

## РАДИАЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ В СТАЛИ 08X18N10T ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ВЫСОКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИМИ ИОНАМИ ЖЕЛЕЗА И НИКЕЛЯ

И.И. Чернов<sup>1)</sup>, М.С. Стальцов<sup>1)</sup>, Б.А. Калинин<sup>1)</sup>, П.С. Джумаев<sup>1)</sup>, А.С. Диков<sup>2)</sup>, И.А. Иванов<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup>Национальный Исследовательский ядерный университет «МИФИ»,  
Каширское ш. 31, 115409 Москва, Россия

<sup>2)</sup>Институт ядерной физики, ул. Ибрагимова 1, 1050032 Алматы, Казахстан  
i\_chernov@mail.ru, m.staltsov@gmail.com, BAKalin@mephi.ru, PSDzhumaev@mephi.ru,  
dikov@inp.kz, igor.ivanov.inp@gmail.com

С помощью просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) изучено влияние облучения высокоэнергетическими ионами Fe<sup>10+</sup> и Ni<sup>11+</sup> при 650 °С до дозы 100 сна на развитие вакансионной пористости, изменение химического и структурно-фазового состава стали 08X18N10T. Обнаружено двугорбое распределение пор по размеру по глубине мишеней, что вызвало два максимума распухания на расстояниях 4-5 и 8-9 мкм (облучение ионами железа) и 4-7 и 8.5-10 мкм (облучение ионами никеля) от облученной поверхности. Обнаружено перераспределение химических элементов как на поверхности, так и в объеме облученной стали, в частности, обеднение границ зерен хромом и обогащение их железом и никелем. Кроме этого, установлено радиационно-стимулированное растворение частиц второй фазы (карбидов/карбонитридов титана). При этом в объемах вокруг вакансионных пор выявлено формирование зон с повышенной концентрацией титана. Показано, что такое интенсивное растворение второй фазы в конце пробега бомбардирующих частиц отсутствует вследствие потери ими значительной доли энергии. В отличие от облучения ионами железа, при облучении ионами никеля перераспределение легирующих элементов между границами зерен и телом зерна, как и перераспределение их в локальных объемах в глубине материала, значительно менее выражены.

**Ключевые слова:** аустенитная сталь; ионное облучение; радиационное распухание; сегрегационные явления; изменение фазового состава.

## RADIATION EFFECTS IN STEEL 0.08C18Cr10NiTi UNDER IRRADIATION WITH HIGH-ENERGY IRON AND NICKEL IONS

I.I. Chernov<sup>1)</sup>, M.S. Staltsov<sup>1)</sup>, B.A. Kalin<sup>1)</sup>, P.S. Dzhumayev<sup>1)</sup>, A.S. Dikov<sup>2)</sup>, I.A. Ivanov<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup>National Research Nuclear University "MEPhI", 31 Kashirskoe Sh., 115409 Moscow, Russia

<sup>2)</sup>Institute of Nuclear Physics, 1 Ibragimov Str., 1050032 Almaty, Kazakhstan

Development of vacancy porosity, changes in the chemical and structural-phase composition of austenitic 08Cr18N10T steel were studied under irradiation by high energy Fe<sup>10+</sup> and Ni<sup>11+</sup> ions by means of transmission electron microscopy (TEM). To study the microstructure evolution over the targets depth, TEM samples were cut perpendicular to irradiated surface by the focused ion beam. A double-humped void size distribution and two swelling maxima at distances of 4-5 and 8-9 μm (irradiation by iron ions) and at distances of 4-7 and 8.5-10 μm (nickel ions) were found over the targets depth. Total swelling of irradiated samples did not exceed fractions of a percent regardless the pore nucleation depth and type of bombarding ions due to low density of voids. Redistribution of chemical elements both on the surface and in the bulk of irradiated steel was found, in particular, depletion of grain boundaries in chromium with the formation of a layer rich in chromium along the grain boundaries, and enrichment of boundaries by iron and nickel. In the deep layers of the material, the redistribution of elements is more local in nature, which may be due to the fact that the main sinks are dislocations and free surfaces of voids forming during the irradiation. It was established radiation-stimulated dissolution of second phase particles (titanium carbonitrides) in addition. In this case, the formation of zones with an increased titanium concentration was revealed in the volumes around the vacancy pores. It is shown such an intense dissolution of second phase is absent at the end of the path of bombarding particles. Redistribution of alloying elements between the grain boundaries and the grain body as well as their redistribution in local volumes in the depth of the material are much less pronounced during irradiation with nickel ions in contrast to irradiation by iron ions.

