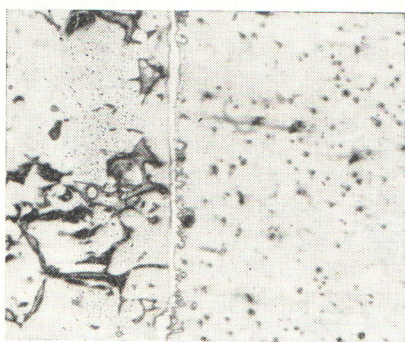
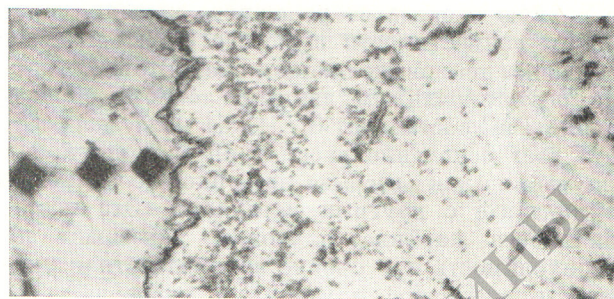


Р и с. 9. Распределение плотности почернения на автордиограмме, снятой с образца NiMo-28-PuC после отжига при 1050° С в течение 120 ч.



Р и с. 10. Зона взаимодействия Ta — PuC после отжига при 1050° С в течение 120 ч; микротвердость диффузионного слоя 1100—1100 кг/мм² (× 200).



Р и с. 11. Зона взаимодействия Nb — PuC после отжига при 1050° С в течение 120 ч; микротвердость диффузионного слоя 2200—2500 кг/мм² (× 340).

вследствие диффузии углерода. В пользу этого свидетельствуют большие значения теплоты образования карбидов тугоплавких металлов (особенно ниобия и тантала), намного превышающие теплоту образования PuC.

Поступила в Редакцию 27/1 1967 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. А. И. Лейпунский и др. Доклад № 312, представленный СССР на Третью международную конференцию (Женева, 1964).
2. A. O g a r d et al. 4-th Plansee Seminar, Reutte/Tyrol, 1961.
3. S. Rosen et al. J. Nucl. Materials, 10, 90 (1963).
4. R. N. Mulford et al. Plutonium, 1960, London. Cleaver — Hume Press, 1961.
5. B. Harder, R. Sowden. Symposium on Carbides in Nuclear Energy. Harwell, November, 1963, Paper B13.
6. K. Taylor et al. Ibidem, Paper B8.
7. O. Kruger. J. Nucl. Materials, 7, No. 2 (1962).
8. Tables of Thermodynamic Data. Technical Reports Series N 38. Vienna, IAEA, 1964, p. 9.
9. Nuclear Metallurgy. V. X. International Symposium on Compounds of Nuclear Reactor Technology. Ed. Waber et al. JMD Special Report No. 13, 1964.
10. Carbides in Nuclear Energy. V. I. Macmillan and Co Ltd London, 1964, p. 373.
11. Ibidem, p. 392.

вении плутония через образовавшиеся слои внутрь контактируемого металла.

Зоны взаимодействия, как правило, отличаются высокой твердостью и, по-видимому, представляют собой карбиды соответствующих металлов. Высокая твердость диффузионных слоев и относительно малое проникновение плутония позволяют предположить, что взаимодействие PuC с ниобием, молибденом, танталом и вольфрамом происходит преимущественно

Влияние реакторного облучения на фазовый состав малолегированных сплавов урана

С. Т. РОНОБЕЕВСКИЙ, Ю. Н. СОКУРСКИЙ, Ю. В. БОБКОВ,
К. П. ДУБРОВИН, Л. Н. ПРОЦЕНКО

УДК 621.039.553.3

Описаны результаты действия реакторного облучения на удельное электрическое сопротивление малолегированных бинарных сплавов урана с железом, алюминием и кремнием. Сплавы облучались после закалки из γ -фазы, а также после γ -закалки и отпусков в α -фазе. Показано, что удельное электрическое сопротивление бинарных сплавов, отпущенных в α -области,

в результате облучения дозами до $\sim 1 \cdot 10^{18}$ нейтр/см² резко возрастает. При дозах $> 10^{18}$ нейтр/см² увеличение сопротивления замедляется. Электрическое сопротивление закаленных сплавов сначала несколько увеличивается, а затем падает. Указанные изменения сопротивления связаны с фазовыми превращениями, происходящими в сплавах под действием облучения.

Установлено, что облучение α -отпущенных сплавов вызывает растворение мелкодисперсных выделений и переход легирующей добавки в твердый раствор; в γ -закаленных сплавах оно стимулирует распад метастабильных твердых растворов. Исследовано также влияние отжига на электрическое сопротивление облученных образцов.

Как известно, реакторное облучение может вызвать значительное изменение фазового состава сплавов, содержащих деформируемые материалы [1—3]. Это изменение связано со смещением атомов из узлов решетки и их перемешиванием под действием осколков деления, создающих термические пики, а также с ускорением диффузионных процессов за счет возникновения под облучением избыточной концентрации точечных дефектов.

В работах [4, 5] даны количественные оценки радиационной гомогенизации сплава урана с 9 вес.% молибдена в предположении, что перемешивание атомов происходит в зоне всплеска температуры в конце трека осколка деления — термическом пике. Можно полагать, что реакторное облучение будет изменять фазовый состав и других сплавов урана при условии, что размер выделений второй фазы достаточно мал. Некоторые сведения о растворении в процессе реакторного облучения мелких выделений интерметаллидов в сплавах урана с молибденом с добавками олова и кремния приведены в работе [6].

Настоящая работа посвящена изучению действия реакторного облучения на малолегируемые бинарные сплавы урана с алюминием, железом и кремнием. Исследовалось изменение фазового состава как отпущенных сплавов, в которых легирующие добавки образуют мелкодисперсные выделения (UAl_2 , U_6Fe и U_3Si), так и сплавов, закаленных из γ -фазы, в которых легирующая добавка находится в метастабильном твердом растворе в решетке α -урана. Для оценки изменений фазового состава сплавов под действием облучения был использован метод электрического сопротивления.

