

ИССЛЕДОВАНИЕ МЕТОДОМ ПОЗИТРОННОЙ СПЕКТРОСКОПИИ ВЛИЯНИЯ ИНТЕРМЕТАЛЛИДНЫХ НАНОЧАСТИЦ НА ЭВОЛЮЦИЮ ВАКАНСИОННЫХ ДЕФЕКТОВ В СПЛАВЕ Fe-Ni-Al

Д.А. Перминов, А.П. Дружков, В.Л. Арбузов

Институт физики металлов УрО РАН, Екатеринбург, Россия

E-mail: d_perm@rambler.ru

Методом позитронной спектроскопии изучено влияние гомогенно распределенных наноразмерных (1...8 нм) частиц выделений γ' - и обогащенной железом фаз на эволюцию вакансионных дефектов в облученном электронами Fe-Ni-Al-сплаве. Показано, что присутствие выделений в сплаве приводит к снижению накопления вакансий в несколько раз по сравнению со сплавом, закаленным на твердый раствор. При этом величина этого эффекта в процессе облучения сильно зависит от плотности, размера частиц, а также их типа. Кроме того, эффект снижения накопления вакансий усиливается с увеличением температуры облучения. Также обнаружено, что в сплаве, закаленном на твердый раствор, и предварительно состаренном при 1023 К, в процессе облучения при 573 К происходит радиационно-индуцированное образование зародышей интерметаллидных частиц типа Ni_3Al . Обсуждаются возможные механизмы влияния выделений на поведение вакансионных дефектов.

ВВЕДЕНИЕ

Радиационная стойкость конструкционных материалов при облучении быстрыми нейтронами определяется тремя основными факторами: сопротивлением вакансионному распуханию, охрупчиванию и ползучести. Наилучшими эксплуатационными характеристиками обладают аустенитные нержавеющие стали и сплавы. На сегодняшний день эти сплавы являются одними из основных конструкционных материалов для активных зон реакторов на быстрых нейтронах, поскольку они проработаны с технологической точки зрения, а их радиационная повреждаемость достаточно тщательно исследована. Однако для аустенитных сталей характерно сильное вакансионное распухание, что связано с образованием в процессе облучения в сталях вакансионных скоплений – микропор и вакансионных петель, вызванных переизбытком вакансий по отношению к междоузлиям. Вакансионное распухание можно значительно снизить использованием стареющих сталей и сплавов с радиационно-стимулированным выделением интерметаллидов $\text{Ni}_3\text{Ti}(\text{Al},\text{Si})$. В этом случае удается снизить распухание в 3-7 раз по сравнению с аналогичными сталями и сплавами, не содержащими выделений [1-3].

Влияние интерметаллидного старения на распухание конструкционных материалов известно более 30 лет. Экспериментальные работы показывают, что когерентные частицы снижают среднюю концентрацию точечных дефектов, подавляя, таким образом, процессы распухания, однако на сегодняшний день нет единого мнения о механизмах этого явления. В литературе рассматриваются различные модели влияния когерентных выделений на накопление радиационных дефектов. Во многих наиболее ранних работах, посвященных данной теме, выделения рассматриваются как простые насыщаемые стоки для точечных дефектов [4]. В этом случае выделения захватывают точечные дефекты аналогично тому, как это происходит в случае с отдельными атомами примесей. При этом выделения имеют

большой размер по сравнению с отдельными атомами, что и обуславливает более высокую их эффективность. В другой модели предполагается, что выделения являются «косвенными» стоками точечных дефектов [5]. Для их образования к месту зарождения фазы требуется подвод атомов никеля и соответствующей примеси и отвод от этих зон атомов железа и хрома. В этом случае вакансии будут «задействованы» в диффузионных потоках элементов замещения, что, в конечном итоге, приведет к значительному снижению распухания.

Следует отметить, что поведение точечных дефектов в стареющих сплавах в значительной степени зависит от соотношения параметров решетки матрицы (a_γ) и выделений ($a_{\gamma'}$), которое характеризуется параметром несоответствия δ , определяемого следующим выражением:

$$\delta = \frac{a_{\gamma'} - a_\gamma}{a_\gamma} \quad (1)$$

Влияние параметра несоответствия может быть объяснено наличием полей упругих напряжений «растяжение-сжатие», возникающих на когерентных границах частица-матрица [6]. Наличие таких напряжений в сплавах приводит к сдерживанию ухода дефектов на «далекие» стоки и возникновению встречных потоков вакансий и междоузельных атомов, что способствует усилению взаимной рекомбинации точечных дефектов. Однако многие авторы полагают, что границы раздела γ/γ' не оказывают заметного влияния на зарождение и рост скоплений радиационных дефектов, поскольку напряжения, возникающие на границах, не достаточно велики. По мнению авторов [1], минимум распухания сплавов связан с минимальной скоростью переползания дислокаций вследствие взаимодействия между переползающими дислокациями и γ' -частицами. Еще одной возможной причиной снижения вакансионного распухания может являться разница в химическом составе выделений и матрицы. Так, например, в сплаве Nimonic PE-16 [7] благодаря высокому со-

держанию Al в γ' -фазе пороговая энергия смещения атомов для частиц много ниже, чем для матрицы, поэтому скорость генерации пар Френкеля внутри частиц выделений будет значительно выше. Таким образом, при облучении в сплаве вблизи границ выделение-матрица возникает градиент концентрации точечных дефектов, что, в конечном итоге, приводит к усилению их взаимной рекомбинации. Несколько иное объяснение влияния химического состава предлагают авторы [8]. Согласно их модели усиление рекомбинации точечных дефектов обусловлено разной энергией образования дефектов внутри выделения и матрицы и, как следствие, различной их равновесной концентрацией. В том случае, когда энергия образования дефектов в выделении меньше, чем в матрице, в сплаве возникают направленные потоки точечных дефектов из матрицы в выделения и их усиленная рекомбинация внутри выделений, что приводит к снижению концентрации дефектов как внутри выделений, так и в матрице.