**Keywords:** austenitic steel; ion irradiation; radiation swelling; segregation phenomena; structural-phase composition changes.

## Введение

Экономичность реакторов на быстрых нейтронах (БР) возрастает при увеличении глубины выгорания ядерного топлива, но для этого нужны новые конструкционные материалы для оболочек твэлов с большей радиационной стойкостью. Однако использование их в БР невозможно без всестороннего исследования поведения структуры, механических, жаропрочных, радиационных, коррозионных и др. свойств под облучением. Облучение в ядерном реакторе дорого для исследователя, требует длительного времени вследствие долгого облучения и выдержки для спада наведенной активности. В связи с этим привлекательны исследования путем облучения в ускорителях тяжелых ионов, поскольку требуемые дозы достигаются за несколько десятков (иногда сотни для достижения больших повреждающих доз) часов облучения, несмотря на то что имитационные исследования имеют целый ряд известных недостатков, главное – невозможность полностью смоделировать облучение в ядерном реакторе [1].

## Материалы и методы исследования

Для исследования выбрана хорошо изученная во всех отношениях гомогенная сталь 08X18H10T в аустенизированном состоянии (1050 °С, 1 ч, вода), в структуре которой присутствовали только первичные карбонитриды Ti(C, N). Облучение проведено в импульсном ускорителе ДЦ-60 в филиале Института ядерной физики РК (г. Нур-Султан) ионами  $^{56}\text{Fe}^{10+}$  с энергией 98 МэВ и  $^{58}\text{Ni}^{11+}$  с энергией 101,5 МэВ до дозы 100 сна при 650 °С. Структура, химический и фазовый состав поверхности необлученных и облученных образцов изучены в РЭМ JEOL JSM7500F (Япония), EVO-50 (Германия) с приставками для элементного анализа, атомно-силовом микроскопе AIST-NT Smart SM-1000 (США). Образцы для ПЭМ были приготовлены методом FIB (фокусированного ионного пучка, Focused Ion Beam) путем вырезания их

перпендикулярно облученной поверхности. Исследование микроструктуры по глубине мишеней проведено в сканирующе-просвечивающем электронном микроскопе Titan G2 80-200 S/TEM (США).

## Результаты и их обсуждение

Эффекты на поверхности. После облучения ионами железа обнаружено сильное травление границ зерен, обеднение их Cr и O, обогащение Fe, Mn и Ni [2], что согласуется с литературными данными, полученными на других сталях, облученных в иных условиях [3]. После облучения ионами  $\text{Ni}^{11+}$  травления границ зерен, как и существенного перераспределения легирующих элементов и примесей по поверхности, не обнаружено.

При облучении ионами как железа, так и никеля, в зерне образуются характерные структуры, но отличающиеся в зависимости от вида ионов не только морфологией, но и химическим и фазовым составом. Если после облучения ионами железа в теле зерен образуется столбчатая структура, состоящая из оксидов хрома [2], то, как видно на рис. 1, после облучения ионами никеля образовалась не столбчатая структура, а сформировались некие новообразования на поверхности, имеющие форму глобул или наростов.