Исследованные материалы и методика эксперимента

Исследование проводилось с бинарными сплавами урана с 0,21 ат.% железа, 0,88 ат.% алюминия и 0,68 ат.% кремния, а также с исходным ураном (на основе которого были приготовлены бинарные сплавы) и ураном повышенной чистоты.

Химический состав исходного урана и урана повышенной чистоты (основные примеси) приведен в табл. 1.

Химический состав исходного урана и урана повышенной чистоты Таблица 1

Материал	Примеси, $\times 10^4$ вес.%					
	Al	C	Cu	Fe	Ni	Si
Исходный уран	100	600	12	70	8	45
Уран повышенной чистоты	<10	30	17	30	<10	<10

Все образцы сплавов и исходного урана перед облучением отжигались при температуре $850^\circ C$ в течение 2 ч с последующей закалкой в масло. После закалки часть образцов подвергалась отпуску в α -области. Отжиги перед закалкой и последующий отпуск проводились в вакууме.

Электрическое сопротивление R измерялось потенциометрическим методом на образцах размером $55 \times 0,1 \times 2,5$ мм при температуре кипения жидкого азота ($-196^\circ C$). Точность измерений R составляла $\pm 0,05\%$. Для исключения случайных ошибок каждое измерение проводили на двух-четыре идентичных образцах. Точность абсолютных измерений удельного сопротивления ρ равнялась $\pm 1\%$ и определялась в основном погрешностью при вычислении сечения по данным о весе и длине образцов*.

Было облучено шесть партий образцов интегральными потоками тепловых нейтронов $1,1 \cdot 10^{17}$; $4,2 \cdot 10^{17}$; $1,4 \cdot 10^{18}$; $4,2 \cdot 10^{18}$; $1,2 \times 10^{19}$ нейтр/см² при плотности потока $(5-7) \cdot 10^{12}$ нейтр/см²·сек и $2,3 \cdot 10^{19}$ нейтр/см² при плотности потока $\sim 1 \cdot 10^{14}$ нейтр/см² \times сек**. Температура образцов во время облучения составляла $60-80^\circ C$.

Образцы из партии, облученной интегральным потоком $4,2 \cdot 10^{17}$ нейтр/см², подвергались изохронным отжигам в вакуумной печи. Про-

* В качестве номинального значения удельного веса для всех исследованных материалов принято значение $18,6$ г/см³.

** Измерения после облучения дозой $2,3 \times 10^{19}$ нейтр/см² проведены В. М. Раецким, за что авторы выражают ему благодарность.

должительность каждого отжига составляла 25 мин; температура отжигов 100—500° С с интервалами в 25° С.

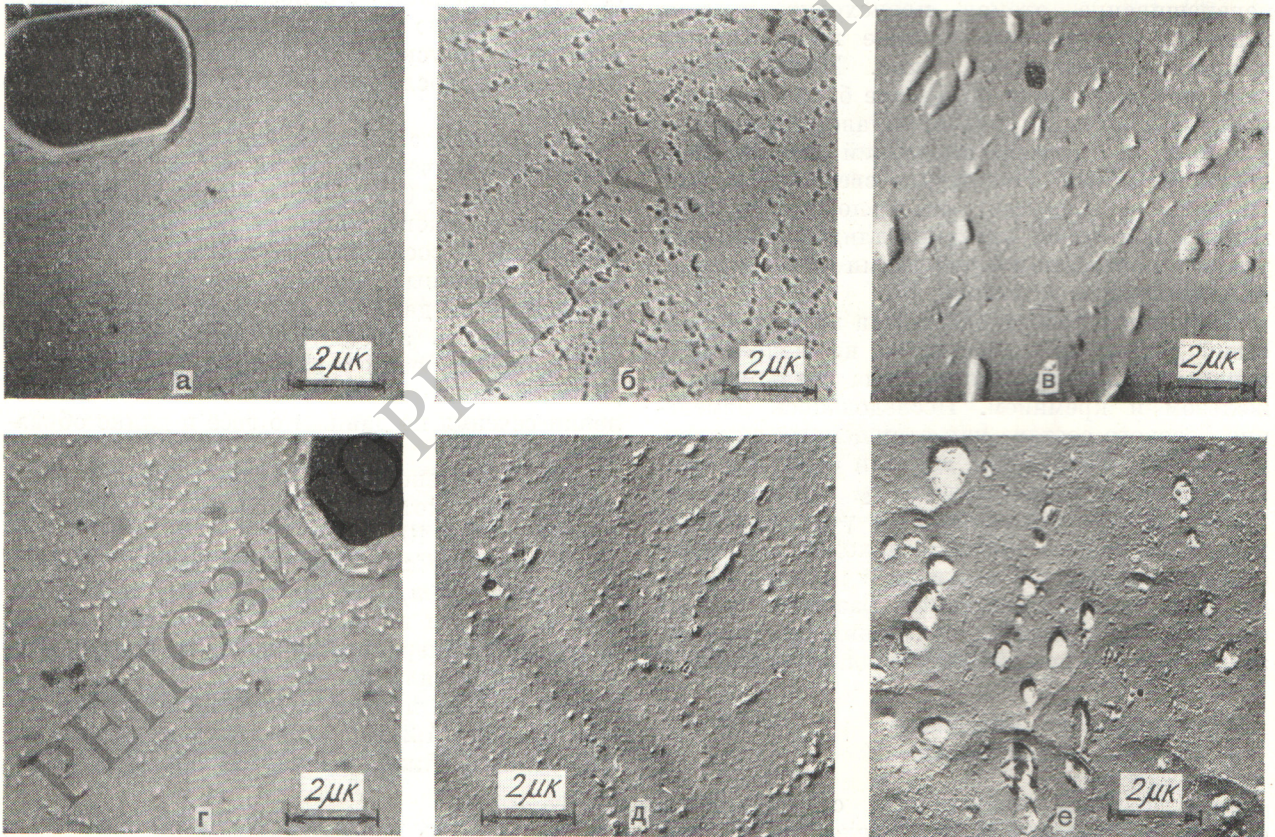
РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

