

РАЗДЕЛ ВТОРОЙ ФИЗИКА РАДИАЦИОННЫХ ПОВРЕЖДЕНИЙ И ЯВЛЕНИЙ В ТВЕРДЫХ ТЕЛАХ

УДК 669.3.004

ВЛИЯНИЕ ИСХОДНОЙ МИКРОСТРУКТУРЫ НА НАКОПЛЕНИЕ И ОТЖИГ РАДИАЦИОННЫХ ДЕФЕКТОВ В АУСТЕНИТНЫХ СПЛАВАХ

А.П.Дружков, В.Л.Арбузов, Д.А.Перминов
Институт физики металлов УрО РАН,
ул.С.Ковалевской, 18, ГСП-170 г.Екатеринбург, 620219, Россия
(e-mail: druzhkov@imp.uran.ru)

Методом аннигиляции позитронів вивчено вплив дислокаційної структури на процеси накопичення та відпалу радіаційних дефектів в холодно-деформованих аустенітних сплавах Fe-36.5 mass % Ni, Fe-36 mass %Ni-2 mass % Ti та сталі X16H15M3 на різних стадіях радіаційного пошкодження (10^{-4} ... 10^{-3} зміщень.ат). В опромінених електронами при кімнатній температурі деформованих зразках сталі та сплавів з вихідною щільністю дислокацій $1-2 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$ зафіксоване зниження концентрації вакансійних кластерів в декілька разів порівняно із зразками, попередньо загартованими до стану твердого розчину. У сплаві Fe-36 mass % Ni-2 mass % Ti атоми титану у твердому розчині посилюють накопичення вакансійних кластерів незалежно від вихідної мікроструктури. При підвищеній температурі опромінення (573 K) на еволюцію радіаційних дефектів у сплаві з титаном впливають дисперсні частки Ni_3Ti , розподілені як гомогенно, так і гетерогенно (на дислокаціях). Розвинута вихідна дислокаційна структура, її локальна неоднорідність модифікують відпал вакансійних кластерів.

Методом аннигиляции позитронов изучено влияние дислокационной структуры на процессы накопления и отжига радиационных дефектов в холодно-деформированных аустенитных сплавах Fe-36.5 мас.%Ni, Fe-36мас.%Ni-2 мас.%Ti и стали X16H15M3 на ранних стадиях радиационной повреждаемости (10^{-4} ... 10^{-3} смещ/ат). В облученных электронами при комнатной температуре деформированных образцах стали и сплавов с исходной плотностью дислокаций $1 \dots 2 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$ зафиксировано снижение концентрации вакансионных кластеров в несколько раз по сравнению с образцами, предварительно закаленными до состояния твердого раствора. В сплаве Fe-36 мас.%Ni-2 мас.%Ti атомы титана в твердом растворе усиливают накопление вакансионных кластеров независимо от исходной микроструктуры. При повышенной температуре облучения (573 K) на эволюцию радиационных дефектов в сплаве с титаном влияют дисперсные частицы Ni_3Ti , распределенные как гомогенно, так и гетерогенно (на дислокациях). Развита исходная дислокационная структура, ее локальная неоднородность модифицируют отжиг вакансионных кластеров.

The effect of the dislocation structure on the processes of accumulation and annealing of radiation defects in cold-deformed austenitic alloys (Fe-36.5 wt % Ni and Fe-36 wt % Ni-2 wt % Ti) and Cr16Ni15Mo3 steels at the early stages of radiation damage (10^{-4} ... 10^{-3} dpa) was studied by positron annihilation. It was found that in deformed samples of steel and alloys with an initial dislocation density of $1 \dots 2 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-2}$ irradiated with 5MeV electrons at room temperature, the concentration of vacancy clusters lowers several times as compared to the samples preliminarily quenched for solid solution. Titanium atoms in the solid solution in the Fe-36 wt % Ni-2 wt % Ti alloy facilitated accumulation of vacancy clusters irrespective of the initial microstructure. At elevated temperatures of irradiation (573 K), the evolution of radiation defects for alloy with titanium were affected by fine Ni_3Ti particles distributed both homogeneously and heterogeneously (on dislocations). The developed initial dislocation structure and its local inhomogeneity modified annealing of vacancy clusters as well.

