

ВЛИЯНИЕ МИКРОСТРУКТУРЫ НА РАДИАЦИОННО-ИНДУЦИРОВАННЫЕ ПРОЦЕССЫ В СПЛАВЕ Fe-34,7 ат.% Ni

С.Е. Данилов, В.Л. Арбузов

Институт физики металлов УрО РАН, Екатеринбург, Россия

E-mail: danilov@imp.uran.ru

Методом остаточного электросопротивления исследованы процессы радиационно-индуцированного расслоения твердого раствора в сплаве Fe-34,7 ат.%Ni при различных температурах и в различных исходных состояниях, при облучении электронами. Сравниваются сплавы в состояниях: закаленном от 1373 К, состаренном при 780 К, деформированном на 40 % и деформированном, но отожженном при 573 К для удаления вакансионных кластеров. Получены дозовые и температурные зависимости. Проведены изохронные отжиги. Показано, что концентрационные неоднородности матрицы в состаренном сплаве не являются заметными стоками для точечных дефектов. Деформация приводит к существенному подавлению процессов радиационно-индуцированного расслоения твердого раствора, в основном, за счет дислокационной структуры. Влияние вакансионных кластеров деформационного происхождения нивелируется выше 400 К.

ВВЕДЕНИЕ

В сталях и сплавах под действием облучения развиваются различные радиационно-индуцированные структурно-фазовые превращения (СФП), которые собственно и определяют изменения свойств материалов в процессе облучения и их радиационную повреждаемость. В сплавах с нестехиометрическим составом под облучением обычно происходят процессы расслоения на области разного сорта, имеющие состав, близкий к стехиометрии для той или иной фазы. При этом состояние кристаллической решетки приближается к термодинамически равновесному. Эти процессы непосредственно связаны со свободной миграцией точечных дефектов, генерируемых облучением, которая ускоряет диффузию и позволяет получить такие состояния, которые зачастую недостижимы при обычных термических обработках. Влияние мигрирующих точечных дефектов определяется не только их концентрацией, зависящей от температуры и интенсивности облучения, но и от диффузионной длины их миграции, определяющей эффективность действия облучения в осуществлении СФП. Эта длина зависит от типа и концентрации стоков точечных дефектов, которыми могут служить дислокации, вакансионные кластеры, межфазные границы.

В реакторном материаловедении пластическая деформация является одним из способов предварительной обработки конструкционных сталей для снижения их вакансионного распухания при облучении [1]. При пластической деформации кроме дислокационной структуры, так же как и при облучении, образуются точечные дефекты. При миграции этих неравновесных дефектов в сплавах могут происходить СФП и реакции между дефектами, приводящие к образованию вакансионных кластеров (ВК). Дислокации и ВК являются стоками для точечных дефектов и могут существенно уменьшить длину диффузионного пробега точечных дефектов и соответственно изменить эффективность их влияния на СФП.

В широко использующихся аустенитных хромоникелевых сталях при облучении может происходить расслоение твердого раствора [2,3]. Эксперименты на модельных железоникелевых сплавах показали, что при облучении происходит расслоение на две фазы различного состава: FeNi и Fe₃Ni, и при дальнейшем облучении наблюдается упорядочение в этих фазах с образованием соединений [4,5]. В работе [6] нами было показано, что в сплавах типа Н36 вакансии подвижны при комнатных температурах и при своей миграции образуют вакансионные кластеры (ВК). В работе [7] при сравнении электронного и нейтронного облучений нами было показано, что ВК являются эффективными стоками для точечных дефектов. Происходящее при этом расслоение твердого раствора приводит к сильному росту электросопротивления, который может быть использован в качестве индикатора происходящего расслоения. В данной работе такое расслоение было выбрано в качестве меры радиационной повреждаемости в инварном сплаве Fe-Ni с целью выяснения роли микроструктуры в качестве стоков точечных дефектов. Целью данной работы было изучение влияния различной исходной микроструктуры на радиационно-индуцированное расслоение твердого раствора в сплавах Fe-Ni.