1. Влияние легирующих добавок на электрическое сопротивление сплавов

Специально проведенные исследования показали, что измеренное при температуре кипения жидкого азота электрическое сопротивление закаленных из γ -фазы бинарных сплавов урана, содержащих до ~ 1 ат.% железа, алюминия или кремния, увеличивается пропорционально концентрации легирующей добавки. Коэффициенты пропорциональности для сплавов с железом, алюминием и кремнием составляют соответственно 18, 20 и 17 мком·см на 1 ат.% легирующего элемента.

Образовавшиеся при γ -закалке указанных сплавов α -твердые растворы метастабильны и распадаются в процессе отжига в α -области. При этом электрическое сопротивление сплавов уменьшается. Электронно-микроскопические снимки отпущенных образцов подтверждают наличие выделений интерметаллидов (рис. 1, б, в, г, д, е).

Так как объемное содержание интерметаллических включений в исследованных сплавах невелико, можно считать, что электрическое сопротивление сплавов определяется в основном количеством легирующего элемента, находящегося в α -твердом растворе. С другой стороны, известно, что растворимость алюминия, железа и кремния в α -уране очень мала [7—9], и при длительных отжигах в α -области легирующая добавка выделяется в виде соответствующего интерметаллического соединения. Следовательно, по разнице $\Delta\rho$ между удельным



Р и с . 1. Электронно-микроскопические снимки реплик, полученных со сплавов урана с 0,21 ат.% железа, 0,88 ат.% алюминия и 0,68 ат.% кремния ($\times 6000$):

а — сплав с железом, γ -закалка; б — то же, γ -закалка + отжиг при 350°С/100 ч; в — то же, γ -закалка + отжиг при 500°С/24 ч; г — сплав с алюминием, γ -закалка + отжиг при 350°С/100 ч; д — сплав с кремнием, γ -закалка + отжиг при 450°С/100 ч; е — то же, γ -закалка + отжиг при 550°С/10 ч.

Некоторые характеристики и режимы термообработок урана и его сплавов до облучения Таблица 2

Материал	C, ат. %	Термообработка	ρ , мком·см	c, ат. %	χ B, %	a , мк
Уран повышенной чистоты Исходный уран	—	Отжиг при 500° С/24 ч	9,25	—	—	—
		γ -закалка	13,42	—	0	—
Сплав урана с железом	0,21	γ -закалка	16,02	0,21	0	—
		γ -закалка + отжиг при 350° С/100 ч	12,36	0,06	70	~0,07
		γ -закалка + отжиг при 500° С/24 ч	11,26	0,02	90	~0,5
Сплав урана с алюминием	0,88	γ -закалка	29,81	0,88	0	—
		γ -закалка + отжиг при 350° С/100 ч	22,95	0,56	36	~0,06
Сплав урана с кремнием	0,68	γ -закалка	23,39	0,68	0	—
		γ -закалка + отжиг при 450° С/100 ч	19,42	0,46	32	~0,1
		γ -закалка + отжиг при 550° С/10 ч	15,62	0,25	63	~0,5

сопротивлением закаленного сплава $\rho_{зак}$ и сопротивлением хорошо отожженного в α -области сплава ρ_0 можно, зная коэффициент пропорциональности k , судить о концентрации c легирующей добавки, находящейся в α -твердом растворе:

$$\Delta\rho = \rho_{зак} - \rho_0 = kc. \quad (1)$$

Изменение величины $\Delta\rho$, происходящее в результате отжигов в α -области или под действием облучения, может поэтому служить мерой соответствующего изменения фазового состояния легирующей добавки в сплаве.

В исследованных сплавах содержалось около 1,2 ат. % углерода. Специально проведенные исследования показали, что такое количество углерода не влияет на результат оценки концентрации легирующей добавки в α -твердом растворе, поскольку растворимость углерода в α -, β - и γ -фазах урана мала и его основное количество всегда присутствует в виде включений УС. Эти включения видны, в частности, на электронно-микроскопических снимках (см. рис. 1, а, г).

Суммарное влияние других примесей, в заметных количествах присутствующих в изученных сплавах, было определено при параллельных исследованиях действия облучения на электрическое сопротивление исходного закаленного урана.

При оценке изменений фазового состава сплавов под действием облучения по величине электрического сопротивления необходимо также учитывать некоторое увеличение сопротивления, вызванное накоплением в решетке α -ура-

на радиационных дефектов. Для оценки этого эффекта, не связанного с изменением фазового состава, исследовался отожженный при 500° С уран повышенной чистоты, содержание основных примесей в котором было примерно в 10 раз ниже, чем в исходном уране, использованном для приготовления исследованных сплавов.

2. Микроструктура и электрическое сопротивление необлученных сплавов

Как показали исследования микроструктуры, γ -закаленные бинарные сплавы с железом, алюминием и кремнием представляют собой пересыщенные α -твердые растворы. Выделений интерметаллических соединений при исследовании сплавов методом реплик в электронном микроскопе не обнаружено. Пример микроструктуры закаленных сплавов приведен на рис. 1, а. В процессе отжига в α -фазе происходит распад твердых растворов и образуются выделения интерметаллидов. Размеры, форма и распределение этих выделений видны на микрофотографиях рис. 1, б, в, г, д, е. В сплавах, отпущенных в течение 100 ч при 350° С, средний размер выделений U_6Fe и UAl_2 составляет 0,06—0,07 мк. Более крупные выделения U_6Fe (средний размер ~0,5 мк) были получены в результате отпуска сплава с железом в течение суток при 500° С.

