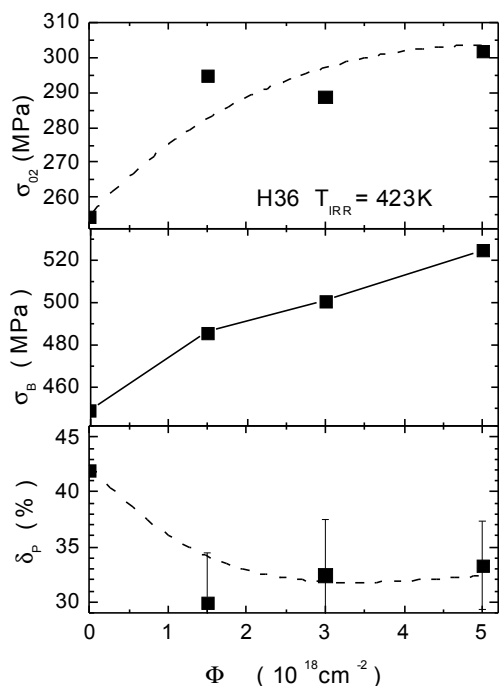


Рис. 1. Изменение предела текучести σ_{02} , предела прочности σ_B , и относительного равномерного удлинения δ_p сплава НЗ6 в зависимости от дозы облучения

На рис. 2 приведены данные по изменению механических свойств для сплава НЗ6Т2, закаленного от двух разных температур. Исходные данные согласуются с литературными данными для этих сплавов, содержащих титан [6].

Увеличение предела текучести и предела прочности и уменьшение равномерного удлинения в сплаве НЗ6Т2 в исходном состоянии по сравнению со сплавом НЗ6 связано с твердорастворным упрочнением из-за наличия Тi в твердом растворе. Однако

в сплаве, закаленном от 1273 К, предел текучести существенно выше, чем для сплава, закаленного от 1473 К. Это влияние температуры закалки на предел текучести свидетельствует об образовании мелкодисперсных предвыделений интерметаллидной γ' -фазы при закалке, так как растворимость титана с повышением температуры может только возрастать.

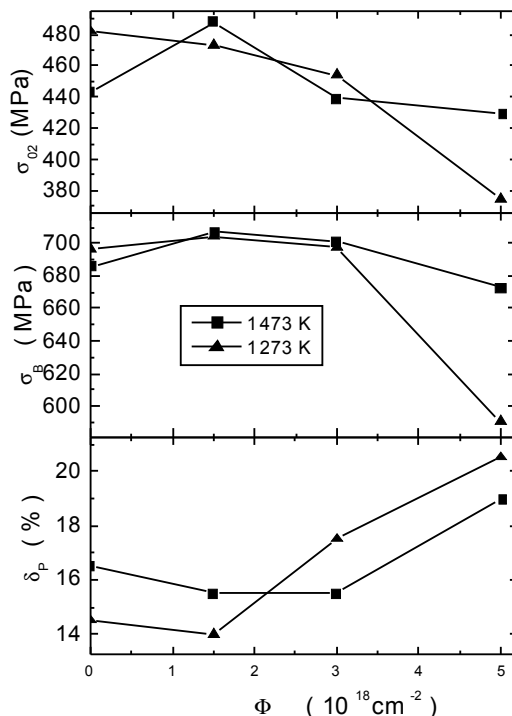


Рис. 2. Изменение предела текучести σ_{02} , предела прочности σ_B и относительного равномерного удлинения δ_p сплава НЗ6Т2, закаленного от разных температур, в зависимости от дозы облучения

В отличие от сплава НЗ6 в процессе облучения поведение механических свойств в этом сплаве резко отличается. При увеличении дозы облучения для сплава, закаленного от 1473 К, вначале наблюдается рост предела текучести, как и в НЗ6, однако после дозы $1,5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ прослеживается уменьшение предела текучести. Предел прочности изменяется аналогично, но изменения слабо выражены. Пластичность вначале практически не меняется, а после набора дозы $3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ увеличивается. В сплаве, закаленном от 1273 К, не наблюдается увеличение предела текучести и предела прочности, а отмечается более сильный спад. Поведение равномерного удлинения аналогично сплаву, закаленному от 1473 К, но увеличение пластичности начинается при более низких дозах.

