

**Received:** 17.10.2024

**Revised:** 14.11.2024



**Accepted:** 22.11.2024

**DOI:** 10.17804/2410-9908.2024.6.035-046

## ON SHORT-RANGE MIGRATION OF DEFECTS IN ELECTRON-IRRADIATED Fe–16Cr ALLOYS

A. L. Nikolaev

*M. N. Mikheev Institute of Metal Physics, Ural Branch of the Russian Academy of Sciences,  
18 S. Kovalevskoy St., Ekaterinburg, 620137, Russia*

 <https://orcid.org/0000-0002-0858-9820>  [nikolaev@imp.uran.ru](mailto:nikolaev@imp.uran.ru)

Email: [nikolaev@imp.uran.ru](mailto:nikolaev@imp.uran.ru)

Address for correspondence: ul. S. Kovalevskoy, 18, Ekaterinburg, 620108, Russia

Tel.: +7 (343) 378-3850

The residual resistivity recovery method is used to study the migration of radiation-induced defects and their interaction with impurity atoms of Si (0.2, 0.5, and 0.75 at%) and Au (0.13 at%) in electron-irradiated Fe–16Cr alloys at 80–180 K. Doping with impurities results in the suppression of residual resistivity recovery, thus indicating the trapping of migrating defects at impurity atoms, which is accompanied by a decrease in the specific contribution of defects to residual electrical resistivity. The trapping of migrating defects at impurity atoms starts at 150 K in Fe–16Cr–0.13Au and Fe–16Cr–0.2Si and at 130 K in Fe–16Cr–0.75Si. Smooth and monotonous suppression of residual resistivity recovery at sufficiently large impurity concentrations indicates the suppression of correlated recombination in Fe–16Cr–0.13Au and Fe–16Cr–0.2Si, as well as the suppression of the recombination of close pairs in Fe–16Cr–0.5Si and Fe–16Cr–0.75Si. The smooth and monotonous suppression of residual resistivity recovery and the decrease in the specific contribution of defects at trapping indicate a short-range migration of vacancies in the temperature range 130–180 K. Long-range migration of defects starts above 180 K.

**Keywords:** Fe–16Cr alloys, electron irradiation, radiation-induced defects, residual resistivity recovery, trapping of defects by Si and Au atoms, short-range migration of vacancies

### Acknowledgment

*The research was carried out under the state assignment from the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation (theme Function, No. 122021000035-6). The author thanks Dr. D. A. Perminov for critically reading the manuscript.*

### References

1. Benkaddour, A., Dimitrov, C., and Dimitrov, O. Irradiation-induced defects in ferritic Fe–Cr alloys. *Materials Science Forum*, 1987, 15–18, 1263–1268. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.15-18.1263.
2. Maury, F., Lucasson, P., Lucasson, A., Faudot, F., and Bigot, J. A study of irradiated FeCr alloys: deviations from Matthiessen's rule and interstitial migration. *Journal of Physics F: Metal Physics*, 1987, 17 (5), 1143–1165. DOI: 10.1088/0305-4608/17/5/014.
3. Nikolaev, A.L. Stage I of recovery in 5 MeV electron-irradiated iron and iron-chromium alloys: the effect of small cascades, migration of di-interstitials and mixed dumbbells // *Journal of Physics: Condensed Matter*, 1999, 11 (44), 8933–8644. DOI: 10.1088/0953-8984/11/44/302.
4. Nikolaev, A.L. Specificity of stage III in electron-irradiated Fe–Cr alloys. *Philosophical Magazine*, 2007, 87 (31), 4847–4874. DOI: 10.1080/14786430701468977.



5. Nikolaev, A.L. Recovery of electrical resistivity, short-range order formation and migration of defects in electron-irradiated Fe–4Cr alloy doped with carbon. *Philosophical Magazine*, 2011, 91 (6), 879–898. DOI: 10.1080/14786435.2010.534740.
6. Apostolopoulos, G., Lukianova, V., Kotsina, Z., Lagoyannis, A., Mergia, K., Harissopoulos, S., and Messoloras, S. The influence of carbon on the resistivity recovery of proton irradiated Fe–11 at.% Cr alloys. *Nuclear Materials and Energy*, 2016, 9, 465–470. DOI: 10.1016/j.nme.2016.09.007.
7. Gómez-Ferrer, B. *Resistivity recovery in Fe and FeCr alloys*, SpringerBriefs in Applied Sciences and Technology Series, Springer Cham, 2016, 166 p. DOI: 10.1007/978-3-319-38857-1.
8. Gómez-Ferrer, B., García-Cortés, I., Marco, J.F., Jiménez-Rey, D., and Vila, R. Decoupling of defect and short-range order contributions to resistivity recovery measurements in binary alloys. *Physical Review B*, 2014, 90, 220102. DOI: 10.1103/PhysRevB.90.220102.
9. Dimitrov, C. and Dimitrov, O. Composition dependence of defect properties in electron-irradiated Fe–Cr–Ni solid solutions. *Journal of Physics F: Metal Physics*, 1984, 14, 793–811. DOI: 10.1088/0305-4608/14/4/005.
10. Nikolaev, A.L. Difference approach to the analysis of resistivity recovery data for irradiated short-range ordered alloys. *Philosophical Magazine*, 2009, 89 (12), 1017–1033. DOI: 10.1080/14786430902835651.
11. Druzhkov, A.P. and Nikolaev, A.L. Effects of solute atoms on evolution of vacancy defects in electron-irradiated Fe–Cr-based alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 2011, 408, 194–200. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2010.11.036.
12. Druzhkov, A.P. and Nikolaev, A.L. Effect of Si concentration on formation of vacancy complexes in electron-irradiated Fe16Cr–Si alloys studied by positron annihilation. *Journal of Nuclear Materials*, 2018, 508, 100–106. DOI: 10.1016/j.jnucmat.2018.05.040.
13. Davletshin, A.E. and Nikolaev, A.L. A portable thermostatic unit for a storage helium dewar. *Instruments and Experimental Techniques*, 1996, 39 (5), 766–768.
14. Nikolaev, A.L. The unambiguous identification of vacancy migration stage in resistivity recovery of irradiated metals based on trapping of vacancies at probe impurity atoms. *Philosophical Magazine*, 2018, 98 (27), 2481–2494. DOI: 10.1080/14786435.2018.1492158.
15. Maury, F., Lucasson, A., Lucasson, P., Moser, P., and Loreaux, Y. Interstitial migration in dilute FeSi and FeAu alloys. *Journal of Physics F: Metal Physics*, 1985, 15 (7), 1465–1484. DOI: 10.1088/0305-4608/15/7/007.

