

ВЛИЯНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ НА РАДИАЦИОННО-ИНДУЦИРОВАННУЮ ЗЕРНОГРАНИЧНУЮ СЕГРЕГАЦИЮ В ТРОЙНЫХ Fe-Cr-Ni СПЛАВАХ

А.Н. Карпиков, С.Б. Кислицин, А.Ю. Нестерова

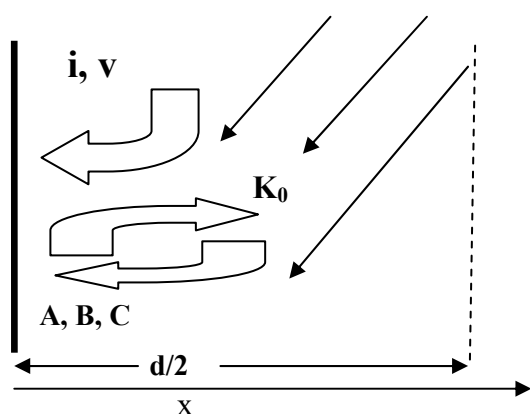
Институт ядерной физики НЯЦ РК, г.Алматы

Предложена модель для расчета радиационной зернограничной сегрегации в тройных сплавах, обусловленной потоками вакансий и междоузельных атомов из объема зерна к границе. Влияние температуры выражается в ускорении диффузионных процессов с ее ростом. Максимально эффект сегрегации проявляется при температурах ~ 900 К. Полученные результаты удовлетворительно согласуются с имеющимися экспериментальными данными.

Радиационно-индуцированная сегрегация в металлах и сплавах представляет собой неравновесный контролируемый диффузией процесс, который в значительной мере определяет поведение облучаемых материалов, особенно в условиях градиентов температур, характерных для работы ядерных реакторов. Это обусловлено тем, что локальные изменения композиционного состава материала приводят к изменению его механических свойств, и, как следствие, могут вызвать процесс разрушения материала.

Под действием нейтронного облучения в металлах и сплавах образуется значительное количество радиационных точечных дефектов – вакансий и междоузельных атомов, существенно превышающее их равновесные концентрации. При температурах $\sim 0.3-0.5$ от температуры плавления эти дефекты подвижны и перемещаются по кристаллу. В результате миграции точечных дефектов по кристаллу они поглощаются стоками точечных дефектов, которыми являются свободные поверхности, границы зерен, дислокации, и другие протяженные дефекты кристаллов. В однородных металлах сегрегация обусловлена наличием в них примеси, а в случае сплавов, кроме сегрегации примесей, возникает локальное перераспределение основных легирующих элементов. Это явление наблюдается в том случае, когда атомы одного из компонентов имеют преимущественную связь с потоками точечных дефектов определенного типа и вместе с ним мигрируют к стоку.

Величина зернограничной сегрегации в сплавах определяется потоками вакансий и междоузельных атомов из объема зерна к границе, которые, в свою очередь, определяют потоки атомов каждого компонента [1,2]. Схематически данный процесс изображен на рис. 1.



В тройных сплавах эти потоки определяются соотношениями:

$$J_v = d_{Av} \Omega C_v \alpha \nabla C_A + d_{Bv} \Omega C_v \alpha \nabla C_B + d_{Cv} \Omega C_v \alpha \nabla C_C - D_v \nabla C_v = \\ = (d_{Av} - d_{Cv}) \Omega C_v \alpha \nabla C_A + (d_{Bv} - d_{Cv}) \Omega C_v \alpha \nabla C_B - D_v \nabla C_v,$$

$$J_i = -d_{Ai} \Omega C_i \alpha \nabla C_A - d_{Bi} \Omega C_i \alpha \nabla C_B - d_{Ci} \Omega C_i \alpha \nabla C_C - D_i \nabla C_i = \\ = (d_{Ai} - d_{Ci}) \Omega C_i \alpha \nabla C_A + (d_{Bi} - d_{Ci}) \Omega C_i \alpha \nabla C_B - D_i \nabla C_i,$$

$$J_A = -D_A \alpha \nabla C_A + d_{Av} \Omega C_A \nabla C_v - d_{Ai} \Omega C_A \nabla C_i,$$

$$J_B = -D_B \alpha \nabla C_B + d_{Bv} \Omega C_B \nabla C_v - d_{Bi} \Omega C_B \nabla C_i,$$

$$J_C = -D_C \alpha \nabla C_C + d_{Cv} \Omega C_C \nabla C_v - d_{Ci} \Omega C_C \nabla C_i.$$

Рис. 1. Схематическое представление рассматриваемых в модели процессов, определяющих величину зернограничной сегрегации

- концентрации, $d_{\beta\beta'}$ – парциальные коэффициенты диффузии (диффузии атомов β за счет точечных дефектов типа β'), N_β – атомные доли типа β , Ω – средний атомный объем сплава, α – термодинамический коэффициент.

