

Received: 31.10.2024
Revised: 07.11.2024
Accepted: 22.11.2024
DOI: 10.17804/2410-9908.2024.6.143-151

THE EFFECT OF POINT DEFECT SINKS OF VARIOUS TYPES ON THE RADIATION-INDUCED DECOMPOSITION OF THE SOLID SOLUTION IN THE Fe-Ni INVAR

S. E. Danilov

*M. N. Mikheev Institute of Metal Physics, Ural Branch of the Russian Academy of Sciences,
18 S. Kovalevskoy St., Ekaterinburg, 620137, Russia*

 <https://orcid.org/0000-0001-9815-8196>  danilov@imp.uran.ru

Email: danilov@imp.uran.ru
Address for correspondence: ul. S. Kovalevskoy, 18, Ekaterinburg, 620108, Russia
Tel.: +7 (343) 378-3850

The residual resistivity technique is used to study radiation-induced decomposition in Fe–34.7at.%Ni alloys irradiated with 5 MeV electrons, with different types of sinks for point defects in the form of dislocations and deformation-induced vacancy clusters. It has been found that irradiation at about 300 K results in the formation of vacancy clusters. The dissociation of these clusters during isochronous annealing at temperatures between 350 and 550 K causes freely migrating vacancies and radiation-accelerated ordering in Fe–Ni alloys. As this takes place, two substages of vacancy cluster dissociation are observed, with dissociation energies of 1.2 and 1.5 eV. At temperatures of about 800 K, homogenization of the solid solution occurs. It is shown that the efficiency of dislocation sinks exceeds that of deformation-induced vacancy clusters.

Keywords: irradiation, electrons, residual resistivity, Fe–Ni invar alloy, point defect sinks, solid solution decomposition

Acknowledgment

The research was carried out under the state assignment from the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation (theme “Function”, No 122021000035-6).

References

1. Dimitrov, C. and Dimitrov, O. Composition dependence of defect properties in electron-irradiated Fe–Cr–Ni solid solutions. *Journal of Physics F: Metal Physics*, 1984, 14, 793–811. DOI: 10.1088/0305-4608/14/4/005.
2. Huguenin, D., Moser, P., and Vanoni, F. Vacancy clustering in electron-irradiated FeNiCr austenitic alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 1989, 169, 73–78. DOI: 10.1016/0022-3115(89)90522-9.
3. Chamberod, A., Laugier, J., and Penisson, J.M. Electron irradiation effects on iron-nickel invar alloys. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 1979, 10 (2–3), 139–144. DOI: 10.1016/0304-8853(79)90165-3.
4. Arbuzov, V.L., Druzhkov, A.P., and Danilov, S.E. Effects of phosphorus on defects accumulation and annealing in electron-irradiated Fe–Ni austenitic alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 2001, 295, 273–280. DOI: 10.1016/S0022-3115(01)00505-0.

5. Arbuzov, V.L., Danilov, S.E., Druzhkov, A.P., and Pavlov, V.A. Accumulation and annealing of radiation defects in Fe–Ni and Fe–Ni–P electron-irradiated alloys. *The Physics of Metals and Metallography*, 2000, 89 (4), 373–377.
6. Arbuzov, V.L., Danilov, S.E., Druzhkov, A.P., and Perminov, D.A. The influence of plastic deformation and radiation defects on the structural and phase transformations of N36 and N36T2 austenitic alloys. *The Physics of Metals and Metallography*, 2004, 98 (5), 500–505.
7. Kubashevsky, O. *Iron-Binary Phase Diagrams*, 1982, Springer–Verlag, Verlag Stahleisen, 185 p.