Одной из проблем, связанных с определением механизма влияния выделений на поведение точечных дефектов, является то, что на сегодняшний день существует мало экспериментальных данных, связанных с исследованием зависимости этого эффекта от температуры облучения. Также практически отсутствуют работы, описывающие влияние дисперсности выделений на накопление дефектов при облучении. Такие данные могут облегчить понимание механизмов влияния выделений на накопление радиационных дефектов, поскольку приведенные выше модели по-разному описывают указанные зависимости. Следует также отметить, что существует мало работ, связанных с изучением роли когерентных частиц на накопление радиационных дефектов на ранних стадиях повреждаемости, когда только формируются небольшие скопления дефектов в виде петель или трехмерных кластеров. Методы, которые применяются для исследования дефектной структуры в облученных материалах, не позволяют изучать поведение дефектов при дозах облучения меньше 1 сна. Однако хорошо известно, что, например, структура вакансионных дефектов задается уже на самых ранних этапах дефектообразования, что позволяет прогнозировать распухаемость материала при высоких дозах облучения ($10 \dots 100$ сна).

В этой работе методом позитронной спектроскопии исследовалась эволюция точечных дефектов в железоникелевых сплавах в процессе электронного облучения в зависимости от исходного состояния (закаленное, состаренное в течение различного времени) на ранних стадиях радиационной повреждаемости. Позитроны являются хорошо известным зондом для дефектов вакансионного типа [9]. Кроме того, в работе [10] показано, что в состаренном сплаве Fe-Ni-Al возникает конфайнмент позитрона, т.е. состояние позитрона, подобное квантовым точкам, вызванное предпочтительным средством позитронов к частицам выделений Ni_3Al . В этом состоянии позитрон аннигилирует с электронами наночастиц, что позволяет получить информацию об их электронной и атомной структуре.

МАТЕРИАЛЫ И ЭКСПЕРИМЕНТ

В работе исследовался сплав Fe-34.5 мас.%Ni-5.4 мас.%Al. Образцы были приготовлены в форме пластин размером $10 \times 10 \times 0.2$ мм. После прокатки, резки и электрополировки образцы отжигались при 1373 К в вакууме 10^{-5} Па в течение 1 ч, а затем быстро охлаждались со скоростью ≈ 500 К/с (образцы серии Q). Рентгеноструктурный анализ показал наличие в образцах одной аустенитной фазы.

С целью создания когерентных интерметаллидных частиц выделений γ' -фазы типа Ni_3Al часть образцов сплава была состарена при температуре 823...1023 К в течение 3...35 ч (образцы серий A1-A4). Микроструктура закаленного и состаренных образцов контролировалась электронным микроскопом JEM-200 CX. Размеры и плотности образовавшихся в сплавах выделений, а также их объемная доля приведены в таблице. Как показали данные ПЭМ, после отжига при температурах 823...923 К в сплавах образуются ультрамелкие частицы упорядоченной γ' -фазы (Ni_3Al), гомогенно распределенные в матрице и когерентные с ней. Параметр несоответствия δ для γ' -фазы при комнатной температуре составляет -0.7 [10]. После высокотемпературного старения (при 1023 К) в сплаве образовались дисперсные сферические частицы обогащенной железом неупорядоченной ОЦК-фазы [11].

Параметры выделений для сплавов с различной исходной микроструктурой

Образец	Режим старения	d, нм	$C, 10^{22} \text{ м}^{-3}$	Объемная доля, %
A1	823 К, 3 ч	1.1	460	0.3
A2	923 К, 3 ч	4.4	10	0.5
A3	923 К, 35 ч	10	0.9	0.5
A4	1023 К, 6 ч	8	20	1.5

Исследуемые образцы облучались электронами энергией 5 МэВ на линейном ускорителе при температурах 300, 423 и 573 К. Температура образцов в процессе облучения поддерживалась с точностью ± 5 К; максимальный флюенс электронов был $5 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$, что, как показали расчеты по модифицированной модели Кинчина-Пиза [12], соответствует повреждающей дозе $(4 \dots 5) \cdot 10^{-4}$ сна. Облученные образцы отжигались в вакууме в интервале температур 300...900 К со средней скоростью 1 К/мин.

Для исследования дефектной структуры использовался метод угловой корреляции аннигиляционного излучения (УКАИ). Спектр УКАИ представляет собой зависимость скорости счета от импульса аннигилирующей пары электрон-позитрон p_z (в единицах m_0c , где m_0 – масса электрона; c – скорость света в вакууме). На рис. 1 показаны экспериментальный спектр УКАИ, а также спектр, полученный после сглаживания. Процедура сглаживания подробно описана в [11,13]. Данные УКАИ содержат информацию об импульсном распределении аннигилирующих электронов и позволяют разделять вклад от аннигиляции позитронов с валентными электронами (низкоимпульсная часть спектра) и электронами ионных остовов атомов (высокоим-

пульсная часть спектра). При этом высокоимпульсная часть спектра несет информацию о типе атомов в области аннигиляции позитрона.