В табл. 2 приведены данные о режимах термообработок, средних размерах выделений интерметаллидов a , величинах удельного электрического сопротивления, концентрации ле-

гирующей добавки в твердом растворе c и степени распада твердого раствора ($B = \frac{C-c}{C} 100\%$, где C — концентрация легирующей добавки в сплаве).

3. Изменение электрического сопротивления в результате облучения

Как видно из рис. 2, удельное сопротивление отожженных сплавов в результате облучения увеличивается. При облучении дозами $< 1 \times 10^{18}$ нейтр/см² происходит быстрое увеличение сопротивления. При дозах, составляющих $(1-2) \cdot 10^{18}$ нейтр/см², рост сопротивления замедляется и практически наступает насыщение, хотя некоторый, весьма слабый прирост сопротивления с увеличением дозы сохраняется.

Наибольший абсолютный прирост удельного сопротивления ($\Delta\rho = 5,6$ мком·см) наблюдается у сплава с алюминием, отожженного при 350°С. Максимальная величина $\Delta\rho$ для сплава с железом, отожженного при 350°С, составляет 3,4 мком·см.

Сопротивление урана повышенной чистоты меняется в зависимости от дозы облучения подобно тому, как об этом сообщалось в работе [10]. Кривая, взятая из этой работы, показана на рис. 2 пунктиром.

Как видно из рис. 2, прирост электрического сопротивления у сплава с железом, отожжен-

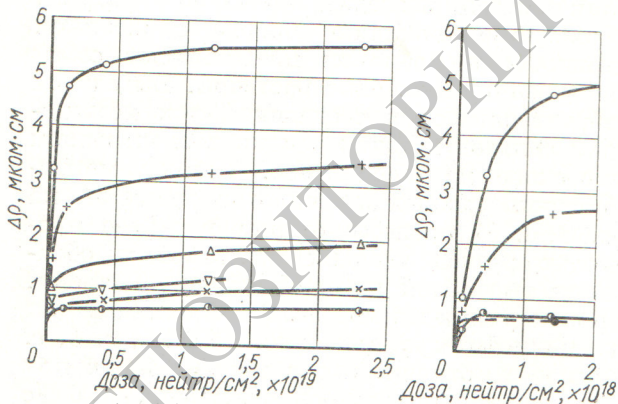


Рис. 2. Зависимость удельного электрического сопротивления отожженных сплавов урана и урана повышенной чистоты от дозы облучения (справа показан начальный участок кривых в большем масштабе):

○ — сплав с 0,88 ат. % алюминия, γ -закалка + отжиг при 350°С/100 ч; + — сплав с 0,21 ат. % железа, γ -закалка + отжиг при 350°С/100 ч; △ — сплав с 0,68 ат. % кремния, γ -закалка + отжиг при 450°С/100 ч; ▽ — сплав с 0,68 ат. % кремния, γ -закалка + отжиг при 550°С/10 ч; × — сплав с 0,21 ат. % железа, γ -закалка + отжиг при 500°С/24 ч; ● — уран повышенной чистоты, отжиг при 500°С/24 ч; ○ — отожженный уран высокой чистоты (по данным работы [10]).

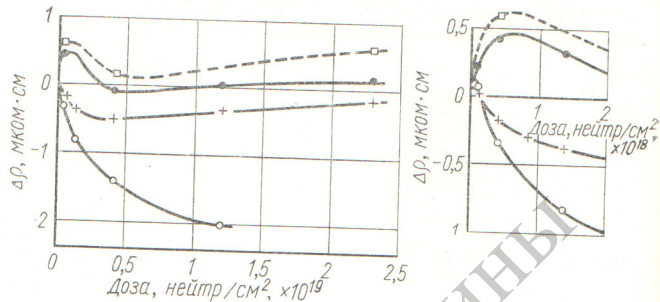


Рис. 3. Зависимость удельного электрического сопротивления γ -закаленных сплавов и исходного γ -закаленного урана от дозы облучения (справа показан начальный участок кривых в большем масштабе):

○ — сплав урана с 0,88 ат. % алюминия; + — сплав урана с 0,21 ат. % железа; □ — сплав урана с 0,68 ат. % кремния; ● — исходный уран.

ного при 500°С, и у сплава с кремнием, отожженного при 550°С, меньше, чем у тех же сплавов, отожженных при более низких температурах.

Электрическое сопротивление закаленных сплавов и закаленного исходного урана (рис. 3) в начальный момент также увеличивается, достигает максимума, а затем начинает спадать. Величина $\Delta\rho$ у сплавов с алюминием и железом принимает отрицательное значение.

4. Изменение электрического сопротивления при отжиге облученных образцов

Данные, приведенные на рис. 4, 5 и 6, показывают, что в результате изохронных отжигов образцов, облученных дозой $4,2 \cdot 10^{17}$ нейтр/см², их электрическое сопротивление уменьшается.

Как видно из рис. 4, при отжиге облученного образца урана повышенной чистоты в интервале 100—300°С его удельное сопротивление постепенно спадает до значения, соответствующего необлученному образцу-свидетелю.