Подана в журнал: 31.10.2024
УДК 539.12.04:621.78: 669.15.24
DOI: 10.17804/2410-9908.2024.6.143-151

ВЛИЯНИЕ СТОКОВ ТОЧЕЧНЫХ ДЕФЕКТОВ РАЗЛИЧНОГО ТИПА НА РАДИАЦИОННО-СТИМУЛИРОВАННЫЙ РАСПАД ТВЕРДОГО РАСТВОРА В Fe–Ni ИНВАРЕ

С. Е. Данилов

*Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт физики металлов имени М. Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук,
ул. С. Ковалевской, 18, Екатеринбург, 620137, Россия*

 <https://orcid.org/0000-0001-9815-8196>  danilov@imp.uran.ru

Электронная почта: danilov@imp.uran.ru
Адрес для переписки: ул. С. Ковалевской, 18, Екатеринбург, 620108, Россия
Тел.: +7 (343) 378-38-50

Методом остаточного электросопротивления исследовано радиационно-стимулированное расслоение в облученных 5 МэВ электронами сплавах Fe–34,7 ат.%Ni с разными типами стоков для точечных дефектов в виде дислокаций и деформационных вакансионных кластеров. Установлено, что при облучении при температуре около 300 К образуются вакансионные кластеры. Диссоциация этих кластеров при изохронных отжигах в районе 350–550 К приводит к появлению свободно мигрирующих вакансий и радиационно-ускоренным процессам упорядочения в сплавах Fe–Ni. При этом наблюдается две подстадии диссоциации вакансионных кластеров с энергиями диссоциации 1,2 и 1,5 эВ. При температурах около 800 К происходит гомогенизация твердого раствора. Показано, что эффективность дислокационных стоков больше чем эффективность деформационных вакансионных кластеров.

Ключевые слова: облучение, электроны, электросопротивление, инварный сплав Fe–Ni, стоки точечных дефектов, расслоение твердого раствора

1. Введение

В сталях и сплавах, в отличие от чистых металлов, под действием облучения развиваются различные радиационно-индуцированные структурно-фазовые превращения, которые, собственно, и определяют изменения свойств материалов в процессе облучения и во многом определяют их радиационную повреждаемость. Аустенитные нержавеющие стали широко используются в качестве конструкционных материалов для компонентов атомных реакторов. Много усилий было приложено, чтобы продлить срок их службы за счет повышения сопротивления распуханию [1, 2]. Сплавы системы Fe–Ni являются важной основой для многих конструкционных сталей. В том числе существует ряд практически важных инварных сплавов с концентрацией никеля на уровне 30–50 %. Вопросы стабильности этих сплавов при различных воздействиях и условия деградации инварности являются важными с практической и научной точек зрения, поскольку эти процессы до конца не ясны. Одной из причин нестабильности обычно называют структурно-фазовые превращения, поскольку при комнатных температурах эти сплавы являются метастабильными [3]. При облучении происходят радиационно-ускоренные процессы, в том числе и структурно фазовые превращения, приводя к таким негативным явлениям, как вакансионное распухание и охрупчивание. Эти процессы непосредственно связаны со свободной миграцией точечных дефектов, генерируемых облучением. При электронном облучении генерируются только отдельные свободно мигрирующие дефекты. Диффузионная длина мигрирующих радиационных дефектов, определяющая

эффективность облучения в осуществлении СФП, зависит от типа и концентрации стоков точечных дефектов.

При температурах 300–600 К диффузионная подвижность атомов мала, поэтому применение традиционных методов, основанных на термических и термомеханических воздействиях, не позволяет достичь состояний, близких к равновесным. Воздействие частицами высоких энергий значительно ускоряет протекание диффузионных процессов вследствие образования большого числа радиационных точечных дефектов – вакансий и междоузельных атомов.

Эффективность облучения в ускорении структурно-фазовых изменений определяется температурой, скоростью генерации дефектов, типом и концентрацией стоков точечных дефектов, которыми могут служить дислокации, вакансионные кластеры, межфазные границы [3]. При расслоении образуются наноразмерные области с различным фазовым составом, границы между которыми, в свою очередь, могут также служить стоками для точечных дефектов. В случае применения облучения для ускорения диффузии было получено, что в районе 500–600 К в сплавах с концентрацией никеля на уровне 30–45 % происходит расслоение на высоконикелевую и низконикелевую фазы, а также упорядочение их по типу FeNi и Fe₃Ni [4].

Было получено, что при расслоении под электронным облучением в сплаве Fe–36%Ni при повышенных температурах наблюдается сильный рост электросопротивления, который может быть использован в качестве индикатора происходящего расслоения. При этом наиболее существенно радиационно-стимулированное расслоение твердого раствора происходит в интервале температур 450–600 К [5].