МЕТОДИКА

Исследования были проведены на сплаве Fe-34,7 ат. % Ni в состоянии, закаленном от 1373 К (З). Из этого сплава пластической деформацией при комнатной температуре ($\epsilon = 40\%$) 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). Кроме того, путем старения закаленного сплава при 783 К был получен сплав, содержащий области с высокой концентрацией железа (С), согласно равновесной фазовой диаграмме [8].

Облучения 5 МэВ электронами этих четырех типов сплавов при различных температурах и изохронные отжиги со средней скоростью нагрева 1К/мин были проведены в атмосфере чистого проточного гелия. В качестве метода исследования было использовано измерение остаточного электросопротивления, чувствительного к процессам атомного перераспределения в твердом растворе [9]. Остаточное электросопротивление измеряли стандартным четырехзондовым потенциометрическим методом с чувствительностью на уровне 0.01 нОм·см и точностью не хуже 0.05%.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Процессы расслоения, происходящие при свободной миграции точечных дефектов, непосредственно связаны с количеством скачков, совершаемых этими дефектами. Таким образом, процесс расслоения, происходящий в каждом конкретном случае, при миграции точечных дефектов определяется не только их концентрацией, но и расстоянием, на которое эти дефекты мигрируют до тех пор, пока они не попадут на стоки или не образуют неподвижные скопления.

Повышение электросопротивления инварного сплава Fe-34,7ат.%Ni в результате расслоения твердого раствора имеет величину на 2 порядка большую, чем вклад от точечных дефектов, которые могли бы накопиться в условиях облучения. Поэтому для того, чтобы проследить за всеми этапами процессов расслоения как при облучении, так и при создании микроструктуры того или иного типа, в качестве начального сопротивления выбрано значение, соответствующее закаленному состоянию для всех типов сплавов. Для сплавов типа Д и ДО это значение было получено после облучений и отжигов путем закалки, идентичной первоначальной.

На рис. 1 изображены результаты изохронного отжига всех четырех типов сплавов в необлученном состоянии.

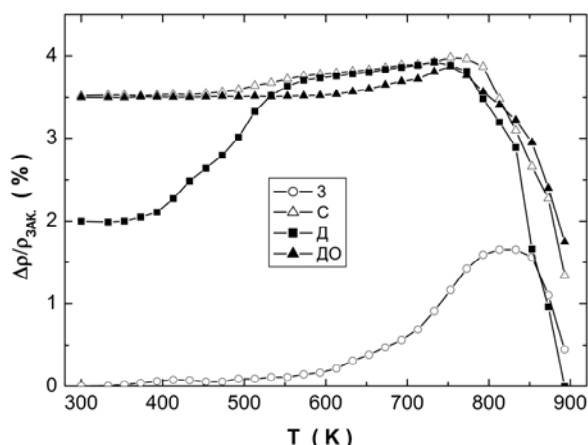


Рис. 1. Изохронный отжиг необлученных сплавов

В деформированном сплаве Д в интервале 350...600 К происходит диссоциация вакансионных кластеров, образованных деформацией, приводящая к появлению мигрирующих вакансий, обеспечивающих тем самым процесс расслоения. Это расслоение отсутствует в сплаве ДО, поскольку в про-

цессе приготовления он испытал отжиг при 573 К, и в нем вакансионные кластеры деформационного происхождения отсутствуют. Выше 570 К зависимости для сплавов Д и ДО совпадают. В закаленном (полностью гомогенном) сплаве 3 в районе выше 600 К происходит термически активированный распад твердого раствора с образованием фазы с высокой концентрацией Fe. Согласно этим данным и была выбрана температура приготовления сплава С. Выше 800 К происходит термически активированная гомогенизация твердого раствора на всех сплавах и отжиг дислокаций на деформированных сплавах.