Таким образом, создается впечатление, что поведение механических свойств сплавов, закаленных от разных температур, одинаково, но со смещением по дозе облучения. Это может быть связано с тем, что имеющиеся в исходном состоянии сплава, закаленного от 1273 К, мелкодисперсные предвыделения оказывают влияние не только в исходном состоянии, но и в процессе облучения.

На рис. 3 приведены данные, полученные разными методами по изменениям структурно-фазового состояния при облучении. Известно, что остаточное электросопротивление в этих сплавах чувствительно как к расслоению твердого раствора (Н36), так и к образованию выделений второй фазы (Н36Т2) [7]. Видно, что эти процессы при облучении не достигают насыщения.

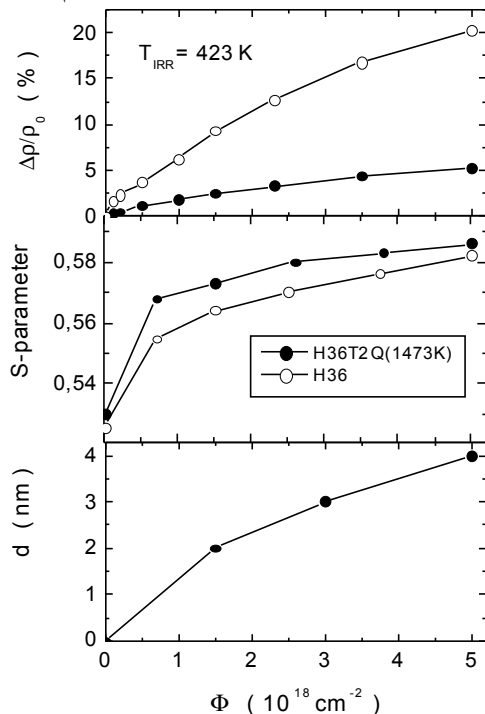


Рис. 3. Зависимости изменения относительного электросопротивления, S -параметра и размера выделений γ' -фазы в сплавах Н36 и Н36Т2 от дозы облучения

Для сплава Н36Т2 это соответствует непрерывному росту размеров выделений интерметаллической фазы (см. нижний график рис. 3). Это говорит о том, что при исследованных дозах в сплаве Н36Т2 при облучении происходит распад твердого раствора и образование интерметаллидных выделений γ' -фазы. При этом, по данным СТМ, плотность выделений составляет примерно $1,5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Таким образом, в процессе нашего облучения происходит непрерывный рост объемной доли γ' -фазы.

На рис. 3 также изображены данные по дозовой зависимости S -параметра. Известно, что значения S -параметра зависят от типа вакансионных дефектов, захватывающих позитроны, и их концентрации. Когда концентрация дефектов становится настолько большой, что каждый позитрон захватывается в ловушку и аннигилирует в захваченном состоянии, дальнейшее повышение концентрации соответствующих атомных дефектов уже не может привести к изменению S -параметра.

При более низких значениях концентрации дефектов, в случае одного типа дефектов S -параметр связан с концентрацией дефектов C соотношением:

$$S = \frac{\lambda_f S_f + \mu C S_{Cl}}{\lambda_f + \mu C}, \quad (1)$$

где μ – удельная скорость захвата позитронов дефектами; λ_f – скорость аннигиляции позитронов из свободного состояния; S_f и S_{Cl} – параметры, характеризующие аннигиляцию позитронов из свободного и захваченного вакансионными дефектами состояний соответственно. S_f может быть получено в необлученном состоянии.

В работе [8] было показано, что при температуре облучения 423 К в этих сплавах вакансии подвижны и образуются вакансионные кластеры (ВК). Было определено значение S_{Cl} для ВК в исследуемых сплавах. Также было показано, что накопление ВК в закаленном и в предварительно состаренном сплаве Н36Т2 при облучении происходит одинаково, т.е. и в нашем случае для сплавов, закаленных от разных температур, процесс накопления одинаков и более интенсивен, чем в Н36. Это связано со взаимодействием вакансий и атомов титана.