Целью данной работы было изучение поведения точечных дефектов и их воздействия на процессы расслоения твердого раствора и эволюции образующихся фаз при накоплении и отжиге вакансионных дефектов в сплавах Fe–Ni, а также выяснение влияния различных типов стоков на эти процессы.

2. Методика

Исследования были проведены на сплаве Fe–34,7ат.%Ni, содержащем около 0,01 ат. % углерода, закаленном от 1323 К (З). Из этого сплава пластической деформацией ($\epsilon = 45\%$) был получен сплав с высокой концентрацией дислокационных стоков и стоков в качестве вакансионных кластеров (Д), а путем отжига деформированного сплава при 573 К 0,5 часа – сплав, содержащий только дислокационные стоки (ДО). Кроме того, из закаленного сплава путем старения при 780 К в течение 4 часов был приготовлен состаренный (С) сплав в состоянии частичного термического распада твердого раствора с образованием фазы с большим содержанием железа (согласно фазовой диаграмме).

Облучения 5 МэВ электронами были проведены на этих сплавах при температуре 320 К с целью сравнения действия различного типа стоков на генерируемые электронами точечные дефекты. Образцы стали в облученном и необлученном состоянии отжигали изохронно в гелиевой атмосфере со средней скоростью нагрева 1 К/мин.

В данной работе использовалось измерение остаточного электросопротивления, чувствительного не только к искажениям решетки 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 0,02 нОм·см и точностью не хуже 0,05 %.

3. Результаты и обсуждение

Так как при деформации кроме дислокаций образуются вакансионные кластеры (ВК), для выяснения особенностей дефектной структуры и структурно-фазовых изменений были проведены изохронные отжики. На рис. 1 представлены результаты изохронного отжига необлученных образцов всех четырех типов. В качестве начального значения на верхнем гра-

фике принято электросопротивление сплава в закаленном состоянии $\rho_{\text{закал}}$. В нижней части рисунка изображена дифференцированная зависимость роста электросопротивления деформированного сплава (Д).

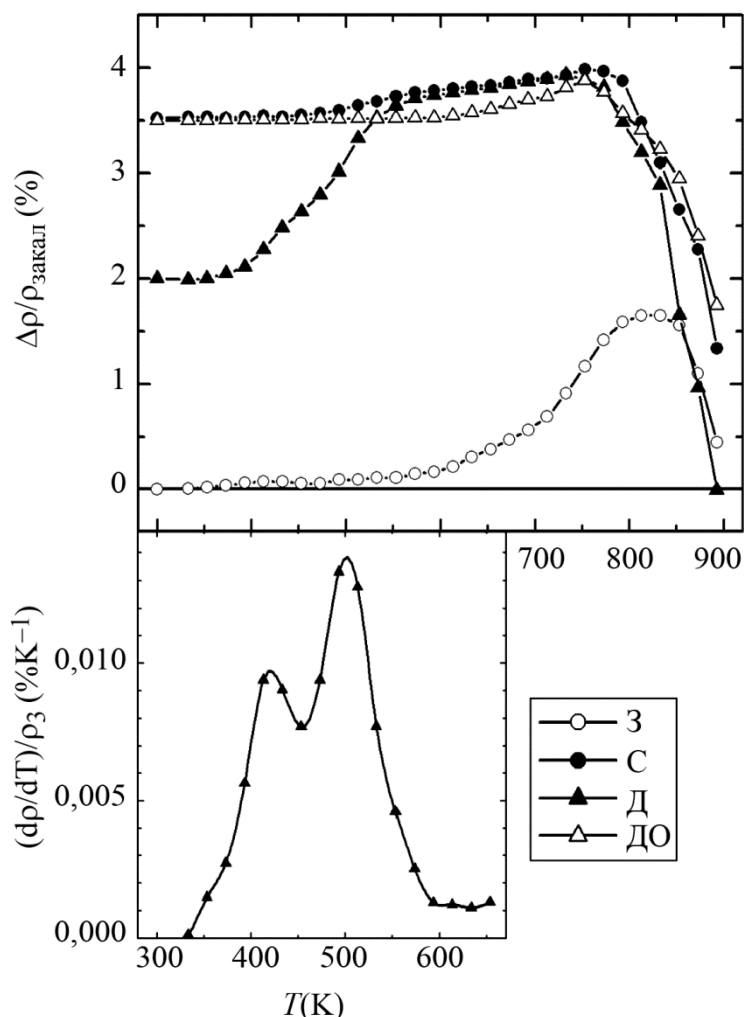


Рис. 1. Изменения электросопротивления стали четырех типов при изохронном отжиге со средней скоростью 1 К/с (без облучения)