1. ВВЕДЕНИЕ

Аустенитные стали и сплавы являются одними из основных конструкционных материалов активных зон атомных реакторов на быстрых нейтронах. В настоящее время предъявляются повышенные требования к радиационной стойкости этих сталей в связи с планируемым увеличением степени выгорания ядерного топлива. Повысить радиационную стойкость стали можно созданием специальной исходной микроструктуры (например, предварительной холодной деформацией). Концентрация стоков для точечных дефектов в предварительно деформированной стали уже на начальной стадии облуче-

ния достаточно велика и должна приводить к их эффективному поглощению и снижению вакансионного пересыщения. Вакансионное пересыщение, как известно, определяет характер зарождения и роста пор в облучаемом материале. К сожалению, пластическая деформация оказалась не таким эффективным способом повышения радиационной стойкости сталей, как ожидалось вначале. Это связано с тем, что при деформации аустенитных сплавов и сталей формируется неоднородная микроструктура. Процессы радиационной повреждаемости в материалах с неоднородной исходной микроструктурой развиваются также локально неоднородно. Поэтому ло-

кальная неоднородность процессов радиационной повреждаемости является в настоящее время предметом исследований [1]. Следует отметить, что в материалах с нестабильной в условиях облучения фазовой структурой возможно гетерогенное (на дислокациях) выделение дисперсных частиц вторичных фаз, которые также будут влиять на эволюцию радиационных дефектов.

Целью этой работы является изучение влияния исходной дислокационной структуры, ее неоднородности, а также дисперсных частиц интерметаллидных выделений Ni_3Ti на накопление и отжиг дефектов вакансионного типа в облученных электронами сталях X16H15M3 и модельных сплавах Fe-36Ni, Fe-6Ni-2Ti на начальной стадии повреждаемости ($10^4 \dots 10^3$ смещ/ат). Выбор в качестве добавки титана связан с тем, что, во-первых, атомы Ti в аустенитных сплавах являются надразмерной примесью и взаимодействуют с вакансиями [2]; во-вторых, сплав Fe-6Ni-2Ti является пересыщенным твердым раствором и при повышенных температурах испытывает термический или радиационно-индуцированный распад [3]. Использовался метод аннигиляции позитронов, обладающий высокой чувствительностью как к дефектам вакансионного типа, так и дислокациям, но нечувствительный к междоузельным атомам и их скоплениям.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Сплавы Fe-36.5 мас.% Ni (Fe-Ni), Fe-36 мас.% Ni-2%Ti (Fe-Ni-Ti) и стали X16H15M3 (SS) были выплавлены в вакуумной индукционной печи из компонентов высокой чистоты. Концентрация углерода в стали составляла ~ 0.03 мас.%. После прокатки, резки и электрополировки, образцы отжигали в вакууме 10^{-5} Па при 1373 К 1 ч и закаливали в воду. Наличие одной аустенитной фазы в образцах контролировали рентгеноструктурным анализом.

Часть образцов стали и сплавов были продеформированы прокаткой на 25...40% при комнатной температуре. Аттестация микроструктуры деформированных образцов была проведена на электронном микроскопе JEM-200 CX.

Облучения образцов при 300 и 573 К 5 МэВ электронами были проведены на линейном ускорителе. Изохронные отжижки осуществлялись в вакууме 10^{-5} Па со средней скоростью нагрева 1К/мин.

В работе использовался метод угловой корреляции аннигиляционного излучения (УКАИ), реализованный на одномерном спектрометре с угловым разрешением 160 мрад \times 1 мрад. Для характеристики изменений формы спектров УКАИ был выбран S-параметр [4]. S-параметр определяли как отношение суммы скоростей счета совпадений в интервале углов θ 0...3.5 мрад к полной скорости счета совпадений в спектре. Где θ – угол отклонения разлета аннигиляционных гамма-квантов от антиколлинеарности. S-параметр характеризует вероятность аннигиляции позитронов с электронами проводимости. S-параметр зависит как от концентрации, так и от структуры (типа) дефектов, захватывающих позитроны.

В общем случае позитроны в образце аннигилируют как из захваченного дефектами, так и свободного состояний. Если позитроны захватываются двумя типами дефектов, например вакансионными кластерами (ВК) и дислокациями, то S-параметр связан с концентрацией ВК C_{cl} и плотностью дислокаций N_d следующим соотношением [5]:

$$S = (\lambda_f S_f + \mu_{cl} C_{cl} S_{cl} + \mu_d N_d S_d) / (\lambda_f + \mu_{cl} C_{cl} + \mu_d N_d), \quad (1)$$

