

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ АТОМОВ ЗАМЕЩЕНИЯ И ВНЕДРЕНИЯ МЕЖДУ СОБОЙ И С РАДИАЦИОННЫМИ ДЕФЕКТАМИ В СПЛАВАХ V–Fe ПРИ ОБЛУЧЕНИИ БЫСТРЫМИ НЕЙТРОНАМИ

Захарова М.И., Тарасиков В.П.

АО «ГНЦ РФ – ФЭИ»,
249033, Калужская обл., г. Обнинск, пл. Бондаренко, 1



Приведены результаты исследований облученных быстрыми нейтронами сплавов V–Fe, полученные с использованием внутреннего трения и электросопротивления с целью выяснения влияния радиационно-стимулированных фазовых превращений, распада твердого раствора замещения и внедрения и радиационно-индуцированной сегрегации железа на вакансионное распухание при изохронных отжигах. Для изучения процессов, протекающих при изохронных отжигах в системе V–Fe, был выбран сплав V+0.65 ат.% Fe. Этот выбор обусловлен тем, что в процессе облучения из твердого раствора этого сплава выходит максимальное количество атомов Fe – 0.54 ат.% – по сравнению с другими сплавами, что составляет 83% по отношению к исходному составу. Особенностью восстановления электросопротивления сплава V+0.65 ат.% Fe является присутствие пиков скачкообразного изменения значения электросопротивления в области температур 400–1000°C.

В сплаве V+0.65 ат.% Fe, облученном нейтронами до 1.4 сна при температуре 400°C, при изохронных отжигах в области температур 100–1300°C через 100°C в течение одного часа при остаточном давлении не более 7×10^{-4} Па найдено, что во всем температурном интервале наблюдается миграция атомов Fe. При отжиге до 500°C наблюдаются распад значительной части радиационно-индуцированных сегрегаций и восстановление твердого раствора замещения; в интервале 500–600°C количество атомов Fe, находящихся в твердом растворе, снижается примерно на 50%, т.е. атомы Fe вновь сегрегируют на дефектах, стабильных в этой области температур. Подобные изменения сохраняются до 1000°C; в интервале температур отжига 1000–1300°C в твердом растворе находится около 0.30 ат.% Fe. Определено изменение электросопротивления облученного сплава, вызванного миграцией атомов Fe в матрице V.

Ключевые слова: сплавы V–Fe, нейтронное облучение, радиационные дефекты, фазовые превращения, вакансии, междоузельные атомы, дислокации, поры, внутреннее трение, электросопротивление.

Для цитирования: Захарова М.И., Тарасиков В.П. Взаимодействие атомов замещения и внедрения между собой и с радиационными дефектами в сплавах V–Fe при облучении быстрыми нейтронами. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2024. – № 2. – С. 104 – 111. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2024.2.09>

ВВЕДЕНИЕ

Ванадий и его сплавы по комплексу свойств рассматриваются как потенциальные конструкционные материалы для перспективных ядерно-энергетических установок, в том числе термоядерного синтеза [1–4].

При исследовании системы V–Fe было обнаружено, что при облучении быстрыми нейтронами до 1.4 сна при температуре 350–450°C сплавов ванадия с 0.65; 1.16; 1.48; 2.49; 2.76 и 3.30 ат.% Fe происходит распад твердого раствора замещения, атомы Fe покидают позиции твердого раствора и сегрегируют на радиационных дефектах, границах зерен и других свободных поверхностях [5]. Твердый раствор внедрения в этих сплавах, напротив, устойчив при указанных условиях облучения, происходит лишь незначительное перераспределение атомов кислорода, азота и углерода в объеме кристалла, тогда как для нелегированного V, облученного одновременно со сплавами ванадия, наблюдается значительный распад твердого раствора внедрения. При более высокой дозе облучения (2.8 сна) происходит полный распад твердого раствора внедрения [6].