Здесь J_β – поток типа β , ($\beta = A, B, C$ соответствует атомам A, B, C ; $\beta = i$ – междоузельным, $\beta = v$ – вакансиям), D_β – коэффициенты диффузии типа β , C_β – концентрации, $d_{\beta\beta'}$ – парциальные коэффициенты диффузии (диффузии атомов β за счет точечных дефектов типа β'), N_β – атомные доли типа β , Ω – средний атомный объем сплава, α – термодинамический коэффициент.

Эволюция распределения атомов и дефектов во времени и пространстве в данном случае будет описываться системой связанных дифференциальных уравнений в частных производных (с соответствующими начальными и граничными условиями):

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = -\nabla J_v + K_0 - RC_v C_i - k_v^2 D_v C_v = \nabla [-(d_{Av} - d_{Cv})\alpha\Omega C_v \nabla C_A - (d_{Bv} - d_{Cv})\alpha\Omega C_v \nabla C_B + D_v \nabla C_v] + (1)$$

$$+ K_0 - RC_v C_i - k_v^2 D_v C_v,$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla J_i + K_0 - RC_v C_i - k_i^2 D_i C_i = \nabla [-(d_{Ai} - d_{Ci})\alpha\Omega C_i \nabla C_A - (d_{Bi} - d_{Ci})\alpha\Omega C_i \nabla C_B + D_i \nabla C_i] + (2)$$

$$+ K_0 - RC_v C_i - k_i^2 D_i C_i,$$

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} = -\nabla J_A = \nabla [D_A \alpha \nabla C_A + \Omega C_A (d_{Ai} \nabla C_i - d_{Av} \nabla C_v)], (3)$$

и

$$\frac{\partial C_B}{\partial t} = -\nabla J_B = \nabla [D_B \alpha \nabla C_B + \Omega C_B (d_{Bi} \nabla C_i - d_{Bv} \nabla C_v)]. (4)$$

Здесь K_0 – скорость образования точечных дефектов, R – скорость их взаимной рекомбинации, а k_β^2 – мощность стоков элементов внутренней дефектной структуры. Для пор $k_\beta^2 = 4\pi r_h \rho_h$, и для дислокаций $k_\beta^2 = Z_\beta \rho_d$, где ρ_h и ρ_d – плотности пор и дислокаций в материале, r_h – средний размер пор. Величина, характеризующая эффективность взаимодействия точечного дефекта типа β с дислокацией Z_β равна

$$Z_\beta = \frac{2\pi}{\ln|2R_d / L_\beta|},$$

где

$$L_\beta = \frac{(1+\nu)\mu b \Delta V_\beta}{3(1-\nu)\pi k T},$$

μ – модуль сдвига, ν – коэффициент Пуассона, ΔV_β – релаксационный объем, R_d – среднее расстояние между дислокациями, k – постоянная Больцмана, T – температура. Уравнение для элемента C опущено, т. к. $C_A + C_B + C_C = 1$.

Для решения системы уравнений (1-4) используются численные методы с соответствующими начальными и граничными условиями. В начальный момент времени компоненты распределены однородно по кристаллу в соответствии с их стехиометрическим составом. На границе зерна (при $x=0$) задана термодинамически равновесная концентрация вакансий и междоузельных атомов; в теле зерна их концентрации определяются интенсивностью облучения K_0 . В силу симметричности задачи вычисления проведены для одной половины зерна. Граничное условие на поверхности зерна для концентрации элементов A, B задается условием сохранения:

$$\int_0^{d/2} C_\beta(t, x) dx = \frac{1}{2} C_\beta^0 d,$$

где $\beta = A, B$, а C_β^0 – первоначально однородная концентрация элемента β . В центре зерна (при $x = d/2$), градиенты концентраций были установлены равными нулю:

$$\frac{\partial C_i(t, \frac{1}{2}d)}{\partial x} = \frac{\partial C_v(t, \frac{1}{2}d)}{\partial x} = \frac{\partial C_A(t, \frac{1}{2}d)}{\partial x} = \frac{\partial C_B(t, \frac{1}{2}d)}{\partial x} = 0.$$

Интенсивность образования точечных дефектов K_0 пространственно однородна.

