

## ИЗУЧЕНИЕ РАДИАЦИОННОЙ СЕГРЕГАЦИИ ЭКВИАТОМНЫХ СПЛАВОВ НА ОСНОВЕ ВАНАДИЯ ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ИОНАМИ КРИПТОНА С ЭНЕРГИЕЙ 147 МЭВ

И.А. Иванов<sup>1), 2)</sup>, Б.С. Аманжулов<sup>1), 2)</sup>, В.В. Углов<sup>3)</sup>, С.В. Злоцкий<sup>3)</sup>, Ке Джин<sup>4)</sup>,  
А.Е. Рыскұлов<sup>1)</sup>, А.Е. Курахмедов<sup>1)</sup>, Е.В. Бихерт<sup>1)</sup>, Д.А. Мустафин<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>Институт ядерной физики, ул. Ибрагимова 1, Алматы 050032, Казахстан,  
*i.ivanov@inp.kz, b.amanzhulov@inp.kz, ryskulov\_nbd@mail.ru,*  
*a.kurahmedov@inp.kz, e.bikhert@inp.kz, d.mustafin@inp.kz*

<sup>2)</sup>Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева,  
ул. Сатпаева 2, Астана 010008, Казахстан

<sup>3)</sup>Белорусский государственный университет,

*пр. Независимости 4, Минск 220030, Беларусь, uglov@bsu.by, zlotski@bsu.by*

<sup>4)</sup>Пекинский технологический институт, ул. Южная 5, Чжунгуаньцунь, район Хайдянь,  
100081 Пекин, Китай, *jinke@bit.edu.cn*

В работе изучались изменения морфологии и элементного состава эквиатомных сплавов на основе ванадия после облучения ионами  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  с энергией 147 МэВ и флюенсом ионов  $1 \times 10^{13} - 1 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$  при комнатной температуре и при 700°C. На поверхности облученных V, VNb, VNbTa, и высокоенткопийного сплава (ВЭС) VNbTaTi не выявлено крупных дефектов, за исключением сколов. Согласно результатам анализа, методом энергодисперсионной спектроскопии (РЭМ-ЭДС) в VNbTa и VNbTaTi сегрегация элементов, особенно Ta, усиливается с увеличением флюенса. В VNb сегрегация достигает максимума при флюенсе  $1 \times 10^{14} \text{ см}^{-2}$ , а затем уменьшается. При облучении VNbTaTi при 700°C преобладает сегрегация титана. Также с помощью анализа методом Резерфордовского Обратного Рассеяния (POP) обнаружено увеличение концентраций Та с глубиной в образцах, облученных ионами криптона с флюенсом  $1 \times 10^{13} \text{ см}^{-2}$ . Сплавы VNbTa и VNbTaTi проявляют подверженность радиационной сегрегации, однако уровень сегрегации находится в пределах, характерных для аналогичных ВЭС, исследованных в других работах.

**Ключевые слова:** ионное облучение; высокоенткопийные сплавы; радиационная сегрегация; элементный анализ; ЭДС; Резерфордовское обратное рассеяние.

## STUDY OF RADIATION-INDUCED SEGREGATION OF VANADIUM-BASED EQUIATOMIC ALLOYS UNDER IRRADIATION WITH 147 MeV KRYPTON IONS

I.A. Ivanov<sup>1), 2)</sup>, B.S. Amanzhulov<sup>1), 2)</sup>, V.V. Uglov<sup>3)</sup>, S.V. Zlotsky<sup>3)</sup>, K. Jin<sup>4)</sup>, A.E. Ryskulov<sup>1)</sup>,  
A.Y. Kurakhmedov<sup>1)</sup>, Y.V. Bikhert<sup>1)</sup>, D.A. Mustafin<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>Institute of Nuclear Physics, 1 Ibragimov Str., 050032 Almaty, Kazakhstan,  
*i.ivanov@inp.kz, b.amanzhulov@inp.kz, ryskulov\_nbd@mail.ru,*  
*a.kurahmedov@inp.kz, e.bikhert@inp.kz, d.mustafin@inp.kz*