Подана в журнал: 17.10.2024  
УДК 539.12.043:620.192.63:669  
DOI: 10.17804/2410-9908.2024.6.035-046

## О БЛИЖНЕЙ МИГРАЦИИ ДЕФЕКТОВ В ОБЛУЧЕННЫХ ЭЛЕКТРОНАМИ СПЛАВАХ Fe–16Cr

А. Л. Николаев

*Федеральное государственное бюджетное учреждение науки  
Институт физики металлов имени М. Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук,  
ул. С. Ковалевской, 18, Екатеринбург, 620137, Россия*

 <https://orcid.org/0000-0002-0858-9820>  [nikolaev@imp.uran.ru](mailto:nikolaev@imp.uran.ru)

Электронная почта: [nikolaev@imp.uran.ru](mailto:nikolaev@imp.uran.ru)  
Адрес для переписки: ул. С. Ковалевской, 18, Екатеринбург, 620108, Россия  
Тел.: +7 (343) 378-38-50

Методом возврата остаточного электросопротивления исследованы миграция радиационных дефектов и их взаимодействие с примесными атомами Si (0,2, 0,5 и 0,75 ат. %) и Au (0,13 ат. %) в облученных электронами сплавах Fe–16Cr в температурном интервале 80–180 К. Легирование сплавов примесями приводит к подавлению возврата остаточного электросопротивления, что указывает на захват мигрирующих дефектов на атомах примесей, который сопровождается уменьшением удельного вклада дефектов в остаточное электросопротивление. Захват мигрирующих дефектов на атомах примесей начинается выше 150 К в Fe–16Cr–0,13Au и Fe–16Cr–0,2Si и выше 130 К в Fe–16Cr–0,75Si. Плавное и монотонное подавление возврата остаточного электросопротивления при достаточно больших концентрациях примесей указывает на подавление коррелированной миграции в Fe–16Cr–0,13Au и Fe–16Cr–0,2Si, а также рекомбинации близких пар в Fe–16Cr–0,5Si и Fe–16Cr–0,75Si. Плавное подавление возврата остаточного электросопротивления и уменьшение удельного вклада дефектов при захвате указывают на ближнюю миграцию вакансий в температурном интервале 130–180 К. Выше 180 К начинается дальняя миграция дефектов.

**Ключевые слова:** сплавы Fe–16Cr, облучение электронами, радиационные дефекты, возврат остаточного электросопротивления, захват дефектов на атомах Si и Au, ближняя миграция вакансий

### 1. Введение

Первое исследование [1] возврата остаточного электросопротивления (ВОЭС) в облученных электронами при 21 К концентрированных сплавах Fe–Cr (5, 10 и 15 ат. % Cr) выявило сходную структуру спектров ВОЭС в этих сплавах, состоящую из трех основных пиков (стадий), расположенных при 80–105 К, 160–180 К и 225 К.

Исследования [2, 3] показали, что в температурном интервале низкотемпературной стадии (пики в интервале 80–105 К) происходит миграция собственных междоузельных атомов (СМА), их превращение в подвижные смешанные гантели (СГ) FeCr, которые затем захватываются конфигурациями из двух атомов хрома, расположенных в соседних узлах кристаллической решетки. Концентрация таких конфигураций растет примерно как квадрат концентрации хрома [3]. Захват СГ на этих конфигурациях приводит к подавлению дальней миграции и других процессов, характерных для I стадии, а именно коррелированной рекомбинации при низких концентрациях хрома (~3–5 ат. % Cr), а также части процессов рекомбинации близких пар при высоких концентрациях (9–16 ат. % Cr). Освобождение этих СМА,

захваченных в виде СГ, и их дальняя миграция происходят в температурном интервале высокотемпературной стадии (пик вблизи 225 К) [4, 5].

Согласно [4, 5], пик III стадии (т. е. стадии начала дальней миграции вакансий) в обычном спектре ВОЭС не виден и расположен чуть выше 200 К, т. е. заметно ниже стадии при 225 К, где начинается дальняя миграция СМА. Таким образом, первичные процессы отжига радиационных дефектов (т. е. процессы отжига одиночных дефектов) заканчиваются на высокотемпературной стадии (пик при 225 К), что подтверждается отсутствием каких-либо заметных стадий ВОЭС при температурах выше этой стадии [1].

Процессы коррелированной рекомбинации и рекомбинации близких пар инициируются ближней миграцией дефектов, то есть миграцией на расстояния, существенно меньшие расстояний между отдельными парами Френкеля, на которые мигрируют дефекты в процессе дальней миграции. Ближняя миграция и инициируемые ею процессы всегда предшествуют дальней миграции СМА и вакансий. Но эти процессы не завершились к началу средней стадии, поскольку частично подавлены в температурном интервале низкотемпературной стадии. Поэтому завершение ближней миграции (а также и инициируемых ею процессов) должно происходить, с одной стороны, при температурах выше низкотемпературной стадии, а с другой – ниже температуры стадий дальней миграции вакансий и СМА, то есть исключительно в температурном интервале средней стадии.