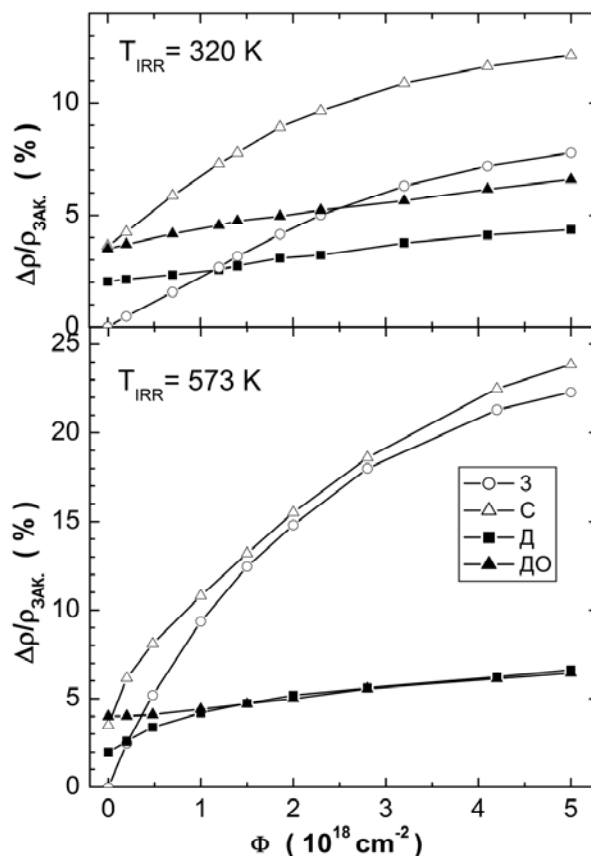


Рис. 2. Относительный прирост электросопротивления сплавов при электронном облучении при 320 и 573 К

На рис. 2 изображены дозовые зависимости при облучении всех четырех типов сплавов при 320 и 573 К. Видно, что рост сопротивления под облучением при 320 К на деформированных сплавах существенно подавлен по сравнению со сплавом 3 за счет уменьшения длины пробега точечных дефектов до стоков и происходит практически линейно с увеличением дозы. Следовательно, дислокационная структура, образованная деформацией, представляет собой более сильные стоки, чем вакансионные кластеры как образованные облучением, так и образованные деформацией. Зависимость для сплава ДО, однако, показывает более быстрый рост по сравнению со сплавом Д, и разница составляет при флюенсе $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ около 1%, это свидетельствует о том, что ВК деформационного происхождения также

играют роль в уменьшении длины пробега свободно мигрирующих дефектов. Оценки дают концентрацию деформационных ВК на уровне около $7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Концентрация дислокаций около $7 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$. Рост сопротивления на сплаве З и С более быстрый, но имеет тенденцию к замедлению. Это связано с накоплением ВК в процессе облучения, приводящем к уменьшению длины диффузионного пробега. Разница между зависимостями для сплавов С и З остается примерно той же во всем диапазоне флюенсов электронов, что и в исходном состоянии.

Облучение при 573 К приводит к более существенному росту электросопротивления. При облучении до флюенса $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ рост сопротивления на сплавах З и С достигает более 20 %, что указывает на отсутствие существенных стоков для точечных дефектов в состаренном сплаве С, так же как и в закаленном сплаве З. При этом зависимости для этих сплавов сближаются и начиная с флюенса $(1 \dots 2) \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ становятся примерно одинаковыми, что связано со сближением их структурного состояния. При этом графики для сплавов Д и ДО после флюенса 10^{18} см^{-2} сливаются вместе, поскольку температура облучения находится выше тех температур, при которых происходит диссоциация деформационных вакансионных кластеров (см. рис.1), и эта диссоциация на сплаве Д в отличие от зависимостей для облучения при 320 К происходит в процессе облучения. Из сравнения зависимостей можно заключить, что деформация приводит к ослаблению процессов расслоения под облучением примерно в 4 раза. Таким образом, из сравнения зависимостей при этих двух температурах для сплавов Д и ДО видно, что дислокации как при низких, так и при высоких температурах являются эффективными стоками, и длины миграции дефектов определяются именно ими. Это подтверждается тем, что на сплаве ДО при 320 К и на сплавах Д и ДО при 573 К зависимости приходят к примерно одному конечному значению при флюенсе $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$.