<sup>2)</sup>L.N. Gumilyov Eurasian National University, 2 Satpayev Str., 010008 Astana, Kazakhstan  
<sup>3)</sup>Belarusian State University,  
4 Nezavisimosti Ave., 220030 Minsk, Belarus, *uglov@bsu.by, zlotski@bsu.by*

4 Beijing Institute of Technology,  
5 South Str., Zhongguancun, Haidian District, 100081 Beijing, China, *jinke@bit.edu.cn*

The changes in the morphology and elemental composition of equiatomic alloys based on vanadium after irradiation with  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  ions with an energy of 147 MeV and an ion fluence of  $1 \times 10^{13} - 1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$  at room temperature and at 700°C were studied. No large defects except for chips were found on the surface of irradiated V, VNb, VNbTa, and high-entropy alloy (HEA) VNbTaTi. According to the results of energy-dispersive spectroscopy (SEM-EDS) analysis, the segregation of elements, particularly Ta, increases with the increase of fluence in VNbTa and VNbTaTi. In VNb, the segregation reaches a maximum at a fluence of  $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  and then decreases. When VNbTaTi is irradiated at 700°C, titanium segregation prevails. Moreover, using the Rutherford Backscattering

Spectroscopy (RBS) analysis, an increase in Ta concentrations with depth was found in samples irradiated with krypton ions with a fluence of  $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ . VNbTa and VNbTaTi showed susceptibility to radiation-induced segregation, but the level of segregation is within the limits characteristic of similar HEAs studied in other works.

**Keywords:** ion irradiation; high-entropy alloys; radiation-induced segregation; elemental analysis; EDS; Rutherford Backscattering Spectroscopy.

## Введение

Высокоэнтропийные сплавы (ВЭС), основанные на тугоплавких металлах, имеют высокую твердость и прочность при высоких температурах. ВЭС называют сплавы из четырех, пяти и более металлов, содержание которых в сплаве составляет около 5-35 ат.-% [1].

Радиационная устойчивость ВЭС значительно зависит как от сложности состава, так и от составляющих элементов. Радиационная сегрегация может привести к охрупчиванию сплавов [1].

В данной работе мы исследовали изменения элементного состава эквиатомных сплавов ванадия при облучении высокоэнергетическими ионами криптона с целью изучения влияния состава ВЭС на их подверженность радиационной сегрегации.

## Материалы и методы

Образцы были изготовлены в Пекинском Технологическом Институте методом дуговой плавки порошков чистых металлов V, Nb, Ta, Ti в атмосфере аргона высокой чистоты. Затем были произведены отжиг полученных слитков при температуре 1150°C в течение 24 ч, холодная прокатка и повторный отжиг образцов при 1150°C в течение 72 ч.

V, VNb, VNbTa, VNbTaTi облучались на циклотроне DC-60 (Астана, Казахстан) ионами  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  с энергией 147 МэВ и флюенсом ионов  $1 \times 10^{13} - 1 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$  при комнатной температуре (КТ) и при 700°C. Часть образцов была предварительно облучена ионами  $^{84}\text{Kr}^{14+}$  с энергией 280 кэВ и флюенсом  $5 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$ .

Морфология и элементный состав поверхности образцов исследовалась методами растровой электронной микроскопии (РЭМ) и энергодисперсионной спектроскопии (РЭМ-ЭДС) на электронном мик-

роскопе Hitachi TM3030 с использованием ускоряющего напряжения равного 15 кВ.

Глубинное распределение элементов были проанализировано на циклотроне DC-60 методом Резерфордовского Обратного Рассеяния (POP) на пучке ионов  $^{14}\text{N}^{2+}$  с энергией 14 МэВ. Результаты POP были обработаны в программе RUMP [2].

## Результаты и их обсуждение

Согласно расчетам в программе SRIM-2013, представленным на рис. 1, при облучении ионами Kr с энергией 147 МэВ и флюенсом  $1 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$  максимум радиационных повреждений в образцах отличался незначительно. Концентрации имплантированных ионов малы из-за распыления.

