

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

P14-85-604

К.Хаванчак, В.А.Скуратов, Д.Сенеш\*,  
Син Хон Чер, В.Малиновский, В.А.Шеголев

ИЗМЕНЕНИЕ ПРЕДЕЛА ТЕКУЧЕСТИ НИКЕЛЯ,  
ОБЛУЧЕННОГО ЭНЕРГЕТИЧНЫМИ  
ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ

Направлено в журнал "Физика металлов и  
металловедение"

\* Университет им. Этвеша Лоранда, Будапешт

1985



## ВВЕДЕНИЕ

Изучение радиационной повреждаемости материалов с использованием пучков заряженных частиц из ускорителей получает в последнее время всё большее распространение в связи с необходимостью создания новых радиационно стойких материалов для ядерных энергетических установок. Имитация эффектов нейтронной повреждаемости (распухание, радиационная ползуемость, упрочнение, охрупчивание и др.) и понимание их физической природы позволяет выявить роль и степень влияния дефектной структуры, образующейся в материале под действием облучения, а также определить наиболее существенные факторы, обуславливающие проявление указанных эффектов.

Имитационные исследования проводятся большей частью на протонах и альфа-частицах <sup>1,2,3</sup>. Есть эксперименты и на тяжёлых ионах, но из-за их короткого пробега в веществе они использовались в основном для исследования структурных изменений с помощью методов электронной микроскопии <sup>4</sup>.

В то же время высокоэнергетичные тяжёлые ионы имеют целый ряд преимуществ по сравнению с лёгкими частицами. Скорость создания дефектов на несколько порядков выше (например, для Ne в области пика радиационных дефектов  $5 \cdot 10^{-16}$  см<sup>2</sup>/ат с). Спектр первично выбитых атомов (ПВА) близок к спектру ПВА, создаваемых нейтронами. Высокоэнергетичные ионы имеют достаточно большой пробег. Например, пробеги ионов с энергией 10 МэВ/нукл. составляют десятки микрон, что позволяет проводить механические испытания материалов, представляющие наибольший интерес с практической точки зрения. При малой активации образцов, что характерно для ядерных реакций на тяжёлых ионах, можно проводить испытания непосредственно во время облучения (в отличие от реакторных испытаний) с контролем достаточно большого числа физических параметров.

С учётом указанных преимуществ в ЛЯР ОИЯИ была создана установка для исследования изменений прочностных свойств материалов при облучении пучками тяжёлых ионов на ускорителе У-400 <sup>5</sup>. Её создание является дальнейшим развитием работ по радиационному материаловедению с использованием тяжёлых ионов, в которых ранее исследовались радиационная ползуемость <sup>6</sup> и релаксация напряжений <sup>7</sup>.

В данной работе исследовались изменения в прочностных свойствах никеля, облучённого ионами Ne с энергией 11,5 и 8,5 МэВ/нукл. Такие

эксперименты предприняты впервые, и полученные результаты позволяют перспективность применения описанной методики.

## ЭКСПЕРИМЕНТЫ

Эксперименты проводились на внешнем пучке ускорителя У-400, выведенном из ионопровода на воздух через тонкое (20 мкм) алюминиевое окно. В пучок ионов помещался образец, зажатый в захваты механической испытательной машины ИнСТРОН 1121, позволяющей измерить силовую нагрузку, приложенную к образцу и его деформацию. Измерения могли проводиться как во время облучения, так и непосредственно после окончания облучения. Схема установки представлена на рис.1.

Во время облучения достигалась равномерность распределения дозы по площади рабочей части образца в пределах 10%. Точность определения интенсивности пучка частиц, попавших в образец, составляла 15%. При диагностике пучка <sup>8</sup> использовались тонкие алюминиевые фольги для детектирования потока частиц по вторичной эмиссии электронов. При этом практически не происходило искривление исходного пучка. Диагностический блок размещался в ионопроводе перед выводным окном.

Эксперименты проводились при двух значениях энергии ионов, которые после прохождения ионами измерительных фольг диагностического блока, фольги выходного окна и воздушной прожектки между окном и образцом составляли 230 МэВ и 170 МэВ.

В опытах использовались никелевые фольги толщиной 50 мкм. Пробеги ионов Ne с указанными энергиями равны, соответственно, 70 мкм и 50 мкм. На рис.2 представлена зависимость величины смещений на атом от величины пробега ионов Ne в никеле. Видно, что в первом случае плотность дефектов по толщине фольги меняется всего в 2 раза. Во втором случае однородность была несколько хуже, но это не оказало существенного влияния на полученные результаты.