Тем не менее, в работах [6–8] температурный интервал средней стадии (и даже ниже [7]) указан как температурный интервал дальней миграции СМА. Это предполагалось в работе [1] при интерпретации первых данных по ВОЭС, но в дальнейшем не получило подтверждения. Вероятно, для авторов [6–8] данные и аргументы [4, 5], основанные на ускоренном дальней миграцией дефектов ближнем упорядочении (БУ) и свидетельствующие о ближней миграции дефектов в температурном интервале средней стадии, оказались неубедительными. Поэтому в настоящей работе мы напрямую проанализируем характер миграции дефектов (т. е. ближняя или дальняя миграция) в указанном температурном интервале в сплаве Fe–16ат.%Cr (Fe–16Cr) в рамках классического подхода к анализу данных по ВОЭС, который применяется при анализе данных в чистых металлах и разбавленных сплавах. В этих системах изменения остаточного электросопротивления (ОЭС) всегда напрямую связаны только с изменениями концентрации точечных дефектов и/или удельного вклада от этих дефектов в ОЭС при образовании комплексов с атомами примесей, в отличие от концентрированных сплавов, где также существует вклад в ВОЭС, связанный с БУ при дальней миграции дефектов. Поэтому в данной работе дополнительно определялась температура, при которой появляется вклад, связанный с БУ, и выше которой данные по ВОЭС не анализировались, так как это выходит за рамки применимости классического подхода.

Атомы примесей могут захватывать подвижные дефекты, блокируя их миграцию, что приводит к подавлению ВОЭС. Сравнивая ВОЭС в нелегированных и легированных примесями сплавах, можно определить температуру, начиная с которой присутствие атомов примесей в определенной концентрации начинает влиять на миграцию дефектов, то есть приводит к подавлению ВОЭС. Это – низкотемпературный край соответствующей стадии миграции дефектов. Заметное подавление стадии (которое проявляется и на ее краю) происходит тогда, когда среднее расстояние между дефектами и атомами примесей становится сопоставимым со средним расстоянием, на которое мигрируют дефекты при данных температурах в нелегированном сплаве, или меньшим по сравнению с ним, то есть когда вероятность захвата на атоме примеси становится сопоставимой с вероятностью рекомбинации с противоположным дефектом или превышает ее. Если дефектов заметно меньше, чем атомов примесей, то среднее расстояние между дефектами и атомами примесей примерно равно среднему расстоянию между атомами примесей.

Таким образом, задавая концентрацию примеси, можно оценить температуру начала миграции дефектов на определенные расстояния, которые соответствуют началу определенного типа процессов – дальней или коррелированной миграции или рекомбинации близких

пар. Так, процесс дальней миграции заметно подавляется при концентрации примесей около 100–200 а.п.м. При концентрации примесей около 0,1 ат. % он подавляется полностью, в то время как процесс коррелированной миграции – только частично (т. е. заметно). Аналогично при концентрации примесей около 1 ат. % полностью подавляется процесс коррелированной миграции и частично – рекомбинации близких пар.

Ширина пиков стадий в сплавах Fe–Cr составляет примерно 70 К [4]. Зная температуру начала какого-либо процесса и ширину стадии, можно определить примерный температурный интервал протекания данного процесса и примерную температуру пика стадии, соответствующей данному процессу.

## 2. Подход к анализу зависимостей ВОЭС

### 2.1. Сравнение зависимостей ВОЭС легированных и нелегированных образцов

Сравнение температурных зависимостей ВОЭС для нелегированного и легированного образцов  $R(T)$  и  $R_{doped}(T)$  в обычных сплавах, где справедливо правило Матиссена, не представляет трудностей. При низких температурах  $R(T)$  и  $R_{doped}(T)$  совпадают, а выше определенной температуры  $T_{on}$ , когда атомы примесей начинают влиять на процессы миграции дефектов, они начинают расходиться. Температура начала расхождения  $T_{on}$  и является искомой температурой начала анализируемого процесса.

Однако в сплавах Fe–Cr наблюдаются значительные отклонения от правила Матиссена (ОПМ) [2]. Вследствие ОПМ удельный вклад пар Френкеля в ОЭС начинает зависеть (не очень сильно) от их концентрации [2]. Легирование примесями меняет параметры ОПМ и приводит к тому, что эта концентрационная зависимость становится различной в легированных и нелегированном сплавах. Поэтому зависимости  $R(T)$  и  $R_{doped}(T)$  начинают расходиться уже при самых низких температурах, и это расхождение не связано с влиянием атомов примесей на миграцию дефектов. Чтобы отличить это расхождение от расхождения, связанного с влиянием атомов примесей на миграцию дефектов, удобно анализировать разностный ВОЭС  $\Delta R(T) = R(T) - R_{doped}(T)$ .

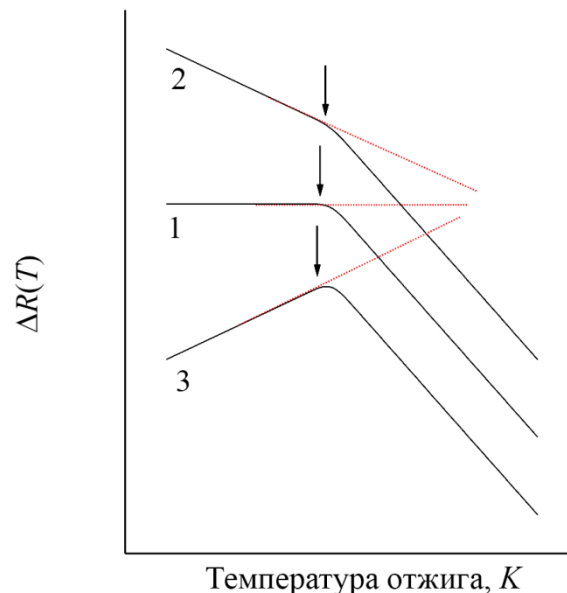


Рис. 1. Схематическое представление возможного вида разностной зависимости типа  $\Delta R(T)$  в случаях: 1 – ОПМ отсутствуют или ОПМ различного вида взаимно компенсируют друг друга; 2, 3 – ОПМ различного вида. Стрелки указывают на температуру  $T_{on}$

В обычных сплавах, где нет заметных ОПМ, значение  $\Delta R(T)$  на начальном низкотемпературном участке (ниже  $T_{on}$ ) равно нулю, и график зависимости  $\Delta R(T)$  представляет собой

горизонтальную линию. Выше  $T_{on}$  значения  $\Delta R(T)$  становятся отрицательными и растут по абсолютной величине с увеличением температуры. Температура  $T_{on}$  определяется легко, как точка начала расхождения нулевой горизонтальной линии и зависимости  $\Delta R(T)$ .