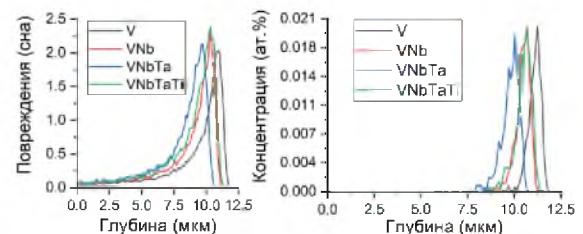


Рис. 1. (а) Радиационные повреждения и (б) дозы имплантации криптона в образцах, облученных ионами криптона с энергией 147 МэВ и флюенсом  $1 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$

На рис. 2 приведены снимки РЭМ, на которых не обнаружена эрозия поверхности, кроме небольших сколов размером до 4 мкм. В табл. 1 указан состав исходных образцов, полученный методом РЭМ-ЭДС.

Согласно результатам анализа, методом РЭМ-ЭДС, часть которых представлена на рис. 3, при облучении при КТ наибольшая сегрегация обнаружена для Та. Наибольшее увеличение концентрации Та обнаружено в VNbTa – 18.5% (5.15 ат.-%) при флюенсе  $1 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$ . В VNbTa, VNbTaTi сегрегация усиливается с флюенсом, а в VNb сегрегация достигает пика при  $1 \times 10^{14} \text{ см}^{-2}$ .

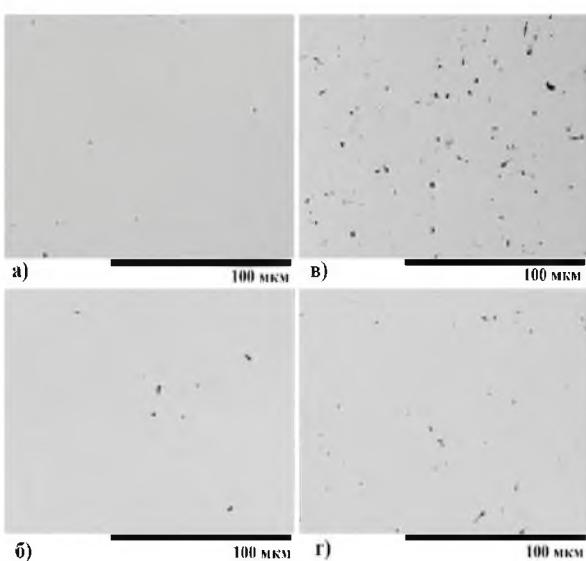


Рис. 2. Снимки РЭМ поверхности VNbTaTi а) необлученных, б) облученных ионами  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  с энергией 147 МэВ и флюенсом  $1 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$  при КТ, в) облученных ионами  $^{84}\text{Kr}^{14+}$  с энергией 280 кэВ и флюенсом  $5 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$ , г) образцы (в) облученные ионами  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  с энергией 147 МэВ и флюенсом  $1 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$  при  $700^\circ\text{C}$

Табл. 1. Концентрации элементов в исходных образцах. а – необлученный, б – облученный ионами Kr с энергией 280 кэВ

Образцы	Концентрация элементов, ат.%			
	V	Nb	Ta	Ti
VNb (а)	$49.9 \pm 0.5$	$50.1 \pm 1.1$	-	-
VNbTa (а)	$36.8 \pm 0.1$	$39.7 \pm 0.3$	$23.5 \pm 0.2$	-
VNbTa-Ti (а)	$26.0 \pm 0.1$	$27.6 \pm 0.2$	$18.4 \pm 0.2$	$28.0 \pm 0.1$
VNb (б)	$51.6 \pm 0.5$	$48.4 \pm 0.9$		
VNbTa (б)	$34.4 \pm 0.1$	$35.1 \pm 0.3$	$30.5 \pm 0.5$	
VNbTaTi (б)	$25.2 \pm 1.3$	$25.4 \pm 1.3$	$24.3 \pm 1.2$	$25.1 \pm 1.3$

При  $700^\circ\text{C}$  величины сегрегации в образцах схожи со значениями при комнатной температуре, но усиливается сегрегация титана, а содержание tantalа уменьшается. Концентрация Ti вырастает на 14.9% (3.73 ат.%) при флюенсе  $1 \times 10^{13} \text{ см}^{-2}$  и меняется с увеличением флюенса до  $1 \times 10^{14} \text{ см}^{-2}$  на вдвое меньшее значение.