Выбор никеля в качестве испытуемого материала определялся тем, что это хорошо изученный материал, поведение которого, а также других гцк-металлов в радиационных условиях при облучении нейтронами, лёгкими частицами и электронами исследовано как с точки зрения изменения механических свойств, так и с точки зрения структурных изменений. Существенным моментом являлось и то, что для никеля термическая активация миграции вакансий незначительна вплоть до температуры  $\sim 100^\circ\text{C}$  <sup>2</sup>.

В наших опытах использовались никелевые образцы, имеющие два разных примесных состава (см. таблицу):



ПРИМЕСНЫЙ СОСТАВ ОБРАЗЦОВ  
(в вес.%)

Ni	Co	Cr	Cu	Fe	Mn	V
99,8	0,049	0,0050	0,0050	0,082	0,025	0,004
99,92	0,042	0,0005	0,0040	0,009	0,018	0,0012

Образцы имели стандартную форму с размерами рабочей части  $15 \times 2,8 \text{ мм}^2$

При изготовлении использовалась электроискровая резка. Перед облучением образцы отжигались в течение 1 часа в вакууме при давлении  $10^{-5}$  Па при температуре  $900^\circ\text{C}$  с последующим медленным охлаждением до комнатной температуры. Средний размер зерна составлял 10 мкм, что значительно меньше толщины фольги и, соответственно, пробега ионов Ne указанных энергий. Это даёт основание рассматривать данный материал как объёмный и толщину образцов достаточной, чтобы не учитывать влияния поверхности.

Потеря энергии ионов в образце приводит к тепловыделению  $\sim 3$  Вт при интенсивности пучка  $10^{11} \text{ с}^{-1}$ . Поэтому во время облучения образец охлаждался сжатым воздухом, и температура его не превышала  $100^\circ\text{C}$ . Температурные измерения проводились в специальных опытах, в которых по площади образца размещались термометры и определялось температурное распределение. Перепад температур в пределах рабочей части образца составлял не более  $50^\circ\text{C}$ .

После облучения образцы испытывались на растяжение со скоростью деформации  $10^{-4} \text{ с}^{-1}$ .

Во время облучения и испытания образцов проводилось измерение следующих величин: интенсивность пучка, поперечный поток частиц, прошедших через образец, распределение интенсивности пучка по длине образца, силовая нагрузка, деформация образца. Сигналы от соответствующих датчиков собирались в систему сбора и обработки данных. Более подробно методика измерений описана в работах [8, 9].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

При исследовании кривых деформации, измерявшихся после различных доз облучения, было обнаружено увеличение предела текучести  $\sigma_{0,2}$ , которое имеет место и при облучении другими видами радиации.

Результаты представлены на рис. 3. Видно, что, начиная с дозы  $10^{14} \text{ см}^{-2}$ , величина  $\sigma_{0,2}$  монотонно возрастает и достигает относи-

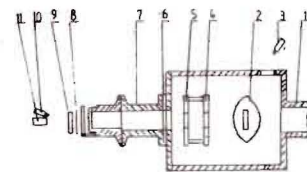


Рис. 1. 1-коллиматор, 2-танталовая диафрагма, 3-телекамера, 4-диафрагма, 5-монитор вторичной электронной эмиссии, 6-изолятор, 7-цилиндр Фарадея, 8-образец, 9-кварцевый экран, 10-телекамера, 11-лазер.

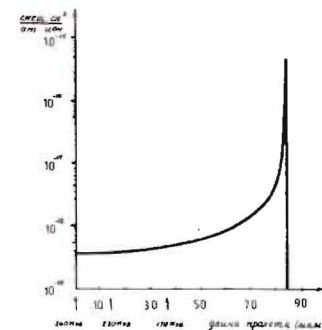


Рис. 2. Зависимость сечения образования дефектов от величины пробега ионов неона в никеле.

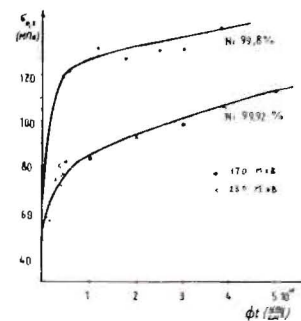


Рис. 3. Зависимость предела текучести никеля от дозы облучения ионами Ne.

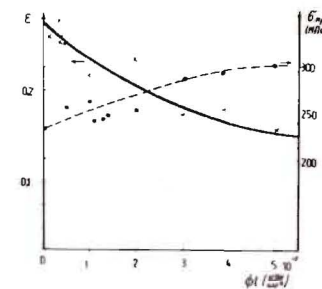


Рис. 4. Зависимость деформации до разрушения и предела прочности от дозы облучения.