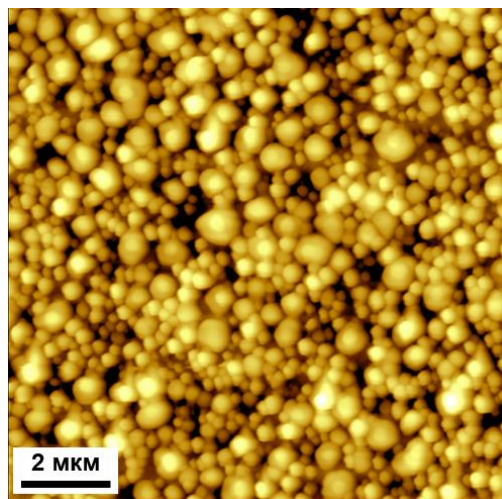


Рис. 1. Топография поверхности образца стали 08X18H10T после облучения ионами  $\text{Ni}^{11+}$   
Fig. 1. Surface topography of 08Cr18N10T steel specimen after irradiation by  $\text{Ni}^{11+}$  ions

Элементный анализ показал, что наросты на стали, облученной ионами никеля, содержат значительно больше O, Cr, Ti, повышенное количество Si, но меньше Fe, чем области поверхности, находящиеся между наростами, т.е., в отличие от облучения ионами железа, новообразования на поверхности представляют собой смесь оксидов хрома, титана и кремния. При этом содержание Ni как в наростах, так и на участках между ними, значительно меньше номинального (6-7 мас. % против ~10 мас. %) для исследованной стали 08X18H10T.

Общим в изменении фазового состава стали при облучении ионами  $Ni^{11+}$  и  $Fe^{10+}$  является то, что многие частицы первичных карбидов (карбонитридов) титана  $Ti(C, N)$ , первоначально присутствовавшие на поверхности стали, под ионной бомбардировкой диссоциируют (рис. 2). Можно полагать, что атомы углерода, освободившиеся из распавшихся карбидных частиц, имея намного большую, чем атомы титана, подвижность в аустените при 650 °C [4], равномерно растворились в матрице (см. рис. 2, г), а оставшиеся на том месте богатые титаном области поверхности (см. рис.2, в) уже не содержат повышенного содержания углерода, т.е. такие области уже не являются карбидами титана.

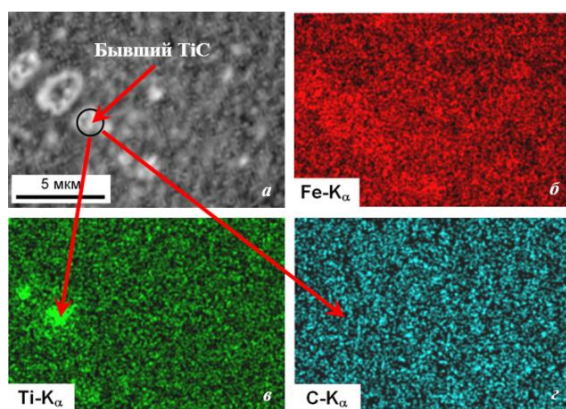


Рис. 2. Общий вид исходной поверхности (а) и карта распределения элементов по поверхности облученного образца стали 08X18Ni10T (б-г)  
Fig. 2. General view of the initial surface (a) and the map of elements distribution on the surface irradiated sample of 1 08Cr18Ni10Ti steel

**Эффекты в объеме.** Сегрегационные явления протекают и в объеме облучаемого материала. На рис. 3 показано локальное перераспределение элементов в объеме облученного образца на глубине 6-7 мкм от поверхности. Как видно, в области интенсивного радиационного воздействия наблюдаются сегрегация Ni и обеднение этих же областей железом и хромом.