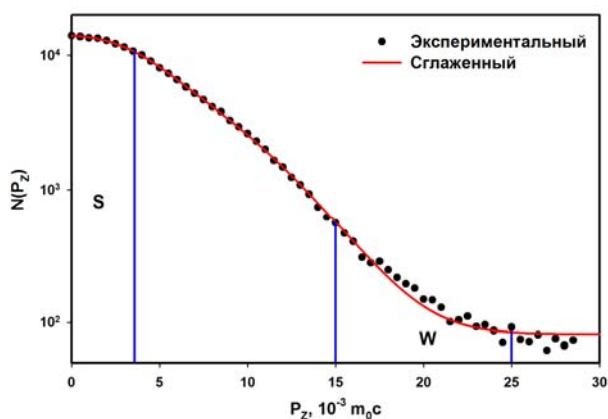


Рис.1. Экспериментальный и сглаженный спектры УКАИ для закаленного сплава Fe-Ni-Al

В случае захвата позитронов дефектами вероятность аннигиляции позитронов с валентными электронами увеличивается, а вероятность аннигиляции с электронами ионного остова уменьшается. При этом скорость счета в области малых импульсов возрастает, а в области больших – падает. В качестве характеристики изменения спектров УКАИ при облучении использовались S- и W-параметры, которые определяются как суммарная скорость счета в области малых ($p_z \leq 3.5 \cdot 10^{-3} m_0 c$) и больших ($15 \cdot 10^{-3} m_0 c \leq p_z \leq 25 \cdot 10^{-3} m_0 c$) импульсов. Зависимости S- и W-параметров от концентрации и вида дефектов определяются следующим образом:

$$S = \frac{\lambda_f S_f + \mu_V C_0 S_t}{\lambda_f + \mu_V C_0}; \quad (2)$$

$$W = \frac{\lambda_f W_f + \mu_V C_0 W_t}{\lambda_f + \mu_V C_0},$$

где λ_f - скорость аннигиляции позитронов в свободном состоянии; μ_V - удельная скорость захвата позитронов моновакансиями; S_f, S_t, W_f, W_t - значения параметров при аннигиляции позитронов из свободного (free) и захваченного (trapped) состояний соответственно. Следует отметить, что в случае взаимодействия позитронов с частицами Ni_3Al в сплаве Fe-Ni-Al скорость счета в области больших импульсов и соответственно W-параметр будут возрастать [10]. Этот эффект позволяет определять тип центра захвата позитронов.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Накопление и отжиг дефектов в сплавах, облученных при различных температурах

Рассмотрим зависимость влияния выделений на накопление дефектов от температуры облучения. На рис. 2,а приведены зависимости S-параметра от флюенса электронов для закаленного (серия Q) и состаренного (серия A2) образцов сплава, облученных при различных температурах. В исходном состоянии S-параметр для всех образцов совпадает с величиной S_f . В состаренных образцах исходные

значения S-параметра превышают эту величину, что связано с захватом позитронов частицами интерметаллидных выделений Ni_3Al [10].

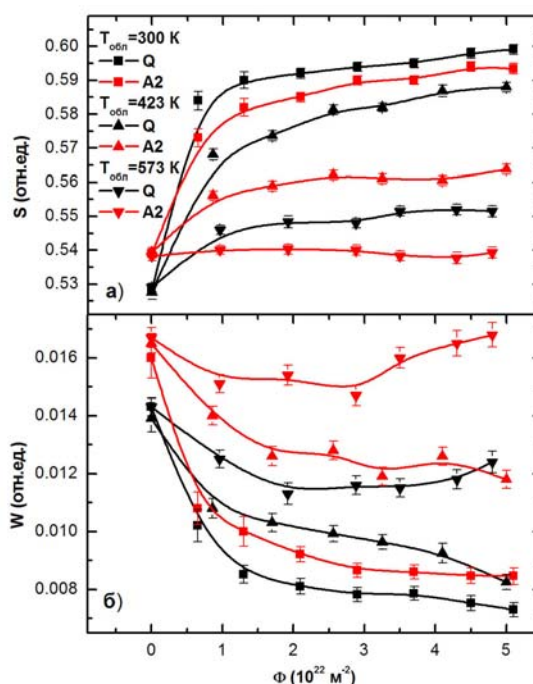


Рис.2. Зависимости S- и W-параметров от флюенса электронов для закаленного (Q) и предварительно состаренного (A2) образцов сплава Fe-Ni-Al, облученных при различных температурах

Рассмотрим облучение закаленного образца сплава. В процессе облучения при 300 К наблюдается резкий рост S-параметра при увеличении флюенса, обусловленный захватом позитронов вакансионными дефектами. При этом S-параметр практически сразу достигает высоких значений, а затем медленно растет с увеличением флюенса. Медленный рост S-параметра обусловлен установившимся в сплавах квазистационарным состоянием, когда скорость образования дефектов совпадает со скоростью их отжига или рекомбинации.