В сплавах Fe–Cr с ОПМ начальный низкотемпературный (ниже  $T_{on}$ ) участок  $\Delta R(T)$  может иметь ненулевой (положительный или отрицательный) наклон. Поэтому зависимость  $\Delta R(T)$  является комбинацией начального низкотемпературного участка с ненулевым наклоном и спадающей зависимости  $\Delta R(T)$  выше  $T_{on}$ . Температуру  $T_{on}$  в этом случае определить сложнее, чем в случае без ОПМ, так как она является точкой перехода от одной зависимости к другой. Ситуация упрощается, если участок низкотемпературной зависимости, предшествующий  $T_{on}$ , можно аппроксимировать прямой линией. В этом случае температура  $T_{on}$  определяется как точка начала расхождения аппроксимирующей прямой и зависимости  $\Delta R(T)$ . Примерный вид возможных кривых  $\Delta R(T)$  в случаях соблюдения правила Матиссена и ОПМ показан на рис. 1.

### 2.2. Миграция дефектов и процессы ближнего упорядочения

Дальняя миграция дефектов приводит к ускорению диффузионных процессов при низких температурах. В результате одновременно с началом дальней миграции в концентрированных сплавах начинаются процессы БУ, что приводит к появлению соответствующего вклада в ВОЭС [5, 9, 10]. С этого момента классический подход к анализу данных по ВОЭС, который предполагается использовать в данной работе, более не работает. Чтобы понять, когда наступает этот момент, необходимо определить температуру начала процессов БУ  $T_{SRO}$ . Захват дефектов на атомах примесей в легированных сплавах может сдвигать начало дальней миграции и, соответственно, начало БУ в сторону высоких температур, тем самым увеличивая значения  $T_{SRO}$ . Поэтому именно  $T_{SRO}$  в нелегированном сплаве будет иметь наименьшее значение, которое и будет определять температурный интервал применимости классического подхода.

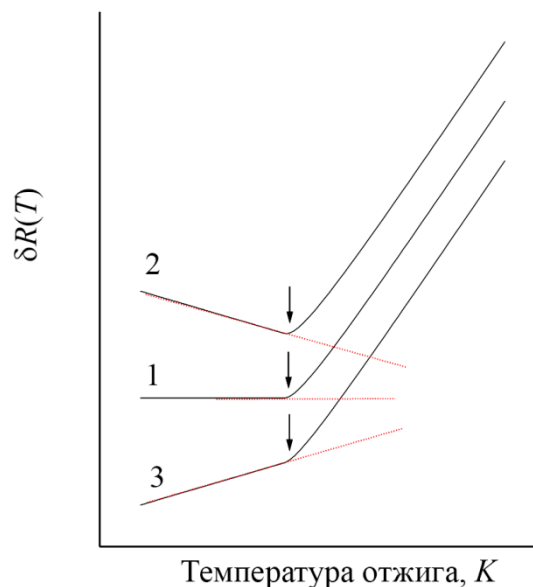


Рис. 2. Схематическое представление возможного вида разностной зависимости типа  $\delta R(T)$  в случаях: 1 – ОПМ отсутствуют или ОПМ различного вида взаимно компенсируют друг друга; 2, 3 – для ОПМ различного вида. Стрелки указывают на температуру  $T_{SRO}$

Для определения  $T_{SRO}$  при отжиге после низкотемпературного облучения необходимо сравнить ВОЭС в образцах с различной исходной концентрацией дефектов – высокой  $R_H(T)$  и низкой  $R_L(T)$  [10]. При низких температурах, в отсутствие БУ и ОПМ, зависимости  $R_H(T)$

и  $R_L(T)$  совпадают. Начало дальней миграции дефектов и, соответственно, БУ приводит к расхождению зависимостей, которое увеличивается с ростом температуры.

В простейшем случае точка начала расхождения соответствует  $T_{SRO}$ . В более сложном случае выше  $T_{SRO}$  появляется компонента, имеющая форму пика [10], которая может заметно осложнить определение  $T_{SRO}$ . В дальнейшем мы увидим, что в Fe–16Cr реализуется именно простейший случай.

Однако в сплавах Fe–Cr вследствие заметных ОПМ удельный вклад от пар Френкеля в ОЭС зависит от их концентрации. Отжиг дефектов в случаях  $R_H(T)$  и  $R_L(T)$  соответствует различным участкам этой концентрационной зависимости. Эта разница может приводить к расхождению между кривыми  $R_H(T)$  и  $R_L(T)$  при низких температурах в отсутствие БУ.

Опять, чтобы отличить это расхождение от расхождения, связанного с БУ, удобно анализировать разностный ВОЭС  $\delta R(T) = R_H(T) - R_L(T)$ . В отсутствие ОПМ низкотемпературный (ниже  $T_{SRO}$ ) начальный участок зависимости  $\delta R(T)$  представляет собой нулевую горизонтальную линию. В отличие от  $\Delta R(T)$ , наклон зависимости  $\delta R(T)$  при температурах выше  $T_{SRO}$  может быть как положительным, так и отрицательным, в зависимости от знака вклада БУ в ВОЭС, но значения  $\delta R(T)$ , также как и значения  $\Delta R(T)$ , растут по абсолютной величине с увеличением температуры. Поэтому температура  $T_{SRO}$  соответствует точке, где начинается расхождение между нулевой горизонтальной линией и зависимостью  $\delta R(T)$ .