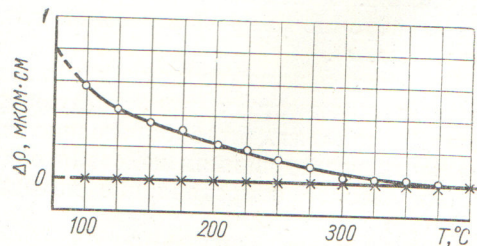


Рис. 4. Спад удельного электрического сопротивления урана повышенной чистоты при изохронных отжигках:

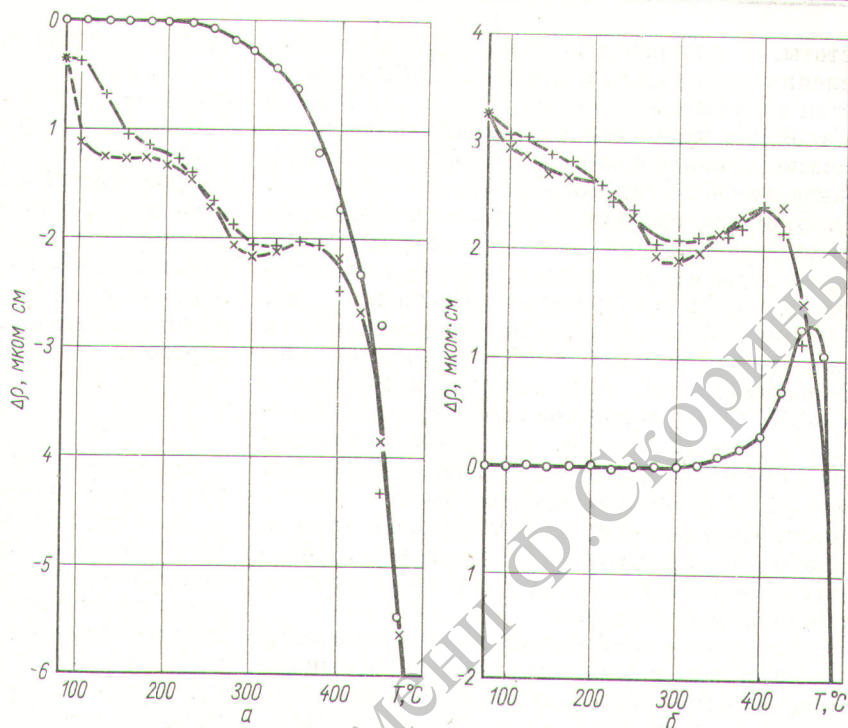
○ — образец, облученный дозой $4,2 \cdot 10^{17}$ нейтр/см²; × — необлученный образец-свидетель.

Рис. 5. Спад удельного электрического сопротивления сплава урана с 0,88 ат. % алюминия при изохронных отжигах:

а — γ -закаленный сплав (+ — образец 1, облученный дозой $4,2 \cdot 10^{17}$ нейтр/см²; X — то же, образец 2; O — необлученный образец-свидетель); б — сплав, отожженный в течение 100 ч при 350°C (+ — образец 1, облученный дозой $4,2 \cdot 10^{17}$ нейтр/см²; X — то же, образец 2; O — необлученный образец-свидетель).

Анализ кривых спада электрического сопротивления закаленного сплава с алюминием (см. рис. 5, а) указывает на три ярко выраженные стадии спада сопротивления при изохронных отжигах облученных образцов: в интервалах 100—150; 200—300 и выше 400°С. Выше 300°С наблюдается незначительное повышение сопротивления и около 360°С — слабо выраженный максимум. У необлученных образцов изменение сопротивления при отжигах до 250°С не наблюдалось. Электрическое сопротивление облученных образцов выше 400°С спадает так же, как и при отжигах необлученного образца-свидетеля.

Начальные стадии спада сопротивления у образцов 1 и 2 (см. рис. 5, а) различаются:

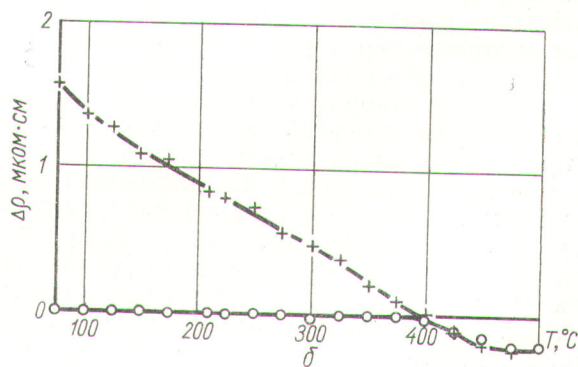
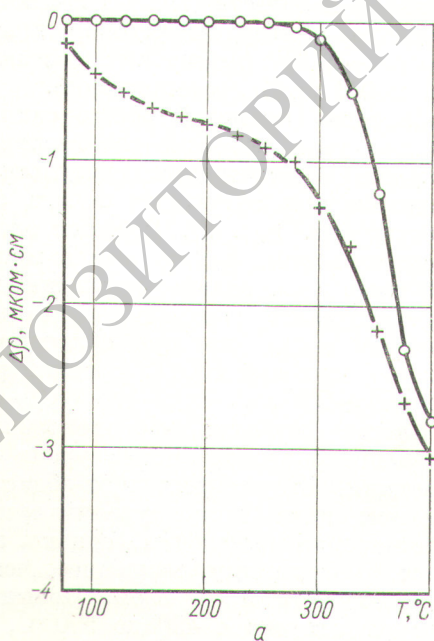


при 100—150°С спад, наблюдаемый у образца 1, больше, чем соответствующий спад у образца 2. Это, возможно, обусловлено тем, что образец 1 отжигался спустя один месяц, а образец 2 — спустя семь месяцев после облучения. Длительная выдержка образца 2 привела, вероятно, к снятию той части радиационного прироста сопротивления (см. пункт на рис. 5, а), которая в образце 1 снимается на первой стадии отжига.

На рис. 5, б приведены кривые спада электрического сопротивления при отжиге двух образцов сплава с алюминием, отжигавшихся перед облучением при 350°С. У этих образцов в интервале 100—200°С сопротивление спадает примерно так же, как у урана повышенной

Рис. 6. Спад удельного электрического сопротивления сплава урана с 0,21 ат. % железа при изохронных отжигах (а — γ -закаленный сплав, б — сплав, отожженный в течение 100 ч при 350°С):

+ — образец, облученный дозой $4,2 \cdot 10^{17}$ нейтр/см²; O — необлученный образец-свидетель.



чистоты. В интервале 200—270° С спад сопротивления ускоряется, а в районе 400° С наблюдается максимум.

