

Received: 31.10.2024
Revised: 16.12.2024
Accepted: 20.12.2024
DOI: 10.17804/2410-9908.2024.6.203-214

POSITRON ANNIHILATION STUDIES OF VACANCY DEFECT ACCUMULATION IN A COLD-WORKED AGING Fe–Ni–Ti ALLOY

D. A. Perminov

*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/0000-0003-1384-6446>  perminov@imp.uran.ru

Email: perminov@imp.uran.ru

Address for correspondence: ul. S. Kovalevskoy, 18, Ekaterinburg, 620108, Russia
Tel.: +7 (343) 378-3538; fax: +7 (343) 374-5244

The behavior of defects during irradiation in the real structure of iron-nickel alloys, which are model for austenitic stainless steels used in fast-neutron nuclear reactors, is studied by positron annihilation spectroscopy. The study discusses the efficiency of the absorption of point defects (interstitial atoms and vacancies) by dislocations (dislocation bias), as the main reason for vacancy supersaturation in steels, through dislocation pinning by oversized impurities or second-phase precipitates. Such studies are relevant in connection with the problem of the limited use of austenitic steels as structural materials for nuclear reactors due to the susceptibility of steels to vacancy swelling caused by vacancy supersaturation. The cold-worked Fe–Ni alloy is shown to accumulate vacancies under irradiation despite the high dislocation density, this being due to dislocation bias. In the cold-worked aging Fe–Ni–Ti alloy, the accumulation of defects during irradiation is significantly reduced from that of the cold-worked Fe–Ni alloy. Dislocations pinned by Ni₃Ti precipitates have a lower efficiency of the absorption of interstitial atoms than that of free dislocations in the Fe–Ni alloy. Therefore, dislocation bias decreases and mutual recombination of point defects is enhanced. The here-obtained data are applicable to the prediction of radiation-induced damaging of austenitic stainless steels and alloys, as well as to the development of methods for improving their radiation resistance.

Keywords: Fe–Ni alloys, cold-working, aging, electron irradiation, positron annihilation

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. Yvon, P., Le Flem, M., Cabet, C., and Seran, J.L. Structural materials for next generation nuclear systems: challenges and the path forward. *Nuclear Engineering and Design*, 2015, 294, 161–169. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2015.09.015.
2. Was, G.S., Petti, D., Ukai, S., and Zinkle, S. Materials for future nuclear energy systems. *Journal of Nuclear Materials*, 2019, 527, 151837. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2019.151837.
3. Braislford, A.D., Bullough, R. Void growth and its relation to intrinsic point defect properties. *Journal of Nuclear Materials*, 1978, 69–70, 434–450. DOI: 10.1016/0022-3115(78)90259-3.

4. Xiong, Y., Ma, S., Zhang, J., Huang, S., Xu, B., Fu, H., Xiang, X., Lu, W., and Zhao, S. Interactions between irradiation-induced defects and dislocations in concentrated solid solution alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 2024, 597, 155144. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2024.155144.
5. Chang, Z., Sandberg, N., Terentyev, D., Samuelsson, K., Bonny, G., and Olsson, P. Assessment of the dislocation bias in fcc metals and extrapolation to austenitic steels. *Journal of Nuclear Materials*, 2015, 465, 13–19. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.05.042.
6. Casillas-Trujillo, L., Ervin, A.S., Xu, L., Barashev, A., and Xu, H. Dynamics of interaction between dislocations and point defects in bcc iron. *Physical Review Materials*, 2018, 2, 103604. DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.103604.
7. Sato, K., Yoshiie, T., Ishizaki, T., and Xu, Q. Behavior of vacancies near edge dislocations in Ni and α -Fe: positron annihilation experiments and rate theory calculations. *Physical Review B*, 2007, 75, 094109. DOI: 10.1103/PhysRevB.75.094109.
8. Johnston, W.G., Rosolowsky, J.H., Turkalo, A.M., and Lauritzen, T. Nickel-ion bombardment of annealed and cold-worked type 316 stainless steel. *Journal of Nuclear Materials*, 1973, 48 (3), 330–338. DOI: 10.1016/0022-3115(73)90029-9.
9. Brager, H.R. The effect of cold-working and pre-irradiation heat treatment on void formation in neutron-irradiation type 316 stainless steel. *Journal of Nuclear Materials*, 1975, 57 (1), 103–118. DOI: 10.1016/0022-3115(75)90184-1.
10. Kesternich, W. A possible solution of the problem of helium embrittlement. *Journal of Nuclear Materials*, 1985, 127 (2–3), 153–160. DOI: 10.1016/0022-3115(85)90350-2.
11. Mukherjee, P., Sarkar, A., Bhattacharya, M., Gayathri, N., and Barat, P. Post-irradiated microstructural characterisation of cold-worked SS316L by X-ray diffraction technique. *Journal of Nuclear Materials*, 2009, 395 (1–3), 37–44. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2009.09.013.
12. Voronin, V.I., Valiev, E.Z., Berger, I.F., Goschitskii, B.N., Proskurnina, N.V., Sagaradze, V.V., and Kataeva, N.F. Neutron diffraction analysis of Cr–Ni–Mo–Ti austenitic steel after cold plastic deformation and fast neutrons irradiation. *Journal of Nuclear Materials*, 2015, 459, 97–102. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2014.12.123.
13. Druzhkov, A.P. and Perminov, D.A. Positron annihilation studies of microstructural changes in cold-worked Fe–Ni-base aging alloys. *Materials Science and Engineering A*, 2010, 527 (16–17), 3877–3885. DOI: 10.1016/j.msea.2010.03.083.
14. Grafutin, V.I. and Prokopyev, E.P. Positron annihilation spectroscopy in materials structure studies. *Physics-Uspekhi*, 2002, 45, 59–74. DOI: 10.3367/UFNr.0172.200201c.0067.
15. Druzhkov, A.P., Arbuzov, V.L. and Perminov, D.A. Positron annihilation study of effects of Ti and plastic deformation on defect accumulation and annealing in electron-irradiated austenitic steels and alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 2005, 341 (2–3), 153–163. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2005.01.021.
16. Perminov, D.A., Druzhkov, A.P., and Arbuzov, V.L. Effect of heterogeneous distributed intermetallic precipitates on accumulation of vacancy-like defects in irradiated Fe–Ni-based alloys studied by positron annihilation. *Journal of Physics: Conference Series*, 2013, 443, 012035. DOI: 10.1088/1742-6596/443/1/012035.
17. Arbuzov, V.L., Druzhkov, A.P., Pecherkina, N.L., Danilov, S.E., Perminov, D.A., and Sagaradze V.V. Positron-annihilation study of the microstructure evolution in deformed Fe–Ni austenitic alloys containing titanium. *Physics of Metals and Metallography*, 2001, 92 (1), 70–76.
18. Morillo, J., De Novion, C.H., and Dural, J. Neutron and electron radiation defects in titanium and tantalum monocarbides: an electrical resistivity study. *Radiation Effects*, 1981, 55 (1–2), 67–78. DOI: 10.1080/00337578108225467.
19. Rempel, A.A., Druzhkov, A.P., and Gusev, A.I. Positron annihilation in tantalum and its carbide. *Fizika Metallov i Metallovedenie*, 1989, 68 (2), 271–279. (In Russian).
20. Siegel, R.W. Positron annihilation spectroscopy. *Annual Review of Materials Research*, 1980, 10, 393–425. DOI: 10.1146/annurev.ms.10.080180.002141.