На основании экспериментальных данных было сделано заключение, что атомы Fe стабилизируют твердый раствор внедрения, вытесняя атомы O и N из своего окружения вплоть до второй координационной сферы. Сродство V к O и N выше, чем у Fe, поэтому позиции вокруг атома Fe, неблагоприятные для примеси внедрения, можно рассматривать как запрещенные позиции.

Поскольку такое взаимодействие атомов Fe и атомов примесей внедрения между собой и с радиационными дефектами в сплавах V–Fe может оказывать влияние на формирование радиационной пористости и величину распухания, представлялось целесообразным провести по восстановлению свойств при изохронных отжигах изучение перераспределения атомов Fe в матрице облученных сплавов, устойчивости радиационно-индуцированных сегрегаций Fe.

МАТЕРИАЛЫ, МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И УСЛОВИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследовались сплавы V с концентрацией Fe 0.65–3.3 ат.% до облучения, отожженные при 1100°C в течение двух часов и облученные в реакторе БР-10 при температурах 350–450°C дозой 1.4 сна. Детальная характеристика сплавов, условий их получения, отжига и облучения приведены в работах [5, 7].

Электросопротивление образцов определяли потенциометрическим методом [5, 7] при комнатной и азотной температурах с погрешностью 1% для 298 К и 3.5% для 77 К.

Измерения внутреннего трения выполнялись методом крутильного маятника [5, 7] в амплитуднонезависимой области с частотой от 12 до 17 Гц в вакууме от комнатной температуры до 600°C. Ошибка в определении внутреннего трения не превышала 2,5%.

Изохронные отжиги проводились в интервале температур 100–1300°C через 100°C в течение одного часа при остаточном давлении не более 7×10^{-4} Па.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Восстановление свойств сплавов V–Fe при изохронных отжиггах

Для изучения процессов, протекающих при изохронных отжиггах в системе V–Fe, был выбран сплав V+0.65 ат.% Fe. Этот выбор обусловлен тем, что в процессе облучения из твердого раствора этого сплава железо выходит на радиационные дефекты, границы зерен и свободные поверхности максимальное количество атомов Fe – 0.54 ат.% – по сравнению с другими сплавами, что составляет 83% по отношению к исходному составу [5]. Заметим, например, что из сплава, содержащего 3.3 ат.% Fe, выходит на радиационные дефекты, границы зерен и свободные поверхности по отношению к исходной концентрации всего 20% атомов Fe [5]. В работе [8] по результатам электронно-микроскопических и микрорентгеноспектральных исследований сплавов V–Fe после нейтронного облучения до повреждающей дозы 1.3 сна при температуре 370°C на границах зерен в сплавах V+2 ат.% Fe и V+5 ат.% Fe наблюдали радиационно-индуцированную сегрегацию железа. Содержание железа на границе зерна в сплаве V+2 ат.% Fe повысилось до 5.8 ат.%, в сплаве V+5 ат.% Fe – до 8.9 ат.%.

На рисунке 1 представлена кривая восстановления удельного электросопротивления ρ , измеренного при 77 К, нелегированного V и сплава V+0.65 ат.% Fe, облученных одновременно, при изохронных отжиггах.

Сравнение этих кривых показывает, что в области температур до 500°C в чистом V никаких восстановительных процессов не происходит. Восстановление ρ сплава V+0.65 ат.% Fe начинается сразу же после изохронного (один час) отжига при 100°C, проходит, по крайней мере, в две стадии до 400°C, и далее до 500°C скорость изменения электросопротивления резко возрастает. Особенностью восстановления ρ сплава V+0.65 ат.% Fe является присутствие пиков скачкообразного изменения значения элек-

