

РАССЛОЕНИЕ ИНВАРНОГО СПЛАВА Н36 В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ДОЗЫ И ТЕМПЕРАТУРЫ ЭЛЕКТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ

С.Е. Данилов, В.Л. Арбузов, В.В. Сагарадзе, В.А. Шабашов
Институт физики металлов УрО РАН, г. Екатеринбург, Россия

Методами остаточного электросопротивления и мессбауэровской спектроскопии исследован процесс расслоения твердого раствора в сплаве Н36 при облучении электронами с энергией 5 МэВ при различных температурах. Показано, что радиационно-индуцированное расслоение ниже 340 К ограничивается рекомбинацией радиационных дефектов, а выше 600...650 К – термическими процессами гомогенизации твердого раствора. Степень радиационно-индуцированного расслоения при радиационном повреждении на уровне 10^{-4} сна значительно выше того, что может быть достигнуто термической обработкой, и близка к равновесной. Дополнительное расслоение наблюдается при отжиге накопленных при облучении вакансионных кластеров. Относительная роль вакансионных кластеров уменьшается с повышением температуры и с увеличением дозы облучения.

ВВЕДЕНИЕ

Сплавы системы Fe-Ni являются основой большого класса металлических материалов, которые широко применяются в промышленности. Особенно важны инварные сплавы, в которых при термических обработках могут происходить структурно-фазовые превращения: как расслоение твердого раствора, так и упорядочения образовавшихся при этом фаз типа FeNi и Fe₃Ni [1,2]. Такие радиационно-индуцированные структурно-фазовые превращения (расслоение, упорядочение, разупорядочение и др.) наблюдаются во многих сплавах [1,2,3,4]. Облучение ускоряет эти процессы и позволяет добиться таких состояний, которые недостижимы при обычных термических обработках. Кроме того, образование концентрационных неоднородностей и соответствующих этим неоднородностям полей напряжений может приводить к повышению радиационной стойкости материала в результате усиления рекомбинации [4]. Такая радиационная модификация материалов представляет практический интерес.

Целью данной работы является установление закономерностей радиационно-индуцированного расслоения твердого раствора в зависимости от температуры и дозы облучения в сплаве Н36 и связи их с поведением точечных дефектов.

МАТЕРИАЛ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Сплав Н36, использованный для исследований в данной работе, приготовлен вакуумной переплавкой из чистых компонентов. После прокатки, резки и электрополировки образцы отжигали в вакууме 10^{-6} Па при 1373 К и быстро охлаждали (~100 К/с). Облучения электронами с энергией 5 МэВ на линейном ускорителе при температурах 270...570 К, а также

изохронные отжиги проводили в атмосфере чистого гелия.

В данной работе использовалось измерение остаточного электросопротивления, чувствительного не только к дефектам решетки, но и к изменениям порядка во взаимном расположении атомов компонентов сплава в решетке. Остаточное электросопротивление измеряли стандартным четырехзондовым способом с точностью 0,01 %.

Мессбауэровская спектроскопия дает возможность по среднему магнитному полю на ядре ⁵⁷Fe оценивать концентрацию никеля в твердом растворе, а также оценивать образование высоконикелевой и низконикелевой составляющей при расслоении твердого раствора. Среднее магнитное поле определяли с использованием рассчитанной методом Виндоу функции плотности распределения полей.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 приведены результаты облучения сплава Н36 в закаленном состоянии при различных температурах в диапазоне 270...573 К.

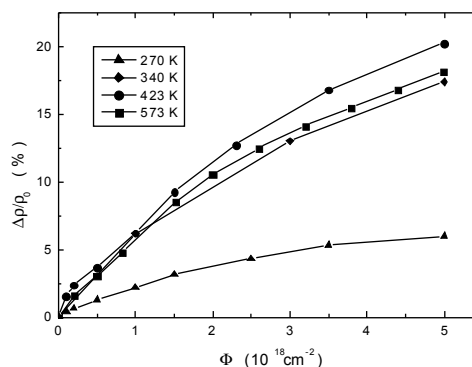


Рис. 1. Относительный прирост остаточного электросопротивления образцов закаленного сплава НЗ6 при облучении при разных температурах

При всех температурах с возрастанием дозы облучения наблюдается рост электросопротивления, причем величина прироста $\Delta\rho/\rho_0$ доходит до 20 %, что по оценкам почти на два порядка превышает возможный прирост сопротивления из-за накопления точечных дефектов.