21. Dlubek, G., Brümmer, O., and Hensel, E. Positron annihilation investigation for an estimation of the dislocation density and vacancy concentration of plastically deformed polycrystalline Ni of different purity. *Physica Status Solidi (a)*, 1976, 34 (2), 737–746. DOI: 10.1002/pssa.2210340239.
22. Arbuzov, V.L., Danilov, S.E., and Druzhkov, A.P. A Study of the vacancy–impurity interaction in dilute nickel alloys by core electron annihilation. *Physica Status Solidi (a)*, 1997, 162 (2), 567. DOI: 10.1002/1521-396X(199708)162:2<567::AID-PSSA567>3.0.CO;2-2.
23. Dlubek, G., Krause, R., Brummer, O., Michnot, Z., and Gorecki, T. Impurity-induced vacancy clustering in cold-rolled nickel alloys as studied by positron annihilation techniques. *Journal of Physics F: Metal Physics*, 1987, 17, 1333–1347. DOI: 10.1088/0305-4608/17/6/008.
24. Okita, T., Wolfer, W.G., Garner, F.A., and Sekimura, N. Effects of titanium additions to austenitic ternary alloys on microstructural evolution and void swelling. *Philosophical Magazine*, 2005, 85 (18), 2033–2048. DOI: 10.1080/14786430412331331871.

Подана в журнал: 31.10.2024
УДК 669.112.227.1:539.012.043
DOI: 10.17804/2410-9908.2024.6.203-214

ПОЗИТРОННЫЕ АННИГИЛЯЦИОННЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ НАКОПЛЕНИЯ ВАКАНСИОННЫХ ДЕФЕКТОВ В ДЕФОРМИРОВАННОМ СТАРЕЮЩЕМ СПЛАВЕ Fe–Ni–Ti

Д. А. Перминов

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

 <https://orcid.org/0000-0003-1384-6446>  perminov@imp.uran.ru

Электронная почта: perminov@imp.uran.ru
Адрес для переписки: ул. С. Ковалевской, 18, Екатеринбург, 620108, Россия
Тел.: +7 (343) 378-35-38; факс: +7 (343) 374-52-44

Методом позитронной аннигиляционной спектроскопии было исследовано поведение дефектов в процессе облучения в реальной структуре железоникелевых сплавов, которые являются модельными для аустенитных нержавеющей сталей, используемых в ядерных реакторах на быстрых нейтронах. Рассмотрены вопросы эффективности поглощения точечных дефектов (междоузельных атомов и вакансий) дислокациями (дислокационный байес), как главной причины возникновения вакансионного пересыщения в сталях, путем закрепления дислокаций надразмерными примесями или выделениями вторых фаз. Такие исследования актуальны в связи с проблемой ограничения широты использования сталей аустенитного класса в конструкционных материалах ядерных реакторов из-за склонности сталей к вакансионному набуханию, обусловленному вакансионным пересыщением. В результате работы было показано, что в холоднодеформированном сплаве Fe–Ni во время облучения происходит накопление вакансий несмотря на высокую плотность дислокаций, что обусловлено дислокационным байесом. В холоднодеформированном стареющем сплаве Fe–Ni–Ti накопление дефектов во время облучения снижено по сравнению с холоднодеформированным сплавом Fe–Ni. Дислокации, закрепленные преципитатами Ni₃Ti, обладают меньшей эффективностью поглощения междоузельных атомов по сравнению со свободными дислокациями в сплаве Fe–Ni. Благодаря этому снижается байес дислокаций и усиливается взаимная рекомбинация точечных дефектов. Полученные в работе данные могут быть использованы при прогнозировании радиационной повреждаемости аустенитных нержавеющей сталей и сплавов, а также при разработке методов улучшения их радиационной стойкости.