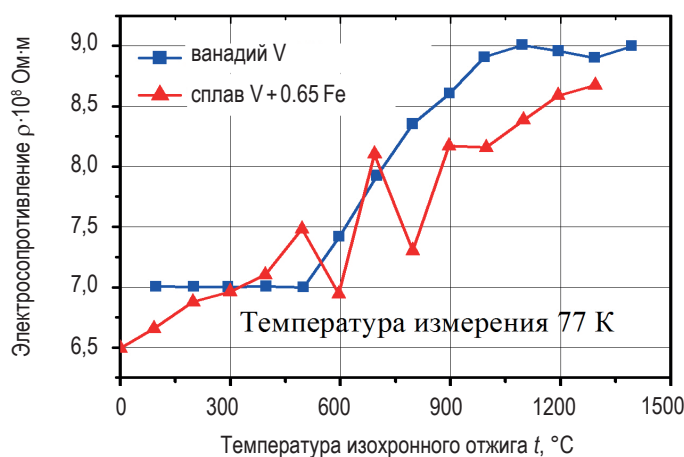


Рис. 1. Восстановление при изохронных отжиггах электросопротивления ρ , измеренного при 77 К, нелегированного V и сплава V+0.65 ат.% Fe, облученных одновременно

тросопротивления в области температур 400–900°C. Такой характер восстановления ρ нетипичен для чистых металлов [6, 9].

Это дает основание утверждать, что на кривой восстановления ρ сплава V + 0.65 ат.% Fe наблюдается процесс распада сегрегаций, т.е. атомы Fe выходят из стоков и вновь занимают позиции замещения (ρ возрастает). В работе [8] по результатам электронно-микроскопических и микрорентгеноспектральных исследований сплавов V–Fe после нейтронного облучения микроструктура облученного ванадия и сплавов V–Fe содержала вакансионные поры, дислокационные петли и дислокации. Таким образом, в нелегированном ванадии под облучением идет распад твердого раствора внедрения с выходом атомов примесей внедрения на радиационные дефекты, а в сплавах наблюдается распад твердого раствора замещения, тогда как твердый раствор внедрения стабилизируется примесью замещения. По-видимому, такое поведение твердых растворов внедрения и замещения под облучением будет определяться степенью взаимодействия атомов внедрения и замещения.

Оценки количества Fe, вернувшегося в твердый раствор, проведенные на основании экспериментально установленного факта, что 1 ат.% Fe увеличивает ρ на $1.53 \times 10^{-8} \text{ Ом} \times \text{м}$ [7], дают, что в интервале 100–500°C значительная часть атомов Fe (~0.5 ат.% Fe) покинула сегрегационные стоки, хотя основные радиационные дефекты (поры, дислокационные петли) в этой области температур еще не отжигаются [6, 8]. Это свидетельствует об аномальной подвижности атомов Fe в матрице V. В работе [10] при изучении самодиффузии V и диффузии примесей в V было показано, что коэффициент диффузии Fe в V на порядок превышает коэффициент самодиффузии V.

Используя данные внутреннего трения (рис. 2), рассчитали количество кислорода и азота в ат.% в твердом растворе при соответствующих температурах отжига и исходя из того, что 1 ат.% O или N увеличивает ρ на $5.16 \times 10^{-8} \text{ Ом} \times \text{м}$ [11], был оценен вклад атомов примесей внедрения в изменение ρ , представленного на рис. 1.

Оценку проводили, используя результаты работы [12] (с. 52. табл. 3.2), где приведены зависимости значения внутреннего трения Q^{-1} для систем V–O и V–N, $Q^{-1} = 800 \times 10^{-4}$ на 1 ат.% кислорода и азота.