тельного увеличения 120-150% при дозе  $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$ . Степень увеличения  $\sigma_{0,2}$  различна для образцов, отличающихся примесным составом. начальная величина  $\sigma_{0,2}$  для необлучённых образцов составляла  $48 \pm 5 \text{ МПа}$ , и влияния примесного состава не наблюдалось.

Влияние облучения проявилось также в охрупчивании образцов. Деформация до разрушения менялась в зависимости от дозы в пределах 0,26-0,15, при этом предел прочности увеличивался с начального значения 225 МПа до 280 МПа (рис. 4).

Систематические исследования прямыми методами структуры металлов, облучённых лёгкими частицами /1, 10-15/, в сочетании с металловыми испытаниями позволили установить основные типы радиационных дефектов, ответственных за изменение прочностных свойств металлов. Результаты этих работ свидетельствуют, что радиационное упрочнение и охрупчивание FCC- и OЦК-металлов обусловлено кластерами дефектов междоузельного и вакансионного типа с размерами до 5 нм, образующихся в материале при облучении. Эти кластеры являются препятствиями для скольжения дислокаций, что приводит к увеличению величины критического скалывающего напряжения (предела текучести), и эффект должен возрастать по мере увеличения концентрации кластеров, определяемой дозой облучения. По-видимому, этот эффект должен иметь насыщение при достижении определённой дозы, которая в наших опытах не была достигнута.

Для интерпретации эффекта радиационного упрочнения разработано несколько моделей /10-14/, отличающихся тем, какому виду кластеров отдаётся предпочтение как наиболее влиятельному. Это приводит к разным зависимостям прироста  $\sigma_{0,2}$  от флюенса частиц, прошедших через материал.

В модели Зегера /10/ предполагается возникновение в каскадах столкновения объединённых зон, которые являются эффективными препятствиями для движущихся дислокаций. Это приводит к зависимости

$$\Delta \sigma_{0,2} = A (\Phi t)^{1/2}, \quad (1)$$

где  $\Delta \sigma_{0,2}$  - изменение предела текучести, A - размерный коэффициент,  $\Phi$  - плотность потока ( $\text{см}^{-2}$ ), t - время облучения.

Такая же зависимость получена в теории упрочнения Флауэра /11/, которая основана на предположении о наличии в кристаллической решётке тетрагональных искажений, появляющихся вследствие облучения.

Анализируя результаты облучения меди нейтронами, Блюдетт и др. /12/ установили соотношение

$$\Delta \sigma_{0,2} = B (\Phi t)^{1/3}, \quad (2)$$

Численный расчёт, сделанный Форненом /13/ в предположении о хаотическом расположении дислокационных петель, дал результат

$$\Delta \tau_{кр} = \frac{\mu b}{B} \sqrt{n d}, \quad (3)$$

где  $\tau_{кр}$  - критическое скалывающее напряжение,  $\mu$  - модуль сдвига, B - безразмерный коэффициент, n - плотность петель с диаметром  $\alpha$ . Дозовая зависимость предела текучести определяется дозовой зависимостью величины n. Зинкле и Кульчински /14/, основываясь на измерении электросопротивления, установили зависимость

$$n \sim (\Phi t)^{1/2}, \quad (4)$$

что вместе с предыдущей формулой с учётом пропорциональности  $\Delta \tau_{кр}$  и  $\Delta \sigma_{0,2}$  даёт зависимость

$$\Delta \sigma_{0,2} \sim (\Phi t)^{1/4}. \quad (5)$$

На основе имеющегося в литературе экспериментального материала по FCC-металлам нет оснований отдать предпочтение какой-либо одной из перечисленных моделей. Зависимость (1) подтверждена в опытах Диала /15/ при облучении меди нейтронами с энергией  $E > 0,1 \text{ МэВ}$  до дозы  $2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$  и в опытах Зеленского /16/ при облучении никеля электронами с энергией 8, 26 и 225 МэВ. В опытах Ибрагимова и др. /2/, в которых Ni и Cu облучались протонами и  $\alpha$ -частицами, а также нейтронами в диапазоне доз  $2 \cdot 10^{20} - 2 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-2}$ , была подтверждена зависимость (2). Зависимость (3) подтверждают результаты Зинкле и Кульчинского /14/, полученные при облучении меди 14 МэВ нейтронами до дозы  $3 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-2}$ .

