

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина»

На правах рукописи



ПАСТУХОВ ВЛАДИМИР ИВАНОВИЧ

**СТРУКТУРНАЯ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ АУСТЕНИТНЫХ СТАЛЕЙ К
РАДИАЦИОННЫМ ПОВРЕЖДЕНИЯМ ПРИ НЕЙТРОННОМ
ОБЛУЧЕНИИ**

05.16.09 – Материаловедение (в машиностроении)

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени кандидата
технических наук

Екатеринбург – 2019

Работа выполнена в АО «Институт реакторных материалов» и на кафедре термообработки и физики металлов Института новых материалов и технологий ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина»

Научный руководитель: доктор технических наук, профессор,
Лобанов Михаил Львович

Официальные оппоненты: **Неустроев Виктор Степанович**, доктор технических наук, доцент, АО «Государственный научный центр Научно-исследовательский институт атомных реакторов», г. Димитровград, Ульяновская область, главный научный сотрудник отделения реакторного материаловедения;

Шабашов Валерий Александрович, доктор физико-математических наук, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики металлов имени М.Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук, г. Екатеринбург, главный научный сотрудник лаборатории механических свойств;

Филиппов Михаил Александрович, доктор технических наук, профессор, Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», профессор кафедры металловедения

Защита состоится «13» декабря 2019 г. в 14:00 ч на заседании диссертационного совета **УрФУ 05.04.08** по адресу: 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, 19, ауд. И-420 (зал Ученого совета)

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», <https://dissovet2.urfu.ru/mod/data/view.php?d=12&rid=323>

Автореферат разослан «___» ноября 2019 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета



Селиванова Ольга Владимировна

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

Россия является лидером в технологиях создания и эксплуатации ядерных реакторов на быстрых нейтронах, а развитие ядерной энергетики является одной из приоритетных задач Российской Федерации. Проблемой эксплуатации установок на быстрых нейтронах является высокий уровень радиационных повреждений конструкционных материалов, формирующих активную зону реактора. Эффективность быстрого реактора сегодня ограничена выгоранием используемого ядерного топлива, которое в свою очередь, лимитируется радиационной стойкостью оболочки тепловыделяющего элемента, а именно сопротивлением распуханию под действием нейтронного облучения. Уменьшение склонности материалов к радиационному распуханию или контроль данного процесса может существенно повысить эксплуатационные качества материалов. Последнее определяет экономическую эффективность эксплуатации реакторов на быстрых нейтронах, и, соответственно, уровень значимости предлагаемой работы.

Также необходимо отметить, что для некоторых внутрикорпусных элементов реакторов на быстрых нейтронах и водо-водяных реакторов, выполненных из аустенитных сталей, характерно накопление значительной повреждающей дозы за время эксплуатации. Стабильность структуры и свойств является необходимым условием для увеличения длительности безопасной эксплуатации элементов ядерных реакторов.

Таким образом, актуальность темы определяется необходимостью увеличения срока службы внутриреакторных конструкционных элементов и элементов АкЗ реакторов на быстрых нейтронах.

Степень разработанности темы исследования

Структурные повреждения материалов при попадании в них высокоэнергичных частиц подробно описаны и проанализированы в советской и российской литературе. Изменение структурного состояния металлических материалов под действием нейтронного и имитационного облучения в России глубоко исследовано следующими авторами: Конобеевский С.Т., Калинин Б.А., Зеленский В.Ф., Воеводин В.Н., Рогожкин В.С., Марголин Б.З., Целищев А.В., Агеев В.С., Гощицкий Б.Н., Сагарадзе В.В., Залужный А.Г., Чернов В.М., Чернов И.И., Леонтьева-Смирнова М.В. и др. Большой вклад в практическое исследование радиационного распухания под действием нейтронов внесли Неустроев В.С., Чуев В.В., Козлов А.В., Портных И.А., Поролло С.И., Панченко В.Л. и др. Наибольший вклад в развитии данного направления на западе внесли Garner F.A., Zinkle S.J., Was G., Mansur L.K., R. E. Stoller, Maziasz P.J., Watanabe T., Wolfer, W. G., и др.

К настоящему времени накоплено и обобщено достаточно большое количество экспериментального материала об эволюции дефектов в материалах, длительно находящихся

под воздействием быстрых нейтронов. Но, несмотря на имеющийся объем знаний, актуальной проблемой является повышение эксплуатационного ресурса твэлов реакторов на быстрых нейтронах, изготовленных из аустенитных сталей. Одним из известных способов повышения стойкости металлов к радиационному набуханию является использование холодной деформации на последнем этапе производства. В этом случае холодная деформация создает определенное мезоструктурное состояние, то есть приводящее к коллективизации линейных и плоских дефектов в объеме материала, которое приводит к положительному синергетическому эффекту в повышении стойкости аустенитных сталей к радиационному набуханию.

Известно, что дислокационная структура аустенитных сталей претерпевает серьезные изменения уже после небольшой накопленной повреждающей дозы, то есть в процессе облучения не является стабильной. Последнее противоречит большинству имеющихся моделей эволюции подобных систем. С другой стороны, границы зерен, границы двойников рекристаллизации и деформации, а также кристаллиты двойников деформации представляются как более стабильные элементы мезоструктуры, при этом обладающие большими удельными поверхностями. По-видимому, именно они определяют радиационное набухание аустенитных сталей, находящихся под действием нейтронного облучения.

Необходимо отметить, что в работах, исследующих радиационную пористость (характеристику набухания) малую часть на сегодня занимают работы, которые связывают процесс набухания со структурным, а именно мезоструктурным, состоянием исследуемого материала.

Цель работы: установление закономерностей формирования радиационно-индуцированных структурных изменений аустенитных сталей под действием нейтронного облучения в зависимости от их мезоструктурного состояния.

Задачи:

1. Разработка подходов и методик, позволяющих масштабнo и количественно исследовать радиационную пористость и эффекты радиационных повреждений на конструктивных элементах и элементах АкЗ реактора.
2. Выявление особенностей формирования радиационной пористости аустенитных сталей в полях нейтронного облучения и градиента температуры.
3. Определение влияния межкристаллитных границ и дисперсных выделений на формирование радиационной пористости в структуре аустенитных сталей.
4. Установление влияния длительного нейтронного облучения на стабильность структуры и фазового состава аустенитных сталей.

Научная новизна:

1. Показана зависимость радиационной пористости по толщине и высоте оболочки тепловыделяющего элемента от градиента температуры. В соответствии с градиентом температуры по толщине оболочки от внутренней к наружной поверхности наблюдается уменьшение среднего размера пор и увеличение их концентрации при сохранении их объемной доли. По высоте твэла наблюдается немонотонная зависимость размера радиационных пор от температуры.

2. Прослежена эволюция радиационной пористости на межкристаллитных малоугловых, высокоугловых и специальных границах, а также вблизи выделений вторых фаз в аустенитных сталях 06X16H15M2Г2ТФР и 07X16H19M2Г2БТФПР. Выявлено, что высокая плотность линейных и плоских дефектов кристаллического строения, наблюдаемых после облучения материала, приводит к подавлению развития радиационного порообразования.

3. Показан эффект образования гало радиационных пор вокруг молибден содержащих выделений и установлена температурная зависимость данного эффекта. Отличительной чертой этих полей является слабая чувствительность к высокоугловым межзеренным границам.

4. Установлено различное поведение специальных межзеренных границ, в том числе двойниковых когерентных и некогерентных к выделению дисперсных карбидов в процессе старения. Чем совершеннее структура границы, тем меньше на ней образуется карбидных выделений.

5. Показано, что в результате длительного облучения повышается склонность стали X18H9 к распаду аустенита по сдвиговому механизму. Выявлены условия реализации распада, а также связь образующейся фазы с мезоструктурным состоянием материала.

Практическая значимость:

1. Разработана методика количественного исследования характеристик радиационной пористости с использованием инструментария сканирующей электронной микроскопии, позволяющая повысить эффективность анализа больших поверхностей с достаточной точностью.