При повышении температуры облучения рост S-параметра снижается. С увеличением температуры увеличивается подвижность дефектов, что приводит к усилению их взаимной рекомбинации. Следует отметить, что при этом меняется структура образующихся дефектов. В [14] показано, что в процессе облучения при температурах 300 и 423 К в сплаве происходит преимущественно образование трехмерных вакансионных кластеров (ВК), тогда как при температуре облучения 573 К в сплаве образуются двумерные вакансионные скопления.

Что касается образца серии A2, здесь поведение S-параметра аналогично поведению S-параметра для образца серии Q. Однако следует отметить, что в состаренном образце S-параметр достигает меньших значений, и этот эффект существенно возрастает с увеличением температуры. Так, например, расчеты по модели захвата (2) показывают, что при облучении при температуре 300 К концентрация дефектов в состаренном сплаве снижается в ≈ 1.6 раза, а при температуре 423 К - в ≈ 4 раза по сравнению с закаленным на твердый раствор. Что касается облучения

при 573 К, в состаренном образце S-параметр практически не меняется с увеличением флюенса.

Для анализа доминирующих центров захвата позитронов рассмотрим поведение W-параметра при облучении. На рис. 2,б показаны зависимости W-параметра от флюенса электронов для облученных образцов сплава. Как видно из рисунка, в исходном состоянии W-параметр для сплава серии A2 превышает значение W-параметра для образца серии Q, что обусловлено взаимодействием позитрона с частицами интерметаллидных выделений. В процессе облучения закаленного образца W-параметр снижается симметрично росту S-параметра, что обусловлено захватом позитронов вакансионными дефектами. Лишь при температуре облучения 573 К при больших флюенсах наблюдается небольшой рост W-параметра. Как было показано в [15], такой рост вызван тем, что при этой температуре часть позитронов, не захваченных вакансионными дефектами, взаимодействует с образовавшимися в результате радиационно-индуцированного старения частицами выделений типа Ni_3Al .

В состаренном образце сплава при температурах 300 и 423 К W-параметр также снижается симметрично росту S-параметра, как и в случае закаленного сплава. Как показали расчеты по модели захвата (2), концентрация вакансионных дефектов в этом образце, облученном до $\Phi = 5 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$ при температуре 300 К, на порядок превышает плотность частиц, поэтому в этом образце после облучения доминирующими центрами захвата позитронов являются вакансионные дефекты. В образце, облученном при 423 К, концентрации дефектов и плотность частиц соизмеримы. Однако энергия связи позитрона с ВК составляет величину 3...6 эВ, тогда как для частиц энергии связи не превышает 1...2 эВ, поэтому вакансионные дефекты являются более предпочтительными ловушками для позитронов.

С увеличением температуры облучения до 573 К поведение W-параметра для состаренного образца существенно меняется. С ростом флюенса W-параметр в отличие от S-параметра начинает снижаться, а затем при $\Phi \geq 3 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$ возрастает и выходит на исходную величину до облучения. Как показал детальный анализ спектров [15], при малых флюенсах в состаренном сплаве происходит накопление вакансионных дефектов, которые затем, однако, отжигаются в процессе облучения. При этом доля позитронов, захваченных дефектами, снижается, и W-параметр растет. Следует отметить, что здесь изменения в структуре наночастиц не наблюдается. Как показано в [10], уже при данной плотности позитроны практически полностью аннигилируют в наночастицах, поэтому дальнейшее увеличение плотности частиц Ni_3Al не приводит к изменениям аннигиляционных характеристик.

Рассмотрим отжиг облученных сплавов. На рис. 3 показаны кривые отжига для сплавов серий Q и A2, облученных до флюенса $\Phi = 5 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$ при различных температурах. Рассмотрим поведение S-параметра в сплаве серии Q.

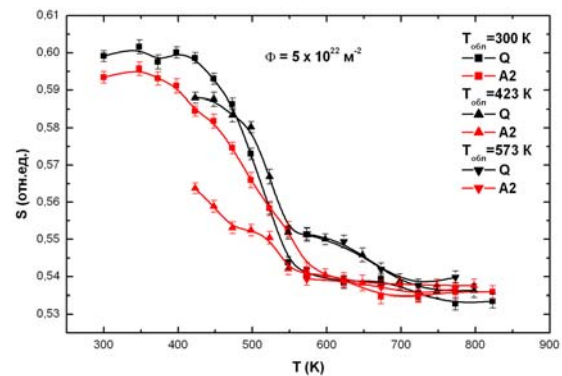


Рис.3. Зависимость S-параметра от температуры изохронного отжига для закаленного (Q) и предварительно состаренного (A2) образцов сплава Fe-Ni-Al, облученных при различных температурах

В образце, облученном при комнатной температуре, S-параметр начинает резко снижаться при температуре 420 К и при 600 К достигает исходного значения до облучения, что обусловлено диссоциацией ВК. В образце, облученном при 423 К, S-параметр начинает снижаться при той же температуре, однако скорость снижения существенно уменьшается при $T \approx 550 \text{ К}$. Медленный спад S-параметра в диапазоне 550...750 К связан с отжигом более термически стабильных двумерных вакансионных скоплений, которые образовались либо в процессе облучения, либо в результате трансформации трехмерных ВК в двумерные скопления. Что касается образца, облученного при 573 К, здесь зависимость S-параметра от температуры совпадает с высокотемпературной частью зависимости S-параметра для сплава, облученного при 423 К.