Вследствие ОПМ начальный низкотемпературный участок  $\delta R(T)$  может иметь наклон. Как и в предыдущем случае с  $\Delta R(T)$ , точку  $T_{SRO}$  можно достаточно просто определить, если участок низкотемпературной зависимости  $\delta R(T)$ , предшествующей  $T_{SRO}$ , можно аппроксимировать прямой линией. В этом случае температура  $T_{SRO}$  определяется как точка начала расхождения аппроксимирующей прямой и зависимости  $\delta R(T)$ , растущей в случае Fe–16Cr. Примерный вид возможных кривых  $\delta R(T)$  в случаях соблюдения правила Матиссена и ОПМ показан на рис. 2 для случаев сплавов на основе Fe–16Cr.

### 3. Методика и эксперимент

В работе использовали высокочистые сплавы Fe–16Cr (основные примеси Ni – 100 аppm и N – 70 аppm), легированные Si (0,2, 0,5 и 0,75 ат. %) и Au (0,13 ат. %). Сплавы, использованные в экспериментах, и их характеристики приведены в таблице. Методика получения и аттестация сплавов описаны в работах [11, 12]. Образцы этих сплавов облучали электронами с энергией 5,5 МэВ при температуре ниже 77 К. После облучения держатель с образцами, не отогревая выше 77 К, переносили в транспортный гелиевый дьюар, чтобы в печи [13], расположенной выше уровня гелия, провести изохронный ступенчатый отжиг со скоростью 1 К/мин и шагами по 7,5 К. Измерение ОЭС образцов при 4,2 К проводили, опуская держатель образцов из печи в жидкий гелий. Подробности приготовления, облучения и отжига образцов, а также измерения ОЭС можно найти в [4, 5].

Таблица

Характеристики исследованных сплавов и использованных образцов

Сплав	Легирующая добавка	ОЭС, $10^{-6}$ Ом·см	Экспериментальная серия	Образец	Прирост ОЭС $\Delta\rho_{90K}$ , $10^{-6}$ Ом·см	Примерная концентрация пар Френкеля при 90 К, аppm
Fe-16Cr	–	12,1	1	Cr16(H)	1,02	136
			1	Cr16(L)	0,38	50
			2	Cr16	0,98	130
Fe-16Cr-0,13Au	Au – 0,13 ат. %	16,1	2	Au0.13	0,82	110
Fe-16Cr-0,2Si	Si – 0,2 ат. %	14,8	1	Si0.2	0,85	113
Fe-16Cr-0,5Si	Si – 0,5 ат. %	19,5	1	Si0.5	1,02	136
Fe-16Cr-0,75Si	Si – 0,75 ат. %	25,5	1	Si0.75	1,06	141

По данным измерений строили температурные зависимости ВОЭС

$$R(T) = \Delta\rho(T) / \Delta\rho_{90K},$$

где  $\Delta\rho(T)$  – текущий прирост ОЭС после облучения и отжига при температуре  $T$ , а  $\Delta\rho_{90K}$  – прирост ОЭС после облучения и отжига при 90 К. Затем полученные температурные зависимости ВОЭС для различных образцов сравнивали между собой. ВОЭС в чистом железе и сплавах Fe–Cr после облучения электронами при 5–21 К примерно одинаков после отжига при 90 К [1], что и обусловило выбор  $\Delta\rho_{90K}$  для нормировки [3]. Такая нормировка позволяла корректно сравнивать данные по ВОЭС в различных сплавах Fe–Cr и чистом железе [3] при облучениях выше 21 К и ниже 77 К.

#### 4. Результаты

В работе использовали данные двух экспериментальных серий (облучение + последующий отжиг). Использованные образцы и значения  $\Delta\rho_{90K}$  для них приведены в таблице. Из первой серии использовали данные для образцов Cr16(H) и Cr16(L), облученных до разных приростов ОЭС (концентраций дефектов), для построения разностной зависимости типа  $\delta R(T)$  (рис. 3), а также данные образцов Cr16(H), Si0,2, Si0,5 и Si0,75 для построения разностных зависимостей типа  $\Delta R(T)$  (рис. 4). Из второй серии использовали данные для образцов Cr16 и Au0,13 для построения разностной зависимости типа  $\Delta R(T)$  (рис. 4). Использование данных образцов из одной серии для построения  $\Delta R(T)$  позволило уменьшить погрешности вычитания, так как температуры в разных сериях немного отличались.

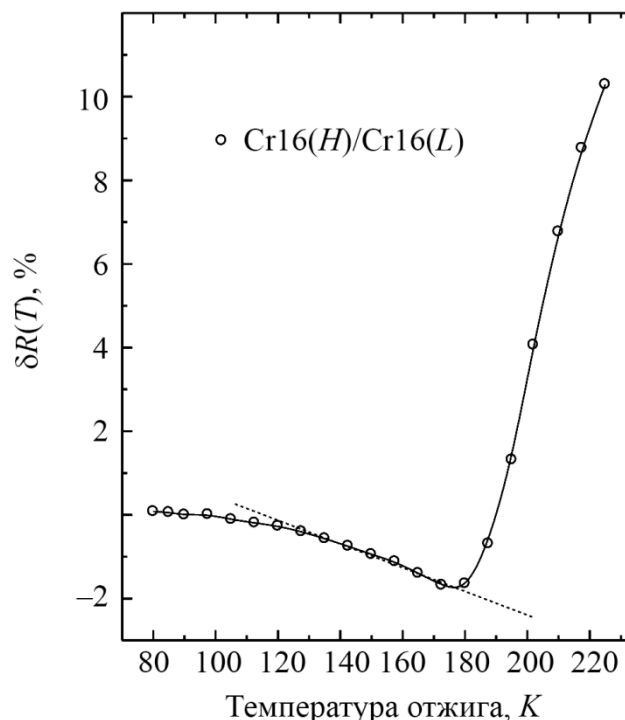


Рис. 3. Разностная зависимость типа  $\delta R(T)$  для пары образцов сплава Fe–16Cr