2. Показана необходимость учета во время эксплуатации изделий градиентов температур, ответственных за формирование различной радиационной пористости.

3. На основе совмещения сканирующей электронной и ориентационной микроскопий разработана методика количественного анализа влияния мезоструктуры на радиационное порообразование. Разработанная методика включает как анализ количественных характеристик радиационной пористости, так и анализ количественных характеристик межкристаллитных границ.

4. Показано, что увеличение удельной поверхности двойниковых деформационных границ по отношению к границам общего типа приводит к увеличению длительности стадий инкубационного и переходного радиационного распухания, а также к снижению общего распухания при близких условиях облучения. Это предполагает возможность увеличить стойкость к радиационному распуханию ГЦК материалов за счет управления исходным мезоструктурным состоянием материала.

Методология и методы исследования

Методологической основой послужили работы ведущих отечественных и зарубежных ученых в области изучения структуры и свойств металлов после воздействия нейтронного излучения. Для решения поставленных задач использовались современные методы просвечивающей и сканирующей электронных микроскопий (ПЭМ и СЭМ) с использованием ориентационной микроскопии, основанной на анализе дифракции обратно рассеянных электронов (EBSD), использовался рентгеноструктурный анализ. Применялась стандартизированная методика гидростатического взвешивания. Обработка цифровых растровых изображений производилась с помощью специального программного обеспечения SIAMS Photolab.

На защиту выносятся основные положения и результаты:

1. Методика определения количественных характеристик радиационной пористости при помощи инструментария сканирующей электронной микроскопии.
2. Результаты изучения структурного состояния аустенитных сталей после нейтронного облучения при различных температурах.
3. Методика количественного анализа влияния элементов мезоструктуры на радиационное порообразование.
4. Особенности эволюции радиационных повреждений аустенитных сталей - радиационное порообразование и фазовое состояние, после нейтронного облучения в зависимости от мезоструктурного состояния.

Достоверность результатов работы обеспечена использованием современного оборудования, взаимодополняющих методов структурного анализа, воспроизводимостью результатов исследования. Полученные результаты согласуются и дополняют опубликованные данные по теме исследовательской работы.

Апробация работы

Основные результаты и материалы диссертационной работы представлялись на следующих российских и международных конференциях и семинарах: XI, XII, XIII Международном Уральском семинаре «Радиационная физика металлов и сплавов», (Кыштым, 2015, 2017, 2019), Семинар молодых ученых, специалистов, аспирантов и студентов по ядерным

технологиям (г. Екатеринбург, 2015), Научный семинар «Материалы активных зон реакторов на быстрых нейтронах» (г. Алушта, 2015), XIII, XV Международная школа-конференция "Новые материалы" (г. Москва, 2016, 2017), Научно-практическая школа-семинар по ядерным технологиям для молодых ученых, специалистов, студентов и аспирантов, проводимая АО «ИРМ» (г. Екатеринбург, 2017), Международная конференция МАГАТЭ: International Conference of Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR-17) (г. Екатеринбург, 2017), Отраслевой семинар «Физика радиационных повреждений материалов атомной техники» (г. Обнинск, 2018), Межотраслевая научно-техническая конференция «Реакторные материалы атомной энергетики» (г. Сочи, 2018).

Исследования, представленные в диссертационной работе, выполнены при содействии и с использованием исследовательского оборудования Акционерного Общества «Институт реакторных материалов» и в рамках проекта РФФИ №18-33-00135 мол_а. Исследования фазовых превращений проведены с поддержкой Госзадания Минобрнауки РФ № 11.8386.2017/Б4.

Личный вклад автора

Личный вклад автора состоит в постановке задач исследования и планировании экспериментов, в проведении структурных исследований методами сканирующей и просвечивающей микроскопии, в том числе с применением EBSD-анализа, разработке методик анализа результатов СЭМ и ориентационной микроскопии, а также обработке и анализа результатов просвечивающей и сканирующей электронной микроскопии. Вошедшие в диссертационную работу результаты и выводы были получены и сформулированы совместно с научным руководителем и соавторами публикаций.

Автор выражает благодарность за помощь в проведении исследований и обсуждению результатов сотрудникам АО «Институт реакторных материалов», в частности к.т.н. Аверину Сергею Александровичу, д.т.н. Козлову Александру Владимировичу, к.ф.-м.н. Портных Ирине Александровне, Панченко Валерию Леонидовичу.

Публикации

По теме диссертационной работы опубликовано 15 научных трудов, из них 9 статей в рецензируемых научных журналах из списка ВАК РФ, из которых 7 в журналах, индексируемых в базах WoS и Scopus.

Структура и объем диссертации.

Диссертационная работа состоит из введения, 5 глав, заключения, списка сокращений и условных обозначений и списка литературных источников, включающего 197 наименований. Общий объем диссертационной работы – 151 страница. Диссертационная работа содержит 84 рисунка и 14 таблиц.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность выбранной темы диссертационной работы, сформулированы цели и задачи, представлена научная новизна и практическая значимость, методология и методы исследования, приведены основные положения, выносимые на защиту, степень достоверности и апробация полученных результатов.

Первая глава посвящена аналитическому обзору литературных источников. Проведен обзор состояния физики радиационного повреждения металлов и сплавов, включая проблему набухания материалов под действием нейтронного облучения. Проведен анализ используемых в настоящее время конструкционных материалов для реакторов на быстрых нейтронах, по результатам которого видно, что среди них преобладают сплавы с ГЦК-решеткой. Рассмотрено влияние трансмутационного гелия на набухание ГЦК материалов в реакторах на быстрых нейтронах. Проведен обзор формирования структуры ГЦК металлов и сплавов под действием термических и механических обработок, а также проведен анализ стойкости исходной структуры материалов активных зон реакторов к радиационным повреждениям. На основании проведенного анализа сформулирована цель и основные задачи работы.

Вторая глава посвящена обзору исследуемых материалов и использованных методик. Для проведения исследований использовались образцы высоколегированных промышленных аустенитных сталей 06X16H15M2Г2ТФР (ЧС-68) и 07X16H19M2Г2БТФПР (ЭК-164), в исходном состоянии деформированных на 20%. Использовались образцы аустенитной стали 10X18H9 в отожженном состоянии. Образцы аустенитных сталей исследовались в состоянии поставки и после нейтронного облучения до высоких повреждающих доз при различных температурах. Образцы из ферритно-мартенситной стали 16X12МВСФБР (ЭП-823) исследовались в состоянии поставки (закалка с высоким отпуском).

Определение плотности материала образцов проводилось методом гидростатического взвешивания на весах марки "Sartorius", оборудованных приспособлением для определения плотности, модели YDK01. По результатам измерения плотности для образцов после нейтронного облучения рассчитывалось радиационное набухание.

Исследования проводились при помощи сканирующего электронного микроскопа Tescan Mira3 LMU с автоэмиссионным катодом, оборудованного кольцевым детектором обратно рассеянных электронов (BSE) сцинтилляторного типа. Ориентационная микроскопия и микрозондовый рентгеноспектральный анализ проводились при помощи детекторов дифракции обратно рассеянных электронов (EBSD) NordlysNano и энергодисперсионного спектрометра фирмы Oxford Instruments. Образцы для исследований готовились по стандартным металлографическим методикам. Горячая запрессовка в токопроводящую смолу проводилась на установке CitoPress фирмы Struers. Шлифование образцов проводилось с постепенным

уменьшением величины абразива на шлифовально-полировальном станке Tegrapol-11/15 с автоматическим вращателем образцов TegraForce-1 и дозирующим блоком TegraDoser-5. Финальная полировка проводилась на коллоидном кремнии.

ПЭМ проводилась на микроскопе JEOL 2000EXII. Образцы для ПЭМ были подготовлены следующим образом - при помощи шлифовки проведено механическое утонение до фольги толщиной приблизительно 130 мкм с последующей двухструйной полировкой в электролите 10%HCl + 90%CH₃COOH при температуре 10 °С.