Параметры, характеризующие свойства вакансий и междоузлий, условия облучения и коэффициенты диффузии взяты из работ [3,4], характеристики материала, для которого выполнены расчеты – из работы [5].

Сегрегация легирующих компонентов сплава проявляется в том случае, когда один из них диффундирует преимущественно по вакансионному либо по междоузельному механизму. Поскольку выражения для потоков атомов записаны через парциальные коэффициенты диффузии, это позволило учесть различие в механизмах диффузии: вакансионному или междоузельному.

С использованием предложенной модели были исследованы зависимости зернограничной сегрегации элементов от температуры (рис. 2) и дозы облучения (рис. 3).

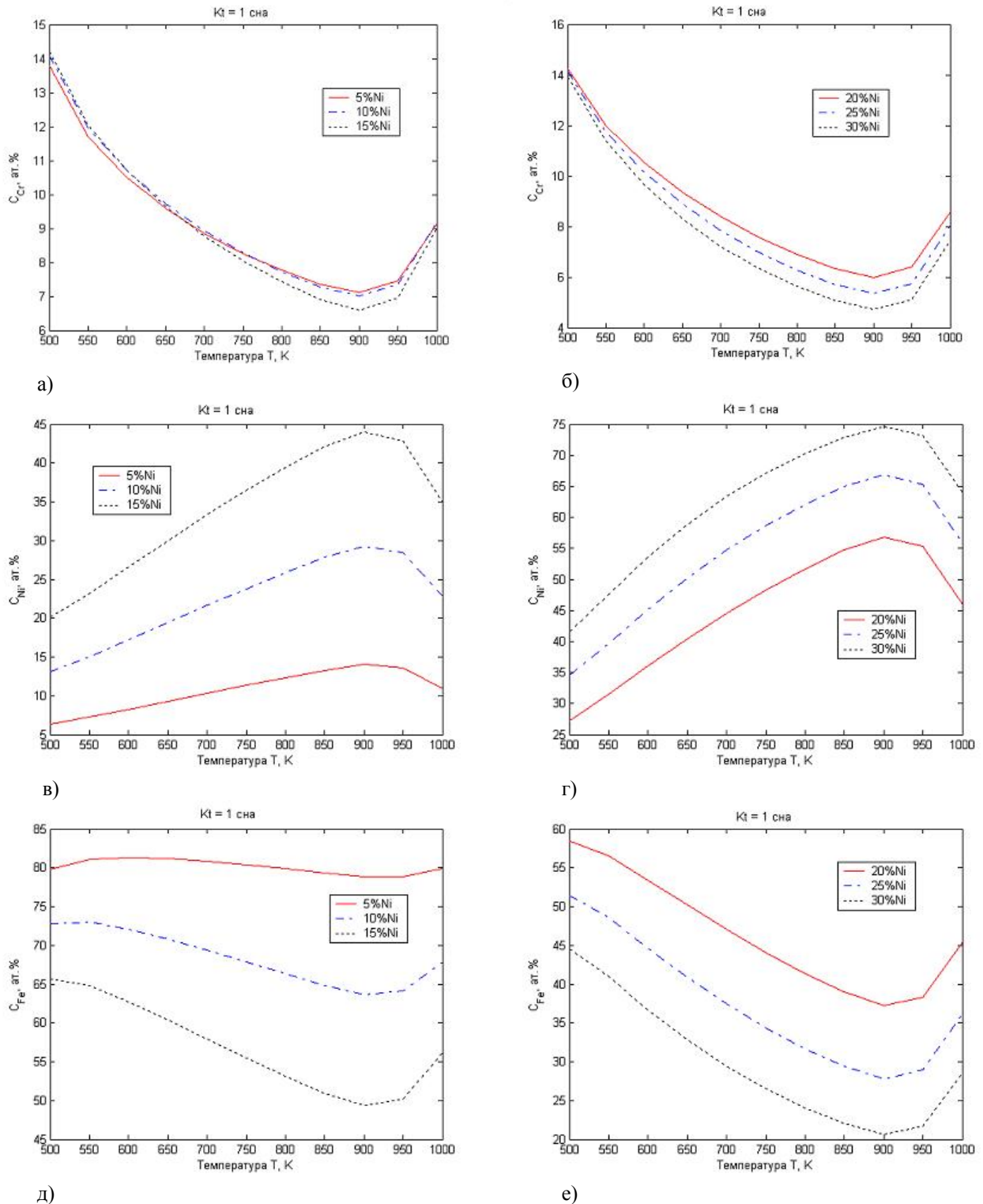


рис. 2. Зависимость величины зернограничной концентрации Cr (а, б), Ni (в, г) и Fe (д, е) от температуры облучения при постоянной концентрации Cr (20 ат.%) и различной концентрации Ni (доза 1 снэ)

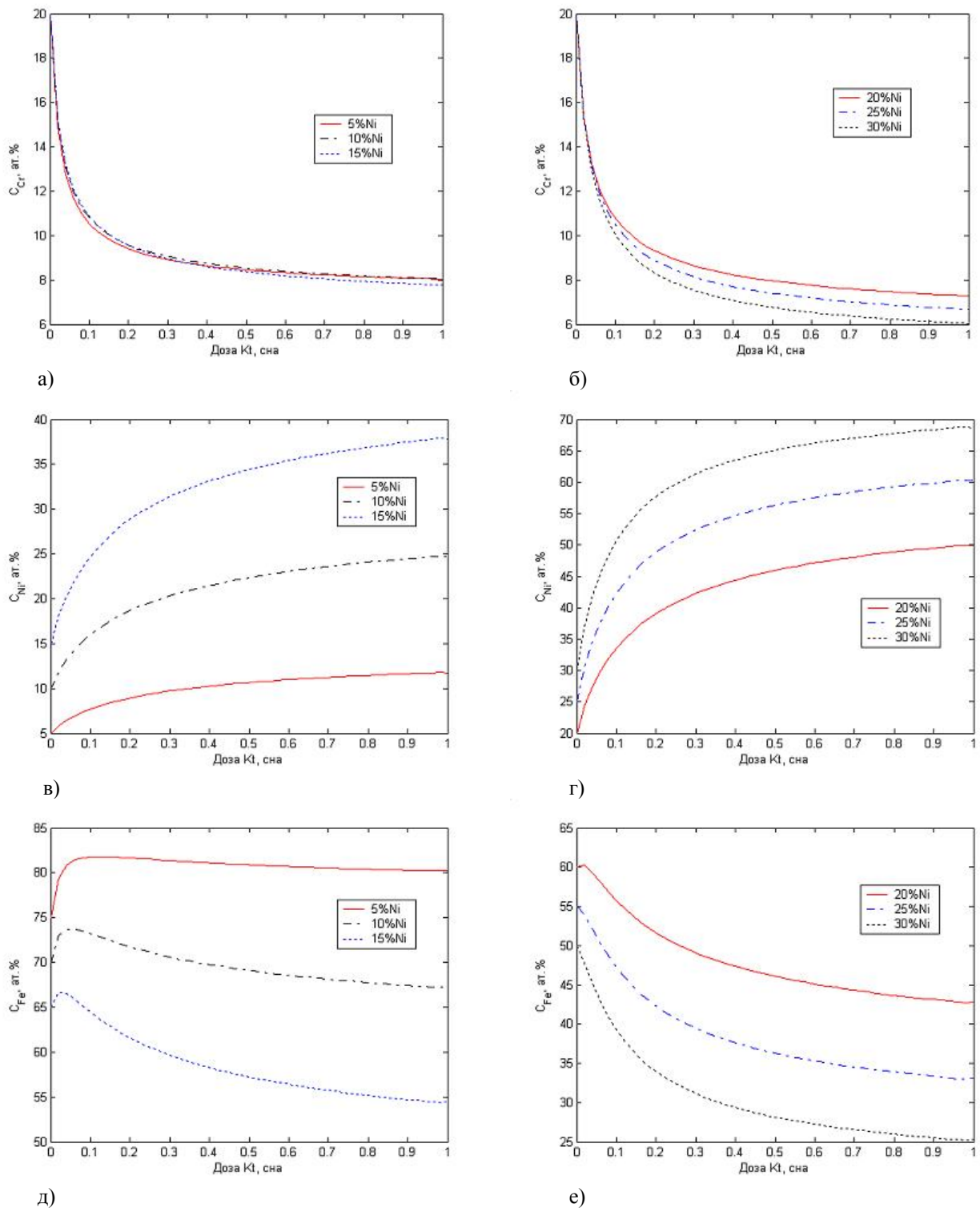


Рис. 3. Зависимость зернограницной концентрации Cr (а, б), Ni (в, г) и Fe (д, е) от дозы облучения при постоянной концентрации Cr (20 ат.%) и различной концентрации Ni ($T = 673K$)