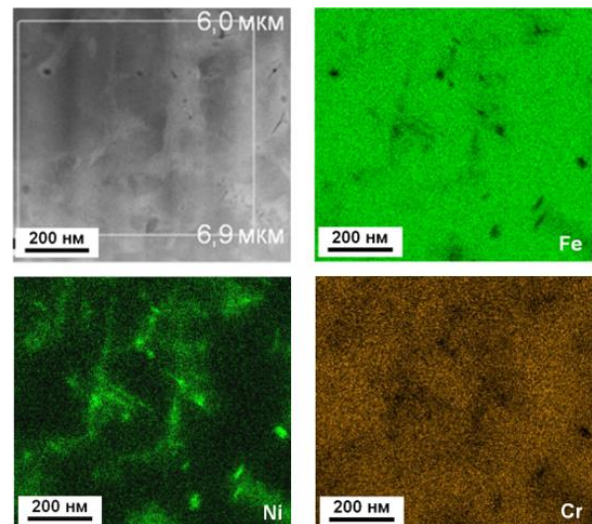


Рис. 3. Микроструктура стали 08X18Ni10T после облучения ионами  $Fe^{10+}$  и карта распределения основных элементов на глубине ~6-7 мкм  
Fig. 3. Microstructure of 08Cr18Ni10Ti steel after irradiation by  $Fe^{10+}$  ions and the map of main elements distribution at a depth of ~ 6-7 μm

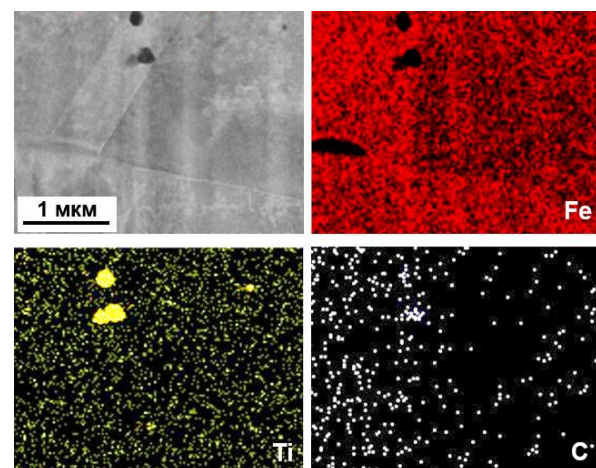


Рис. 4. Диссоциация карбидов титана в объеме стали под облучением ионами  $Ni^{11+}$   
Fig.4. Dissociation of titanium carbides particles in the bulk of steel under irradiation by  $Ni^{11+}$  ions

При облучении ионами никеля происходят такие же структурно-фазовые изменения как на поверхности, так и в объеме ма-

териала, что и при облучении ионами железа, а именно – растворение (распад) первичных карбонитридов титана (рис. 4).

Поскольку после распада карбонитридов титана и равномерного растворения углерода в матрице титан остается на месте бывших карбидных частиц, на основе полученных результатов сделано логичное предположение, что времена облучения ионами  $\text{Fe}^{10+}$  (313 ч) и  $\text{Ni}^{11+}$  (720 ч), т.е. времена выдержки образцов при 650 °С вполне достаточны для образования предвыделений или мелкодисперсных выделений фазы Лавеса  $\text{TiFe}_2$  имея ввиду то, что Ti ограниченно растворим в  $\gamma$ -Fe только в температурном интервале от ~900 до ~1300 °С, и при 650 °С может присутствовать в аустенитной стали только в виде интерметаллида [5].

То, что приведенные выше результаты вызваны именно ионным облучением, демонстрирует рис. 5.

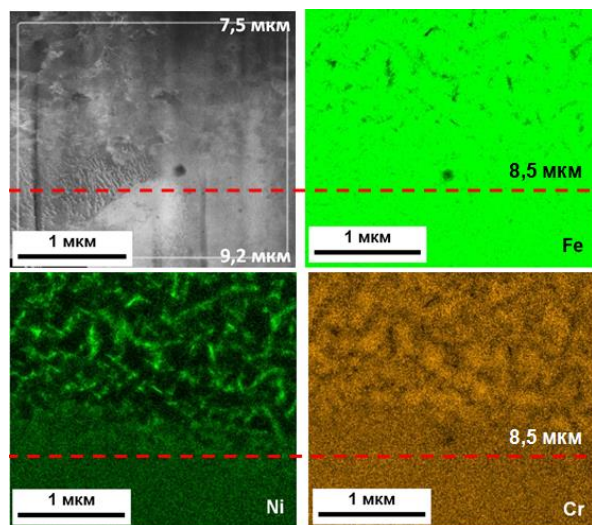


Рис. 5. Сегрегационные явления до 8.5 мкм и равномерное распределение легирующих элементов в объеме стали на глубинах более 8.5 мкм