Рентгеноструктурные исследования проводились на дистанционном дифрактометре D8 ADVANCE с использованием Cu-K_α излучения.

Количественная обработка изображений для получения среднего размера пор проводилась с использованием программного обеспечения SIAMS Photolab.

Третья глава посвящена разработке методик анализа мезоструктуры в конструкционных материалах для реакторов на быстрых нейтронах. Показана возможность использования сканирующего электронного микроскопа, оснащенного детектором отраженных электронов для определения количественных характеристик радиационной пористости. Проведенные работы по применению СЭМ в исследовании радиационной пористости показали хорошую сходимость получаемых результатов с результатами ПЭМ. Большинство радиационных пор в образце из стали 07X16H19M2Г2БТФПР (ЭК 164) хорошо различимы на ПЭМ изображении и на СЭМ (диаметром больше 10 нм) изображении (рисунок 1).

Крупные выделения идентифицированы как (NbTi)C, частицы размером меньше 100 нм являются G-фазой. Исследованный методом ПЭМ участок образца показал наличие многомодального распределения размеров пор (рисунок 1, в). Количественная оценка характеристик пористости на СЭМ изображении, в результате смещения и слияния первой и второй моды распределения пор по размерам, наблюдаемой для ПЭМ, является бимодальным. Установлено, что для СЭМ характерно наличие нижнего порога размера различимых пор, связанное с разрешающей способностью методики.

Для определения оптимальных параметров электронного пучка и предельного размера регистрируемых пор проведены эксперименты для определения влияния величины ускоряющего напряжения и влияния интенсивности электронного пучка на качество изображений. Показано, что увеличение ускоряющего напряжения приводит к уменьшению апертурного угла и уменьшению диаметра пучка в точке фокусировки, что в свою очередь приводит к увеличению разрешающей способности при исследовании радиационной пористости (рисунок 2). Это выражается в проявлении огранки пор на изображении. Увеличение энергии электронов приводит к увеличению глубины выхода отраженных электронов и происходит проявление более глубоких пор и их послынного наложения.

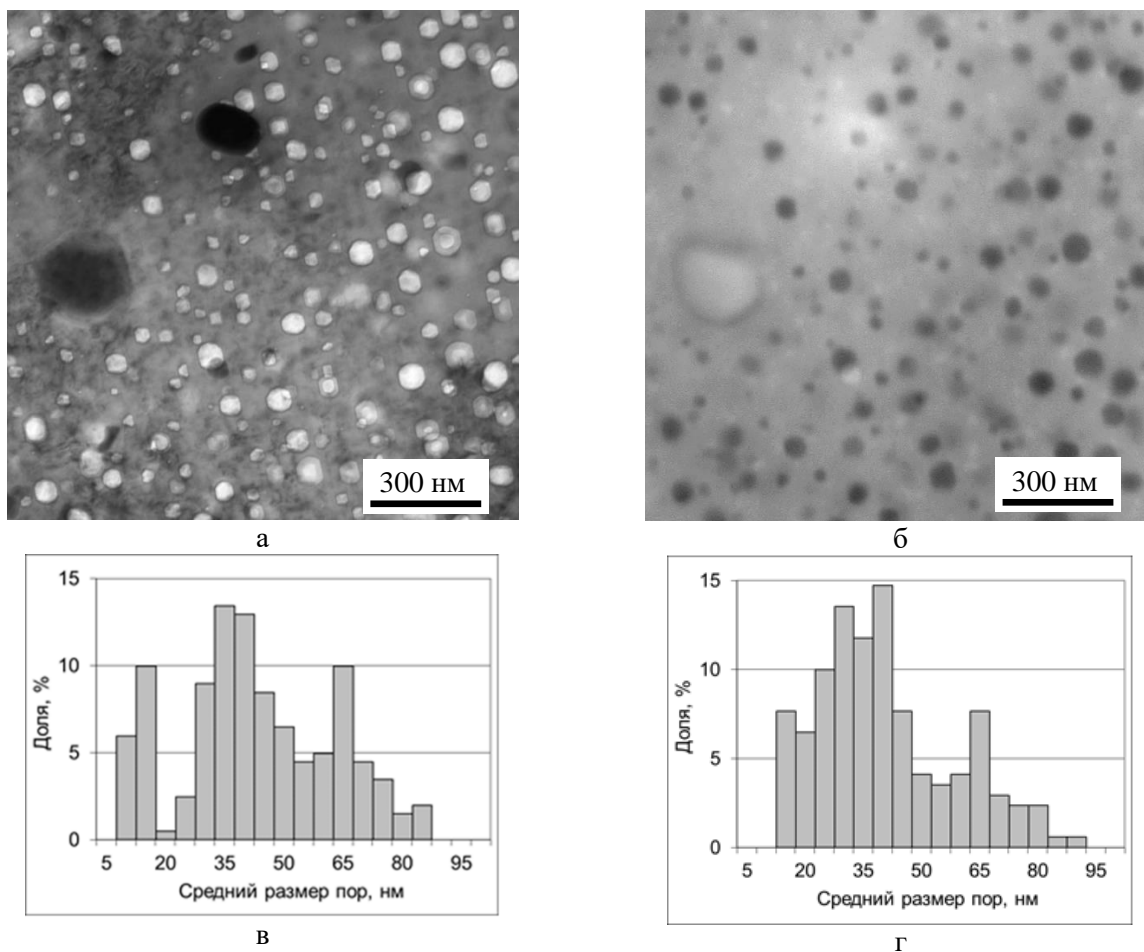


Рисунок 1 – Аустенитная сталь ЭК164 после нейтронного облучения до повреждающей дозы 87 сна при средней температуре облучения 490 °С: а – ПЭМ изображение; б – СЭМ изображение, полученное при помощи детектора обратно рассеянных электронов (BSE); в, г – гистограммы распределения пор по размерам для ПЭМ и СЭМ изображений

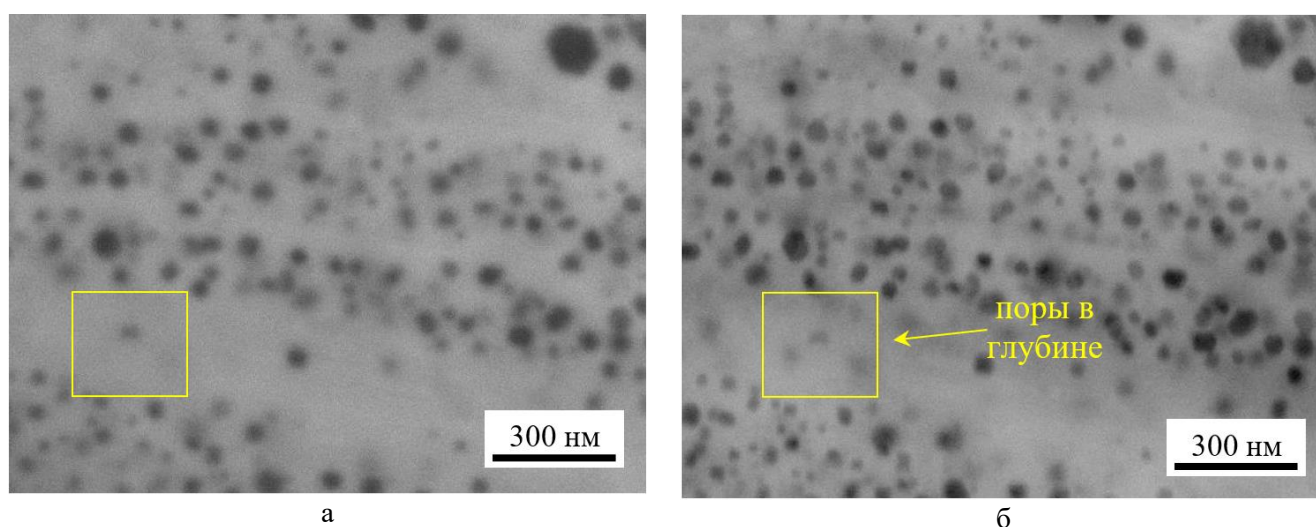


Рисунок 2 – СЭМ изображения одного и того же участка массивного образца с дозой облучения 73 сна при температуре облучения 475 °С в зависимости от ускоряющего напряжения при постоянной интенсивности пучка: а – 15 кВ; б – 30 кВ

Уменьшение интенсивности электронного пучка приводит к уменьшению количества отраженных электронов и наблюдается ослабление полезного сигнала, приводящее к размытию границ пор из-за контраста. При увеличении интенсивности происходит увеличение диаметра электронного пучка в точке фокусировки, что приводит к размытию границ пор на изображении.