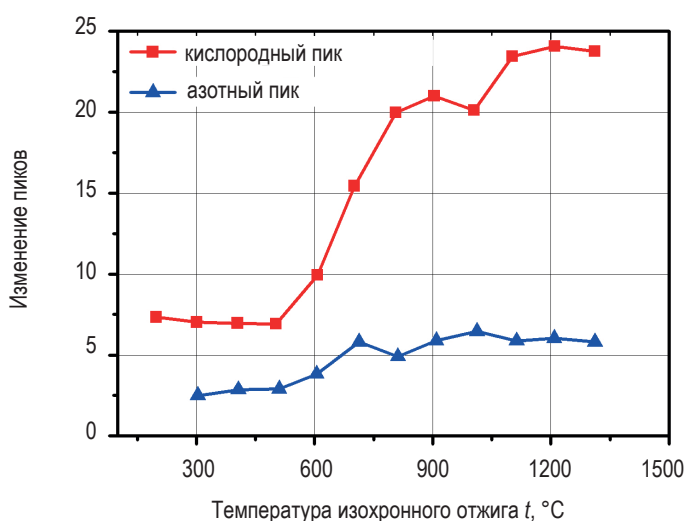


Рис. 2. Изменение высот кислородного (■) и азотного (▲) пиков при изохронном отжиге

$Q^{-1} = \delta/\pi$, $\delta = Q^{-1} \times \pi$; из этого составляем пропорцию:

$$800 \times 10^{-4} \rightarrow 1 \text{ ат. \% O}_2 \text{ и } 1 \text{ ат. \% N}$$

$$\delta/\pi \rightarrow x \text{ ат. \% O}_2 \quad x \text{ ат. \% O}_2 = \delta/\pi \times 800 \times 10^{-4} = \delta/0.2512 = \delta \times 10^3 / 0.2512 \times 10^3 = \delta \times 10^3 / 251.2$$

$$\delta/\pi \rightarrow x \text{ ат. \% N} \quad x \text{ ат. \% N} = \delta/\pi \times 800 \times 10^{-4} = \delta/0.2512 = \delta \times 10^3 / 0.2512 \times 10^3 = \delta \times 10^3 / 251.2$$

Здесь δ – логарифмический декремент колебаний.

Затем найденные значения вычитались из первоначальных (см. рис. 1), и приведенная кривая на рис. 3 отражает изменение концентрации атомов Fe в объеме матрицы в зависимости от температуры отжига.

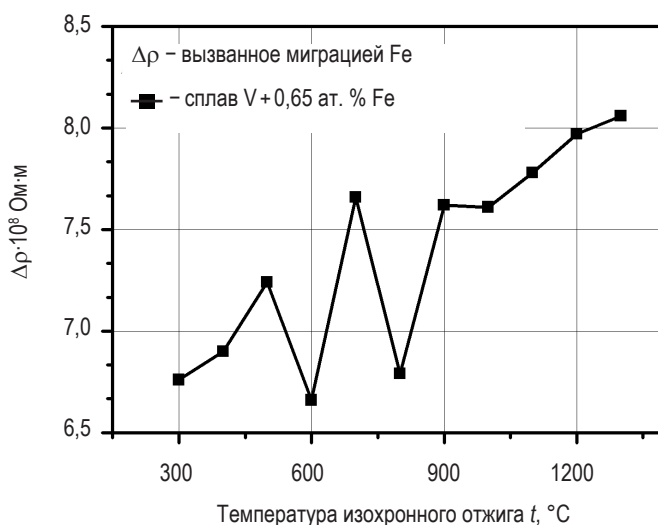


Рис. 3. Изменение электросопротивления облученного сплава V+0.65 ат.% Fe, вызванное миграцией атомов железа в матрице ванадия

Как уже отмечалось выше на рис. 1 и в работах [5, 8, 13, 14], при отжиге до 500°C наблюдаются распад значительной части радиационно-индуцированных сегрегаций и восстановление твердого раствора замещения. Затем в интервале 500–600°C количество атомов Fe, находящихся в твердом растворе, снижается примерно на 50% (ρ уменьшается), т.е. атомы Fe вновь сегрегируют на дефектах, стабильных в этой области температур. Подобные изменения сохраняются до 1000°C. В этой области температур, как было показано ранее [6], протекает отжиг вакансионных кластеров, пор и дислокационных петель. В интервале температур отжига 1000–1300°C в твердом растворе находится около 0.30 ат.% Fe, при этом отжигаются дислокационные сетки и ρ увеличивается.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основании представленных результатов можно сделать следующие выводы.