где λ_f – скорость аннигиляции позитронов из свободного состояния; $\mu_{cl} \approx p\mu_v$, p – число вакансий в ВК; μ_v , μ_d – удельные скорости захвата позитронов моновакансиями и дислокациями, соответственно; S_f , S_{cl} , S_d – значения параметра при аннигиляции позитронов из свободного, захваченного ВК и дислокациями состояний, соответственно.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Как уже отмечалось в разд.2, в работе использовались две серии образцов сталей и сплавов: закаленных (образцы серии Q) и деформированных. Так как в процессе холодной деформации наряду с дислокациями образуются также и вакансии, то для их отжига деформированные образцы дополнительно термообработывались при 570...650 К (образцы серии DIS). В [6] нами было показано, что в указанном температурном интервале дефекты вакансионного типа в аустенитных Fe-Ni, Fe-Ni-Ti сплавах полностью отжигаются, а сформировавшаяся при деформации полосовая субзеренная структура при этом остается практически неизменной. Дислокации в субзернах образуют ячеисто-сетчатые конфигурации, средняя плотность дислокаций N_d составляет $\approx 1 \dots 2 \cdot 10^{11}$ см $^{-2}$. Ширина вытянутых в длину субзерен колеблется от 50 нм до 400 нм. В образцах стали SS серии DIS формируется аналогичная микроструктура. Кроме того, в образцах Fe-Ni-Ti (DIS) в процессе отжига вакансионных дефектов происходит частичный распад твердого раствора и выделение дисперсных частиц Ni_3Ti на дислокациях [6].

На рис.1 представлена зависимость S-параметра от флюенса электронов для сплавов Fe-Ni, Fe-Ni-Ti (серии Q и DIS), облученных при 300 К.

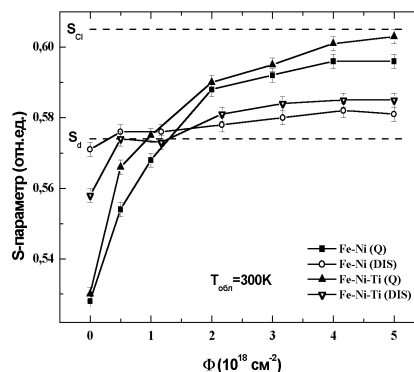


Рис.1. Зависимость S-параметра от флюенса электронов для сплавов Fe-Ni, Fe-Ni-Ti, облученных при 300 К. Q – предварительно закаленное состояние образца; DIS – исходная плотность дислокаций в образце $1 \dots 2 \cdot 10^{11}$ см $^{-2}$

С увеличением флюенса в предварительно закаленных образцах наблюдается сильный рост S-параметра, который связывается с захватом позитронов ВК трехмерной конфигурации. Ранее нами было установлено [6,7], что при температуре облучения, близкой к комнатной вакансии в сплавах Fe-Ni, Fe-Ni-Ti уже подвижны и при миграции образуют ВК.

В сплаве Fe-Ni-Ti (Q) S-параметр достигает более высоких значений вследствие взаимодействия атомов титана с вакансиями. В результате этого взаимодействия атомы титана усиливают кластеризацию вакансий [6], концентрация ВК при этом повышается.

Значения S_{cl} и S_d , приведенные на рис.1, были определены нами при изучении эволюции микроструктуры деформированных Fe-Ni сплавов [6].

При облучении образцов серии DIS наблюдается небольшой рост S-параметра. Можно полагать, что некоторая часть вакансий при миграции не поглощается дислокациями, а формирует ВК, захват позитронов которыми и приводит к росту S-параметра, т. е. $S_{cl} \gg S_d$.

Следует отметить, что для сплава Fe-Ni-Ti(DIS) прирост S-параметра несколько выше по сравнению с Fe-Ni(DIS), т.е. роль титана в твердом растворе проявляется и в этом случае, несмотря на развитую исходную дислокационную структуру. Кроме того, как уже отмечалось выше, в исходном сплаве Fe-Ni-Ti(DIS) имеются выделения Ni_3Ti , локализованные, в основном, на дислокациях. Ранее [6] мы обнаружили, что эти выделения блокируют захват позитронов дислокациями, в результате чего значение S-параметра для исходного Fe-Ni-Ti(DIS) снижается по сравнению с Fe-Ni(DIS) (см. рис.1) при одинаковой средней плотности дислокаций.

Как видно из рис.1, S-параметр при флюенсах выше $2 \dots 3 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ выходит на плато, значение которого зависит от типа сплава и его исходного состояния. Можно утверждать, что устанавливается стабильная концентрация ВК, характерная для данного исходного состояния.