На рис. 3 видно, что при низких температурах для разностной зависимости  $\delta R(T)$  наблюдается слабый спад, а выше 180 К спад сменяется резким подъемом. Участок кривой, предшествующий 180 К, в интервале ~130–180 К хорошо аппроксимируется прямой линией. Видно, что аппроксимирующая прямая и зависимость  $\delta R(T)$  расходятся



выше 180 К. Признаков компоненты, имеющей форму пика, не просматривается, поэтому низкотемпературный слабый спад соответствует расхождению кривых ВОЭС из-за ОПМ, а последующий рост  $\delta R(T)$  выше 180 К соответствует расхождению зависимостей  $R_H(T)$  и  $R_L(T)$  из-за БУ. Следовательно,  $T_{SRO} \approx 180$  К и, соответственно, анализ кривых ВОЭС в рамках классического подхода возможен только до 180 К.

На рис. 4 видно, что низкотемпературная часть зависимости  $\Delta R(T)$  для пары Cr16(H)/Si0,2 близка к горизонтальной линии, и расхождение между горизонтальной линией и зависимостью наблюдается при температурах выше 150 К. Соответственно,  $T_{on} = 150$  К для Fe–16Cr–0,2Si. Для пар Cr16(H)/Si0,5 и Cr16(H)/Si0,75 наблюдается слабый рост зависимости  $\Delta R(T)$  в интервале ~95–140 К и ~95–135 К соответственно, который при более высоких температурах сменяется спадом. Участки роста хорошо аппроксимируются прямыми линиями, и расхождение между ними и зависимостями  $\Delta R(T)$  наблюдается выше 135 К (Cr16(H)/Si0,5) и 130 К (Cr16(H)/Si0,75). Соответственно,  $T_{on} = 130$  К для Fe–16Cr–0,75Si и  $T_{on} = 135$  К для Fe–16Cr–0,5Si.

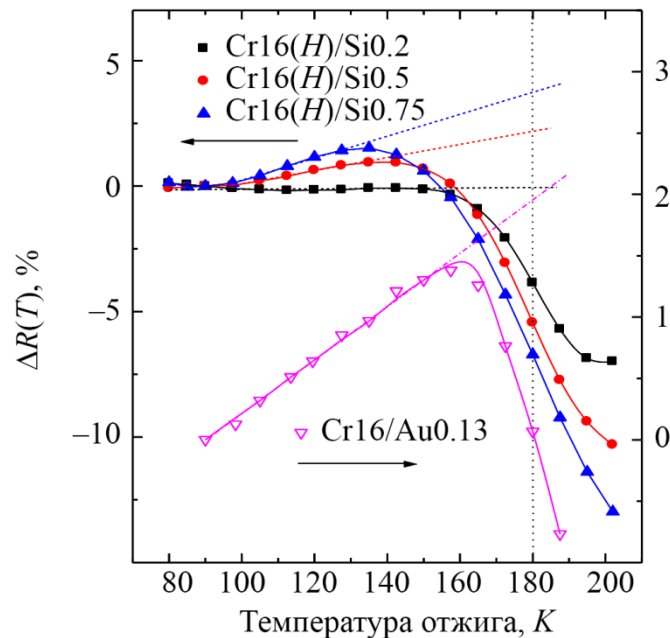


Рис. 4. Разностные зависимости типа  $\Delta R(T)$  для различных пар образцов нелегированного и легированных сплавов Fe–16Cr

Зависимость  $\Delta R(T)$  для пары Fe16Cr/Au0,13 линейно растет до значений ~1,4 % при 160 К, а затем начинает резко уменьшаться, так что значение  $\Delta R(T)$  при 180 К обращается практически в ноль. Расхождение между линейной аппроксимацией низкотемпературной части и зависимостью  $\Delta R(T)$  начинается выше 150 К. Поэтому  $T_{on} = 150$  К для Fe–16Cr–0,13Au. На примере этой зависимости видно, что есть случаи, когда выявить эффект влияния примеси на ВОЭС простым сравнением зависимостей  $R(T)$  и  $R_{doped}(T)$ , без использования разностного подхода, достаточно сложно, так как максимальное расхождение между  $R(T)$  и  $R_{doped}(T)$  может быть достаточно мало, а суммарный эффект при 180 К равен нулю.

Для определения величины подавления ВОЭС в легированных примесями сплавах по сравнению с нелегированным сплавом при 180 К аппроксимирующую линейную зависимость для соответствующей пары образцов (сплавов) экстраполировали до 180 К, как показано на рис. 4. То есть полагали, что эта линейная зависимость соответствует изменениям  $\Delta R(T)$  при одинаковом относительном уменьшении концентрации дефектов за счет рекомбинации в обоих образцах без взаимодействия с атомами легирующих примесей. Взаимодействие подвижных дефектов с атомами примесей (т. е. захват дефектов на атомах примесей)

уменьшает ВОЭС в сплаве с примесями по сравнению с нелегированным сплавом. То есть взаимодействие с примесями подавляет уменьшение  $R(T)$  легированного сплава по сравнению с ВОЭС нелегированного сплава. Поэтому захват подвижных дефектов на атомах примесей приводит к уменьшению величины  $\Delta R(T)$  вплоть до отрицательных значений. Величина подавления ВОЭС при 180 К будет равна разности между экстраполированным до 180 К значением и экспериментальным значением  $\Delta R(180\text{K})$ . Определенные таким образом величины подавления ВОЭС для сплавов, легированных Si и Au, показаны на рис. 5.