Представление наших результатов в соответствии с зависимостями типа  $\sigma_{0,2} \sim (\Phi t)^{1/3}$  и  $\sigma_{0,2} \sim (\Phi t)^{1/4}$  дано на рис. 5, 6, из которых видно, что трудно отдать предпочтение одной из них. Возможно, что при меньшем разбросе данных и расширении диапазона доз облучения можно было бы сделать более определённый вывод. Необходимо отметить, что в нашем случае практически отсутствует инкубационный период, т.е. интервал дозы, в котором эффект увеличения предела текучести не проявляет себя, т.к. не достигается необходимая концентрация дефектов. При сопоставлении наших данных с зависимостью  $\sigma_{0,2} \sim (\Phi t)^{1/2}$  (рис. 7) видно, что в начале координат кривая оказывается выше начального значения  $\sigma_{0,2}$ . Этот факт говорит не в пользу выбора данной зависимости.



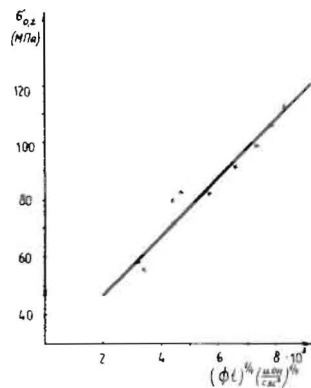


Рис. 5. Зависимость предела текучести Ni (99,92 вес. %) от  $(\Phi t)^{1/2}$ .

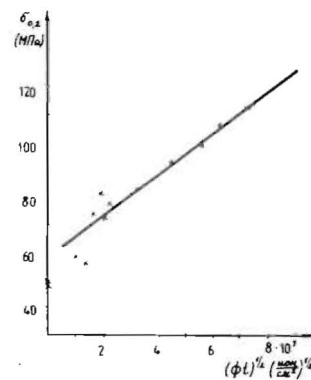


Рис. 7. Зависимость предела текучести Ni (99,92 вес. %) от  $(\Phi t)^{1/2}$ .

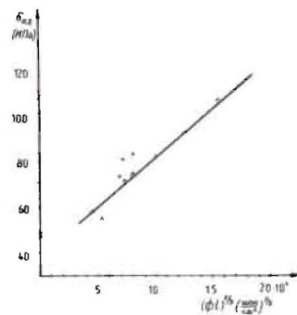


Рис. 6. Зависимость предела текучести Ni (99,92 вес. %) от  $(\Phi t)^{1/3}$ .

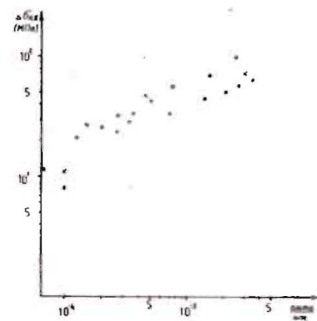


Рис. 8. Сравнение данных работы /3/ с результатами настоящей работы:  $\nabla$  15 МэВ-нейтроны из реакции  $T(d,n)$ ;  $\circ$  15 МэВ-нейтроны из реакции  $Be(d,n)$ ;  $\times$  16-МэВ протоны,  $*$  11,5 и 8,5 МэВ/н. ионы неона.

Сопоставление наших данных с данными Джонса и др. /3/, полученных на чистом никеле после облучения высокоэнергичными нейтронами ( $E > 14,8$  МэВ) и протонами ( $E=16$  МэВ), свидетельствует о качественной согласии хода кривых  $\Delta \sigma_{0,2}$ . Это показано на рис. 8, где значения  $\Delta \sigma_{0,2}$  даны в зависимости от числа смещений, вычисленных с использованием результатов работы /17/. Возможной причиной различия в величинах  $\sigma_{0,2}$  может быть разная исходная структура, чистота и обработка образцов. Например, в работе /3/ до облучения  $\sigma_{0,2}=65$  МПа и 78 МПа, в наших экспериментах  $\sigma_{0,2}=48 \pm 5$  МПа. Основную же роль в наблюдаемых расхождениях могут играть различия в спектрах ПНА, генерируемых нейтронами, протонами и тяжёлыми ионами.

Таким образом, наши эксперименты показали практическую возможность использования высокоэнергичных ионов для непосредственного изучения изменений механических свойств материалов. Сопоставление с результатами аналогичных опытов с использованием лёгких частиц и нейтронов показывает, что имеются общие закономерности в поведении материала под действием облучения. В то же время перечисленные преимущества тяжёлых ионов свидетельствуют о перспективности их применения в радиационном материаловедении.