Диссоциация деформационных ВК приводит к росту электросопротивления, начиная с 350 К, в сплаве Д. Из дифференцированной кривой видно, что диссоциация деформационных ВК имеет два пика около 400 и 500 К. В сплаве ДО, где для устранения деформационных ВК был проведен отжиг при 573 К, как и следовало ожидать, заметных изменений электросопротивления не происходит до температур 800–850 К, когда, в соответствии с полученными в работе [6] данными, начинается отжиг дислокационной структуры в этом сплаве. В закаленном сплаве 3 сопротивление в районе 650 К начинает расти, что соответствует образованию фазы с высоким содержанием Fe благодаря усилению термической диффузии. Выше 800 К на всех сплавах наблюдается спад электросопротивления, связанный с отжигом дислокаций (рекристаллизация) и процессами гомогенизации твердого раствора [4, 7].

На рис. 2 изображены результаты облучения исследуемых сплавов при температуре облучения 320 К. Вакансии в этих сплавах подвижны и обеспечивают при своей миграции процессы расслоения [5]. При этом они аннигилируют на стоках и участвуют в рекомбинации с межузельными атомами либо, взаимодействуя друг с другом, образуют вакансионные

кластеры (ВК). При движении вакансии приводят к радиационно-индуцированному расслоению твердого раствора.

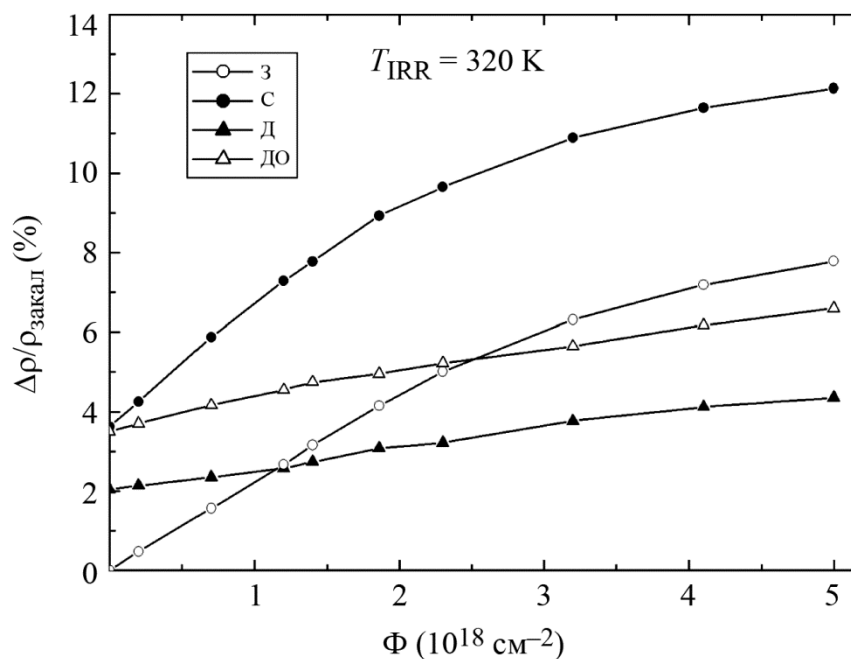


Рис. 2. Результаты изменения остаточного электросопротивления исследуемых сплавов при электронном облучении при 320 К в зависимости от дозы облучения

Видно, что рост остаточного электросопротивления происходит на всех четырех сплавах, но в сплавах, содержащих в силу деформации дислокационную структуру, рост существенно меньше. Это связано с тем, 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 3, в котором концентрация стоков минимальна. Это связано с уменьшением диффузионного пути вакансий. С увеличением дозы облучения эти коэффициенты практически не меняются, что говорит о неизменном влиянии дислокационных стоков. Влияние созданных при деформации вакансионных кластеров незначительно.