Результаты расчетов показывают, что использованная модель адекватно отражает поведение как временной, так и температурной зависимостей радиационной сегрегации [4]: уменьшение интенсивности при одновременном увеличении величины эффекта, как при увеличении температуры, так и с увеличением времени испытаний, т. е. дозы облучения.

Анализ полученных данных свидетельствует о том, что во всех исследованных случаях на границах зерен происходит обеднение Cr (как самого быстрого диффузора) и обогащение Ni (как самого медленного); обогащение или обеднение границы атомами Fe зависит от коэффициента диффузии Fe относительно среднего коэффициента диффузии в сплаве. Если коэффициент диффузии Fe больше, чем средний коэффициент диффузии в сплаве, граница обедняется Fe, если меньше – обогащается. Увеличение объемной концентрации Ni от 5 до 30 ат.% усиливает эффект сегрегации всех компонентов в 1.5 – 6 раз. Максимальная сегрегация наблюдается при температурах ~900K. Результаты показали, что с ростом как интенсивности, так и дозы облучения степень сегрегации возрастает и распространяется на все большие расстояния от границ зерен, однако наиболее ярко изменение зернограницной концентрации проявляется в интервале доз 0.1 ÷ 1 сна; при дозах порядка ~5 сна процесс практически стабилизируется.

Литература

1. Wiedersich H., Okamoto P.R., Lam N.Q. A theory of radiation-induced segregation in concentrated alloys. *Journal of Nuclear Materials*.- 1979.- V. 83.- P. 98.
2. Ганеев Г.З., Карпиков А.Н., Туркебаев Т.Э. Учет дефектной структуры материала при расчетах радиационной зернограницной сегрегации. *Вестник НЯЦ РК*.- 2006.- Вып. 1.- С. 26-29.
3. Бокштейн Б.С. Диффузия в металлах. М. – Металлургия.- 1978.- 248 с.
4. Allen T.R., Busby J.T., Was G.S., Kenik E.A. On the mechanism of radiation-induced segregation in austenitic Fe-Cr-Ni alloys. *Journal of Nuclear Materials*. 1998. - V. 255. – P. 44-58.
5. Фрост Г. Дж., Эшби М. Ф. Карты механизмов деформации. Пер. с англ. Берштейна Л. М. Челябинск: Металлургия. Челябинское отделение. – 1989.- 328 с.

Fe-Cr-Ni ҮШТІК ҚОРЫТПАДА РАДИАЦИЯЛЫҚ ИНДУКЦИЯЛАНҒАН ТҮЙІРШІК ШЕКАРАЛЫҚ СЕГРЕГАЦИЯҒА ТЕМПЕРАТУРАНЫҢ ЫҚПАЛЫ

А.Н. Карпиков, С.Б. Кислицин, А.Ю. Нестерова

Үштік қорытпада, шекара түйіршігі көлемінен шыққан бос орындар мен түйінаралық атомдар ағыны себепші болған, радиациялық түйіршік шекаралық сегрегацияны есептеу үшін модель ұсынылған. Температураның ықпалы, ол өскен сайық, диффузиялық процестердің үдей түсуінен білінеді. Сегрегация эффектісі температура ~900K болғанда меймінше көп байқалады. Алынған нәтижелер қолда бар эксперименттік деректермен қанағаттанарлықтай үйлеседі.

INFLUENCE OF TEMPERATURE ON RADIATION-INDUCED GRAIN BOUNDARY SEGREGATION IN TERNARY Fe-Cr-Ni ALLOYS

A.N. Karpikov, S.B. Kislitsin, A.Yu. Nesterova

The model for calculation radiation-induced grain boundary segregation in the ternary alloys, caused by fluxes of vacancies and interstitials from volume of grain to boundary is presented. Influence of temperature is expressed in acceleration diffusion processes with its growth. Maximum effect of segregation is shown at temperatures ~900 K. The received results will well be coordinated to available experimental data.