Fig.5. Segregation phenomena up to 8.5 microns and uniform distribution of alloying elements in the volume of steel at depths of more than 8.5 microns

Сегрегации Ni и обеднение этих областей Fe и Cr имеет место только в области радиационного воздействия до ~8.5 мкм. На глубинах более ~8.5 мкм повреждение структуры отсутствует, и наблюдается равномерное распределение легирующих эле-

ментов в объеме стали.

Другим важным изменением микроstructures облученной стали является образование вакансионной пористости при ионном облучении, которое вызывает радиационное распухание облучаемого материала (рис. 6). Как видно на снимке, полученном в STEM, после ионного облучения при 650 °С в стали развиваются ограниченные поры невысокой плотности с максимальным размером ~40 нм, однако крайне низкая их плотность, а также высокая для выбранной стали температура облучения вызывают радиационное распухание не выше долей процента.

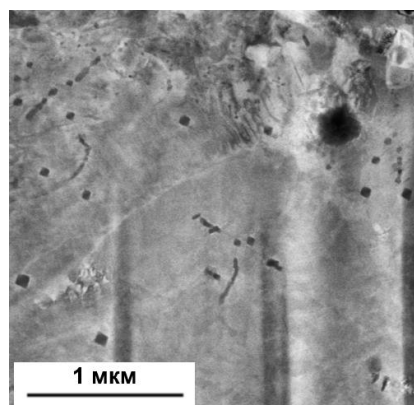


Рис. 6. Типичный вид вакансионных пор в стали, облученной ионами  $\text{Ni}^{11+}$   
Fig.6. Typical view of voids in steel irradiated by  $\text{Ni}^{11+}$  ions

При облучении как ионами Fe, так и Ni, обнаружено двугорбое распределение пор по размеру по глубине мишеней, что вызвало два максимума распухания на расстояниях 4-5 и 8-9 мкм (облучение ионами Fe) и 4-7 и 8.5-10 мкм (облучение ионами Ni) (рис. 7). Сделан вывод о том, что минимум распухания соответствует максимуму концентрации внедренных атомов Fe и Ni, т.е. внедренные атомы рекомбинируют с радиационными вакансиями на глубине около 7–8 мкм вследствие высокой растворимости их в облучаемом материале (железе) в отличие от комбинации V (мишень) – Ni (бомбардирующие частицы), в которой внедряемые атомы малорастворимы в облучаемой мишени и вся пористость развивается в слое максимального поврежде-

ния структуры [6].

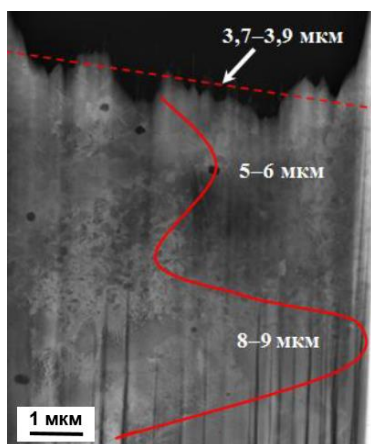


Рис. 7. Распухание по глубине образца стали 08X18N10T после облучения ионами  $\text{Fe}^{10+}$   
Fig. 7. Swelling along the depth of the 08Cr18Ni10Ti steel specimen after irradiation by  $\text{Fe}^{10+}$  ions

### Заключение

Облучение ионами  $\text{Fe}^{10+}$  и  $\text{Ni}^{11+}$  формирует разную морфологию поверхности: в первом случае наблюдается травление границ зерен, обеднение их Cr, O и обогащение Ni, формирование столбчатой структуры, состоящей из оксида хрома; во втором случае травление и существенное перераспределение легирующих элементов не обнаружены, однако наблюдаются новообразования, состоящие из смеси оксидов Cr, Ti и Si. В глубине перераспределение элементов носит локальный характер. При облучении  $\text{Ni}^{11+}$  и  $\text{Fe}^{10+}$  как на поверхности, так и в объеме стали частицы первичных карбидов титана диссоциируют, атомы C равномерно распределяются в зерне, а оставшиеся на месте карбида атомы Ti образуют выделения фазы Лавеса  $\text{TiFe}_2$ . Максимальный размер обнаруженных пор составляет  $\sim 40$  нм, а распределение вакансионного распухания по глубине образцов носит двугорбый характер, причем независимо от глубины залегания пор общее распухание облученной стали не превышает долей процента.