Такой большой прирост электросопротивления связан с процессом расслоения, который, как было показано в [5], происходит под облучением. Этот процесс обусловлен миграцией точечных дефектов, увеличивающих диффузионную подвижность компонентов сплава. Причем, чем больший путь проходят дефекты перед захватом на ловушках или рекомбинацией, тем большую роль оказывает облучение. Следовательно, видно, что даже при 270 К происходит миграция вакансий. Облучение при криогенных температурах, как мы показывали ранее, когда вакансии неподвижны, не приводит к заметным фазовым изменениям, поскольку неподвижные вакансии служат эффективными стоками для собственных межузлий [6]. При миграции вакансии могут образовывать вакансионные кластеры (ВК), которые, как видно из рис. 1, (например, при $T_{\text{обл.}}=270$ К) приводят к ослаблению расслоения.

На рис. 2 представлены результаты изохронных отжигов образцов сплава, облученных при различных температурах (см. на рис.1.) совместно с результатами отжига необлученного сплава.

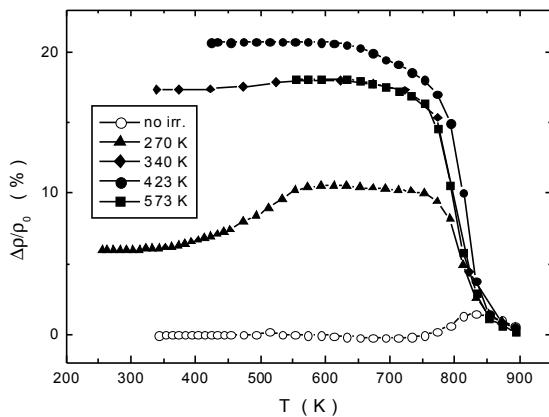


Рис. 2. Изменения остаточного электросопротивления при изохронном отжиге образцов сплава НЗ6 (облученных при различных температурах и необлученного)

При отжиге образцов сплава, облученных при разных температурах, наблюдается дальнейший рост сопротивления в районе 400...500 К, кроме сплава, облученного при 573 К, и необлученного. Очевидно, что этот рост соответствует дальнейшему осуществлению процесса расслоения твердого раствора но уже не вследствие вакансий, генерированных облучением, а вследствие вакансий, образо-

вавшихся при диссоциации ВК. Видно, что рост сопротивления на этом этапе тем больше, чем ниже была температура облучения, что, естественно, соответствует большему количеству вакансий, накопленных в составе ВК. Облучение при 573 К не приводит к образованию ВК. Это связано с тем, что при данной температуре образуются только дислокационные петли, отжиг которых не производит к образованию вакансий [7]. В необлученном сплаве концентрация термических вакансий при этих температурах очень мала.

В районе 700 К начинается спад сопротивления на облученных образцах сплава, а на необлученном сплаве выше 750 К начинается рост сопротивления, сменяющийся также спадом выше 840 К. При этой температуре (840 К) все зависимости электросопротивления, как для облученных при разных температурах образцов сплава, так и для необлученного образца практически ложатся на одну кривую. Здесь идет установление равновесного состояния на всех образцах. Таким образом, можно полагать, что в необлученном сплаве выше 750 К в результате термической диффузии происходит частичное расслоение твердого раствора, что наблюдается и при облучении, а затем, выше 840 К, – обратный процесс, гомогенизация, в соответствии с температурной зависимостью равновесного состояния этого сплава.

Также из рис. 2 можно увидеть, что наибольшая величина расслоения, достигнутая при облучении при 423 К, начинает заметно снижаться уже при 650 К, в отличие от меньших величин расслоения, достигнутых при других температурах облучения. По-видимому, термически равновесное расслоение при повышении температуры снижается, и обратный процесс начинается, естественно, сначала на сплаве, имеющем наибольшее расслоение.

Таким образом, показано, что наблюдаемый рост сопротивления может являться мерой расслоения твердого раствора, наблюдаемого при отжигах, при облучении и при других воздействиях.