Можно оценить среднюю эффективность действия стоков в процессах расслоения. Для дислокаций эффективность стоков $k_d^2 = Z\rho_d$, где Z – коэффициент, учитывающий различие для разных типов точечных дефектов (принимается равным 1), ρ_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 . Полагая, что эффективность влияния стоков пропорциональна диффузионной длине свободного пробега вакансий, считая скорость рекомбинации приблизительно одинаковой, из соотношения эффективностей влияния стоков в этих сплавах при облучении получаем эффективность ВК: $k_v^2 = 6 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$. Такая эффективность деформационных вакансионных кластеров соответствует концентрации ВК $7 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Естественно, что в процессе облучения также образуются ВК. Однако при облучении, например, в сплаве ДО образуется в несколько раз меньше ВК, чем в сплаве 3 [6].

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

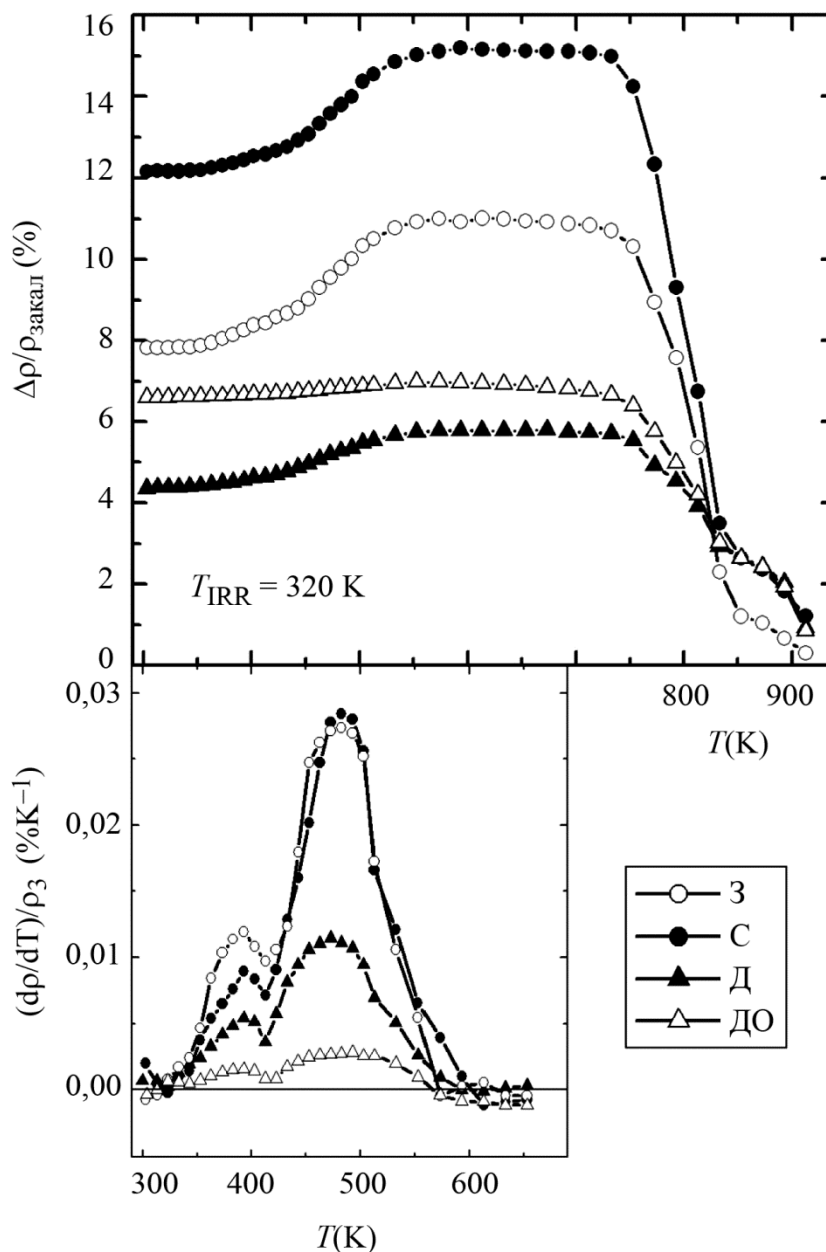


Рис. 3. Изменение остаточного электросопротивления сплавов, облученных при 320 К до дозы $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$. В нижней части рисунка показана дифференцированная зависимость роста электросопротивления на интервале 300–650 К