Такой же максимум на кривой спада электрического сопротивления наблюдается и при отжигах необлученного образца-свидетеля (см. рис. 5, б), но при более высокой температуре (около 450° С). При дальнейшем увеличении температуры отжига сопротивление как облученных, так и необлученных образцов падает.

На рис. 6, а видно, что при изохронных отжигах закаленного и облученного сплава, содержащего 0,21 ат.% железа, в интервале 100—270° С электрическое сопротивление монотонно убывает. Стадий, подобных наблюдаемому для сплава с алюминием, не обнаружено. Выше 270° С сопротивление быстро уменьшается. Сравнение с соответствующей кривой для образца-свидетеля показывает, что в облученных образцах распад твердого раствора несколько ускоряется.

Кривая спада электрического сопротивления образца сплава с железом, отожженного перед облучением при 350° С, показана на рис. 6, б. Видно, что при отжигах в интервале 100—350° С сопротивление монотонно снижается на величину $\sim 1,5$ мком·см, в то время как сопротивление образца-свидетеля остается постоянным. При температуре около 400° С весь радиационный прирост электрического сопротивления исчезает и сопротивление облученного образца сравнивается с сопротивлением образца-свидетеля.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

1. Действие облучения на отожженные сплавы

Значительно больший прирост электрического сопротивления при облучении отожженных при 350° С сплавов урана с железом и алюминием по сравнению с приростом, наблюдаемым у отожженного урана повышенной чистоты, можно объяснить увеличением при облучении концентрации атомов легирующей добавки в α -твердом растворе. Следует полагать, что при облучении малолегированных сплавов урана с железом, алюминием и в меньшей степени кремнием наблюдается явление радиационной диффузии, подобное тому, которое было обнаружено в сплаве урана с молибденом [1] и в оловянистой бронзе с присадкой плутония [3]. Постепенное растворение мелких выделений интерметаллидов происходит за счет

перемешивания атомов в областях термических пиков, возникающих на границе раздела выделение — матрица.

Отмеченный у облученных сплавов прирост удельного сопротивления $\Delta\rho$ можно разделить на две части: собственно радиационную $\Delta\rho_{\text{р}}$, связанную, как и в случае облучения урана повышенной чистоты, с накоплением радиационных дефектов, и фазовую $\Delta\rho_{\text{ф}}$, обусловленную изменением концентрации легирующего элемента в твердом растворе. Таким образом,

$$\Delta\rho = \Delta\rho_{\text{р}} + \Delta\rho_{\text{ф}} \quad (2)$$

Сопоставление данных об изменении электрического сопротивления при облучении и последующих отжигах образцов урана и его малолегированных сплавов, подвергнутых перед облучением различной термообработке, показывает, что величина $\Delta\rho_{\text{р}}$ приблизительно постоянна для всех исследованных материалов и в области насыщения составляет 0,6—0,7 мком·см. Используя выражения (1) и (2), можно оценить величину $\Delta\rho_{\text{ф}}$ и соответствующее ей изменение концентрации легирующей добавки в α -твердом растворе, если предположить, что растворившаяся легирующая добавка образует гомогенный твердый раствор. Такая оценка для сплавов с 0,21 ат.% железа и 0,88 ат.% алюминия, отожженных перед облучением при 350° С, показала, что максимальные количества железа и алюминия, переходящие в твердый раствор при облучении дозой $\sim 5 \cdot 10^{18}$ нейтр/см², составляют около 0,1 и 0,2 ат.% соответственно.

Скорость (степень) растворения выделений должна уменьшаться с увеличением их размера. Это подтверждается результатами, полученными при облучении сплава с 0,21 ат.% железа (см. рис. 2). Прирост электрического сопротивления, наблюдаемый при облучении образцов этого сплава, отпущенных при 350° С (средний размер выделений U_6Fe около 0,07 мк), намного выше, чем при облучении образцов, отпущенных при 500° С (средний размер выделений $\sim 0,5$ мк).

Следует отметить, что электрическое сопротивление образцов сплава урана с 0,68 ат.% кремния, отпущенных в α -области, с повышением дозы также увеличивается за счет растворения выделений, однако этот процесс идет, по-видимому, медленнее, чем в сплавах с алюминием и железом. Повышение температуры отпуска с 450 до 550° С, так же как

и для сплава с железом, снижает прирост сопротивления при облучении.

Процесс радиационного растворения выделений при данной плотности потока нейтронов может характеризоваться некоторым эффективным коэффициентом радиационной диффузии D_p . Согласно работам [5, 11], при потоке нейтронов $\sim 2 \cdot 10^{13}$ нейтр/см²·сек величина D_p в природном уране составляет $\leq 10^{-17}$ см²/сек, поэтому ширина диффузионной зоны после облучения дозой $\sim 5 \cdot 10^{17}$ нейтр/см² должна быть порядка $\sqrt{D_p t} = \sqrt{10^{-17} \cdot 10^5} = 1 \cdot 10^{-6}$ см = 100 Å, т. е. намного меньше среднего расстояния между выделениями, которое в сплавах с железом и алюминием, отпущенных при 350° С, равно $1 \div 3 \cdot 10^3$ Å (см. рис. 1, б, в). Однако остается не вполне ясным вопрос о наличии кроме гетерогенных выделений по границам субзерен более мелких «гомогенных» выделений внутри зерен. Ответ на этот вопрос должно дать дополнительное электронно-микроскопическое исследование.