С использованием разработанной методики выявлена неоднородность радиационной пористости, связанная с мезоструктурными элементами. Наличие пакетов двойников деформации (рисунок 3, а) привело к подавлению развития радиационной пористости в прилегающих к ним объемам материала. Отмечено, что по границам двойников наблюдаются поры размером больше, чем в скоплениях пор, во внутренних объемах зерен аустенита.

Наличие скоплений линейных и плоских дефектов (рисунок 3, б), которые на изображении выражаются в образовании контуров, напоминающих контура экстинкции, и образующиеся в результате различной отражающей способности кристаллической решетки в зависимости от угла ее поворота (кристаллографический контраст), также приводят к подавлению развития радиационной пористости в связанных с ними объемах облучаемого материала.

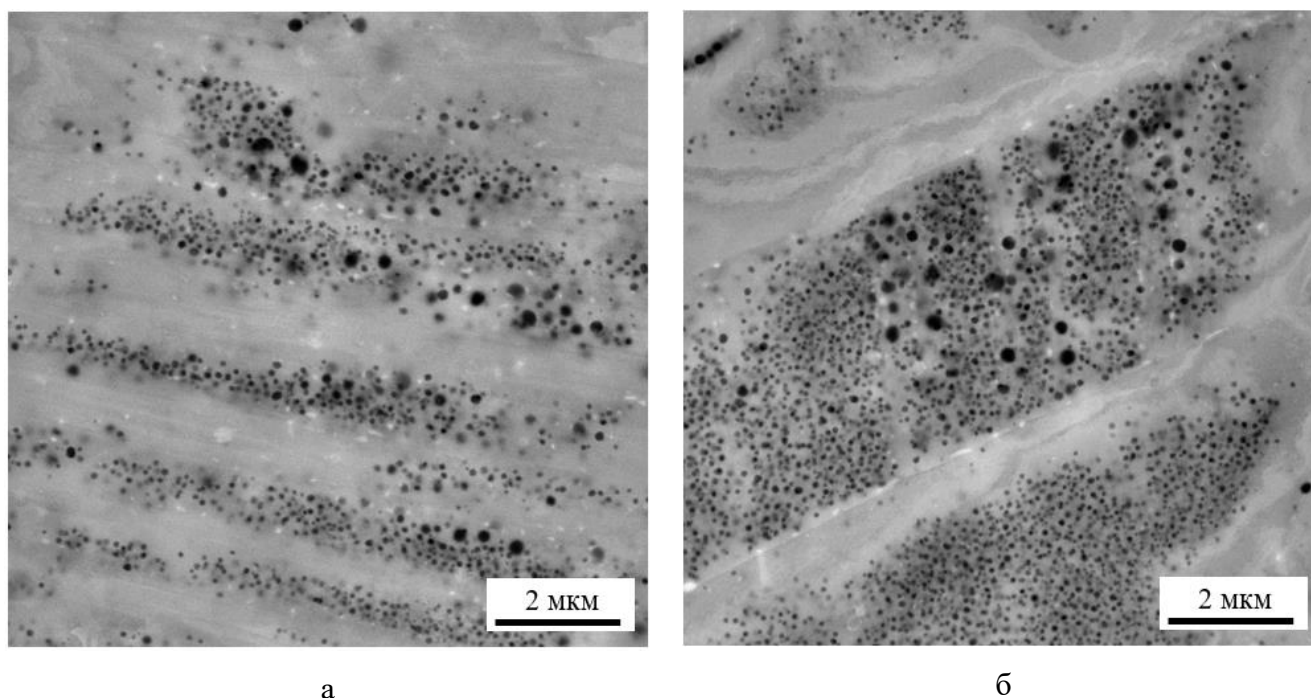


Рисунок 3 – Неоднородность радиационной пористости стали ЭК-164 после продолжительного нейтронного облучения до повреждающей дозы 92 сна при температуре 495 °С, связанная: а – с пакетами двойников деформации; б – с деформацией кристаллита, выражающейся в виде полосчатого кристаллографического контраста

С применением подхода, объединяющего результаты сканирующей и ориентационной электронных микроскопий, создана методика, позволяющая количественно анализировать влияние различных элементов мезоструктуры на радиационное порообразование в материалах. Данный подход позволяет получать непосредственное изображение радиационных пор при помощи детектора отраженных электронов BSE (рисунок 4, а) и получать информацию о локальном структурном состоянии материала на одном и том же участке применяя методику дифракции обратно рассеянных электронов EBSD (рисунок 4, б-г).