Для сравнения характера радиационно-индуцированного расслоения при разных температурах облучения использовали метод горизонтального смещения для совмещения зависимостей изменения электросопротивления от флюенса электронов. На рис. 3 показан результат совмещения путем горизонтального смещения дозовых зависимостей для сплава типа З. При этом вводится коэффициент эффективности $K_{эф}$, который показывает, насколько медленнее процесс радиационно-индуцированного расслоения происходит при данной температуре облучения по сравнению с расслоением при 573 К.

Видно, что наблюдается хорошее совмещение дозовых зависимостей на одной кривой. На вставке приведена температурная зависимость коэффициента эффективности электронного облучения. При повышении температуры эффективность сильно возрастает из-за увеличения длины пробега вакансий, что связано с уменьшением роли ВК в качестве стоков, вследствие их диссоциации и модификации, т.е. перехода от трехмерных ВК к двумерным вакансионным петлям [6]. Можно сказать, что при темпе-

ратурах до 350 К длина миграции вакансий примерно в 10 раз меньше, чем в районе 500 К.

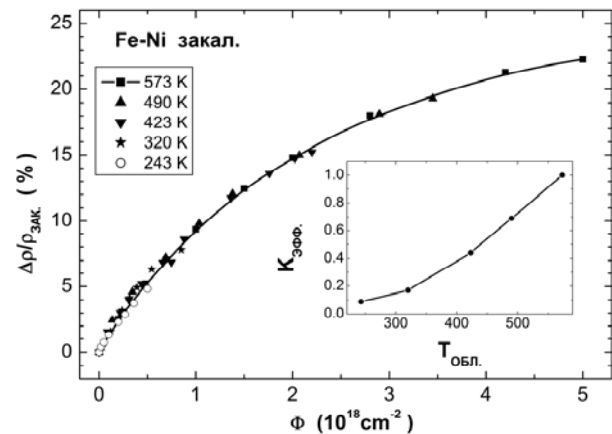


Рис. 3. Результаты совмещения дозовых зависимостей для сплава З методом горизонтального смещения. На вставке – температурная зависимость полученного коэффициента эффективности электронного облучения

На рис. 4 приведены результаты изохронных отжигов для всех четырех типов сплавов после облучения при 320 и 573 К.

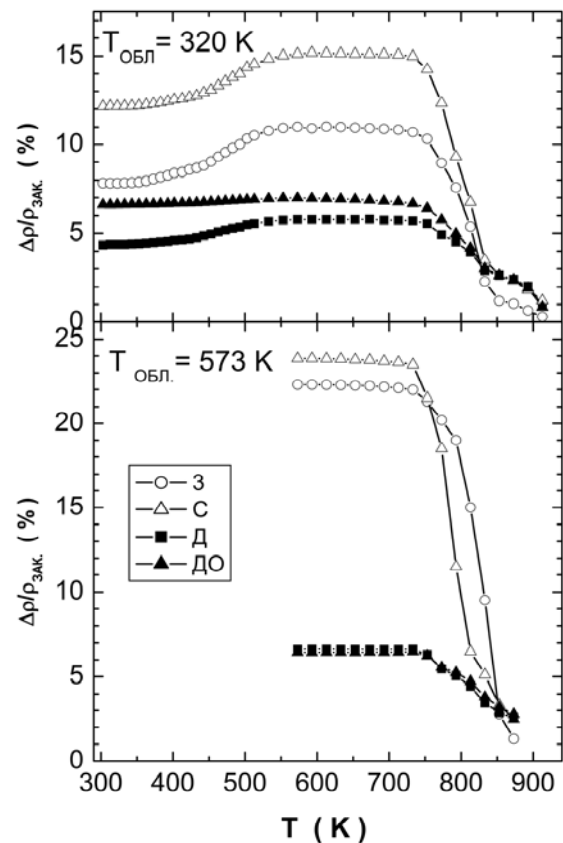


Рис. 4. Результаты изохронного отжига облученных электронами сплавов при 320 и 573 К

Как видно из рисунка, после облучения при 320 К при температурах выше 350 К происходит рост электросопротивления, связанный с диссоциацией ВК и осуществлением дальнейшего расслоения твердого раствора. Наиболее сильный рост электросопротивления наблюдается на сплавах типа З и С.