Путем анализа спектров POP, часть которых представлена на рис. 4, подтвердилось, что после облучения с увеличением глубины увеличиваются и концентрации атомов Ta на величину до 48% (12 ат.%) в

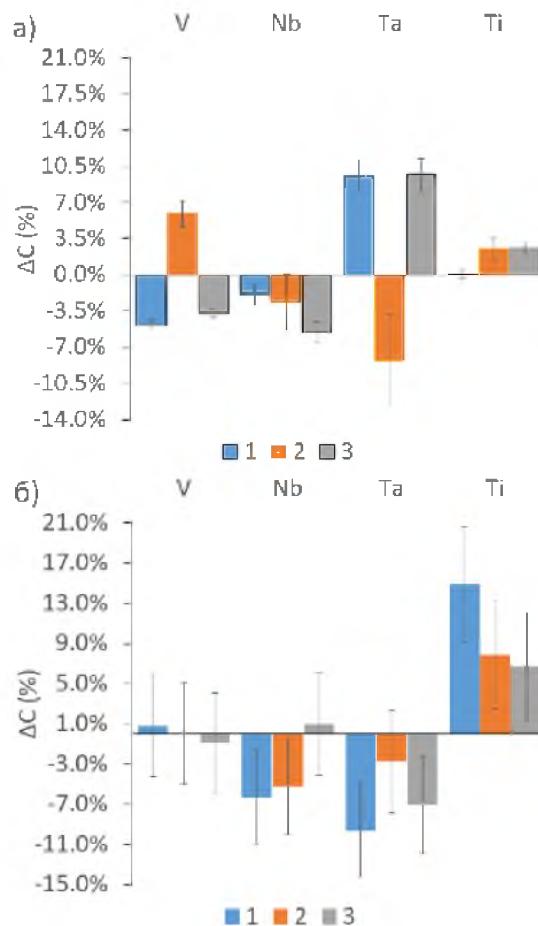


Рис. 3. Изменения концентраций элементов в VNbTaTi облученным ионами  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  с энергией 147 МэВ: а) при КТ, б) при  $700^\circ\text{C}$  относительно исходных образцов. Образцы облучены с флюенсом: 1 –  $1 \times 10^{13} \text{ см}^{-2}$ , 2 –  $1 \times 10^{14} \text{ см}^{-2}$ , 3 –  $1 \times 10^{15} \text{ см}^{-2}$

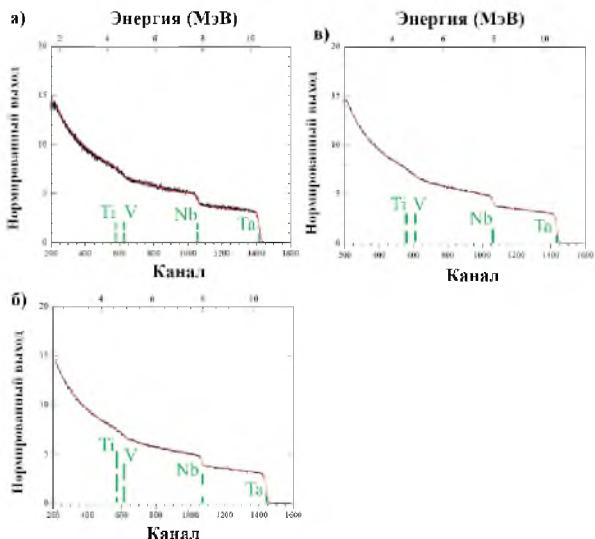


Рис. 4. Спектр POP VNbTaTi: а) исходного, б) облученного ионами  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  с энергией 147 МэВ с флюенсом  $1 \times 10^{13} \text{ см}^{-2}$  при КТ, в) облученного ионами  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  при  $700^\circ\text{C}$ . Красная линия – спектр RUMP, черная линия – экспериментальный POP спектр

VNbTa и до 33% (8.6 ат.%) в VNbTaTi относительно поверхностных эквиатомных концентраций (рис. 5).