2. Действие облучения на закаленные сплавы

При облучении закаленных образцов их электрическое сопротивление понижается. Это объясняется тем, что прирост сопротивления, вызванный радиационными дефектами, перекрывается большим спадом $\Delta\rho_f$, связанным с радиационным распадом метастабильных α -твердых растворов. Поэтому кривые изменения электрического сопротивления в зависимости от дозы облучения, полученные для закаленных сплавов и исходного γ -закаленного урана, имеют максимумы (см. рис. 3). Используя линейную зависимость электриче-

ского сопротивления сплавов от количества легирующего элемента, растворенного в α -урани, найдем, что под действием облучения потоком $1 \cdot 10^{18}$ нейтр/см² из метастабильных твердых растворов железа и алюминия в α -урани выделяется соответственно 20 и 6% от общего количества легирующей добавки в этих сплавах. Радиационный распад пересыщенного твердого раствора кремния в α -урани (сплав с 0,68 ат. % кремния) идет более вяло, что соответствует менее ярко выраженным изменениям фазового состава при облучении образцов, отпущенных в α -области. Кривая зависимости удельного сопротивления от дозы облучения γ -закаленного исходного урана (см. рис. 3) показывает, что и в этом случае происходит частичный распад α -твердых растворов, образованных атомами примесей.

При облучении γ -закаленных сплавов метастабильные α -твердые растворы распадаются при температуре, не превышающей 80° С, в то время как в необлученных образцах-свидетелях этот распад начинается лишь при 250—300° С (см. рис. 5, а и б, а). Радиационный распад метастабильных твердых растворов можно объяснить повышенной подвижностью атомов легирующих добавок под облучением. Увеличение подвижности атомов железа и алюминия связано, по-видимому, с возникновением в уране при облучении большого количества вакансий, облегчающих процесс диффузии. Другим фактором, ускоряющим процесс распада, возможно, является образование комплексов дефектов, служащих центрами кристаллизации второй фазы.

Таким образом, при облучении малолегируемых сплавов урана в них одновременно протекают два процесса: распад метастабильных твердых растворов и обратное растворение

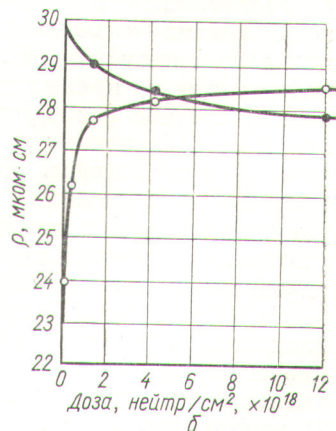
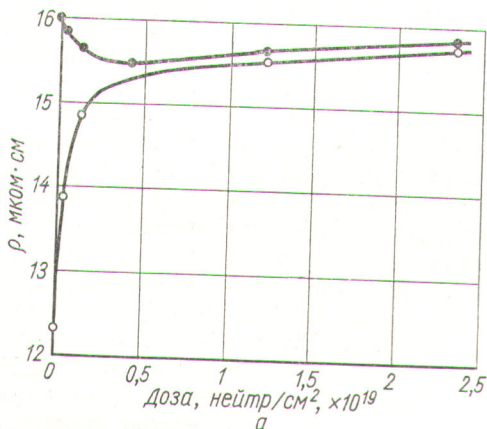


Рис. 3. Величины удельного электрического сопротивления закаленных и отожженных сплавов урана (а, б — с железом и алюминием соответственно при длительном облучении):

●, ○ — удельное электрическое сопротивление сплавов, закаленных из γ -области и отпущенных в α -области соответственно.

мелкодисперсных интерметаллических выделений. При больших дозах облучения возникает динамическое равновесие фазового состава сплавов, при котором количество легирующего элемента, выпадающего из твердого раствора, равно количеству этого элемента, переходящего обратно в твердый раствор за счет растворения интерметаллидов. Величины удельного электрического сопротивления закаленных из γ -фазы и отожженных сплавов сближаются (рис. 7). Однако даже после достижения такого равновесия при увеличении дозы облучения до значений $>5 \cdot 10^{18}$ нейтр/см² наблюдается слабый рост электрического сопротивления как закаленных, так и отпущенных сплавов. Этот рост обусловлен, вероятно, накоплением в решетке α -урана атомов продуктов деления, а возможно, и возникновением микротрещин.

3. Отжиг облученных сплавов

Электрическое сопротивление отожженных сплавов с железом и алюминием (см. рис. 5, б и 6, б) при отжигах после облучения начинает спадать при низких температурах, когда электрическое сопротивление образцов-свидетелей еще остается неизменным. Это указывает на неустойчивость зон с высокой концентрацией легирующего элемента, образовавшихся вокруг выделений при облучении. При последующем отжиге, по-видимому, происходит восстановление исходных выделений.

В сплаве с алюминием процесс восстановления электрического сопротивления осложнен явлениями, связанными с неустойчивостью частиц при коллоидном равновесии [12]. На соответствующей кривой для образца-свидетеля (см. рис. 5, б) имеется максимум, вызванный, вероятно, растворением мелких выделений, образовавшихся при низкотемпературном отжиге сплава и оказавшихся неустойчивыми при дальнейшем нагреве. Подобный максимум наблюдается на кривых для облученных образцов. Частичное растворение дисперсных выделений под облучением увеличивает их неустойчивость при нагреве. Поэтому максимум на кривой для облученных образцов сдвинут в сторону низких температур. Таким образом, можно считать, что при отжиге сплава с алюминием одновременно идут два процесса: 1) исчезновение обогащенных алюминием зон, образовавшихся при облучении, и восстановление исходных выделений, что сопровождается уменьшением электрического сопротивления; 2) термически активируемый процесс раство-

рения мелких неустойчивых выделений, приводящий к некоторому увеличению сопротивления. Экспериментальная кривая представляет собой результат одновременного действия обоих процессов.

Во время отжига закаленных сплавов после облучения распад происходит при низких температурах, когда в образцах-свидетелях практически не возникает никаких изменений (см. рис. 5, а и 6, а). По-видимому, дефекты, накопившиеся в закаленных сплавах при облучении, облегчают процесс распада твердых растворов при последующем отжиге. Более подробно механизм этого явления не исследовался. Максимум при 360°С на кривых для сплава с алюминием связан, по-видимому, как и для отожженных образцов, с растворением неустойчивых мелкодисперсных выделений.