Ключевые слова: сплавы Fe–Ni, холодная деформация, старение, электронное облучение, аннигиляция позитронов

1. Введение

Аустенитные стали и сплавы являются перспективными конструкционными материалами для критических компонентов активной зоны ядерных реакторов на быстрых нейтронах. Они обладают хорошей пластичностью, сопротивлением ползучести при высоких температурах и приемлемой коррозионной стойкостью [1, 2]. Основным недостатком этих сплавов является их склонность к вакансионному набуханию (увеличению линейных размеров),

индуцированному облучением. Размерные изменения, вызванные распуханием, существенно ограничивают срок службы компонентов в реакторах.

Вакансионное распухание связано с образованием в сплавах скоплений вакансионных дефектов (микропор, вакансионных петель, газовых пузырьков), которое обусловлено возникающим при облучении вакансионным пересыщением. При облучении сплавов высокоэнергетическими частицами образуется одинаковое число точечных дефектов – вакансий и междоузельных атомов (МА). Образовавшиеся дефекты либо рекомбинируют друг с другом, либо отжигаются на стоках, основными из которых являются дислокации [3]. Известно, что эффективность поглощения вакансий и МА дислокациями различается, что обусловлено разницей в подвижности точечных дефектов, а также в энергии связи дефектов с дислокацией [4–7]. Различие в эффективности поглощения дефектов дислокациями (дислокационный байес) является главной причиной возникновения вакансионного пересыщения.

Вакансионное пересыщение можно снизить, если ввести в сталь дополнительные стоки для точечных дефектов, в частности краевые дислокации, с помощью пластической деформации [8–10]. При достаточно большом количестве стоков образующиеся при облучении точечные дефекты будут полностью поглощаться ими, и влияние байеса будет малозначительным. Однако полностью подавить байес даже при высоких степенях деформации не удастся, и даже небольшой эффект байеса приводит к распуханию сталей при больших дозах облучения (десятки смещений на атом). Кроме того, наличие байеса приводит к переползанию дислокаций, в результате чего исходная дислокационная структура существенно изменяется и эффект деформации значительно снижается [11, 12]. Стабилизировать дислокационную структуру можно, создав препятствия для движения дислокаций, такие как надразмерные примеси и выделения вторых фаз (преципитаты). В качестве таких препятствий, в частности, могут выступать ультрадисперсные интерметаллические выделения, которые образуются в стареющих сплавах, легированных титаном. Как было показано нами в работе [13], эти выделения прочно закрепляют дислокации и тем самым блокируют их движение. Кроме того, расположенные на линиях дислокаций преципитаты могут влиять на взаимодействие точечных дефектов с дислокациями [3].

Целью данной работы было исследование накопления вакансионных дефектов при электронном облучении в сплавах на основе Fe–Ni в различных исходных состояниях (отожженных, холоднодеформированных). Эти сплавы являются модельными материалами для нержавеющей сталей, используемых в реакторах на быстрых нейтронах. Для создания дефектов использовалось облучение электронами, которое генерирует в материалах однородно распределенные пары Френкеля. При электронном облучении, в отличие от нейтронного, в большом количестве образуются свободно мигрирующие точечные дефекты (междоузельные атомы и вакансии). Образование свободно мигрирующих дефектов позволяет эффективно изучать их взаимодействие со стоками, легирующими добавками и другими особенностями микроструктуры, присутствующими в исследуемых материалах. Дефектная структура облученных сплавов изучалась с помощью позитронной аннигиляционной спектроскопии (ПАС), которая широко используется для исследования поведения вакансионных дефектов и дислокаций при различных видах воздействия [14]. Экспериментальные результаты наших исследований были опубликованы в работах [15, 16]. В данной работе проведен анализ полученных данных с целью определения влияния интерметаллидных выделений, присутствующих на дислокациях, на накопление вакансионных дефектов в исследуемых сплавах.

2. Материал и методика

В работе исследовались сплавы Fe–35,3ат. %Ni (Fe–Ni) и Fe–35,2ат. %Ni–2,9ат. %Ti (Fe–Ni–Ti). Сплав Fe–Ni–Ti является стареющим. В нем в процессе отжига при температурах

выше 700 К происходит образование когерентных частиц Ni_3Ti [13, 17]. После прокатки, резки и электрохимической полировки образцы сплавов в виде пластин размером $10 \times 10 \times 0,2 \text{ мм}^3$ подвергались отжигу в вакууме 10^{-5} Па при 1373 К в течение 1 ч, а затем быстрому охлаждению в воде вместе с кварцевой трубкой (серия О). Режимы отжига и закалки подбирались таким образом, чтобы исключить образование интерметаллидных выделений в сплаве Fe–Ni–Ti при охлаждении.