В состаренных образцах спад S-параметра начинается при более низких температурах. Кроме того, отсутствует стадия выше 550 К, связанная с отжигом двумерных вакансионных скоплений.

Облучение сплавов с различной исходной микроструктурой

Рассмотрим влияние частиц выделений на накопление и отжиг дефектов в зависимости от исходной микроструктуры образцов. На рис. 4 приведены зависимости S- и W-параметров от флюенса электронов для образцов сплава с различной микроструктурой, облученных при температуре 423 К. Зависимости для образцов серий Q и A2 описаны выше. В исходном состоянии (до облучения) S- и W-параметры для образца A2 совпадают с S- и W-параметрами для образца Q, что обусловлено конфайнментом позитронов в интерметаллидных наночастицах Ni_3Al , поскольку плотность частиц здесь еще достаточно велика и подавляющее большинство ($\approx 96\%$) позитронов аннигилирует из этого состояния. Для образца серии A1 W-параметр совпадает с W-параметром для A2, однако S-параметр имеет меньшее значение. Такая ситуация обусловлена малым размером частиц, образовавшихся в данном образце при старении. Известно [11,16], что конфайнмент позитронов возникает в том случае, когда радиус частиц превышает критический радиус. Согласно расчетам по методике, описанной в [16], кри-

тический радиус для наночастиц Ni_3Al в сплаве Fe-Ni-Al составляет $R \approx 0.52$ нм, что сравнимо с размером частиц в образце A1. В результате этого в образце полного конфайнмента не реализуется, и часть позитронов аннигилирует с атомами матрицы. Что касается образца серии A4, то аннигиляционные характеристики близки к аналогичным для закаленного образца, т.е. конфайнмента позитронов не наблюдается. В то же время величина S-параметра превышает величину S-параметра для закаленного образца, что может быть вызвано захватом позитронов дефектами на границе выделение-матрица, однако этот эффект незначителен.

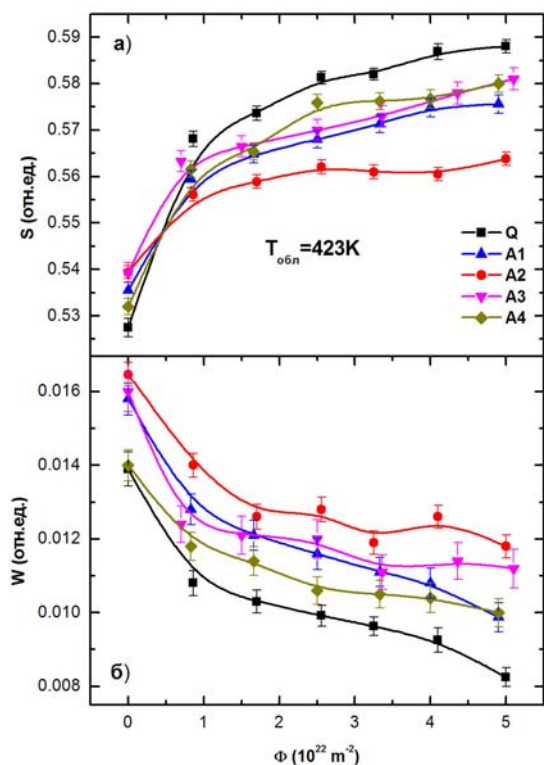


Рис.4. Зависимости S- и W-параметров от флюенса электронов для образцов сплава Fe-Ni-Al с различной исходной микроструктурой, облученных при 423 К

С ростом флюенса S-параметр в состаренных сплавах ведет себя аналогично S-параметру для закаленного сплава, однако плато, которого достигают S-параметры для состаренных сплавов, лежит значительно ниже, и этот эффект существенно зависит от размера и типа частиц. Из рис. 4 видно, что наибольшую эффективность имеют частицы размером 4.5 нм, образовавшиеся в образце A2. Как было сказано выше, в этом сплаве концентрация дефектов при $\Phi = 5 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$ в ≈ 4 раза ниже, чем в образце серии Q. Наименьшую эффективность имеют крупные частицы Ni_3Al , что может быть обусловлено низкой их концентрацией, а также частицы ОЦК-фазы. В этих образцах концентрация дефектов снижается лишь ≈ 1.7 раз. Следует отметить, что концентрация этих частиц в образце A4 близка к концентрации интерметаллидных частиц в образце A2, т.е. когерентные гомогенно распределенные частицы Ni_3Al более эффективно снижают накопление дефектов.

С увеличением флюенса W-параметр во всех образцах снижается соответственно росту S-параметра, что указывает на преимущественный захват позитронов вакансионными дефектами.

Рассмотрим отжиг облученных образцов. На рис. 5 показаны зависимости S-параметра от температуры изохронного отжига.