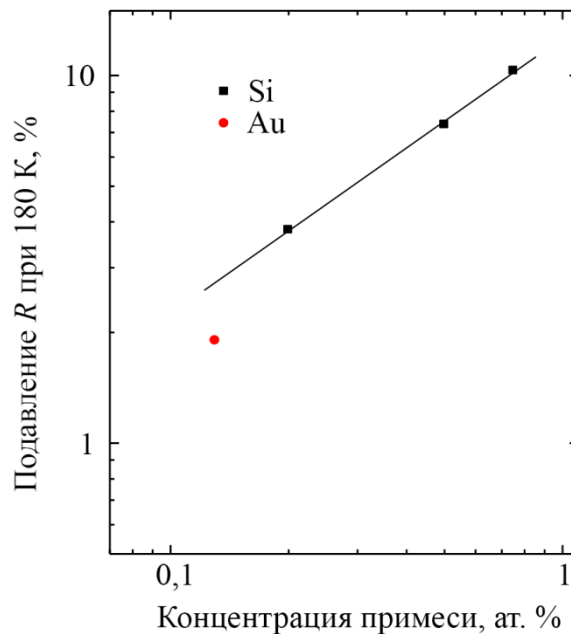


Рис. 5. Величина подавления ВОЭС в зависимости от концентрации и типа легирующей примеси в сплаве Fe–16Cr

## 5. Обсуждение

Зависимости, представленные на рис. 4, указывают на захват мигрирующих дефектов на примесных атомах Si и Au. Концентрации примесей достаточно большие, чтобы полностью подавить дальнюю миграцию дефектов. Поэтому, если бы в окрестностях 180 К действительно имела место дальняя миграция дефектов (как предполагалась в [6–8]), то величина подавления ВОЭС насыщалась бы уже при самых малых концентрациях примесей (0,13 ат. % Au и 0,2 ат. % Si) и не менялась бы при дальнейшем увеличении содержания примеси. Однако, как видно на рис. 5, величина подавления плавно и монотонно увеличивается с ростом содержания примеси. Это однозначно указывает на ближний характер миграции дефектов.

Ближние значения температуры  $T_{on}$  (150 К) для сплавов Fe–16Cr–0,13Au и Fe–6Cr–0,2Si указывают на то, что эта температура соответствует началу коррелированной миграции, или, другими словами, низкотемпературному краю пика соответствующей стадии. Ширина пика, как упоминалось во введении, составляет  $\sim 70$  К, но форма пика несимметричная, низкотемпературная часть является более широкой, чем высокотемпературная. Поэтому, чтобы оценить положение пика стадии коррелированной миграции, нужно прибавить к 150 К примерно 40 К, что дает значение около 190 К.

Концентрация кремния 0,75 ат. % достаточно велика, чтобы уже подавлять процессы рекомбинации близких пар. Поэтому температура  $T_{on} = 130$  К для сплава Fe–16Cr–0,75Si указывает на низкотемпературный край стадии рекомбинации близких пар. Из тех же соображений, что изложены выше, пик стадии должен находиться вблизи 170 К. Таким образом, видно, что в температурном интервале 130–180 К, где удастся отследить влияние примесей на

ВОЭС в рамках классического подхода, действительно сосредоточены процессы той части ближней миграции, которая была подавлена в температурном интервале низкотемпературной стадии ВОЭС. В целом эти процессы с пиками стадий вблизи 170 К и 190 К в значительной степени перекрываются как между собой, так и с процессами дальней миграции, которые начинаются выше 180 К. Полученные оценки температурного положения пиков стадий коррелированной рекомбинации и рекомбинации близких пар в Fe–16Cr хорошо согласуются с положением этих стадий в сплаве Fe–9Cr, найденных из совершенно иных соображений [4]. Как видно на рис. 5, влияние примесных атомов золота на подавление ВОЭС более слабое, чем влияние примесных атомов кремния. Такой эффект указывает, что захват дефектов на атомах золота сопровождается уменьшением вклада дефектов в ОЭС. Точнее будет сказать, что уменьшение вклада от дефектов в ОЭС при образовании комплексов с атомами золота больше, чем возможное уменьшение вклада от дефектов в ОЭС при таком же образовании комплексов с атомами кремния, так как уменьшение вклада и в последнем случае нельзя исключить.

В работе [14] было показано, что уменьшение удельного вклада дефектов в ОЭС при захвате их на атомах примеси происходит тогда, когда избыточные заряды дефектов ( $Z_d$ ) и атомов примеси ( $Z_{imp}$ ) в решетке металла (сплава) имеют противоположные знаки. В этом случае удельный вклад комплекса «атом примеси – дефект» в ОЭС определяется квадратом разности  $(|Z_d| - |Z_{imp}|)^2$ , который заметно меньше, чем сумма квадратов  $[Z_d^2 + Z_{imp}^2]$ , которая определяет удельный вклад от атома примеси и дефекта по отдельности. Как правило,  $|Z_d| > |Z_{imp}|$ , поэтому чем больше  $|Z_{imp}|$ , тем больше уменьшение вклада дефектов в ОЭС при захвате их на атомах примеси. Величина  $Z_{imp}^2$  определяет удельный вклад примеси в ОЭС, поэтому чем больше удельный вклад примеси в ОЭС, тем больше уменьшение вклада дефектов в ОЭС при захвате их на атомах данной примеси по сравнению с другой примесью, имеющей меньший удельный вклад в ОЭС.