Часть образцов сплавов были деформированы прокаткой на 40 % при комнатной температуре. После холодной обработки сплавы были отожжены при 650 К в течение 1 ч с целью отжига вакансионных дефектов, образовавшихся при деформации (серия Д) [13,17]. Микроструктура отожженных и деформированных образцов была аттестована на просвечивающем электронном микроскопе (ПЭМ) марки JEM-200 CX при ускоряющем напряжении 160 кВ. Образцы сплавов серии О имели размер зерен $\sim 30 \text{ мкм}$ и плотность дислокаций около 10^{11} м^{-2} . В образцах сплавов серии Д в процессе деформации формировалась полосчатая субзеренная структура. Субзерна, вытянутые в длину, имели ширину от 50 до 400 нм. Дислокации в субзернах образовывали ячеисто-сетчатые конфигурации. Средняя плотность дислокаций внутри субзерен составляла около $9 \cdot 10^{14} \text{ м}^{-2}$. Результаты работы [17] также показали, что в сплаве Fe–Ni–Ti в процессе отжига вакансионных дефектов происходит сегрегация атомов титана и образование интерметаллидных выделений Ni_3Ti на дислокациях. Определить размер и плотность частиц выделений с помощью ПЭМ не удалось на фоне высокой плотности дислокаций.

Наличие одной аустенитной фазы в образцах проверялось рентгеноструктурным анализом на рентгеновском дифрактометре ДРОН-2. Рентгеноструктурный анализ образцов показал наличие в них 100 % аустенитной фазы. Деформационный мартенсит не образуется в них при комнатной температуре.

Образцы сплавов серий О и Д облучались электронами с энергией 5 МэВ в линейном ускорителе ЛУЭ-25 при комнатной температуре. Средний ток пучка электронов составлял 10 мкА, площадь облучения – $10 \times 10 \text{ мм}^2$. Образцы облучались до флюенса электронов $5 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$, что соответствует повреждающей дозе $5 \cdot 10^{-4} \text{ сна}$ (смещений на атом), рассчитанной по модифицированной модели Кинчина – Пиза [18]. Скорость набора дозы была $\sim 10^{-9} \text{ сна/с}$.

Диагностика дефектной структуры облученных сплавов проводилась методом угловой корреляции аннигиляционного излучения (УКАИ), который является одним из методов ПАС [14]. Метод УКАИ был реализован в одномерном спектрометре УКАИ с длиннощелевой геометрией. В качестве детекторов гамма-квантов в спектрометре используются сцинтилляционные датчики с кристаллами NaJ(Tl). Угловой размер детекторов $1 \times 160 \text{ мрад}$ обеспечивался коллиматорами, расположенными перед детекторами. Угловое разрешение спектрометра (полная ширина на полувысоте) составляло 1,57 мрад [19]. Использовался источник позитронов на основе радионуклида ^{68}Ge активностью 400 МБк. Измерения УКАИ проводились при комнатной температуре.

Спектры УКАИ представляют собой зависимость скорости счета совпадений от угла θ (θ – отклонение аннигиляционных гамма-квантов от антиколлинеарности). Угол $\theta = p_z/m_0c$, где p_z – поперечная (относительно направления разлета аннигиляционных квантов) компонента импульса пары «электрон – позитрон», m_0 – масса покоя электрона, c – скорость света. Все спектры УКАИ были зарегистрированы в диапазоне углов θ от $-6,0 \text{ мрад}$ до $+25 \text{ мрад}$ с шагом 0,5 мрад. Общее количество совпадений в каждом спектре находилось в диапазоне 10^5 – 10^6 отсчетов. Отношение пика к фону составило $\sim 10^3$. Подробное описание измерений и процедур обработки спектров УКАИ представлено в работе [19]. Значения критерия согласия (χ^2/ν) для спектров не превышали 1,2, что говорит об удовлетворительном результате их обработки.

Изменения формы спектров УКАИ характеризовались стандартным S -параметром [20]. S -параметр был определен как отношение суммы совпадений в области низких значений импульса ($p_z \leq 3,5 \cdot 10^{-3} m_0 c$) спектра к общему количеству совпадений. S -параметр увеличивается, когда позитроны захватываются дефектами (вакансиями и дислокациями). Согласно модели трех состояний позитронов, S -параметр связан с концентрацией вакансий C_0 , присутствующих в образцах, как [21]:

$$C_0 = \frac{\lambda_f (S - S_f) + \mu_d \rho_d (S - S_d)}{\mu_v (S_j - S)}, \quad (1)$$

где λ_f – скорость аннигиляции позитронов в объемном (свободном) состоянии; μ_d и μ_v – удельные скорости захвата позитронов для дислокаций и вакансий соответственно; S_f , S_d и S_j – значения S -параметра, характерные для аннигиляции позитронов из объемного (свободного) и захваченного дислокациями и вакансионными дефектами состояний соответственно. Для расчета использовались следующие значения характеристик аннигиляции, полученные в работах [13, 15, 17, 21]: $\lambda_f = 9 \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$, $\mu_d = 1,2 \cdot 10^{-4} \text{ м}^2/\text{с}$, $\mu_v = 2,2 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1}$, $S_f = 0,526$, $S_d = 0,574$, $S_j = 0,605$.