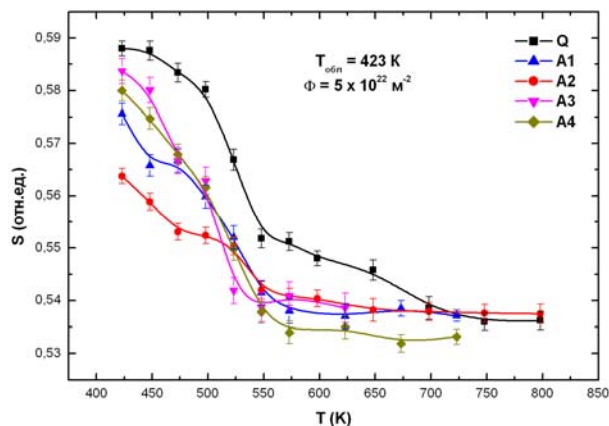


Рис.5. Зависимость S-параметра от температуры изохронного отжига для образцов сплава Fe-Ni-Al с различной исходной микроструктурой, облученных электронами до $\Phi = 5 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$ при 423 К

Как было сказано выше, в закаленном сплаве наблюдается две стадии отжига: 420...550 К, когда происходит отжиг трехмерных ВК, и 550...750 К, когда происходит отжиг двумерных вакансионных скоплений. В состаренных сплавах S-параметр быстро снижается до температуры 550 К, после чего выходит на плато. Анализ спектров показал [11,15], что при температуре выше 550 К в сплавах серии A1-A3 повышенное значение S-параметра обусловлено конфайнментом позитронов, а не захватом позитронов двумерными вакансионными скоплениями. В образце серии A4 S-параметр после отжига выходит на исходное значение до облучения. Таким образом, в состаренных образцах сплава в отличие от закаленного образца при отжиге доминирует захват дефектов стоками. При этом существенных изменений в микроструктуре образцов при облучении и отжиге не происходит. Следует также отметить, что при отжиге образцов A1 и A2 в отличие от образцов A3 и A4 наблюдается резкий спад S-параметра при температурах 423...500 К, величина которого зависит от размера частиц. Таким образом, наночастицы влияют и на восстановление S-параметра при отжиге облученных образцов. В то же время это может быть связано с тем, что в состаренных образцах сплава при облучении образуется иная структура дефектов, чем в закаленном образце.

Рассмотрим облучение при температуре 573 К. На рис. 6 показаны зависимости S- и W-параметров для облученных электронами закаленного и состаренных образцов сплава Fe-Ni-Al.

Поведение S- и W-параметров для образцов серий Q и A2 описано выше. В состаренных образцах с ростом флюенса S-параметр меняется незначительно. Существенный рост S-параметра наблюда-

ется лишь для образца серии A4 при малых значениях флюенса.

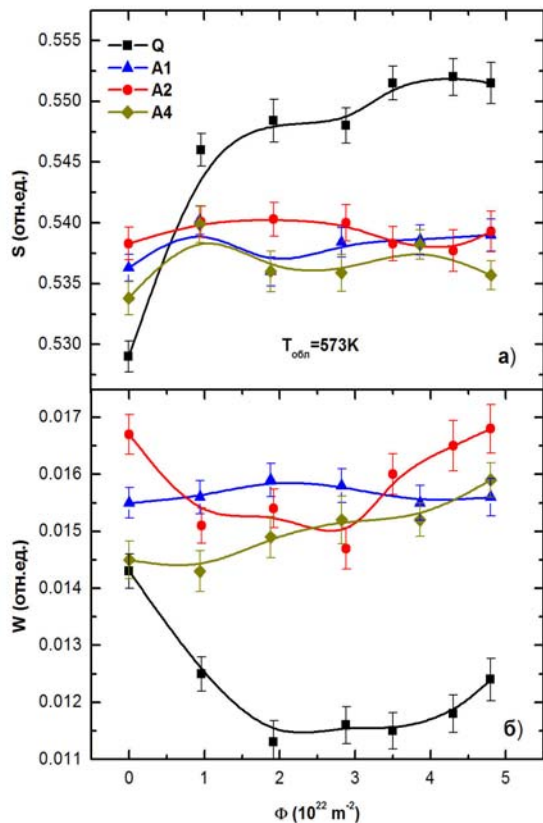


Рис.6. Зависимости S - и W -параметров от флюенса электронов для образцов сплава Fe-Ni-Al с различной исходной микроструктурой, облученных при 573 K

В то же время поведение W -параметра для образцов существенно различается. В образце серии A1 W -параметр не меняется с увеличением флюенса. Это указывает на то, что позитроны полностью аннигилируют внутри наночастиц Ni_3Al , атомная структура и размер которых не меняется с увеличением флюенса. Также здесь не наблюдается захват позитронов вакансионными дефектами, т.е. накопление вакансий отсутствует. У образца A4 W -параметр непрерывно растет с увеличением флюенса. Это указывает на то, что в сплаве, как и в случае закаленного образца, происходит радиационно-индуцированное образование и рост зародышей интерметаллидной фазы типа Ni_3Al [11]. Следует отметить, что, по-видимому, отсутствует накопление вакансионных дефектов, как и в образце A1, поскольку доминирующими центрами для позитронов в этом образце являются частицы Ni_3Al .

Возможные механизмы влияния интерметаллидных наночастиц на поведение вакансионных дефектов

Представленные результаты показывают, что наночастицы типа Ni_3Al и обогащенной железом фазы снижают накопление вакансионных дефектов в сплаве Fe-Ni-Al на ранних стадиях радиационной повреждаемости ($10^3 \dots 10^4$ сна). Этот эффект зависит как от температуры облучения, так и от плотности и размера частиц. Рассмотрим некоторые воз-

можные механизмы влияния наночастиц на эволюцию вакансионных дефектов.