В заключение авторы выражают благодарность академику Г.Н.Флёрову и профессору Ю.Ц.Оганесяну за постоянный интерес и поддержку, доктору Б.Фогарашу, принявшему участие в обсуждении результатов, Д.Бардошу за выполнение расчётов сечения дефектообразования и Г.Г.Гульбекяну и персоналу У-400 за обеспечение работы на пучке.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. И.Ш.Ибрагимов, Вопросы атомной науки и техники, серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение, Харьков, 1981, вып.5(19), с.25-36.
2. И.Ш.Ибрагимов и др., Радиационное упрочнение ГЦК-металлов, облучённых альфа-частицами и протонами средних энергий. Препринт ИЯФ АН КазССР, Алма-Ата, 1978.
3. Jones R.H., Bradley E.R. and Styris D.L., J. of Nucl. Mat. 116 /1983/ p. 297-304.
4. Ishino S. et al. J. of Nucl. Mat. v. 122-123 /1984/ p. 597-601
5. Г.Н.Флёров и др. Сообщения ОИЯИ, 18-83-537, Дубна, 1983.

6. В. Р. Рувель и др. Сообщения ОИЯИ, 18-12741, Дубна, 1979.
7. Б. Д. Афанасьев и др. Сообщения ОИЯИ, 18-83-791, Дубна, 1983.
8. К. Лаванчак и др. Сообщения ОИЯИ, 13-84-601, Дубна, 1984.
9. К. Лаванчак и др. Сообщения ОИЯИ, P7-85-261, Дубна, 1985.
10. Seeger A., 2nd United Nations Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy. United Nations, v. 6, New York, 1958, p. 250.
11. Fleisher R.L., J. Appl. Phys. v. 33 /1962/ p. 3504.
12. Blewitt T.H. et al., J. Nucl. Mat. v. 2 /1960/ p. 277-299.
13. Foreman A.J.T., Makin M.L., Phil. Mag. v. 14 /1966/ p. 911-924.
14. Hinkle S.J. and Kulcinski G.L., J. of Nucl. Mat. v. 122-123 /1984/ p. 449.
15. Diehl J., Proc. Symp. on Rad. Dam. IAEA Vienna, 1962.
16. В. Ф. Зеленский и др. В кн. "Реакторное материаловедение", т. 2, М., ЦНИИатоминформ, 1976, с. 192-213.
17. И. М. Абдрашитов и др. Препринт ИЯФ АН КазССР, 2-80, Алма-Ата, 1980.

Рукопись поступила в издательский отдел  
7 августа 1985 года.

Хаванчак К. и др.

P14-85-604

Изменение предела текучести никеля, облученного энергетичными тяжелыми ионами

Рассматривается изменение предела текучести никеля, облученного энергетичными тяжелыми ионами. Исследовались изменения в прочностных свойствах никеля, облученного ионами с энергией 11,5 и 8,5 МэВ/н. Эксперименты проводились на внешней пучке ускорителя У-400. Образец, зажатый в испытательной установке INSTRON 1121, облучался тяжелыми ионами, после чего проводились измерения нагрузки, приложенной к образцу, и его деформации. Начиная с дозы  $10^{14}$  см<sup>-2</sup>, величина  $\sigma_{0,2}$  монотонно возрастает и достигает относительного увеличения 120 - 150% при дозе  $5 \cdot 10^{15}$  см<sup>-2</sup>. Степень увеличения  $\sigma_{0,2}$  различна для образцов, отличающихся примесным составом. Влияние облучения проявилось также в охрупчивании образцов. Эксперименты показали практическую возможность использования высокоэнергетичных ионов для непосредственного изучения изменений механических свойств материалов.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1985

Перевод О.С.Виноградовой

Chavanchak K. et al.

P14-85-604

Change in the Yield Strength of Nickel Irradiated by Energy Heavy Ions

Change in the yield strength of nickel irradiated by high-energy heavy ions was considered. The strength change of nickel irradiated by Ne-ions with 11.5 and 8.5 MeV/nuc1. energy were investigated. The experiment was carried out on the external beam of the U-400 cyclotron. The ion beam irradiated the sample which was mechanically fixed in a special test machine INSTRON 1121 and after irradiation the load and sample deformation were measured. The yield strength  $\sigma_{0,2}$  monotonically increases from  $10^{14}$  cm<sup>-2</sup> dose and reaches relative increase of 120 - 150% at dose  $5 \cdot 10^{15}$  cm<sup>-2</sup>. The increase extent of  $\sigma_{0,2}$  is different for samples with various mixture composition. The irradiation effected also the embrittlement of the sample. The present experiment has shown the possibility of practical utilization of high-energy ions for direct investigation of mechanical property changes in the materials.

The investigation has been performed at the Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1985