3. Результаты и обсуждение

На рис. 1 представлены зависимости S -параметра от флюенса электронов для исследуемых сплавов серий О и Д.

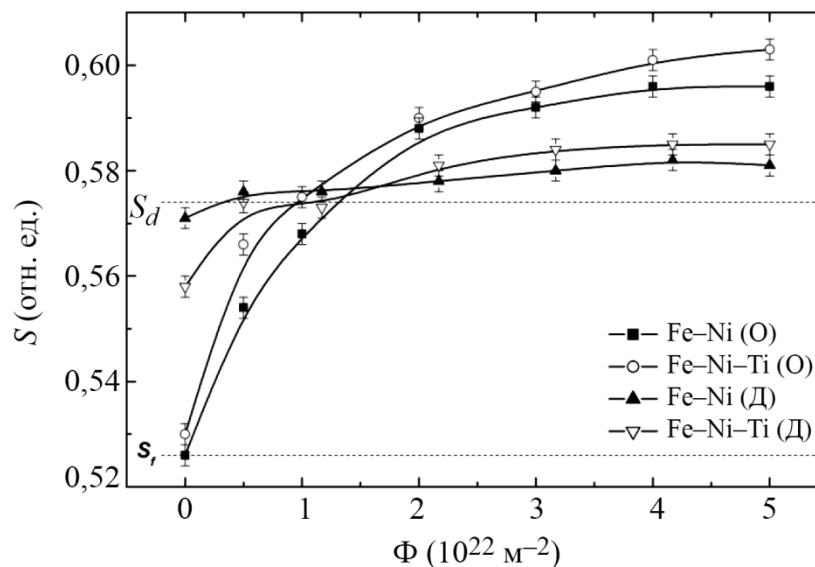


Рис. 1. Зависимость S -параметра от флюенса электронов для сплавов Fe–Ni и Fe–Ni–Ti с различной исходной микроструктурой

Для сплавов серии О исходные значения S -параметра совпадают с величиной S_f . Это указывает на то, что концентрация дефектов в этих сплавах находится ниже предела чувствительности ПАС (10^{-6} на атом для вакансий, 10^{11} м^{-2} для дислокаций). С увеличением флюенса значения S -параметра для этих образцов возрастают, что указывает на захват позитронов дефектами вакансионного типа. Ранее нами было показано [15, 16], что в этих сплавах вакансии подвижны при комнатной температуре и при облучении образуют вакансионные кластеры (ВК) трехмерной конфигурации, которые и являются центрами захвата позитронов.

тронов. Следует отметить, что для сплава Fe–Ni–Ti(O) рост S -параметра с увеличением флюенса превышает рост S -параметра для сплава Fe–Ni(O).

В сплавах серии Д исходные значения S -параметра превышают уровень S_f , что связано с захватом позитронов присутствующими в сплавах дислокациями [13, 17]. Для сплава Fe–Ni значение S -параметра совпадает с уровнем S_d , что обусловлено высокой плотностью дислокаций, присутствующих в сплаве, близкой к уровню насыщения ПАС (10^{15} м^{-2}). Для сплава Fe–Ni–Ti(Д) исходное значение S -параметра лежит ниже уровня S_d . Как было показано нами ранее [13, 17], присутствующие на дислокациях интерметаллидные частицы Ni_3Ti блокируют захват позитронов дислокациями и, таким образом, снижают чувствительность позитронов к дислокациям.

С ростом флюенса для обоих сплавов серии Д наблюдается рост S -параметра, указывающий на захват позитронов ВК. В тоже время величина прироста S -параметра в этих образцах значительно меньше, чем в образцах серии О.

Из полученных данных были рассчитаны концентрации вакансий C_0 , присутствующих в сплавах после облучения до различных флюенсов. Следует отметить, что, как уже было сказано выше, в сплаве Fe–Ni–Ti чувствительность позитронов к дислокациям снижена. Чувствительность позитронов к дислокациям определяется удельной скоростью захвата μ_d . Величина μ_d для сплава Fe–Ni–Ti(Д) определялась по модели захвата позитронов (1) по величине S -параметра для необлученного образца. Полученное значение $\mu_d^{\text{Ti}} = 2,1 \cdot 10^{-5} \text{ м}^2/\text{с}$ использовалось при расчетах концентрации вакансий для этого сплава.

Следует также отметить, что вакансии в сплавах образуют трехмерные ВК. В этом случае полученные значения C_0 соответствуют концентрации вакансий, объединенных в кластеры. Результаты расчетов представлены на рис. 2.