Чтобы определить знак избыточного заряда атома примеси относительно избыточного заряда дефекта, можно ориентироваться на данные по чистому железу. Легирование хромом (близким к железу элементом) может изменить величину избыточного заряда атома примеси, но не его знак. В чистом железе захват вакансий на атомах золота и кремния сопровождается уменьшением вклада вакансий в ОЭС [15]. Поэтому и в Fe–16Cr должно происходить то же самое. Поскольку удельный вклад золота в ОЭС больше, чем у кремния (~30 мкОм·см/ат.% для Au и 15–19 мкОм·см/ат.% для Si, см. таблицу), то уменьшение вклада вакансий в ОЭС при захвате их на атомах золота должно быть больше, чем при захвате на атомах кремния. Это именно та ситуация, которая наблюдается в эксперименте. Поэтому экспериментальные данные о влиянии примесей на ВОЭС, полученные в рамках классического подхода в температурном интервале 130–180 К, свидетельствуют о ближней миграции вакансий при этих температурах. Таким образом, выводы, которые следуют из данных о влиянии примесей на ВОЭС в сплавах Fe–16Cr, независимо подтверждают выводы [4] о природе миграции дефектов в температурном интервале средней стадии в сплавах Fe–4Cr и Fe–9Cr, сделанные на основе совершенно других данных и соображений.

## 6. Заключение

Показано, что характер подавления возврата остаточного электросопротивления в облученных электронами сплавах Fe–16Cr при легировании примесями Si (0,2, 0,5 и 0,75 ат. %) и Au (0,13 ат. %) указывает на ближнюю миграцию вакансий в сплаве Fe–16Cr в температурном интервале 80–180 К. Выше 180 К начинается дальняя миграция дефектов.

## Благодарность

*Работа выполнена в рамках государственного задания Минобрнауки России (тема «Функция», № 122021000035-6). Автор выражает благодарность Д. А. Перминову за критические замечания при чтении работы.*

## Литература

1. Benkaddour A., Dimitrov C., Dimitrov O. Irradiation-induced defects in ferritic Fe–Cr alloys // *Materials Science Forum*. – 1987. – Vols. 15–18. – P. 1263–1268. – DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.15-18.1263.
2. A study of irradiated FeCr alloys: deviations from Matthiessen’s rule and interstitial migration / F. Maury, P. Lucasson, A. Lucasson, F. Faudot, J. Bigot // *Journal of Physics F: Metal Physics*. – 1987. – Vol. 17 (5). – P. 1143–1165. – DOI: 10.1088/0305-4608/17/5/014.
3. Nikolaev A. L. Stage I of recovery in 5 MeV electron-irradiated iron and iron-chromium alloys: the effect of small cascades, migration of di-interstitials and mixed dumbbells // *Journal of Physics: Condensed Matter*. – 1999. – Vol. 11. – P. 8933–8644. – DOI: 10.1088/0953-8984/11/44/302.
4. Nikolaev A. L. Specificity of stage III in electron-irradiated Fe–Cr alloys // *Philosophical Magazine* – 2007. – Vol. 87 (31). – P. 4847–4874. – DOI: 10.1080/14786430701468977.
5. Nikolaev A. L. Recovery of electrical resistivity, short-range order formation and migration of defects in electron-irradiated Fe-4Cr alloy doped with carbon // *Philosophical Magazine*. – 2011. – Vol. 91 (6). – P. 879–898. – DOI: 10.1080/14786435.2010.534740.
6. The influence of carbon on the resistivity recovery of proton irradiated Fe–11 at. % Cr alloys / G. Apostolopoulos, V. Lukianova, Z. Kotsina, A. Lagoyannis, K. Mergia, S. Harissopoulos, S. Messoloras // *Nuclear Materials and Energy* – 2016. – Vol. 9. – P. 465–470. – DOI: 10.1016/j.nme.2016.09.007.
7. Gómez-Ferrer B. Resistivity recovery in Fe and FeCr alloys. *SpringerBriefs in Applied Sciences and Technology Series*. – Springer Cham, 2016. – 166 p.
8. Decoupling of defect and short-range order contributions to resistivity recovery measurements in binary alloys / B. Gómez-Ferrer, I. García-Cortés, J. F. Marco, D. Jiménez-Rey, R. Vila // *Physical Review B*. – 2014. – Vol. 90. – P. 220102. – DOI: 10.1103/PhysRevB.90.220102.
9. Dimitrov C., Dimitrov O. Composition dependence of defect properties in electron-irradiated Fe–Cr–Ni solid solutions // *Journal of Physics F: Metal Physics*. – 1984. – Vol. 14 – P. 793– 811. – DOI: 10.1088/0305-4608/14/4/005.
10. Nikolaev A. L. Difference approach to the analysis of resistivity recovery data for irradiated short-range ordered alloys // *Philosophical Magazine*. – 2009. – Vol. 89 (12). – P. 1017–1033. – DOI: 10.1080/14786430902835651.
11. Druzhkov A. P., Nikolaev A. L. Effects of solute atoms on evolution of vacancy defects in electron-irradiated Fe–Cr-based alloys // *Journal of Nuclear Materials*. – 2011. – Vol. 408. – P. 194–200. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2010.11.036.
12. Druzhkov A. P., Nikolaev A. L. Effect of Si concentration on formation of vacancy complexes in electron-irradiated Fe16Cr–Si alloys studied by positron annihilation // *Journal of Nuclear Materials*. – 2018. – Vol. 508. – P. 100–106. – DOI: 10.1016/j.jnucmat.2018.05.040.
13. Davletshin A. E., Nikolaev A. L. A portable thermostatic unit for a storage helium dewar // *Instruments and Experimental Techniques*. – 1996. – Vol. 39 (5). – P. 766–768.
14. Nikolaev A. L. The unambiguous identification of vacancy migration stage in resistivity recovery of irradiated metals based on trapping of vacancies at probe impurity atoms // *Philosophical Magazine*. – 2018. – Vol. 98 (27). – P. 2481–2494. – DOI: 10.1080/14786435.2018.1492158.
15. Interstitial migration in dilute FeSi and FeAu alloys / F. Maury, A. Lucasson, P. Lucasson, P. Moser, Y. Loreaux // *Journal of Physics F: Metal Physics*. – 1985. – Vol. 15. – P. 1465–1484. – DOI: 10.1088/0305-4608/15/7/007.