При исследовании термической устойчивости радиационно-индуцированной сегрегации атомов железа в области температур 100–1300°C в сплаве V+0.65 ат.% Fe, облученном нейтронами до 1.4 сна при температуре 400°C, установлено, что во всем температурном интервале наблюдается миграция атомов железа:

- при отжиге до 500°C наблюдаются распад значительной части радиационно-индуцированных сегрегаций железа и восстановление твердого раствора замещения;

- в интервале 500–600°C количество атомов Fe, находящихся в твердом растворе, снижается примерно на 50%, т.е. атомы Fe вновь сегрегируют на дефектах, стабильных в этой области температур; подобные изменения сохраняются до 1000°C;

- в интервале температур отжига 1000–1300°C в твердом растворе находится около 0.30 ат.% Fe, при этом отжигаются, по-видимому, дислокационные сетки.

Определено изменение электросопротивления облученного сплава, вызванного миграцией Fe в матрице V (рис. 3).

Литература

1. *Вотинов С.Н., Гомозов Л.И., Дедюрин А.И., Завяльский Л.П.* Особенности сплавов ванадия как малоактивируемых материалов для термоядерных реакторов. // ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез. – 1989. – Вып. 3. – С. 49.

2. *Loomis B.A., Hull A.B., Smith D.L.* Evaluation of low-activation vanadium alloys for use as structural material in fusion reactors. // *Journal of Nuclear Materials.* – 1991. – V. 179–181. PP. 148–154.

DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(91\)90030-B](https://doi.org/10.1016/0022-3115(91)90030-B)

3. *Chen J.M., Chernov V.M., Kurtz R.J., Muroga T.* Overview of the vanadium alloy researches for fusion reactors. // *Journal of Nuclear Materials.* – 2011. – Vol. 417(1–3). – PP. 89–294.

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2011.02.015>

4. *Чернов В.М.* Малоактивируемые конструкционные материалы для ядерных реакторов - проблемы и путь вперед. / *Материалы ядерной техники: сборник тезисов докладов научно-технической конференции.* – М.: АО «ВНИИИМ», 2023. – С. 80–81. ISBN 978-5-6048666-3-4.

5. *Захарова М.И., Тарасиков В.П.* Влияние нейтронного облучения на свойства сплавов ванадия с железом. // *Известия вузов. Ядерная энергетика.* – 2022. – № 4. – С. 78–88.

DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2022.4.07>

6. *Zakharova M.I., Artemov N.A.* Internal Friction as a Method for Studying the Recovery Stages of Radiation Damage in BCC Refractory Metals / *Proc. 9th Intern. Conf. on Internal Friction and Ultrasonic Attenuation in Solids.* China. – 1990. – PP. 617–621.

7. *Захарова М.И., Тарасиков В.П.* Исследование сплавов системы V–Fe методами внутреннего трения и электросопротивления. // *Известия вузов. Ядерная энергетика.* – 2020. – № 3. – С. 108–116.

DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2020.3.11>

8. *Поролло С.И., Дворяшин А.М., Конобеев Ю.В.* Радиационные повреждения в облученных нейтронами сплавах V-Fe. // *Физика металлов и металловедение.* – 2022. – Т. 123. – № 8. – С. 837–843. DOI: [10/31857/S0015323022080071](https://doi.org/10.31857/S0015323022080071)

9. *Захарова М.И., Тарасиков В.П.* Термическая стабильность радиационных эффектов в монокристаллическом ванадии. // *ВАНТ. Сер.: Материаловедение и новые материалы.* – 2018. – Вып. 4(95). – С. 4–15.

10. *Федоров Г.Б., Смирнов Е.А., Жомов Ф.И., Иванов Н.В.* Самодиффузия и диффузия примесей в ванадии. / В сб. «Материалы атомной техники». – М.: Атомиздат, 1975. – Вып. 1. – С. 9–25.