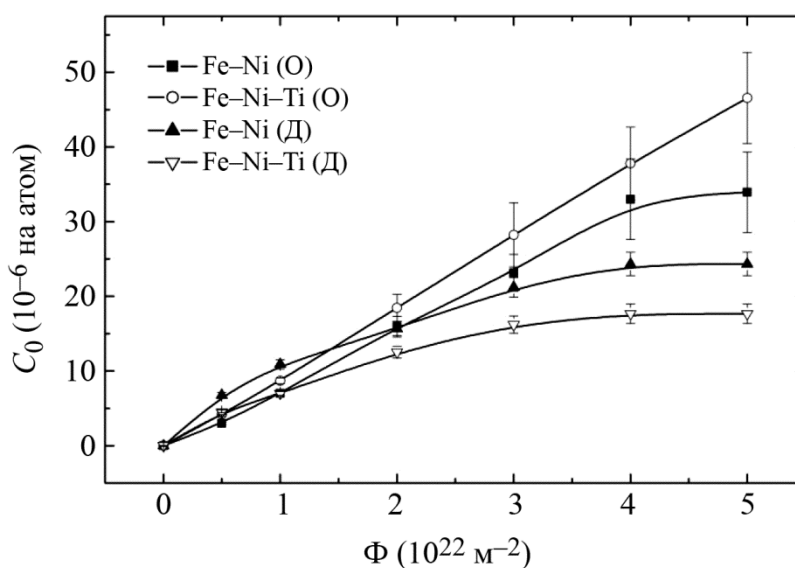


Рис. 2. Зависимость концентрации вакансий от флюенса электронов для сплавов Fe–Ni и Fe–Ni–Ti с различной исходной микроструктурой

Как видно из рисунка, в облученных образцах сплавов с ростом флюенса происходит накопление вакансионных дефектов независимо от исходной микроструктуры. Образование ВК обусловлено особенностями в поведении образовавшихся при облучении точечных дефектов. Поведение точечных дефектов в сплавах схематически показано на рис. 3.

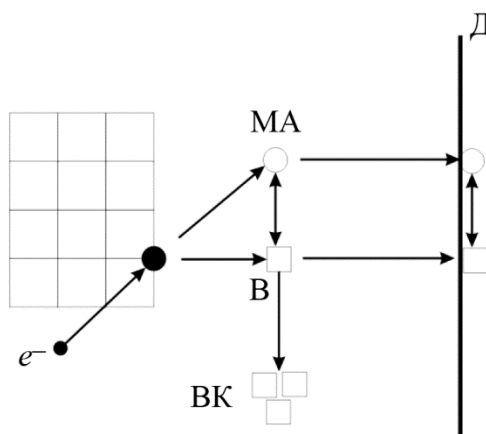


Рис. 3. Схематическое представление поведения дефектов в деформированных сплавах:
 e^- – электрон; МА – междоузельный атом; В – вакансия; ВК – вакансионный кластер;
Д – дислокация

Как было сказано во введении, при облучении электронами формируются простые пары Френкеля – вакансия и междоузельный атом (МА). После образования большая часть таких пар исчезает в результате их взаимной рекомбинации. Оставшиеся после этого точечные дефекты либо отжигаются на стоках, либо объединяются с другими дефектами своего типа и таким образом формируют комплексы дефектов различного рода – вакансионные кластеры, петли вакансионного типа, петли междоузельного типа и др. Междоузельные атомы в ГЦК сплавах обладают высокой подвижностью уже при комнатной температуре и благодаря этому эффективно отжигаются на стоках [22]. Вследствие этого их мгновенная концентрация, т. е. концентрация в каждый момент времени, крайне мала, из-за чего их объединения и образования комплексов МА при облучении не происходит. При этом МА могут свободно диффундировать вдоль линии дислокации и взаимодействовать с другими дефектами, захваченными той же дислокацией. Вакансии, в свою очередь, обладают значительно меньшей подвижностью при комнатной температуре, чем МА, и не так эффективно отжигаются на стоках. Благодаря этому их мгновенная концентрация становится достаточной для того, чтобы вакансии могли объединяться в ВК. При этом эффективность поглощения дислокациями вакансий будет ниже, чем эффективность поглощения МА. Данный эффект является одной из главных причин возникновения байеса дислокаций при данной температуре облучения [4–6].

В сплаве Fe–Ni–Ti(O) накопление вакансий происходит более интенсивно, чем в сплаве Fe–Ni(O). Атомы титана являются надразмерной примесью в данном сплаве. Благодаря этому они захватывают мигрирующие вакансии с образованием комплексов «вакансия – атом титана». Энергия связи таких комплексов довольно мала ($\approx 0,08$ эВ [23]), поэтому при комнатной температуре такие комплексы нестабильны и через некоторое время распадаются на атом примеси и свободно мигрирующую вакансию [24]. Однако в результате такого взаимодействия снижается подвижность вакансий, что приводит к усилению байеса и накопления вакансий при облучении.

В сплаве Fe–Ni(D) накопление вакансий при повышенных флюенсах ($\Phi \geq 2 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$) снижено по сравнению со сплавом Fe–Ni(O). Увеличение плотности дислокаций (с 10^{11} м^{-2} для Fe–Ni(O) до 10^{15} м^{-2} для Fe–Ni(D)) и уменьшение среднего расстояния между ними (от ~ 1 мкм до ~ 10 нм соответственно) приводят к тому, что вакансии более эффективно отжигаются на стоках. В результате этого снижается мгновенная концентрация вакансий, и вместе с ней снижается и вероятность образования трехмерных ВК. Тем не менее, полностью подавить образование ВК при комнатной температуре в этом сплаве не удастся.