### Библиографические ссылки

1. Зеленский В.Ф., Неклюдов И.М., Ожигов Л.С., Резниченко Э.А., Рожков В. В., Черняева Т.П. Не-

которые проблемы физики радиационных повреждений материалов. Киев: Наукова думка, 1979. 40 с.

2. Staltsov M.S., Chernov I.I., Dikov A.S., Ivanov I.A. Surface evolution of the 18Cr10NiTi steel under irradiation by 98 MeV  $^{56}\text{Fe}^{10+}$  ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 2021; 491: 59-65.
3. Was G.S., Wharry J.P., Frisbie B., Wirth B.D., Morgan D., Tucker J.D. et al. Assessment of radiation-induced segregation mechanisms in austenitic and ferritic–martensitic alloys. *J. Nucl. Mater.* 2011; 411: 41-50.
4. Калинин Б.А., Платонов П.А., Тузов Ю.В., Чернов И.И., Штромбах Я.И. Физическое материаловедение: Учебник для вузов. Том 6. Конструкционные материалы ядерной техники. Москва: НИЯУ МИФИ; 2021. 736 с.
5. Лякишев Н.П. Диаграммы состояния двойных металлических систем / Справочник в 3-х т. Москва: Машиностроение, 1996.
6. Chernov I.I., Stal'tsov M.S., Kalin B.A., Aung Kyaw Zaw, Drozhzhina M.V., Nikolaeva I.D. et al. Particularities of vanadium microstructure development during irradiation by 7.5 MeV  $\text{Ni}^{2+}$  ions at 650 °C. *Atomic Energy* 2015; 118(6): 400-404.

### References

1. Zelenskiy V.F., Neklyudov I.M., Ozhigov L.S., Reznichenko E.A., Rozhkov V. V., Chernyayeva T.P. Nekotoryye problemy fiziki radiatsionnykh povrezhdeniy materialov. Kiyev: Naukova dumka, 1979. 40 p. (In Russian)
2. Staltsov M.S., Chernov I.I., Dikov A.S., Ivanov I.A. Surface evolution of the 18Cr10NiTi steel under irradiation by 98 MeV  $^{56}\text{Fe}^{10+}$  ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 2021; 491: 59-65.
3. Was G.S., Wharry J.P., Frisbie B., Wirth B.D., Morgan D., Tucker J.D. et al. Assessment of radiation-induced segregation mechanisms in austenitic and ferritic–martensitic alloys. *J. Nucl. Mater.* 2011; 411: 41-50.
4. Kalin B.A., Platonov P.A., Tuzov Yu.V., Chernov I.I., Shtrombakh Ya.I. Fizicheskoye materialovedeniye: Uchebnik dlya vuzov. Tom 6. Konstruktsionnyye materialy yadernoy tekhniki. Moskva: NIYAU MIFI; 2021. 736 p. (In Russian)
5. Lyakishev N.P. Diagrammy sostoyaniya dvoynnykh metallicheskiykh sistem / Spravochnik v 3-kh t. Moskva: Mashinostroyeniye, 1996. (In Russian)
6. Chernov I.I., Stal'tsov M.S., Kalin B.A., Aung Kyaw Zaw, Drozhzhina M.V., Nikolaeva I.D. et al. Particularities of vanadium microstructure development during irradiation by 7.5 MeV  $\text{Ni}^{2+}$  ions at 650 °C. *Atomic Energy* 2015; 118(6): 400-404.