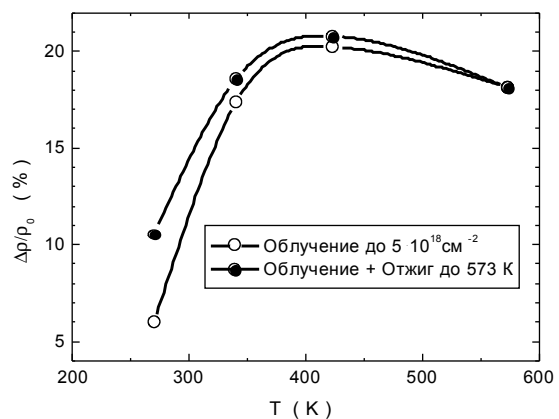


Рис. 3. Температурная зависимость расслоения, достигаемого при облучении и при последующем изохронном отжиге

Температурная зависимость расслоения, которое происходит при облучении до одинаковых доз, и того расслоения, которое достигается при последующем изохронном отжиге, изображены на рис. 3.

Как видно из графиков, наблюдается сильное ослабление радиационно-индуцированного расслоения при низких температурах. Это связано с меньшими диффузионными длинами для мигрирующих вакансий из-за образования эффективных внутренних стоков, ВК и вследствие усиления рекомбинации дефектов. Однако накопление ВК при низких температурах облучения оказывает наибольшее действие при последующем изохронном отжиге, поскольку при этом в составе ВК накапливается наибольшее количество вакансий. Снижение эффекта при высоких температурах (573 К) связано с умень-

шением равновесного расслоения, соответствующего этим температурам, а изменений при отжиге не наблюдается, поскольку ВК при таких температурах просто не образуются.

На рис. 4 изображены результаты исследования с помощью эффекта Мессбауэра образцов этого сплава в закаленном состоянии, в состоянии максимально возможно состаренном в результате термического старения (отжиг 30 мин при 800 К и 4 ч при 750 К) и после электронного облучения до дозы $1,25 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ при 573 К. Полученные зависимости поля на ядре включают в себя основные пики H_1 (270 кЭ) и H_2 (297 кЭ), небольшой пик H_m при 320 кЭ и маленькие пики антиферромагнитного упорядочения при 80...100 кЭ.