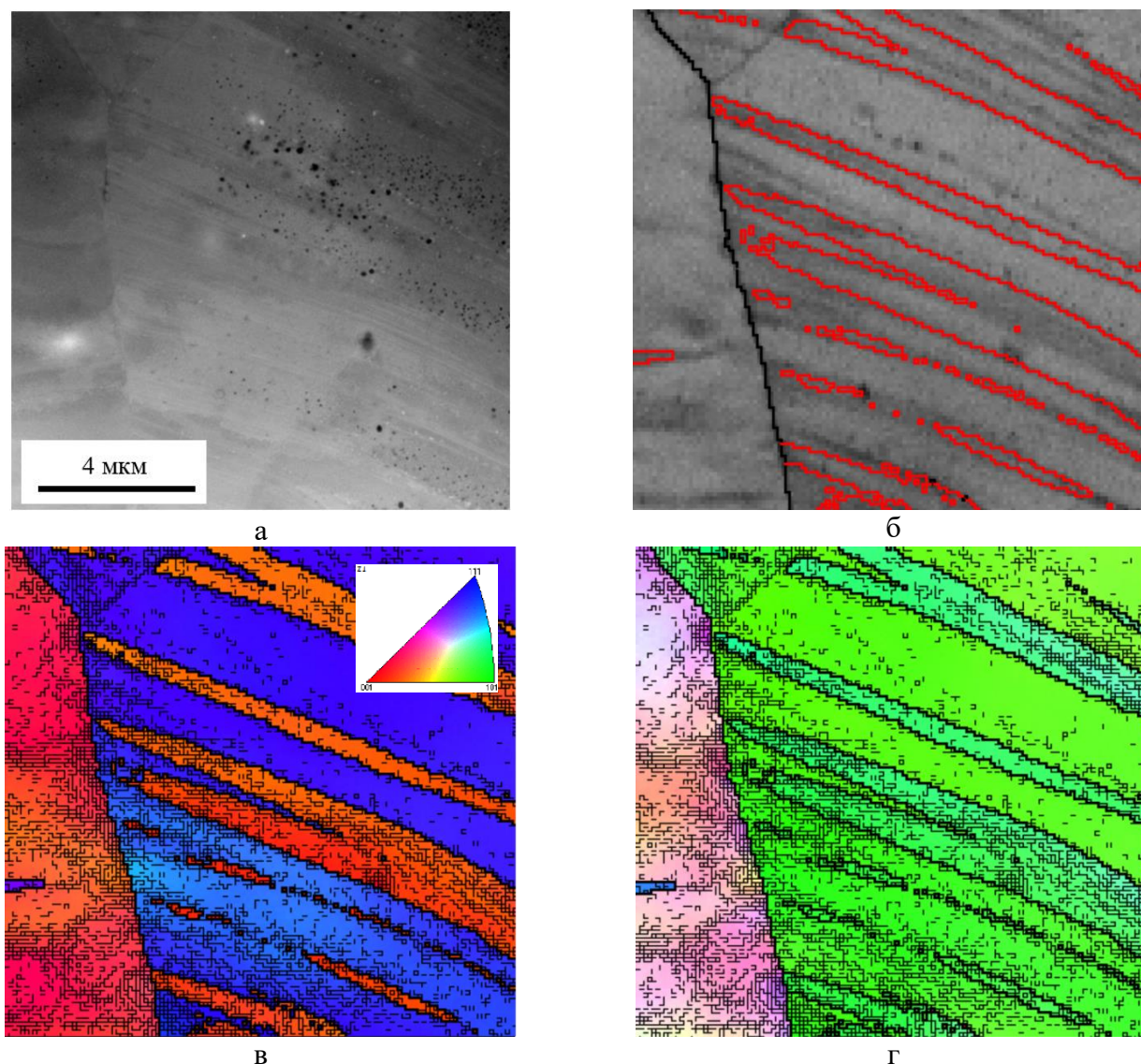


Рисунок 4 – неоднородность радиационной пористости стали ЭК-164 после продолжительного нейтронного облучения, связанная с элементами мезоструктуры: а – СЭМ BSE изображение, б – карта качества дифракций с отмеченными высокоугловыми и специальными сигма 3 границами; в, г – IPF карты с отмеченными малоугловыми и высокоугловыми разориентировками.

Метод EBSD совместно с инструментарием СЭМ позволяет с высокой точностью разделять мезоструктурные элементы ферритно-мартенситной стали и проводить анализ структурного состояния (рисунок 5). При помощи данного метода установлена различная

склонность специальных межзеренных границ, в том числе двойниковых к образованию дисперсных карбидов в процессе старения.

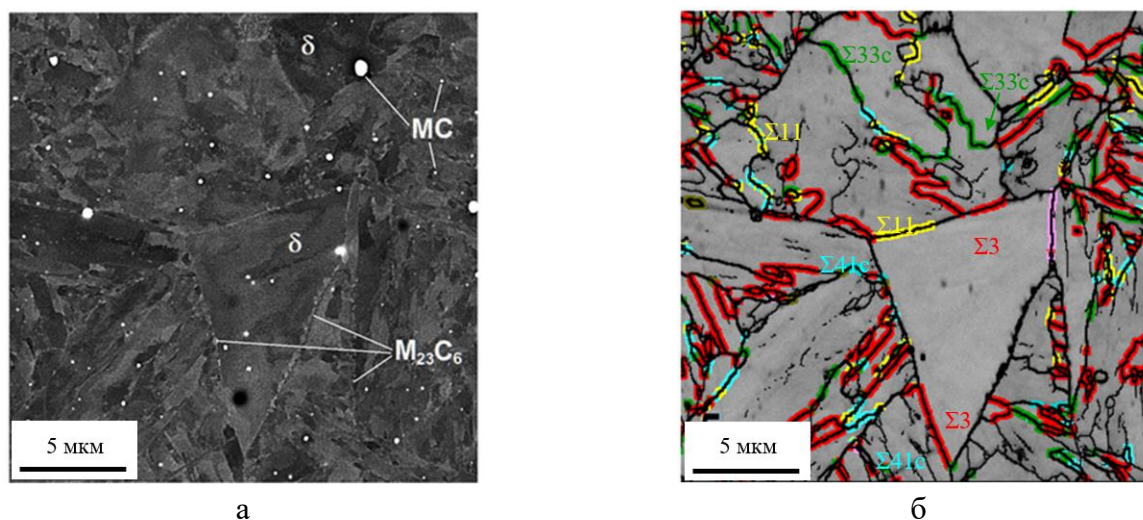


Рисунок 5 – Структурное состояние стали ЭП823: а – СЭМ BSE изображение; б – карта качества картин дифракции с выделенными цветом специальными границами

Четвертая глава посвящена структурной чувствительности аустенитных сталей к радиационным повреждениям.

В результате проведенных исследований образцов, отобранных по высоте оболочек твэлов, установлены различия характеристик радиационной пористости, таких как средний размер и концентрация. По высоте твэла в процессе эксплуатации существует градиент температуры ($T_{\text{низ}} < T_{\text{сер}} < T_{\text{верх}}$, рисунок б), связанный с конструктивной особенностью, а именно его вертикальным положением и транспортировкой теплоносителя снизу в верх. В зависимости от изменения температуры оболочки по высоте твэла, связанное с постепенным нагревом теплоносителя и изменением теплопроводящих свойств оболочки, в различных сечениях наблюдается увеличение среднего размера пор. Исследование различных сечений твэла по толщине показало уменьшение размера пор и увеличения их концентрации от внутренней к наружной поверхности для участков с эквивалентным расположением. Данная тенденция существует до тех пор, пока средневзвешенная температура нейтронного облучения не превысит верхний температурный порог образования радиационной пористости для аустенитных сталей, приблизительно равный $0,6T_{\text{пл}}$.

На исследованных образцах нескольких твэлов из одной тепловыделяющей сборки, получены количественные характеристики пор на участках вблизи внутренней поверхности, центра и вблизи внешней поверхности для повреждающих доз от 64 до 93 сна и температурах облучения от 430 до 590 °С.