Обсудим возможные механизмы радиационного упрочнения в сплаве Н36. Как было показано выше, в этом сплаве при облучении идут два процесса: расслоение твердого раствора и накопление ВК.

Сравнивая рис. 1 и 3, можно предположить связь между радиационным упрочнением и наведенными электронным облучением дефектами. Известно, что прирост предела текучести после облучения можно записать в таком виде [2,3]:

$$\Delta\sigma_{02} = \frac{2F}{b} \sqrt{d_i c_i}, \quad (2)$$

где F – сила, необходимая для преодоления дислокацией препятствия; b – вектор Бюргерса; c_i и d_i – соответственно плотность и размер препятствий. Естественно, что в этом выражении подразумеваются все препятствия одного размера. В противном случае необходимо учитывать распределение препятствий по размерам.

В нашем случае в отличие от нейтронного облучения, по-видимому, распределение препятствий по размерам достаточно узкое. Возможный набор радиационных дефектов после облучения состоит из ВК. В этом случае можем воспользоваться выражением (2), считая $d_i \approx \text{const}$. Из экспериментальных данных (см. рис. 3), согласно выражению (1), можно определить величины значений $\mu C / \lambda_f$, которые пропорциональны концентрации ВК для разных доз облучения.

На рис. 4 построена зависимость предела текучести облученного сплава Н36 от корня квадратного из концентрации ВК.

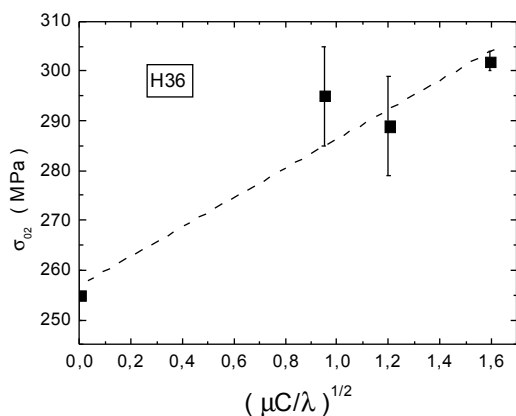


Рис. 4. Изменение предела текучести сплава НЗ6 при облучении в зависимости от концентрации вакансионных кластеров в степени $1/2$

Как и следовало ожидать, согласно выражению (2) наблюдается линейная связь между этими величинами для образцов, облученных при 423 К. То есть основную роль в радиационном упрочнении сплава НЗ6 играют ВК. Разброс точек может быть связан с нестабильностью температуры при облучении большого количества образцов для механических испытаний.

Процесс расслоения твердого раствора, по-видимому, не оказывает существенного влияния на радиационное упрочнение. Для определения его роли нужны дополнительные исследования.

Обсудим теперь механические свойства сплава НЗ6Т2 при облучении. В этом сплаве есть три фактора, определяющих изменения механических свойств.

1. Твердорастворное упрочнение.
2. Радиационно-индуцированное образование выделений и их эволюция.
3. Накопление радиационных дефектов – ВК.

В одном из теоретических подходов считается, что предел текучести равен сумме вкладов от каждого из упрочняющих механизмов. Если исходить из этого, то определенно можно сказать, с учетом вышеизложенного, что последние два фактора повышают предел текучести. Но при этом с ростом дозы облучения в наших экспериментах наблюдается понижение предела текучести. Наиболее разумным объяснением будет уменьшение твердорастворного упрочнения при облучении вследствие понижения концентрации титана в твердом растворе. Однако считается, что примеси замещения (в нашем случае Ti) являются относительно слабыми барьерами для движения дислокаций [3], и маловероятно, что такое понижение может перекрыть вклады от других факторов упрочнения. Поэтому можно предположить, что присутствующие в закаленном состоянии предвыделения (с разной объемной долей для разных температур закалки) эволюционируют в процессе облучения, таким образом, что вклад от них в предел текучести также уменьшается.