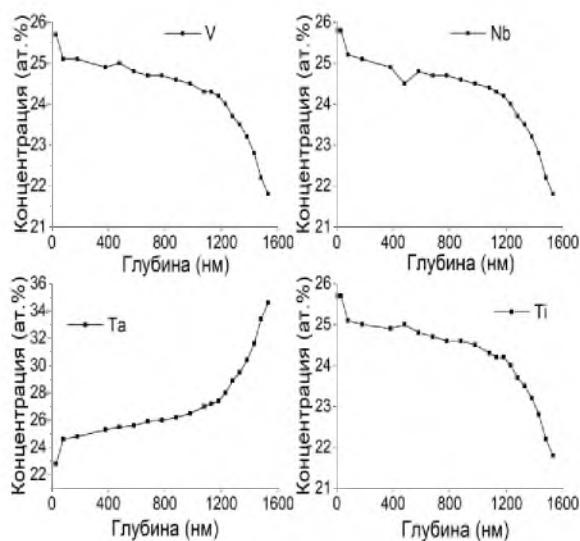


Рис. 5. Концентрации элементов согласно анализу результатов POP в VNbTaTi, облученном ионами  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  с энергией 147 МэВ с флюенсом  $1 \times 10^{13} \text{ см}^{-2}$ . Погрешность менее 6%

Радиационная сегрегация в данной работе не превышает значения, обнаруженные в схожих работах, где локальная сегрегация может превышать 75% или 30 ат.% [3].

Радиационная сегрегация могла быть вызвана миграцией атомов и дефектов к границам зерен и кластерам дефектов, которая конкурирует с изотропным баллистическим смешиванием [1]. Также возможно происходит миграция атомов Та на большую глубину вследствие более низкой энергии миграции для Та через вакансию [4]. С повышением температуры облучения усиливается диффузия и образование точечных дефектов в ОЦК ВЭС и усиливается сегрегация легких элементов [1].

## Заключение

На поверхности V, VNb, VNbTa, VNbTaTi, облученных тяжелыми ионами  $^{84}\text{Kr}^{15+}$  с энергией 147 МэВ не обнаружены следы крупных дефектов.

Согласно анализа результатов РЭМ-ЭДС при КТ с увеличением флюенса усиливается радиационная сегрегация, особенно концентраций Та, на поверхности VNbTa, ВЭС VNbTaTi. При облучении VNbTaTi при 700°C наиболее выражена сегрегация атомов титана.

С помощью анализа методом POP обнаружено увеличение концентраций Та с глубиной в VNbTa и VNbTaTi, облученных с флюенсом  $1 \times 10^{13} \text{ см}^{-2}$ .

VNbTa и ВЭС VNbTaTi показали подверженность радиационной сегрегации, но в пределах значений сегрегации для аналогичных ВЭС в других исследованиях.

Данное исследование финансировалось Комитетом науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (грант № АР19579188) и Министерством Энергетики Республики Казахстан (грант № BR23891530).

## Библиографические ссылки

- Pickering E.J., Cartuthers A.W., Barron P.J., Middleburgh S.C., Armstrong D.E.J., Gandy A.S. High-Entropy Alloys for Advanced Nuclear Applications. *Entropy* 2021; 23(1): 98.
- Doolittle L.R. Algorithms for the rapid simulation of Rutherford backscattering spectra. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 1985; 9(3): 344-351.
- El-Atwani O., Li N., Li M., Devaraj A., Baldwin J.K.S., Schneider M.M., et al. Outstanding radiation resistance of tungsten-based high-entropy alloys. *Science Advances* 2019; 5(3): eaav2002.
- Zhao S., Xiong Y., Ma S., Zhang J., Xu B., Kai J.J. Defect accumulation and evolution in refractory multi-principal element alloys. *Acta Materialia* 2021; 219: 117233.