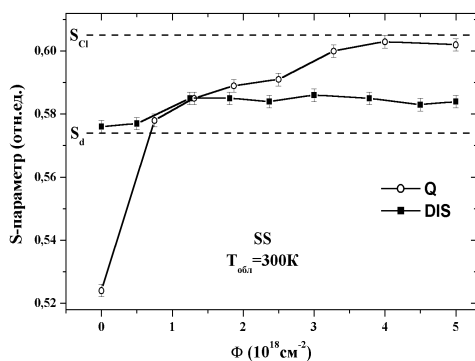


Рис.2. Зависимость S-параметра от флюенса электронов для стали SS, облученной при 300 К. Q – предварительно закаленное состояние образца; DIS – исходная плотность дислокаций в образце $1 \dots 2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$

При 300K были также облучены образцы стали SS серии Q и DIS (рис. 2). Результаты для стали качественно согласуются с данными для сплавов. Отличительной особенностью от сплава Fe-Ni является то, что в стали SS с ростом флюенса S-параметр достигает более высоких значений в образцах обеих серий, т. е. формируется повышенная концентрация ВК. Аналогично сплаву Fe-Ni-Ti, это связано с присутствием в стали примесей, некоторые из них взаимодействуют с вакансиями являясь центрами образования или стабилизации ВК.

По модели захвата позитронов двумя типами дефектов (выражение 1) были проведены оценки концентрации ВК C_{cl} в образцах сплава и стали серий Q и DIS, облученных до флюенса $5 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ (6.4×10^{-4} смещ/ат). При расчетах предполагалось, что ВК трехмерной конфигурации в среднем содержат по пять вакансий, которые наиболее устойчивы среди мелких ВК [8]. При повреждаемости на уровне $10^{-4} \dots 10^{-3}$ смещ/ат возможно образование только мелких кластеров. Значения μ_v , μ_d , λ_f были взяты из [5]. Оценки показали, что C_{cl} снижается в образцах серии DIS в два (SS, Fe-Ni-Ti) - три (Fe-Ni) раза по сравнению с образцами серии Q. Аналогичные оценки по модели одного (ВК) центра захвата позитронов (по максимуму, без учета дислокационных ловушек) дают снижение C_{cl} в образцах серии DIS в 5 (SS, Fe-Ni-Ti) ... 4 (Fe-Ni) раза. Снижение концентрации ВК в разы, а не на порядки может быть связано с неоднородностью дислокационной структуры в объеме образцов серии DIS. Несмотря на высокую суммарную плотность дислокаций, внутри ячеек она на порядки ниже, чем в стенках, поэтому внутри ячеек накопление радиационных дефектов протекает по схеме, типичной для образцов серии Q. К тому же, по нашим оценкам, диффузионные длины для вакансий при 300 К в сплавах и стали составляют $2 \dots 8 \text{ нм}$, что существенно меньше размера ячеек. Следует заметить также, что оценки концентрации ВК сделаны для идеализированной ситуации ($n=5$), реально в образцах образуется ансамбль ВК различной кратности по вакансиям.

В работе были также проведены облучения сплавов Fe-Ni, Fe-Ni-Ti при повышенной температуре (573 К). Рассмотрим вначале поведение радиационных дефектов в Fe-Ni. Ранее нами было установлено [7], что в сплаве Fe-Ni (серии Q) в процессе облучения при 573 К формируются двухмерные скопления вакансий – зародыши вакансионных петель. Зависимость $S(\phi)$ для облученного при 573 К сплава Fe-Ni (серии Q и DIS) приведена на рис.3. С ростом флюенса значение S-параметра для образца серии Q увеличивается, т.е. растет концентрация двухмерных скоплений вакансий.

В образце же серии DIS значение S-параметра флуктуирует около S_d и не зависит от флюенса. Отсутствие изменений S-параметра может быть вызвано двумя причинами: либо вакансионные скопления не чувствуются на фоне высокой плотности дислокаций, так как параметры аннигиляции позитронов в двухмерных скоплениях близки к дислокационным [9], либо дислокации при этой температуре облуче-

ния эффективно поглощают вакансии. Поглощение точечных дефектов, с другой стороны, индуцирует процессы переползания и взаимной рекомбинации дислокаций дипольных конфигураций [10]. Спад S-параметра, связанный с радиационно-индуцированным отжигом дислокаций, также не наблюдается. Вероятно, при уровне повреждаемости $10^{-4} \dots 10^{-3}$ смещ/ат этот эффект незначителен, например спад N_d на порядок в результате нейтронного облучения при 573 К холоднодеформированной аустенитной стали типа 316 наблюдался при 5...7 смещ/ат [10].