Существует другой подход к описанию радиационного упрочнения [9], в котором предел текучести

равен корню квадратному из суммы квадратов вкладов различных барьеров (различных механизмов) в упрочнение. Такой подход меняет соотношение вкладов, но принципиального изменения в наше предположение о причинах падения предела текучести в сплаве НЗ6Т2 он не вносит.

Таким образом, в заключение можно сказать:

– проведенный анализ полученных результатов позволяет говорить о том, что в сплаве НЗ6 главную роль в радиационном упрочнении играют вакансионные кластеры;

– в сплаве НЗ6Т2, наряду с вакансионными кластерами, большую роль играет эволюция выделений второй фазы и связанное с этим уменьшение твердорастворного упрочнения.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 04-02-16053 и проект № 04-02-96089) и Программы поддержки ведущих научных школ (проект № НШ – 639.2003.2).

ЛИТЕРАТУРА

1. С.Н. Вотинов, В.И. Прохоров, З.Е. Островский. *Облученные нержавеющей стали*. М.: «Наука», 1987.
2. В.Ф. Зеленский, И.М. Неклюдов, Л.С. Ожигов и др. *Некоторые проблемы физики радиационных повреждений материалов*. Киев: «Наукова думка», 1979.
3. Ш.Ш. Ибрагимов, В.В. Кирсанов. Радиационное упрочнение металлов // *Радиационные дефекты в металлических кристаллах*. Алма-Ата, «Наука», КазССР, 1978, с. 64–77.
4. В.В. Сагарадзе, Б.Н. Гощицкий, В.Л. Арбузов, Ю.Н. Зуев. Дисперсионно-твердеющая аустенитная сталь для реакторов на быстрых нейтронах // *Металловедение и термическая обработка металлов*. 2003, №8, с. 13–20.
5. В.Л. Арбузов, К.В. Шальнов, С.Е. Данилов, А.Э. Давлетшин, Н.Л. Печеркина, В.В. Сагарадзе. Наблюдение выделений в сплаве железо-никель-титан с помощью сканирующей туннельной микроскопии // *Письма в ЖТФ*. 1999, т. 25, в.4, с. 24–27.
6. F. Duffaut, R. Cozar. Property adjustments in controlled expansion and elasticity alloys // *The Iron-Nickel Alloys*, Lavoisier publishing, Intercept Ltd. 2003, p. 109–139
7. С.Е. Данилов, В.Л. Арбузов, А.П. Дружков, К.В. Шальнов. Отжиг радиационных дефектов в сплавах НЗ6, легированных фосфором и титаном // *ВАНТ. Сер. ФПП и ПМ.*, 2000, №4, с. 3–6.
8. А.П. Дружков, В.Л. Арбузов, Д.А. Перминов, К.В. Шальнов. Влияние интерметаллидных выделений на накопление радиационных дефектов в аустенитных Fe-Ni-Ti-сплавах // *ФММ*. 2003, т. 96, №5, с. 74–78.
9. Ю.В. Конобеев, В.А. Печенкин. Разработка теории радиационного упрочнения металлов и сплавов на основе энергетического условия пластичности // *Труды XIII Международного совещания «Радиационная*

физика твердого тела. М., 2003 /Под ред. Г.Г. Бондаренко, с. 11–20.

РАДІАЦІЙНЕ ЗМІЦНЕННЯ ОПРОМІНЕНИХ ЕЛЕКТРОНАМИ СПЛАВІВ H36 ТА H36T2

С.Е. Данилов, В.Л. Арбузов, А.П. Дружков, Д.А. Перминов, В.В. Сагарадзе, К.В. Шальнов

Досліджені механічні властивості сплавів H36 та H36T2 після електронного опромінення при 423 К. Розглянуто зв'язок між радіаційним зміцненням, радіаційними дефектами та радіаційно-індукованими структурно-фазовими перетвореннями.

RADIATION HARDENING OF ELECTRON IRRADIATED ALLOYS H36 AND H36T2

S.E. Danilov, V.L. Arbuzov, A.P. Druzkov, D.A. Perminov, V.V. Sagaradze, K.V. Shalnov

Mechanical properties of alloys H36 and H36T2 are investigated after electron irradiation at 423 K. Relation between radiation hardening, radiation defects and radiation -induced structure-phase transformation are considered.