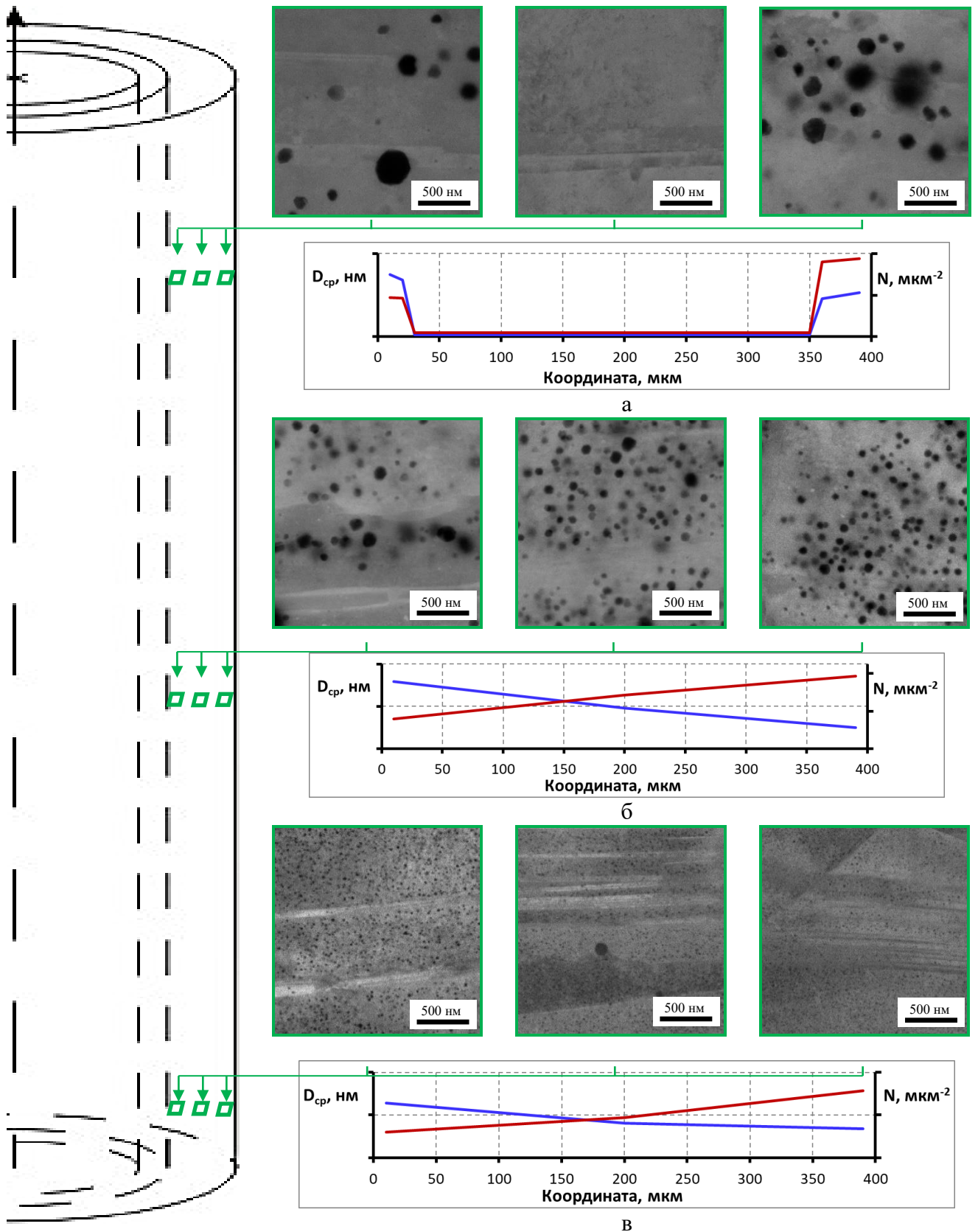


Рисунок 6 – Схематическое представление пространственного распределения радиационных пор в оболочке твэла (D_{cp} – диаметр, нм, N – условная концентрация, шт./ $\mu\text{м}^2$): а – распределение пор по толщине в верхней части; б – распределение пор по толщине в центральной области; в – распределение пор по толщине в нижней части

Детальные исследования радиационной пористости по толщине оболочки твэла были выполнены по схеме близких участков в радиальном направлении от внутренней к наружной поверхности. Показано, что изменения характеристик радиационной пористости на образцах происходят непрерывно. Зависимости изменения концентраций и среднего размера пор от температуры на исследованных образцах имеют линейный характер и повторяют основные тенденции, выявленные при исследовании радиационной пористости у внутренней, наружной поверхностей и центральных областях (рисунок 6).

Показано, что чувствительность методики, приведенной в третьей главе работы, позволяет установить различия в радиационной пористости, связанные с неоднородностью физических условий облучения в пределах одного твэла, вытекающих из конструктивных особенностей тепловыделяющих сборок. В результате различного теплосъема на краевых твэлах в тепловыделяющей сборке наблюдаются различные характеристики радиационной пористости в ортогональных направлениях на торцевом сечении оболочки твэла.

В условиях, когда радиационное распухание не достигло стадии стационарного распухания и находится на стадии нестационарного распухания, наблюдается влияние мезоструктурных элементов аустенитной стали на характеристики радиационной пористости. В зависимости от мезоструктурного состояния, распухание отдельных кристаллитов происходит по-разному.

В работе проведено исследование влияние структурного состояния материала оболочки твэла на величину радиационного распухания при прочих равных условиях облучения. Проведено исследование оболочек, изготовленных из аустенитной стали 06X16H15M2Г2ТФР (ЧС-68), которые на последнем этапе передела трубной заготовки были подвергнуты гомогенизирующему отжигу при температурах: 1080 °С (стандартная технология изготовления - ТО1), 1150 °С (ТО2), 1200 °С (ТО3); и окончательной холодной деформации - волочению со степенью $\sim 20 \pm 3$ %.

Исследование материала показало, что различные термические обработки привели к формированию различной внутренней структуры (рисунок 7). С увеличением температуры гомогенизирующего отжига наблюдается увеличение размера зерна. При помощи метода EBSD в структуре стабильно определяются высокоугловые границы общего типа и границы специальной разориентации $\Sigma 3$, являющиеся границами как деформационных, так и рекристаллизационных двойников.

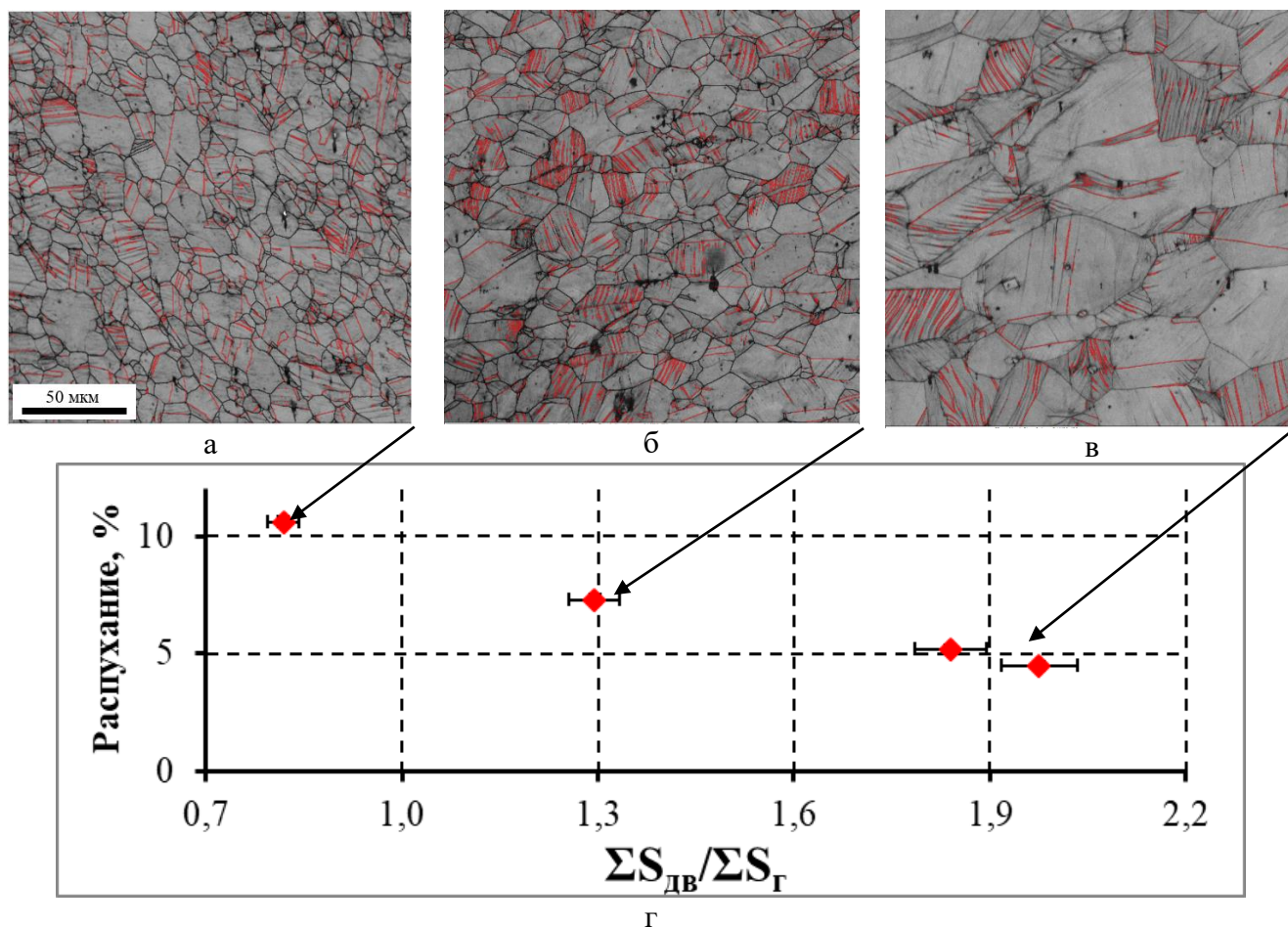


Рисунок 7 – Структурное состояние стали ЧС-68: а – ТО1; б – ТО2; в – ТО3; г – зависимость радиационного распухания от структурного состояния.