В сплаве Fe–Ni–Ti(Д) накопление ВК подавлено по сравнению со сплавом Fe–Ni(Д). Как было сказано выше, взаимодействие вакансий с атомами титана в отожженном сплаве приводит к увеличению образования ВК при облучении. Снижение накопления вакансий в деформированном сплаве вызвано усилением взаимной рекомбинации вакансий с МА, которое, в свою очередь, обусловлено снижением эффективности поглощения МА дислокациями. Механизм этого эффекта подробно описан в работе [3] и представлен на рис. 4.

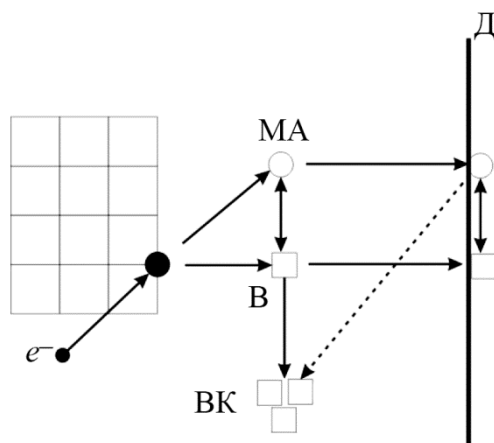


Рис. 4. Схематическое представление поведения дефектов в деформированных сплавах с закрепленными дислокациями: e^- – электрон; МА – междоузельный атом; В – вакансии; ВК – вакансионный кластер; Д – дислокация

Согласно модели, представленной в работе [3], закрепленные дислокации обладают ограниченной емкостью для точечных дефектов. Когда все доступные места на дислокации заняты, вновь пришедшие МА дислокация уже не может поглотить. Эти МА возвращаются обратно в материал и поглощаются присутствующими там ВК (рис. 4). Благодаря этому снижается байес дислокаций по отношению к МА и подавляется накопление вакансий в сплаве при облучении.

4. Заключение

В работе методом УКАИ было исследовано накопление вакансионных дефектов в отожженных и деформированных сплавах Fe–Ni и Fe–Ni–Ti в процессе облучения при комнатной температуре. В результате работы было установлено следующее. В холоднодеформированном сплаве Fe–Ni во время облучения происходит накопление вакансий, несмотря на высокую плотность дислокаций. Это обусловлено разной эффективностью поглощения дислокациями междоузельных атомов и вакансий (дислокационный байес). В холоднодеформированном сплаве Fe–Ni–Ti накопление дефектов во время облучения снижено по сравнению с холоднодеформированным сплавом Fe–Ni. Дислокации, закрепленные преципитатами Ni_3Ti , обладают меньшей эффективностью поглощения МА по сравнению со свободными дислокациями в сплаве Fe–Ni. Благодаря этому снижается байес дислокаций и усиливается взаимная рекомбинация точечных дефектов. Полученные в работе данные могут быть использованы при прогнозировании радиационной повреждаемости аустенитных нержавеющей сталей и сплавов, а также при разработке методов улучшения их радиационной стойкости.

Благодарность

Работа выполнена в рамках государственного задания Минобрнауки России (тема «Функция», № 122021000035-6).