Необходимо отметить, что ВК в этих сплавах только радиационного происхождения. В сплаве Д кроме радиационных ВК происходит также и диссоциация деформационных ВК, а в сплаве ДО – только радиационного происхождения. Из сравнения прироста электросопротивления на этом этапе можно сказать, что ВК, образованных облучением в деформированных сплавах, примерно в 4 раза меньше, чем ВК, образованных деформацией. Дислокации в сплавах Д и ДО существенно уменьшают диффузионный путь образующихся при диссоциации вакансий при отжиге, так же как и при облучении. Можно сказать, что на всех сплавах как в процессе облучения при 320 К, так и при последующих изохронных отжигах влияние исходной микроструктуры сохраняется до 750 К.

При отжиге после облучения при 573 К видно, что совпадение зависимостей для сплава Д и ДО, обнаруженное нами в процессе облучения, сохраняется также и при отжиге, что подтверждает диссоциацию деформационных ВК еще на начальных этапах облучения. Разница между сплавами З и С, существенно уменьшившаяся при облучении, сохраняется при отжиге до 750 К. Выше 750 К на всех типах сплавов как облученных при разных температурах, так и необлученных (см. рис. 1) наблюдаются гомогенизация твердого раствора вследствие термической диффузии и рекристаллизация в деформированных сплавах.

На рис. 5 приведены обобщенные данные суммарных приростов электросопротивления после облучения до флюенса $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ в зависимости от температуры облучения в диапазоне 240...570 К.

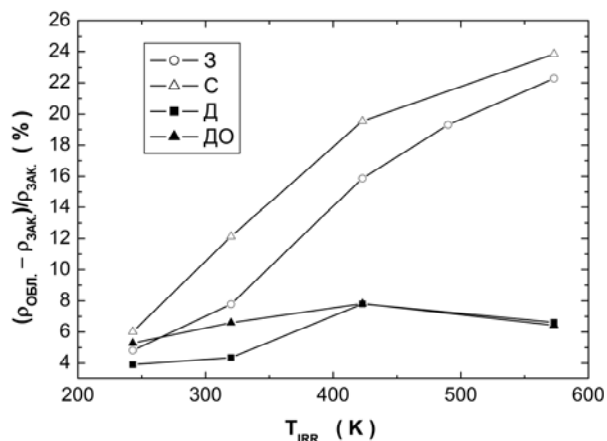


Рис. 5. Температурная зависимость суммарного прироста остаточного электросопротивления на всех типах сплавов в процессе образования исходной микроструктуры и последующего облучения до флюенса $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$

Из зависимостей видно, что прирост в сплавах З и С, а значит, и процессы расслоения твердого раствора существенно усиливаются с ростом температуры выше 320 К.

На деформированных сплавах прирост меняется мало во всем температурном интервале, это свидетельствует о том, что дислокационные стоки эффективно ограничивают длину пробега вакансий во всем температурном интервале. Влияние деформа-

ционных ВК заметно только ниже 400 К, а выше – нивелируется за счет диссоциации деформационных ВК в процессе облучения.

ВЫВОДЫ

1. Основное и наиболее сильное влияние на радиационно-индуцированное расслоение при электронном облучении оказывает дислокационная микроструктура; она снижает расслоение твердого раствора более чем в три раза при 573 К.

2. Вакансионные кластеры как деформационного, так и радиационного происхождения диссоциируют в интервале 350...500 К. Они также снижают радиационно-индуцированное расслоение твердого раствора.

3. Концентрационные неоднородности матрицы в состаренных при 780 К сплавах не являются заметными стоками для точечных дефектов.