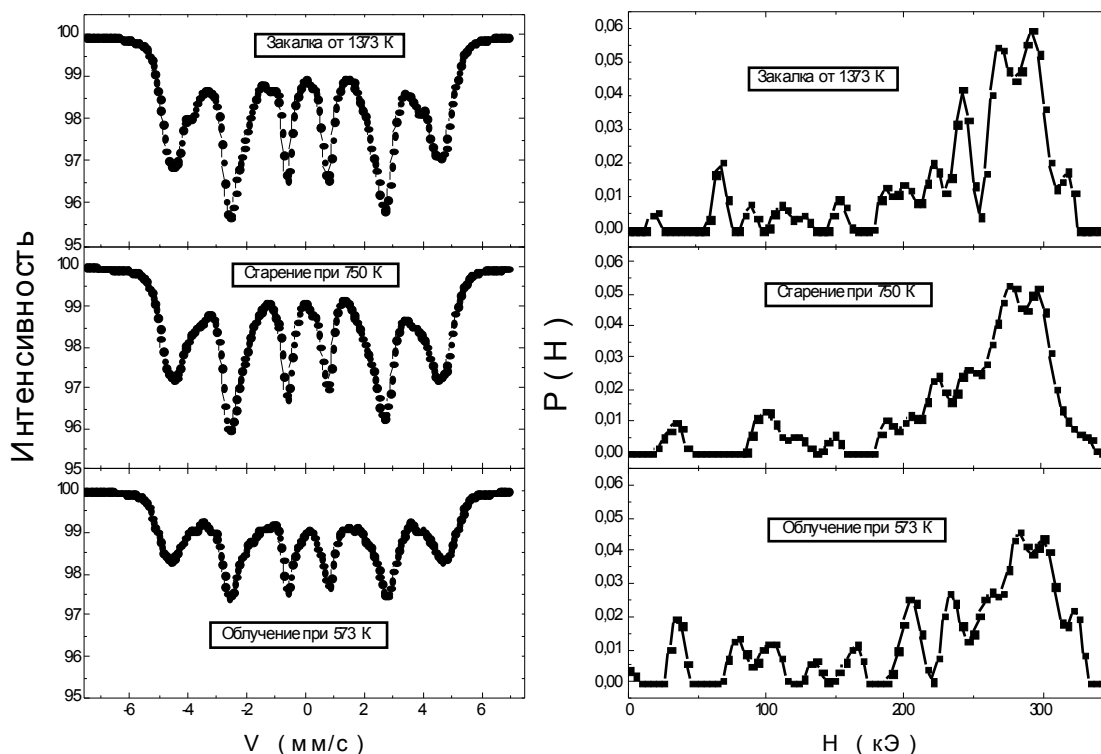


Рис. 4. Данные исследований с помощью эффекта Мессбауэра сплава Ni_{36} в закаленном, состаренном и облученном состояниях

Сравнение полученных зависимостей поля на ядре показывает, что процесс расслоения в отожженном для максимального термического расслоения сплаве (хорошо заметный по электросопротивлению) по данным эффекта Мессбауэра присутствует на уровне неточностей измерения и не может быть однозначно идентифицирован. Однако при облучении происходит уширение линий спектра и появление дополнительных пиков в области малых полей на уровне 30...35 кЭ, вследствие заметного уменьшения основных пиков.

Это однозначно свидетельствует о появлении парамагнитной составляющей, отвечающей обеднен-

ному Ni окружению атомов Fe , т.е. появлению областей расслоения.

Таким образом, на температурной шкале можно выделить три основные области радиационно-индуцированных процессов. До температур 320...340 К преобладают процессы аннигиляции и рекомбинации точечных дефектов; от 340 до 700 К – область эффективного радиационно-индуцированного расслоения; выше 700 К – преобладание термических процессов.

На рис. 5 изображены результаты изохронного отжига образцов сплава, облученных при 340 К до различных доз.

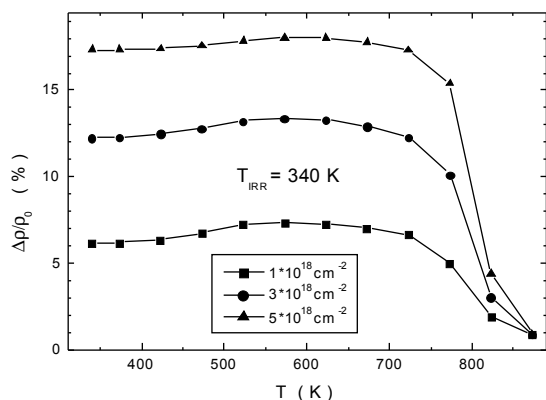


Рис. 5. Изохронный отжиг образцов сплава НЗ6, облученных до разных доз при 340 К

Видно, что графики имеют подобную форму и сходятся вместе, как это и следовало ожидать, в районе 850 К. При этом уровень расслоения, достигаемый при облучении, растет с дозой и дополнительно повышается при последующем отжиге в районе 400...500 К в соответствии с тем, как это описано выше.

Количество вакансий в составе ВК, накопленных при облучении, также увеличивается с увеличением дозы облучения. Однако величина прироста электросопротивления на этом этапе отжига, как это изображено на рис. 6, наоборот, снижается с ростом дозы, особенно при достижении дозы $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$.

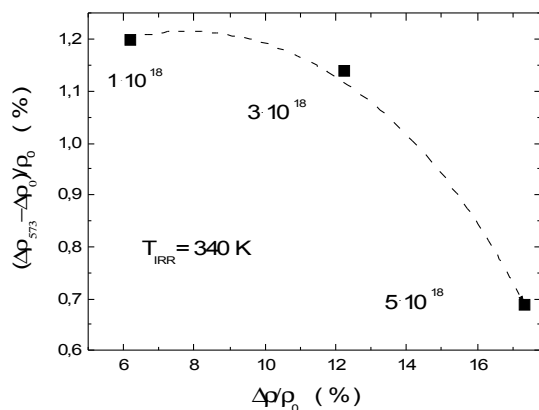


Рис. 6. Зависимость прироста электросопротивления при изохронном отжиге от прироста при облучении для образцов сплава НЗ6, облученных при 340 К до различных доз

Это показывает, что дополнительное расслоение благодаря диссоциации ВК уменьшается с увеличением дозы, несмотря на то, что количество вакансий в образованных ВК увеличивается. Вероятно, при облучении до дозы $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$ при 340 К достигается

степень расслоения, близкая к максимально возможной. Таким образом, эффективность влияния ВК на осуществление радиационно-стимулированного расслоения снижается как с увеличением температуры облучения, так и с увеличением дозы.