Литература

1. Structural materials for next generation nuclear systems: challenges and the path forward / P. Yvon, M. Le Flem, C. Cabet, J. L. Seran // Nuclear Engineering and Design. – 2015. – Vol. 294. – P. 161–169. – DOI: 10.1016/j.nucengdes.2015.09.015.
2. Materials for future nuclear energy systems / G. S. Was, D. Petti, S. Ukai, S. Zinkle // Journal of Nuclear Materials. – 2019. – Vol. 527. – P. 151837. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2019.151837.
3. Braislford A. D., Bullough R. Void growth and its relation to intrinsic point defect properties // Journal of Nuclear Materials. – 1978. – Vols. 69–70. – P. 434–450. – DOI: 10.1016/0022-3115(78)90259-3.
4. Interactions between irradiation-induced defects and dislocations in concentrated solid solution alloys / Y. Xiong, S. Ma, J. Zhang, S. Huang, B. Xu, H. Fu, X. Xiang, W. Lu, S. Zhao // Journal of Nuclear Materials. – 2024. – Vol. 597. – P. 155144. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2024.155144.
5. Assessment of the dislocation bias in fcc metals and extrapolation to austenitic steels / Z. Chang, N. Sandberg, D. Terentyev, K. Samuelsson, G. Bonny, P. Olsson // Journal of Nuclear Materials. – 2015. – Vol. 465. – P. 13–19. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.05.042.
6. Dynamics of interaction between dislocations and point defects in bcc iron / L. Casillas-Trujillo, A. S. Ervin, L. Xu, A. Barashev, H. Xu // Physical Review Materials. – 2018. – Vol. 2. – P. 103604. – DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.103604.
7. Behavior of vacancies near edge dislocations in Ni and α -Fe: positron annihilation experiments and rate theory calculations / K. Sato, T. Yoshiie, T. Ishizaki, Q. Xu // Physical Review B. – 2007. – Vol. 75. – P. 094109. – DOI: 10.1103/PhysRevB.75.094109.
8. Nickel-ion bombardment of annealed and cold-worked type 316 stainless steel / W. G. Johnston, J. H. Rosolowsky, A. M. Turkalo, T. Lauritzen // Journal of Nuclear Materials. – 1973. – Vol. 48 (3). – P. 330–338. – DOI: 10.1016/0022-3115(73)90029-9.
9. Brager H. R. The effect of cold-working and pre-irradiation heat treatment on void formation in neutron-irradiation type 316 stainless steel // Journal of Nuclear Materials. – 1975. – Vol. 57 (1). – P. 103–118. – DOI: 10.1016/0022-3115(75)90184-1.
10. Kesternich W. A possible solution of the problem of helium embrittlement // Journal of Nuclear Materials. – 1985. – Vol. 127 (2–3). – P. 153–160. – DOI: 10.1016/0022-3115(85)90350-2.
11. Post-irradiated microstructural characterisation of cold-worked SS316L by X-ray diffraction technique / P. Mukherjee, A. Sarkar, M. Bhattacharya, N. Gayathri, P. Barat // Journal of Nuclear Materials. – 2009. – Vol. 395 (1–3). – P. 37–44. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2009.09.013.
12. Neutron diffraction analysis of Cr–Ni–Mo–Ti austenitic steel after cold plastic deformation and fast neutrons irradiation / V. I. Voronin, E. Z. Valiev, I. F. Berger, B. N. Goschitskii, N. V. Proskurnina, V. V. Sagaradze, N. F. Kataeva // Journal of Nuclear Materials. – 2015. – Vol. 459. – P. 97–102. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2014.12.123.
13. Druzhkov A. P., Perminov D. A. Positron annihilation studies of microstructural changes in cold-worked Fe–Ni-base aging alloys // Materials Science and Engineering: A. – 2010. – Vol. 527 (16–17). – P. 3877–3885. – DOI: 10.1016/j.msea.2010.03.083.
14. Grafutin V. I., Prokopyev E. P. Positron annihilation spectroscopy in materials structure studies // Physics-Uspekhi. – 2002. – Vol. 45. – P. 59–74. – DOI: 10.3367/UFNr.0172.200201c.0067.
15. Druzhkov A. P., Arbuzov V. L., Perminov D. A. Positron annihilation study of effects of Ti and plastic deformation on defect accumulation and annealing in electron-irradiated austenitic steels

and alloys // *Journal of Nuclear Materials*. – 2005. – Vol. 341 (2–3). – P. 153–163. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2005.01.021.

16. Perminov D. A., Druzhkov A. P., Arbuzov V. L. Effect of heterogeneous distributed inter-metallic precipitates on accumulation of vacancy-like defects in irradiated Fe–Ni-based alloys studied by positron annihilation // *Journal of Physics: Conference Series*. – 2013. – Vol. 443. – P. 012035. – DOI: 10.1088/1742-6596/443/1/012035.

17. Positron-annihilation study of the microstructure evolution in deformed Fe–Ni austenitic alloys containing titanium / V. L. Arbuzov, A. P. Druzhkov, N. L. Pecherkina, S. E. Danilov, D. A. Perminov, V. V. Sagaradze // *Physics of Metals and Metallography*. – 2001. – Vol. 92 (1). – P. 70–76.

18. Morillo J., De Novion C. H., Dural J. Neutron and electron radiation defects in titanium and tantalum monocarbides: an electrical resistivity study // *Radiation Effects*. – 1981. – Vol. 55 (1–2). – P. 67–78. – DOI: 10.1080/00337578108225467.

19. Ремпель А. А., Дружков А. П., Гусев А. И. Аннигиляция позитронов в тантале и его карбиде // *Физика металлов и металловедение*. – 1989. – Т. 68 (2). – С. 271–279.

20. Siegel R. W. Positron annihilation spectroscopy // *Annual Review of Materials Research*. – 1980. – Vol. 10. – P. 393–425. – DOI: 10.1146/annurev.ms.10.080180.002141.

21. Dlubek G., Brümmer O., Hensel E. Positron annihilation investigation for an estimation of the dislocation density and vacancy concentration of plastically deformed polycrystalline Ni of different purity // *Physica Status Solidi (a)*. – 1976. – Vol. 34 (2). – P. 737–746. – DOI: 10.1002/pssa.2210340239.

22. Arbuzov V. L., Danilov S. E., Druzhkov A. P. A study of the vacancy–impurity interaction in dilute nickel alloys by core electron annihilation // *Physica Status Solidi (a)*. – 1997. – Vol. 162 (2). – P. 567. – DOI: 10.1002/1521-396X(199708)162:2<567::AID-PSSA567>3.0.CO;2-2.

23. Impurity-induced vacancy clustering in cold-rolled nickel alloys as studied by positron annihilation techniques / G. Dlubek, R. Krause, O. Brummer, Z. Michnot, T. Gorecki // *Journal of Physics F: Metal Physics*. – 1987. – Vol. 17. – P. 1333–1347. – DOI: 10.1088/0305-4608/17/6/008.

24. Effects of titanium additions to austenitic ternary alloys on microstructural evolution and void swelling / T. Okita, W. G. Wolfer, F. A. Garner, N. Sekimura // *Philosophical Magazine*. – 2005. – Vol. 85 (18). – P. 2033–2048. – DOI: 10.1080/14786430412331331871.