11. *Lang E., Bressers J.* The effect of oxygendoping on the electrical resistivity of vanadium. // *Zeitschrift für Metal1-Kunde.* – 1975. – V. 66. – № 10. – PP. 619–624. DOI: <https://doi.org/10.1515/ijmr-1975-661011>

12. *Блантер М.С., Пигузов Ю.И., Ашмарин Г.М. и др.* Метод внутреннего трения в металлургических исследованиях: Справочное издание. – М.: Металлургия, 1991 – 248 с.

13. *Bogdanov V.V., Zakurkin V.V.* Radiation-induced segregation in neutron-irradiated V-Fe alloys studied by Mössbauer spectroscopy. // *Journal of Nuclear Materials.* – 1996. – V. 231. – Iss. 1–2. – PP. 162–164. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(96\)00357-1](https://doi.org/10.1016/0022-3115(96)00357-1)

14. Арбузов В.Л., Гощицкий Б.Н., Данилов С.Е., Чернов В.М. Взаимодействие радиационных дефектов с примесями внедрения в ванадии. // ВАНТ. Сер.: Материаловедение и новые материалы. – 2016. – Вып. 1 (84). – С. 17–25.

Поступила в редакцию 02.02.2023

Авторы

Захарова Мария Ивановна, старший научный сотрудник,

Тарасиков Владимир Прокофьевич, ведущий научный сотрудник, к.т.н.,

E mail: tarasikov@ippe.ru

UDC 621.039.531

Interaction of Substitutional and Interstitial Atoms with each other, and with Radiation Defects in Alloys V–Fe under Irradiation with Fast Neutrons

Zakharova M.I., Tarasikov V.P.

IPPE JSC,

1 Bondarenko Sq., 249033 Obninsk, Kaluga Reg., Russia

Abstract

The paper presents the results of studies of V–Fe alloys irradiated with fast neutrons and obtained using internal friction and electrical resistance. The studies were conducted in order to clarify the effect of radiation-stimulated phase transformations, decay of substitutional and interstitial solid solutions, and radiation-induced iron segregation on vacancy swelling during isochronous annealing. To study the processes occurring during isochronous annealing in the V–Fe system, an alloy V + 0.65 at.% Fe was selected. This choice is due to the fact that, comparing to other alloys, the maximum number of Fe atoms – 0.54 at.% – come out of the solid solution of this alloy during irradiation, which makes up 83% relative to the original composition.

A feature of the restoration of the electrical resistance of the alloy V + 0.65 at.% Fe is the presence of peaks of an abrupt change in the value of electrical resistance in the temperature range of 400–1000°C. In an alloy V + 0.65 at.% of Fe irradiated with neutrons up to 1.4 dpa at a temperature of 400°C, during isochronous annealing in the temperature range of 100–300°C after 100°C for 1 hour at a residual pressure of no more than 7×10^{-4} Pa, a migration of Fe atoms is observed throughout the temperature range: during annealing up to 500°C, the decay of a significant part of radiation-induced segregation and reconstitution of solid substitution solution is observed; in the range of 500–600°C the number of Fe atoms in solid solution decreases by about 50%, i.e. Fe atoms again segregate on defects that are stable in this temperature range. Such changes persist up to 1000°C; in the temperature range from 1000–1300°C, the solid solution contains about 0.30 at.% Fe.

The change in the electrical resistance of the irradiated alloy caused by the migration of Fe atoms in the matrix V is determined.

Keywords: V–Fe alloys neutron irradiation, radiation defects, vacancies, interstitial atoms, dislocations, pores, internal friction, electrical resistance.

For citation: Zakharova M.I., Tarasikov V.P. Interaction of Substitutional and Interstitial Atoms with each other, and with Radiation Defects in Alloys V–Fe under Irradiation with Fast Neutrons. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2024, no. 2, pp. 104–111; DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2024.2.09> (in Russian).