Как было сказано выше, выделения могут служить ловушками для точечных дефектов. В этом случае комплексы точечный дефект-выделение будут являться стоками для дефектов, образующихся при облучении. При этом эффективность ловушек κ^2 , которыми являются частицы выделений, с переходом от образцов серии A1 к серии A3 должна непрерывно снижаться. Однако, согласно экспериментальным данным, в сплаве наблюдается минимум накопления при некотором размере и плотности выделений, положение которого зависит от температуры облучения. Кроме того, с ростом температуры эффект от присутствия выделений должен снижаться. Из этого следует, что предположение о том, что выделения являются ловушками для точечных дефектов не подтверждается, по крайней мере, для повышенных температур облучения.

Не подтверждается и другая модель, рассматривающая выделения как «косвенные» стоки. Действительно, при облучении при 573 K в закаленном сплаве происходит радиационно-индуцированное образование частиц выделений, которые, согласно этой модели, должны снижать накопление вакансий. Эффективность этого процесса здесь значительно ниже по сравнению со сплавами, содержащими выделения изначально. Также не удается объяснить снижение накопления в состаренных сплавах захватом переползающих дислокаций. Плотность дислокаций, присутствующих в данных сплавах, очень мала ($\leq 10^{12} \text{ м}^{-2}$) [14]. Рассчитанная мощность стоков для дислокаций в сплавах получается значительно ниже мощности присутствующих в образцах вакансионных скоплений, которые тоже являются стоками для дефектов. Отметим, что влияние выделений на накопление вакансий проявляется более существенно при облучении, а не при отжиге. Из этого следует, что выделения являются центрами повышенной рекомбинации, а не стоками точечных дефектов.

Усиленная рекомбинация дефектов может быть связана с различием в химическом составе выделения и матрицы [7,8]. Благодаря высокой концентрации алюминия в γ' -фазе энергия образования дефектов в частицах будет ниже, чем в матрице, и на границе выделение-матрица возникает градиент по концентрации дефектов [7]. В результате этого возникают направленные потоки дефектов, что и приводит к усиленной их рекомбинации. При этом этот эффект будет максимальным при некоторых оптимальных размере и плотности выделений, что и наблюдается в исследуемом сплаве. Однако следует отметить, что энергия миграции точечных дефектов в γ' -фазе существенно выше, чем в Fe-Ni-Al-сплаве [7,17]. Кроме того, объемная доля выделений, присутствующих в состаренном сплаве, очень незначительна ($< 1\%$), чтобы в сплаве образовались существенные потоки дефектов.

Как было сказано выше, поведение точечных дефектов в состаренных сплавах существенно зависит от параметра несоответствия δ . Влияние параметра несоответствия объясняется наличием полей упру-

гих напряжений «растяжение-сжатие», возникающих на когерентных границах частица-матрица [6]. Эффективность этого механизма была подвергнута сомнению в [18], так как в общем случае энергия взаимодействия точечных дефектов с полями напряжений невелика, поскольку свободная энергия на границе γ/γ' очень мала (<30 мДж/м²). Но хорошо известно, что величина и знак δ коррелируют с морфологией частиц в процессе коагуляции [19]. Процессы накопления вакансионных дефектов также зависят от величины и знака δ [10,15]. В [8] указывается, что при отрицательном δ вероятность рекомбинации точечных дефектов возрастает. Ясно, что взаимодействие точечных дефектов с полями упругих напряжений будет зависеть от граничной энергии, поэтому нужны дополнительные знания о зависимости этой энергии от температуры, состава, размеров и формы наночастиц выделений. Действительно, представленные здесь результаты показывают, что размер и плотность частиц Ni₃Al, при которых достигается максимальный эффект, меняется в зависимости от температуры облучения. Так популяция мелких частиц (~1 нм) оказалась менее эффективной при 423 К по сравнению с более крупными частицами (~4.5 нм), тогда как при 573 К эти ультрадисперсные частицы полностью подавляют накопление вакансионных дефектов.

Что касается обогащенных железом частиц (в сплаве А4), то их когерентность или некогерентность установить с помощью ПЭМ не удалось. Также не обнаруживается существенный захват позитронов дефектами на границе выделение-матрица. Тем не менее эти частицы, так же, как и когерентные выделения, являются эффективными центрами рекомбинации точечных дефектов при температуре облучения 573 К. В то же время результаты изохронного отжига показывают (см. рис. 5), что характер отжига вакансионных дефектов в сплаве А4 мало отличается от отжига дефектов в сплаве А1, т.е. эффективность этих частиц как стоков (ловушек) вакансий не выше, чем эффективность когерентных частиц Ni₃Al.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В этой работе методом аннигиляции позитронов изучено влияние гомогенно распределенных наноразмерных (1...8 нм) выделений γ' - и обогащенной железом фаз на эволюцию вакансионных дефектов в облученном электронами Fe-Ni-Al-сплаве. В ходе исследования было показано, что присутствие выделений в сплаве приводит к снижению накопления вакансий в несколько раз по сравнению со сплавом, закаленным на твердый раствор. При этом величина этого эффекта в процессе облучения сильно зависит от плотности, размера частиц, а также их типа. Кро-

ме того, эффект снижения накопления вакансий усиливается с увеличением температуры облучения. Также обнаружено, что в сплаве, закаленном на твердый раствор, а также предварительно состаренном при 1023 К, в процессе облучения при 573 К происходит радиационно-индуцированное образование зародышей интерметаллидных частиц типа Ni₃Al.