Очевидно, что увеличение среднего размера зерна соответствует уменьшению удельной поверхности границ зерен. Мировой опыт исследования аустенитных сталей показывает, что материал в отожженном состоянии всегда имеет большие величины распухания, по сравнению с материалом, дополнительно подвергнутому деформации. В качестве характеристики структуры, ответственной за совместное влияние на радиационное распухание высокоугловых границ зерен и границ двойников различного типа, в работе введен параметр – $K = \Sigma S_{\text{дв}}/\Sigma S_{\text{г}}$ (где $\Sigma S_{\text{дв}}$ – удельная поверхность специальных границ $\Sigma 3$; $\Sigma S_{\text{г}}$ – удельная поверхность высокоугловых границ общего типа).

Проведенные исследования показали, что с увеличением соотношения различных типов межкристаллитных границ (K) радиационное распухание твэлов существенно снижается (рисунок 7). Предположительно, увеличение размеров зерен при термической обработке твэлов и последующая их деформация приводят к формированию определенной микроструктуры, в которой в процессе облучения происходит более эффективная рекомбинация точечных дефектов, приводящая к снижению радиационного распухания.

Материал исследованных оболочек твэлов характеризуется широким спектром легирующих элементов. Для повышения радиационной стойкости в состав легирующей системы входит бор, находящийся как в выделениях, так и в твердом растворе. По результатам термодинамического расчета исследуемой системы бориды молибдена выделяются в твердом растворе при температурах ниже 580 °С. Нейтронное облучение привело к образованию специфичного распределения радиационных пор в виде «орбитальных» сферических облаков (гало) вокруг молибденсодержащих выделений (рисунок 8). По литературным данным подобный эффект наблюдался ранее при облучении нейтронами материалов с борсодержащими фазами. Радиус максимальной плотности пор в гало объяснялся величинами свободных пробегов осколков деления ядер бора в виде полностью ионизированных He^{+2} и Li^{+3} по реакции $^{10}\text{B} + n \rightarrow ^{11}\text{B}^* \rightarrow ^4\text{He} + ^7\text{Li} + 2,31 \text{ МэВ} (n, \alpha)$. Высокая плотность радиационных пор, наблюдаемая в «гало», может быть связана как с литием, выделение которого увеличивает количество зародышей пор, так и с накоплением в данной области избыточного гелия, ответственного за стабилизацию и рост пор.

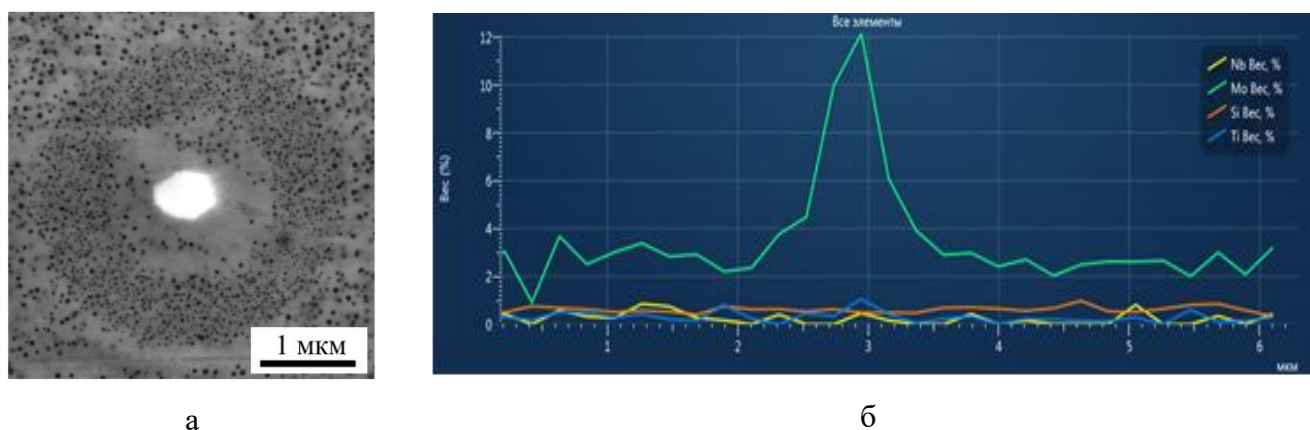


Рисунок 8 – Облако пор вокруг выделения на основе молибдена: а – СЭМ BSE изображение; б – распределение легирующих элементов стали ЧС68 по линии сканирования через выделение

Наблюдается слабая чувствительность облаков пор к структурному состоянию материала (рисунок 9). Высокоугловые межкристаллитные границы любых типов слабо влияют на формирование облака пор вокруг выделений.

Установлено, что облака пор вокруг молибденсодержащих выделений формируются и существуют при температурах облучения ниже 550 °С (рисунок 8).

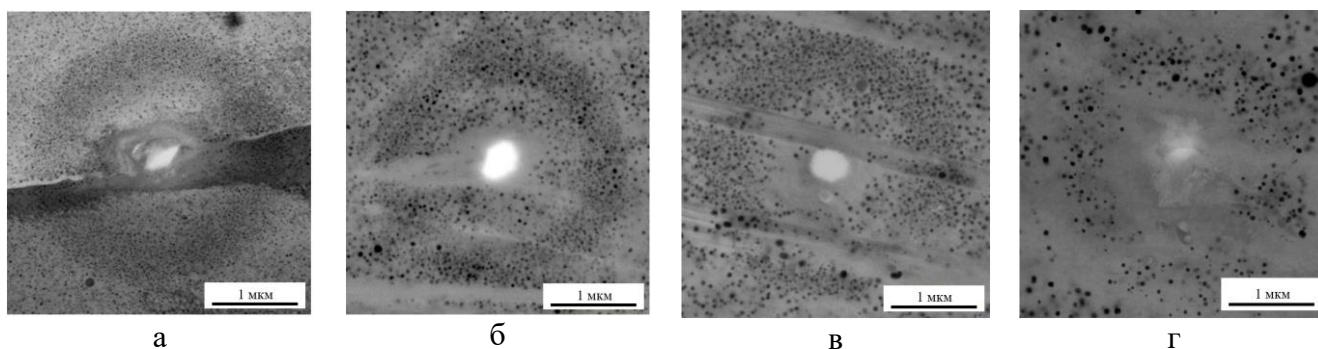


Рисунок 9 – Характеристика облаков пор вокруг выделений MoB в зависимости от температуры облучения: а – 430 °С; б – 480 °С; в – 515 °С; г – 530 °С

Пятая глава посвящена изучению вопроса влияния продолжительного нейтронного облучения на фазовое $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращение в реакторных аустенитных сталях.

В результате исследования оболочек твэлов быстрого реактора со стороны наружной поверхности наблюдается образование тонкого слоя α фазы. Показано, что предпосылкой для $\gamma \rightarrow \alpha$ превращения является сильное перераспределение легирующих элементов, связанное с их частичным «выносом» в натриевый теплоноситель. Наблюдаемый эффект характерен для материала оболочек, облученных при температурах выше 550 °С. Фазовая стабильность основного материала (ГЦК решетки) нарушается только при значительном изменении состава.

В связи с этим, представляет интерес влияние нейтронного облучения на стали аустенитного класса X18H9, которые легированы в меньшей степени, и являются одними из наиболее распространённых материалов внутри корпусных устройств реакторов на быстрых и тепловых нейтронах являются стали и их разновидности.

Метод ориентационной микроскопии (EBSD) позволяет с высокой точностью исследовать результаты фазовых превращений. Проведенное исследование образцов аустенитной стали 10X18H9 после продолжительной эксплуатации при повышенных температурах в интервале от 370 до 430 °С с накопленным флюенсом быстрых нейтронов с энергией больше 0,1 МэВ $5,3 \times 10^{22}$ н/см² показало осуществление в поверхностных слоях фазового превращения (рисунок 10). Возможности метода позволили определить структурные элементы, а именно специальные границы $\Sigma 3$ (рисунок 10, г), на которых образуются зародыши новой фазы и показать выраженную кристаллографическую направленность распада, инициированную как исходными ориентировками зерен аустенита, так и действием растягивающих напряжений, направленных нормально к плоскости исследуемой поверхности.