References

1. Votinov S.N., Gomozov L.I., Dedyurin A.I., Zavyalsky L.P. Features of vanadium alloys as low-activation materials for thermonuclear reactors. *VANT. Ser. Thermonuclear fusion*. 1989, vol. 3, pp. 49 (in Russian).
2. Loomis B.A., Hull A.B., Smith D.L. Evaluation of lowactivation vanadium alloys for use as structural material in fusion reactors. *Journal of Nuclear Materials*. 1991, v. 179–181, pp. 148–154. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(91\)90030-B](https://doi.org/10.1016/0022-3115(91)90030-B)
3. Chen J.M., Chernov V.M., Kurtz R.J., Muroga T. Overview of the vanadium alloy researches for fusion reactors. *Journal of Nuclear Materials*, 2011, Vol. 417(1–3), P. 289–294. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2011.02.015>
4. Chernov V.M. *Low-activation structural materials for nuclear reactors – problems and the way forward. Materials of nuclear technology: collection of abstracts of reports of a scientific and technical conference*. Moscow, JSC «VNIINM» Publ., 2023, pp. 80–81. ISBN 978-5-6048666-3–4 (in Russian).
5. Zakharova M.I., Tarasikov V.P. The influence of neutron irradiation on the properties of vanadium-iron alloys. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2022, no. 4, pp. 78–88. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2022.4.07> (in Russian).
6. Zakharova M.I., Artemov N.A. Internal Friction as a Method for Studying the Recovery Stages of Radiation Damage in BCC Refractory Metals. *Proc. 9th. Intern. Conf. on Internal Friction and Ul-trasonic Attenuation in Solids*. China, 1990, pp.617–621.
7. Zakharova M.I., Tarasikov V.P. Study of alloys of the V–Fe system using internal friction and electrical resistance methods. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2020, no. 3, pp. 108–116. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2020.3.11> (in Russian).
8. Porollo S.I., Dvoryashin A.M., Konobeev Y.V. Radiation damage in neutron-irradiated V-Fe alloys. *Physics of metals and metallography*. 2022, vol. 123, pp. 784–790. DOI: <https://doi.org/10.1134/S0031918X22080075>
9. Zakharova M.I. Tarasikov V.P. Thermal stability of radiation effects in single-crystal vanadium. *VANT. Ser.: Materials science and new materials*. 2018, iss. 4(95), pp. 4–15 (in Russian).
10. Fedorov G.B., Smirnov E.A., Zhomov F.I., Ivanov N.V. Self-diffusion and diffusion of impurities in vanadium. *Materials of Atomic Engineering*. Moscow. Atomizdat Publ., 1975, iss.1. pp.19–25 (in Russian).
11. Lang E., Bressers J. The effect of oxygen doping on the electrical resistivity of vanadium. *Zeitschrift fur Metal1-Kunde*. 1975, v.66, no. 10, pp. 619–624. DOI: <https://doi.org/10.1515/ijmr-1975-661011>
12. Blanter M.S., Piguzov Yu.I., Ashmarin G.M. et al. *Method of internal friction in metallurgical research: Reference publication*. Moscow. Metallurgy Publ., 1991, 248 p. (in Russian).
13. Bogdanov V.V., Zakurkin V.V. Radiation-induced segregation in neutron-irradiated V-Fe alloys studied by Mössbauer spectroscopy. *Journal of Nuclear Materials*. 1996, vol. 231, iss. 1–2, pp.162–164. DOI: [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(96\)00357-1](https://doi.org/10.1016/0022-3115(96)00357-1)
14. Arbusov V.L., Goshchitsky B.N., Danilov S.E., Chernov V.M. Interaction of radiation defects with interstitial impurities in vanadium. *VANT. Ser.: Materials science and new materials*. 2016, iss. 1 (84), pp. 17–25 (in Russian).

Authors

Mariya I. [Zakharova](#), Senior Researcher,
Vladimir P. [Tarasikov](#), Leading Researcher, Cand. Sci. (Engineering),
E mail: tarasikov@ippe.ru