При повышенной температуре облучения (57 К) сплава Fe-Ni-Ti(Q) на накопление радиационных дефектов оказывают влияние процессы распада твердого раствора. В частности, методом сканирующей туннельной микроскопии было установлено [3], что в облученном при 573 К до флюенса $5 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ сплаве Fe-Ni-Ti(Q) образуются интерметаллидные выделения Ni_3Ti размерами 4...6 нм, плотностью $\sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$. С другой стороны, известно [11], что границы раздела «матрица-когерентное выделение» являются центрами рекомбинации точечных дефектов; в результате концентрации вакансионных скоплений снижается и, соответственно, рост S-параметра подавляется по сравнению с образцом Fe-Ni(Q) (рис.3).

Оценки показывают, что концентрация вакансионных скоплений в Fe-Ni-Ti(Q) снижается в пять раз по сравнению с Fe-Ni(Q). Следует отметить, что дисперсные частицы Ni_3Ti и атомы титана в твердом растворе влияют на накопление дефектов вакансионного типа противоположным образом. При температуре облучения 573 К взаимодействием атомов Ti с вакансиями можно пренебречь, т.к. вакансионно-титановые кластеры диссоциируют при температуре выше 430...450 К [6].

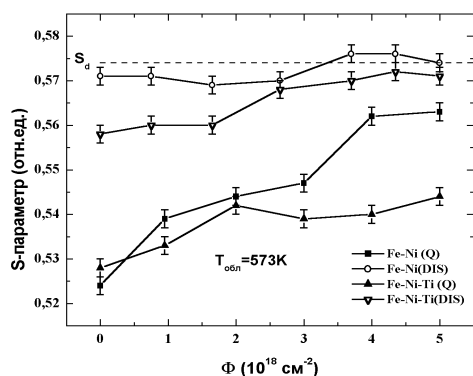


Рис.3. Зависимость S-параметра от флюенса электронов для сплавов Fe-Ni, Fe-Ni-Ti, облученных при 573 К. Исходные состояния Q и DIS аналогичны рис.1

Облучение сплава Fe-Ni-Ti(DIS) при 573К приводит к росту S-параметра (рис.3). Это неожиданный результат? и причина роста S-параметра до конца не выяснена и требует дальнейших исследований. Возможно, что дисперсные частицы Ni_3Ti на дислокациях изменяют параметры дислокаций, как стоков (эффективность захвата точечных де-

фектов, факторы предпочтения[10]). Хорошо известно, что увеличение фактора предпочтения захвата междоузельных атомов дислокациями приводит к созданию избыточной концентрации вакансий в матрице и, соответственно, росту вакансионных скоплений.

Обратимся далее к отжигу дефектов, накопленных при облучении образцов серии Q и DIS. На рис.4 показана зависимость S-параметра от температуры изохронного отжига для образцов стали SS, облученных до флюенса $5 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ при 300 К. Для образца серии Q наблюдается одна ярко выраженная стадия восстановления S-параметра, которая начинается при 480...500 К и заканчивается к 700 К. Эта стадия связана с диссоциацией вакансионных кластеров [12], энергия активации стадии составляет 1.60...1.70 эВ.

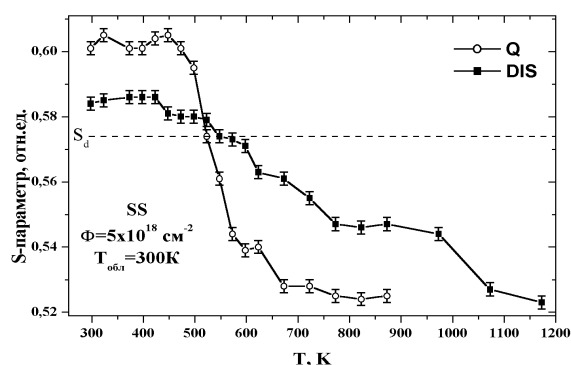


Рис.4. Изменения значений S-параметра при изохронном отжиге облученной стали SS. Q - предварительно закаленное состояние образца; DIS - исходная плотность дислокаций в образце $1 \dots 2 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-2}$