ВЫВОДЫ

1. Наблюдающийся рост электросопротивления при облучении сплава НЗ6 связан с процессами расслоения твердого раствора и может служить чувствительным параметром для исследования этого явления.
2. Радиационно-индуцированное расслоение твердого раствора наиболее существенно происходит в интервале 340...650 К. При более низких температурах преобладают процессы рекомбинации и накопления вакансионных кластеров, а при более высоких – термические процессы.
3. Эффективность влияния вакансионных кластеров, образовавшихся при облучении, на процесс расслоения снижается с повышением температуры и дозы облучения.

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.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.
2. А. Chamberod, J. Laugier, J.M. Penisson. Electron irradiation effects on iron-nickel invar alloys // *J. of Magnetism and Magnetic Materials*. 1979, v. 10, p. 139–144.
3. 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.
4. Н.П. Кулиш, Н.А. Мельникова, П.В. Петренко, В.Г. Порошин, В.В. Шлапацкая. Неоднородный ближний порядок в сплавах Ni-Mo и его влияние на аннигиляцию радиационных дефектов // *ВАНТ. Серия ФРИ и РМ*. 2001, №4, с. 34–38.
5. В.В. Сагарадзе, В.А. Шабашов, Т.М. Лапина, В.Л. Арбузов. Фазовые превращения при низкотемпературном облучении электронами в аустенитных Fe-Ni и Fe-Ni-Ti сплавах // *ФММ*. 1994, т. 78, в. 4, с. 88–96.
6. С.Е. Данилов, В.Л. Арбузов, А.П. Дружков, К.В. Шальнов. Отжиг радиационных дефектов в сплавах НЗ6, легированных фосфором и титаном // *ВАНТ. Сер. ФРИ и РМ*. 2000, №4, с. 3–6.
7. V.L. Arbuзов, 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.

**РОЗШАРУВАННЯ ІНВАРНОГО СПЛАВУ Н36
В ЗАЛЕЖНОСТІ ВІД ДОЗИ ТА ТЕМПЕРАТУРИ ЕЛЕКТРОННОГО ОПРОМІНЕННЯ**

С.Е. Данілов, В.Л. Арбузов, В.В. Сагарадзе, В.А. Шабашов

Методами залишкового електроопору та мессбауерівської спектроскопії досліджено процес розшарування твердого розчину в сплаві Н36 при опроміненні електронами з енергією 5 МеВ при різних температурах. Показано, що радіаційно-індуковане розшарування нижче 340 К обмежується рекомбінацією радіаційних дефектів, а вище 600...650К-термічними процесами гомогенізації твердого розчину. Ступінь радіаційно-індукованого розшарування при радіаційному пошкодженні на рівні 10^{-4} зна значно вище того, який може бути досягнутий термічною обробкою та близький до рівноважного. Додаткове розшарування спостерігається при відпалі накопичених при опроміненні вакансійних кластерів. Відносна роль вакансійних кластерів зменшується з підвищенням температури та із зростанням дози опромінення.

**DELAMINATION OF INVAR H 36 IN DEPENDENCE ON DOSE AND TEMPERATURE
OF ELECTRON IRRADIATION**

S.E. Daanilov, V.L. Arbutov, V.V. Sagaradze, V.A. Shabashov

Process of delamination of solid solution in alloy H36 under electron irradiation with energy 5 MeV at different temperatures is investigated by the methods of residual resistance and Messbauer spectroscopy. It is shown that radiation-induced delamination below 340 K is limited by recombination of radiation defects and above 600...650 K – by thermal processes of solid solution homogenization. Degree of radiation-induced delamination under radiation damage on level of 10^{-4} dpa is considerably higher than that induced by thermal treatment and is near to equilibrium. Additional delamination is observed under annealing of radiation-induced vacancy clusters. The relative role of vacancy clusters decreases with increase of temperature and irradiation dose.