4. Влияние разной микроструктуры при низких температурах не является существенным, а при высоких температурах нивелируется влияние старения и деформационных вакансионных кластеров.

Работа выполнена по плану РАН (тема «Импульс» № г.р. 01.2.006 13394) при частичной поддержке РФФИ (проекты № 07-02-00020-а и № 07-02-96052-р_урал_а).

ЛИТЕРАТУРА

1. V.N. Voyevodin, I.M. Neklyudov, V.V. Bryk, O.V. Borodin. Microstructural evolution and radiation stability of steels and alloys // *J. Nucl. Mater.* 1999, v. 271-272, p. 290–295.

2. 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.

3. S. Mantl, B.D. Sharma, G. Antesberger. Positron annihilation studies on electron- and γ -particle irradiated 75Ni13Cr12Fe alloys // *Phil. Mag. A.* 1979, v. 39, N 4, p. 389–397.

4. 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.

5. 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.

6. В.Л. Арбузов, С.Е. Данилов, А.П. Дружков, В.А. Павлов. Накопление и отжиг радиационных дефектов в Fe-Ni и Fe-Ni-P-сплавах, облученных электронами // *ФММ.* 2000, т. 89, №4, с. 56–63.

7. В.Л. Арбузов, Б.Н. Гощицкий, С.Е. Данилов, А.В. Карькин, Д.А. Перминов. Эффективности нейтронного и электронного облучений в радиационно-индуцированном расслоении твердого раствора сплавов Fe-Ni и Fe-Ni-P // *ФММ.* 2008, т. 106, №3, с. 1–10.

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

9. С.Е. Данилов, В.Л. Арбузов, А.П. Дружков, В.А. Казанцев, А.Э. Давлетшин, Д.А. Перминов, В.В. Сагарадзе, В.А. Шабашов, А.В. Литвинов.

Структурно-фазовые изменения в Fe-Ni-инваре при высокотемпературном электронном облучении // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение»*. 2007, № 6, с. 3–8.

Статья поступила в редакцию 10.09.2008.

ВПЛИВ МІКРОСТРУКТУРИ НА РАДІАЦІЙНО-ІНДУКОВАНІ ПРОЦЕСИ В СПЛАВІ Fe- 34,7 ат.% Ni

С.Є. Данилов, В.Л. Арбузов

Методом залишкового електроопору досліджені процеси радіаційно-індукованого розшарування твердого розчину в сплаві Fe-34,7 ат.%Ni при різних температурах і в різних вихідних станах, при опроміненні електронами. Порівнюються сплави в станах: загартованому від 1373 К, зістареному при 780 К, деформованому на 40 % і деформованому, але відпаленому при 573 К для віддалення вакансійних кластерів. Отримано дозові й температурні залежності. Проведено ізохронні відпалення. Показано, що концентраційні неоднорідності матриці в зістареному сплаві не є помітними стоками для крапкових дефектів. Деформація приводить до істотного придушення процесів радіаційно-індукованого розшарування твердого розчину, в основному, за рахунок дислокаційної структури. Вплив вакансійних кластерів деформаційного походження нівелюється вище 400 К.

EFFECT OF MICROSTRUCTURE ON RADIATION-INDUCED PROCESSES IN Fe-34.7 at.% Ni ALLOY

S.E. Danilov, V.L. Arbuzov

The method of residual resistivity was used to study processes of the radiation-induced decomposition of the solid solution in the Fe-34.7 at.% Ni alloy at different temperatures and in different initial states under electron irradiation. The comparison was made for alloys in the following states: quenched from 1373 K; aged at 780 K; deformed to 40%; deformed, but annealed at 573 K for elimination of vacancy clusters. Dose and temperature dependences were obtained. Isochronous annealing treatments were performed. It was shown that concentration inhomogeneities of the matrix in the aged alloy did not represent considerable sinks of point defects. Deformation considerably suppressed processes of the radiation-induced decomposition of the solid solution mainly on account of the dislocation structure. The effect of deformation-induced vacancy clusters vanished above 400 K.