Работа выполнена по плану РАН (тема № 01.2.006 13394) при частичной поддержке РФФИ (проекты № 07-02-00020 и 07-02-96052)

ЛИТЕРАТУРА

1. K.R. Williams and S.B. Fisher // *Rad. Effects*. 1972, v.15, p. 349-356.
2. W.G. Johnston, J.H. Rosolowski, A.M. Turkalo, T. Lauritzen // *J. Nucl. Mater.* 1974, v.54, p. 24-40.
3. А.М. Паршин. *Структура, прочность и радиационная повреждаемость коррозионно-стойких сталей и сплавов*. Челябинск: «Металлургия», 1988, 655 с.
4. R. Bullough, B.L. Eyre, G.L. Kulcinski // *J. Nucl. Mater.* 1977, v.68, p. 168-178.
5. В.В. Сагарадзе, С.С. Лапин // *ФММ*. 1997, т.83, №4, с. 129-144.
6. А.Н. Орлов, А.М. Паршин, Ю.В. Трушин // *ЖТФ*. 1983, т.53, в.12, с. 2367-2372.
7. A.J. Ardell, B. Mastel, J.J. Laidler // *J. Nucl. Mater.* 1974, v.54, p. 313-324.
8. A.A. Turkin, A.S. Bakai // *J. Nucl. Mater.* 1999, v.270, p. 349-356.
9. M. Eldrup, B.N. Singh // *J. Nucl. Mater.* 2000, v.276, p. 269-277.
10. A.P. Druzhkov, D.A. Perminov, V.L. Arbuzov, N.N. Stepanova, and N.L. Pechorkina // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2004, v.16, p. 6395-6404.
11. A.P. Druzhkov, D.A. Perminov, N.L. Pechorkina // *Phil. Mag.* 2008, v.88, p. 959-976.
12. J. Morillo, C.H. de Novion, and J. Dural // *Radiat. Eff.* 1981, v.55, p. 67-78.
13. А.А. Ремпель, А.Р. Дружков, А.И. Гусев // *ФММ*. 1989, т.68, с. 59-68.
14. V.L. Arbuzov, A.P. Druzhkov, S.E. Danilov // *J. Nucl. Mater.* 2001, v.295, p. 273-280.
15. A.P. Druzhkov, D.A. Perminov, and V.L. Arbuzov // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2006, v.18, p. 365-377.
16. M.J. Puska, P. Lanki, and R.M. Nieminen // *J. Phys.: Condens. Matter*. 1989, v.1, p. 6081-6093.
17. K. Badura-Gergen and H.-E. Schaefer // *Phys. Rev. B*. 1997, v.56, p. 3032-3037.
18. A.J. Ardell, B. Mastel, J.J. Laidler // *J. Nucl. Mater.* 1974, v.54, p. 313-324.
19. Y.Y. Qiu. *Journal of Alloys and Compounds*. 1996, v.232, p. 254-263.

Статья поступила в редакцию 09.09.2008 г.

ДОСЛІДЖЕННЯ МЕТОДОМ ПОЗИТРОННОЇ СПЕКТРОСКОПІ ВПЛИВУ ІНТЕРМЕТАЛІДНИХ НАНОЧАСТОК НА ЕВОЛЮЦІЮ ВАКАНСІЙНИХ ДЕФЕКТІВ У СПЛАВІ Fe-Ni-Al

Д.А. Пермінов, А.П. Дружков, В.Л. Арбузов

Методом позитронної спектроскопії вивчено вплив гомогенно розподілених нанорозмірних (1...8 нм) часток виділень γ' - і збагачених залізом фаз на еволюцію вакансійних дефектів у опроміненому електронами Fe-Ni-Al-сплавів. Показано, що присутність виділень у сплаві призводить до зниження накопичення вакансій у кілька разів у порівнянні зі сплавом, загартованим на твердий розчин. При цьому величина цього ефекту у процесі опромінення сильно залежить від щільності, розміру часток та їх типу. Крім того, ефект зниження накопичення вакансій посилюється із збільшенням температури опромінення. Також виявлено, що у сплаві, загартованому на твердий розчин, і попередньо зістареному при 1023 К, у процесі опромінення при 573 К відбувається радіаційно-індуковане утворення зародків інтерметалідних часток типу Ni_3Al . Обговорюються можливі механізми впливу виділень на поведінку вакансійних дефектів.

POSITRON ANNIHILATION SPECTROSCOPY CHARACTERISATION OF EFFECT OF INTERMETALLIC NANOPARTICLES ON EVOLUTION OF VACANCY DEFECTS IN Fe-Ni-Al ALLOY

D.A. Perminov, A.P. Druzhkov, V.L. Arbuзов

The effect of homogeneously distributed nanosized (1...8 nm) particles of γ' - and Fe-rich phases on the evolution of vacancy defects in electron irradiated Fe-Ni-Al alloy was investigated by positron annihilation spectroscopy. It was shown that presence of precipitates in an alloy leads to decrease in accumulation of vacancies several times in comparison with an alloy quenched on a solid solution. Thus the size of this effect strongly depends on density, the size of particles, and also their type. The effect of nanoparticles increases when the irradiation temperature increases. The irradiation-induced nucleation of intermetallic particles like Ni_3Al was also observed in a quenched on a solid solution and preliminary aged at 1023 K alloys under irradiation at 573 K. Possible mechanisms of influence of precipitates on behavior of vacancy defects are discussed.