Заключение

1. Исследовано действие реакторного облучения при 60—80°С на электрическое сопротивление бинарных сплавов урана с железом, алюминием и кремнием и обнаружены изменения электрического сопротивления этих материалов в результате облучения.
2. На основании установленной ранее линейной зависимости удельного сопротивления указанных бинарных сплавов от содержания легирующей добавки в метастабильном твердом растворе сделаны заключения о радиационных изменениях фазового состава сплавов.
3. Радиационное увеличение электрического сопротивления сплавов урана с железом и алюминием, отпущенных при 350°С, обусловлено растворением за счет радиационной диффузии мелкодисперсных интерметаллических выделений и образованием вокруг последних зон, обогащенных легирующей добавкой. Установлено, что скорость радиационного растворения выделений возрастает с уменьшением их размеров.
4. На основании данных об изменении электрического сопротивления γ -закаленных сплавов под облучением сделан вывод о том, что под действием облучения в них происходит частичный распад метастабильных твердых растворов, вызванный повышенной концентрацией точечных дефектов и образованием в результате облучения центров зарождения выделений.
5. Изохронные отжижки отпущенных образцов, облученных дозой $4,2 \cdot 10^{17}$ нейтр/см², приводят к быстрому возврату электрического сопротивления, вероятно, за счет восстановле-

ния исходных выделений интерметаллидов. Облучение γ -закаленных сплавов облегчает процесс распада метастабильных твердых растворов при последующих изохронных отжигах.

Поступила в Редакцию 21/X 1966 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. С. Т. Конобеевский, Н. Ф. Правдюк, В. И. Кутайцев В кн. «Исследования в области геологии, химии и металлургии. Докл. сов. делегации на Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1955)» М., Изд-во АН СССР, 1955, стр. 263.
2. M. Bleiberg, L. Jones, B. Lustman. J. Appl. Phys., 27, 1270 (1956).
3. С. Т. Конобеевский и др. Действие ядерных излучений на материалы. М., Изд-во АН СССР, 1962, стр. 194.

4. С. Т. Конобеевский. «Атомная энергия», № 1, 63 (1956).
5. С. Т. Конобеевский и др. «Атомная энергия», 4, 34 (1958).
6. D. Kramer et al. J. Inst. Metals, 93, 145 (1965).
7. М. Джепсон и др. В кн. «Труды Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1958)». Т. 6. Избр. докл. иностр. ученых. М., Атомиздат, 1959, стр. 96.
8. Д. К. Хакимова, Ю. С. Виргильев, О. С. Иванов. Строение и свойства сплавов урана, тория и циркония. М., Госатомиздат, 1963, стр. 55.
9. N. Swindells. J. Nucl. Materials, 18, 263 (1966).
10. Y. Quere. J. Nucl. Materials, 9, 290 (1963).
11. M. Bleiberg. J. Nucl. Materials, 1, 182 (1959)
12. С. Т. Конобеевский. ЖЭТФ, 13, 185 (1943)

Влияние облучения нейтронами на структуру и свойства сплавов урана с содержанием 0,6—9 вес.% молибдена

В. Д. ДМИТРИЕВ, Ш. Ш. ИБРАГИМОВ, А. Г. КАРМИЛОВ

УДК 621.039.553

Приводятся результаты исследований сплавов урана с содержанием молибдена 0,6; 1,2; 3; 5; 7 и 9 вес.% с различным исходным структурным состоянием, облученных в реакторе Первой АЭС при температуре 100—200°С интегральным потоком тепловых нейтронов $(0,5 \div 1,0) \cdot 10^{20}$ нейтр/см². Изучались изменения размеров, плотность, твердость, микроструктура, фазовый состав и параметры кристаллической решетки сплавов. Установлено, что в результате облучения в сплавах происходят фазово-структурные превращения, сопровождающиеся изменением соответствующих свойств материала. Степень и характер этих изменений зависят от содержания молибдена и исходного структурного состояния сплава.

Опыты по облучению в реакторе свидетельствуют о зависимости радиационной стойкости уран-молибденовых сплавов не только от содержания молибдена, но и от исходного структурного состояния [1, 2]. В то же время установлено, что в процессе облучения нейтронами фазово-структурное состояние некоторых сплавов урана может претерпевать значительные изменения [3—10].

В настоящей работе для исследования были выбраны сплавы с содержанием молибдена 0,6; 1; 2; 3; 5; 7 и 9 вес.%, приготовленные на основе природного урана технической чистоты. Часть сплавов после отливки в графитовую изложницу подвергалась гомогенизирующему отжигу при 950°С в течение 3 ч, другая часть прессовалась (выдавливалась со степенью обжатия 95%) при температуре γ -фазы и охлаж-

далась в масле. После этого некоторые сплавы подвергались дополнительному отжигу при 500°С (см. таблицу).

Образцы, заключенные в стальные ампулы с NaK, облучали в реакторе Первой АЭС. Температура образцов во время облучения составляла 100—200°С, плотность потока тепловых нейтронов $(1 \div 2) \cdot 10^{13}$ нейтр/см², интегральный поток тепловых нейтронов $(0,5 \div 1,0) \cdot 10^{20}$ нейтр/см².

Сравнивались изменения формы, плотности (гидростатическим методом), твердости (по Виккерсу) и микроструктуры облученных и необлученных образцов. Кроме того, рентгенографическим методом на специальной дистанционной установке [11] определялись фазовый состав сплавов и периоды кристаллической решетки γ -фазы*. Проводился также отжиг облученных образцов в соляной ванне при температурах 250—700°С (до 100 ч).

Результаты экспериментов

Внешний осмотр и контрольные измерения показали, что в результате облучения при указанных выше условиях огрубления поверх-

* Съемка велась со шлифа на медном излучении при вращении образца в собственной плоскости. Период решетки определялся по центру тяжести линии (110) с точностью $\pm (4-5) \cdot 10^{-3}$ Å.