В образце серии DIS кинетика отжига дефектов существенно сложнее. В вакансионной части зависимости S(T) (выше S_d) имеются две подстадии: при 430...440 К и при 530...540 К. Следует отметить, что вторая подстадия совпадает со средней температурой стадии образца серии Q. Возможно, вторая подстадия связана с диссоциацией ВК внутри ячеек, где эволюция радиационных дефектов протекает по схеме, типичной для стали, закаленной до состояния твердого раствора[1]. Низкотемпературная подстадия, энергия активации которой составляет $\sim 1,4$ эВ, вызвана диссоциацией ВК в областях с повышенной плотностью дислокаций. Как уже отмечалось выше, реально формируется ансамбль кластеров разной кратности. ВК меньшей кратности термически менее устойчивы, они диссоциируют раньше, освобожденные при этом вакансии либо исчезают на стоках, либо поглощаются более крупными кластерами. В локальных областях с высокой плотностью дислокаций, доминирующим процессом является исчезновение вакансий на дислокациях, что приводит к снижению средней температуры отжига ВК.

В дислокационной части зависимости S(T) (ниже S_d , когда дефекты вакансионного типа в основном отождислись) также наблюдаются две подстадии восстановления S-параметра в интервале температур 600...780 К и 1000...1200 К. Спад S-параметра в интервале 600...780К вызван перераспределением дис-

локаций в результате дальнейшего формирования ячеистой структуры и частичного отжига дислокаций. В этом интервале не исключено также формирование зародышей карбидных фаз на дислокациях, которые, с одной стороны, могут закреплять дислокации (плато при 880...1000 К), а с другой – частично блокировать захват позитронов дислокациями [6]. Выше 1000 К в результате рекристаллизации S-параметр восстанавливается до исходного значения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных экспериментов установлено, что в аустенитных сталях и сплавах накопление радиационных дефектов на ранних стадиях повреждаемости (10^{-4} ... 10^{-3} смеш/ат) и их отжиг зависят от исходной микроструктуры образцов. Показано, что высокая исходная плотность дислокаций в образцах приводит к снижению накопления вакансионных кластеров в несколько раз по сравнению с образцами, закаленными до состояния твердого раствора. Локальная неоднородность дислокационной структуры отражается на эволюции радиационной повреждаемости, в частности, накопление вакансионных кластеров и их отжиг внутри ячеек аналогичны сплавам, закаленным до состояния твердого раствора. В сплаве Fe-Ni-Ti атомы титана в твердом растворе усиливают накопление вакансионных кластеров независимо от исходной микроструктуры.

При повышенных температурах облучения (573 К) сплава с титаном на эволюцию радиационных дефектов оказывают влияние дисперсные частицы Ni₃Ti, распределенные как гомогенно, так и гетерогенно (на дислокациях).

Работа выполнена при финансовой поддержке Проектов РФФИ №01 – 02 – 16877 и №00 – 15 – 96581.

ЛИТЕРАТУРА

1. V.N.Voyevodin, I.M.Neklyudov, V.V.Bryk, O.V. Borodin //J. Nucl. Mater. 1999, v.271-272, p.290-295.
2. H.Watanabe, T.Mugora, N.Yoshida //J.Nucl. Mater., 1996, v.239, p.95-98.
3. K.V.Shalnov, V.L.Arbuzov, S.E. Danilov et. al. //Proc. of 1st Intern. Congress on radiation physics. Tomsk, Russia, 24-29 September ,2000, v.1, p.145-147.
4. V.L.Arbuzov, S.E.Danilov, A.P.Druzhkov //Phys. Stat. Sol. A, 1997, v.162, p.567-573.
5. G.Dlubek, O.Brummer, E.Hensel //Phys. Stat. Sol. A, 1976, v.34, p.737-746.
6. V.L.Arbuzov, A.P.Druzhkov, N.L. Pecherkina et al. //Phys. Met. Metallogr, 2001,v.92, N1, p.75-82.
7. V.L.Arbuzov, A.P.Druzhkov, S.E.Danilov //J. Nucl. Mater., 2001, v.295, p.273-280.
8. В.В. Кирсанов. ЭВМ – эксперимент в атомном материаловедении. М.: «Энергоатомиздат», 1990, 304 с.
9. E.Kuramoto, T.Tsutsumi, K.Ueno et al. //Comput. Mater. Sci., 1999, v.14, p.28-35.
10. W.G.Wolfer, B.B.Glasgow //Acta metall., 1985, v.33, N11, p.1997-2004.
11. D.S.Gelles, L.E.Thomas, D.L.Sponseller //J. Nucl. Mater., 1982, v.108-109, p.527-536.
12. S.E.Danilov, V.L.Arbuzov, A.P.Druzhkov et. al. 2002. to be published