На рис. 3 представлены результаты изохронного отжига для сплавов, облученных электронами до дозы $5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-2}$. В нижней части рисунка представлены дифференцированные зависимости. Из рисунка видно, что отжиг после облучения приводит к дальнейшему росту электросопротивления, начиная с 350 К, во всех четырех сплавах с максимумом роста около 480 К, причем этот рост наиболее значителен в закаленном и состаренном 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 воздействие освобождающихся вакансий на расслоение твердого раствора в сплавах Д и ДО происходит на фоне высокой концентрации дислокационных стоков, что ограничивает путь миграции вакансий. Существенно боль-

ший 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 показывает, 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.

На дифференцированных кривых на рис. 3, соответствующих дальнейшему расслоению сплавов в результате диссоциации ВК, видно, что кроме основного пика в районе 490 К есть также небольшой пик при 380 К, который виден также и при отжиге необлученного сплава Д (рис. 1). Таким образом, структура ВК не зависит от способа их создания и наличия стоков. Можно оценить энергию диссоциации ВК, соответствующую этим пикам. Она составляет 1,2 эВ для пика при 380 К и 1,5 эВ для пика при 480 К.

4. Заключение

В процессе электронного облучения образованные холодной деформацией дислокации и вакансионные кластеры работают как стоки для радиационных дефектов, причем эффективность дислокационных стоков больше. Вакансионные кластеры, образующиеся при облучении в районе 320 К за счет взаимодействия мигрирующих вакансий друг с другом, и вакансионные кластеры, образованные деформацией, диссоциируют одинаково в диапазоне 400–500 К. Можно выделить два этапа диссоциации с энергиями активации 1,2 и 1,45 эВ. Распад твердого раствора при состаривающем отжиге в районе 780 К с образованием областей с высоким содержанием Fe не приводит к образованию стоков точечных дефектов, но приводит к росту электросопротивления.

Благодарность

Работа выполнена в рамках государственного задания Минобрнауки России (тема «Функция», номер госрегистрации 122021000035-6).

Литература

1. Dimitrov C., Dimitrov O. Composition dependence of defect properties in electron-irradiated Fe–Cr–Ni solid solutions // Journal of Physics F: Metal Physics. – 1984. – Vol. 14. – P. 793–811. – DOI: 10.1088/0305-4608/14/4/005.
2. Huguenin D., Moser P., Vanoni F. Vacancy clustering in electron-irradiated FeNiCr austenitic alloys // Journal of Nuclear Materials. – 1989. – Vol. 169. – P. 73–78. – DOI: 10.1016/0022-3115(89)90522-9.
3. Chamberod A., Laugier J., Penisson J. M. Electron irradiation effects on iron-nickel invar alloys // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 1979. – Vol. 10 (2–3). – P. 139–144. – DOI: 10.1016/0304-8853(79)90165-3.
4. Arbuzov V. L., Druzhkov A. P., Danilov S. E. Effects of phosphorus on defects accumulation and annealing in electron-irradiated Fe–Ni austenitic alloys // Journal of Nuclear Materials. – 2001. – Vol. 295. – P. 273–280. – DOI: 10.1016/S0022-3115(01)00505-0.
5. Accumulation and annealing of radiation defects in Fe–Ni and Fe–Ni–P electron-irradiated alloys / V. L. Arbuzov, S. E. Danilov, A. P. Druzhkov, V. A. Pavlov // The Physics of Metals and Metallography. – 2000. – Vol. 89 (4). – P. 373–377.

6. The influence of plastic deformation and radiation defects on the structural and phase transformations of N36 and N36T2 austenitic alloys / V. L. Arbuzov, S. E. Danilov, A. P. Druzhkov, D.A. Perminov // The Physics of Metals and Metallography. – 2004. – Vol. 98 (5). – P. 500–505.
7. Кубашевски О. Диаграммы состояния двойных систем на основе железа : справочник / пер. с англ. Л. М. Бернштейна ; под ред. Л. А. Петровой. – Москва : Металлургия, 1985. – 183 с.