Анализ ориентационных соотношений фаз (рисунок 11) показал, что распад аустенита реализовывался по сдвиговому (с учетом пониженной температуры «бейнитному») механизму.

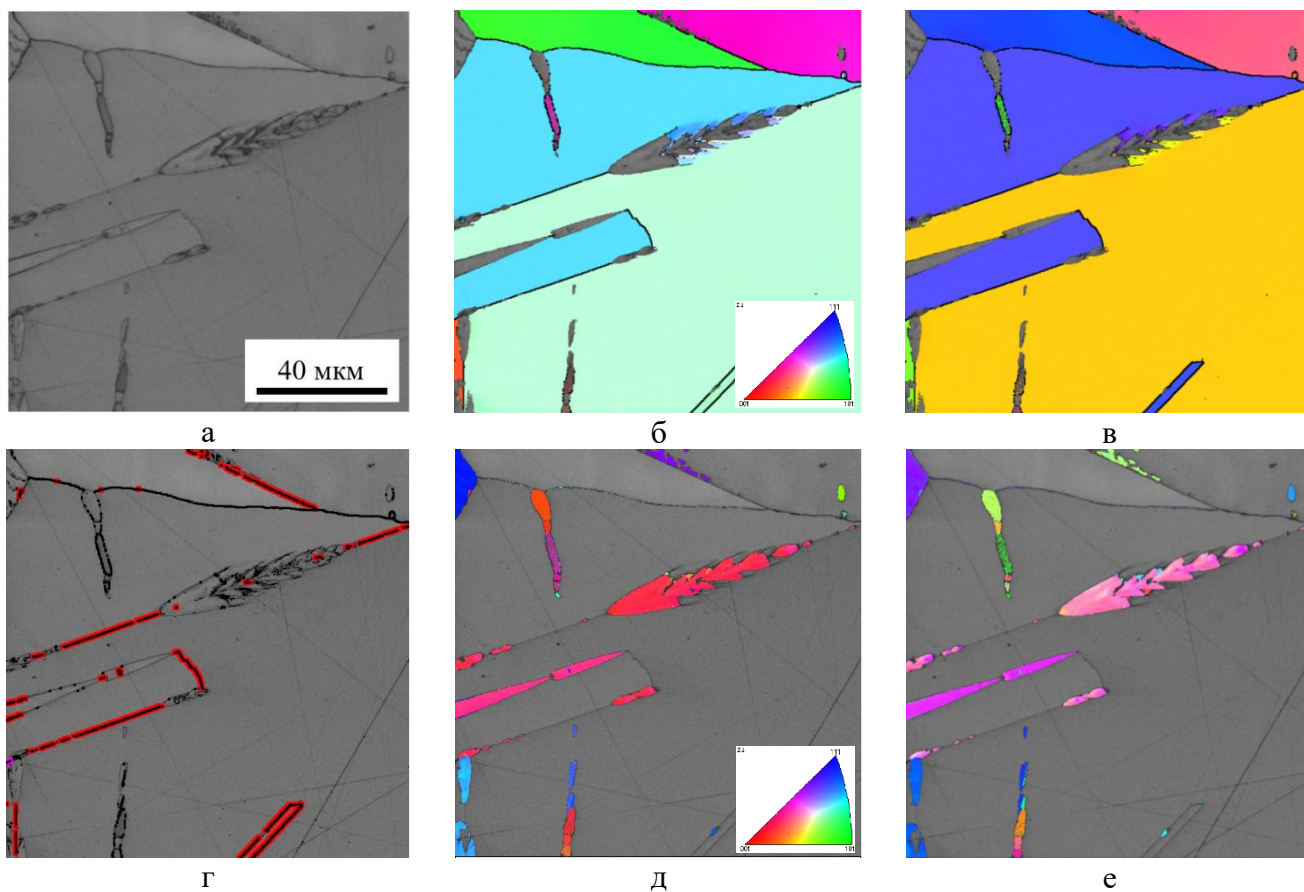


Рисунок 10 – Фазовое превращение $\gamma \rightarrow \alpha$ связанное со специальными границами: а – карта качества картин дифракции; б, в – IPF карты в направлениях Z и X аустенитной фазы; г – границы различного типа (красные – $\Sigma 3$); д, е - IPF карты в направлениях Z и X ферритной фазы

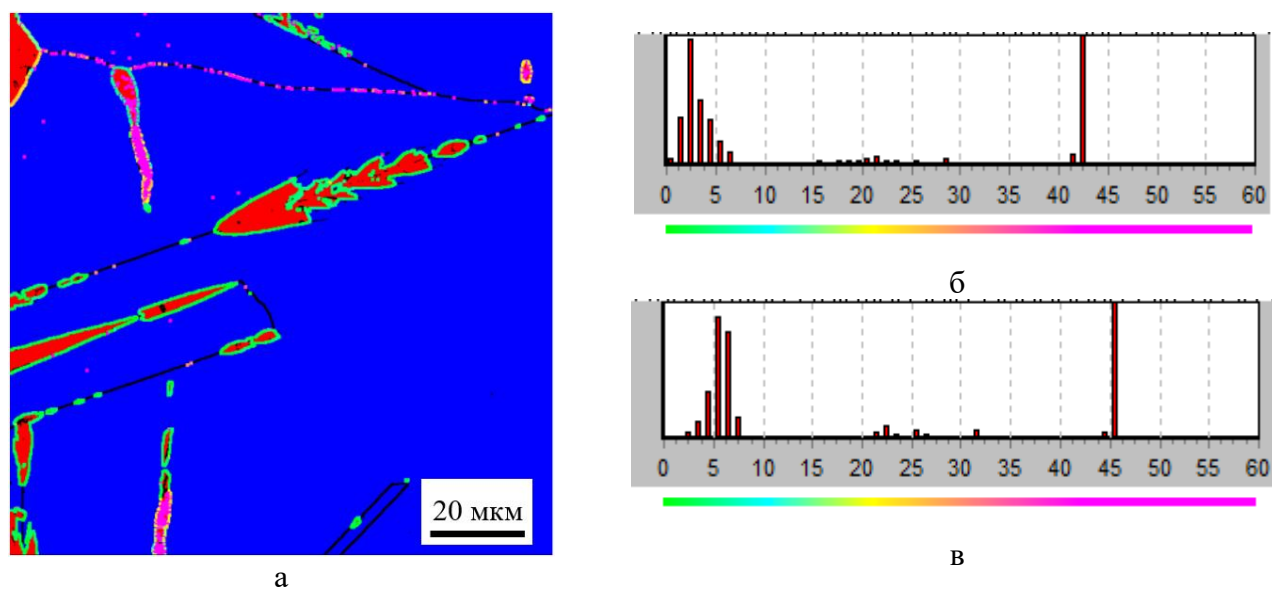


Рисунок 11 – Анализ процессов фазовых превращений при помощи ориентационной микроскопии: а – фазовая карта с выделенными границами, для границ введена цветовая дифференциация в соответствии с углом отклонения от ОС К-З; б – угловое отклонение границ фаз от ориентационного соотношения Курдюмова-Закса; в – угловое отклонение границ фаз от ориентационного соотношения Нишиямы-Вассермана

Наблюдаемый спектр отклонений межфазных разориентаций между аустенитной и ферритной фазами является промежуточным между спектрами, соответствующими ориентационным соотношениям (ОС) Курдюмова-Закса (К-3) и Нишиямы-Вассермана (Н-В), но ближе к ОС К-3.

Нейтронное облучение при повышенных температурах приводит к структурным изменениям аустенита. Радиационное порообразование характерное для данных интервалов температур облучения приводит к набуханию материала с возникновением изотропного напряженного состояния. Также нейтронное облучение приводит к радиационно-индуцированному выделению карбидов типа $M_{23}C_6$, что в свою очередь приводит к обеднению аустенита углеродом, являющимся сильнейшим стабилизатором γ -фазы в сталях.

Совместное действие внутренних напряжений и обеднение матрицы углеродом приводят к повышению точки мартенситного превращения для стали 10X18Н9.

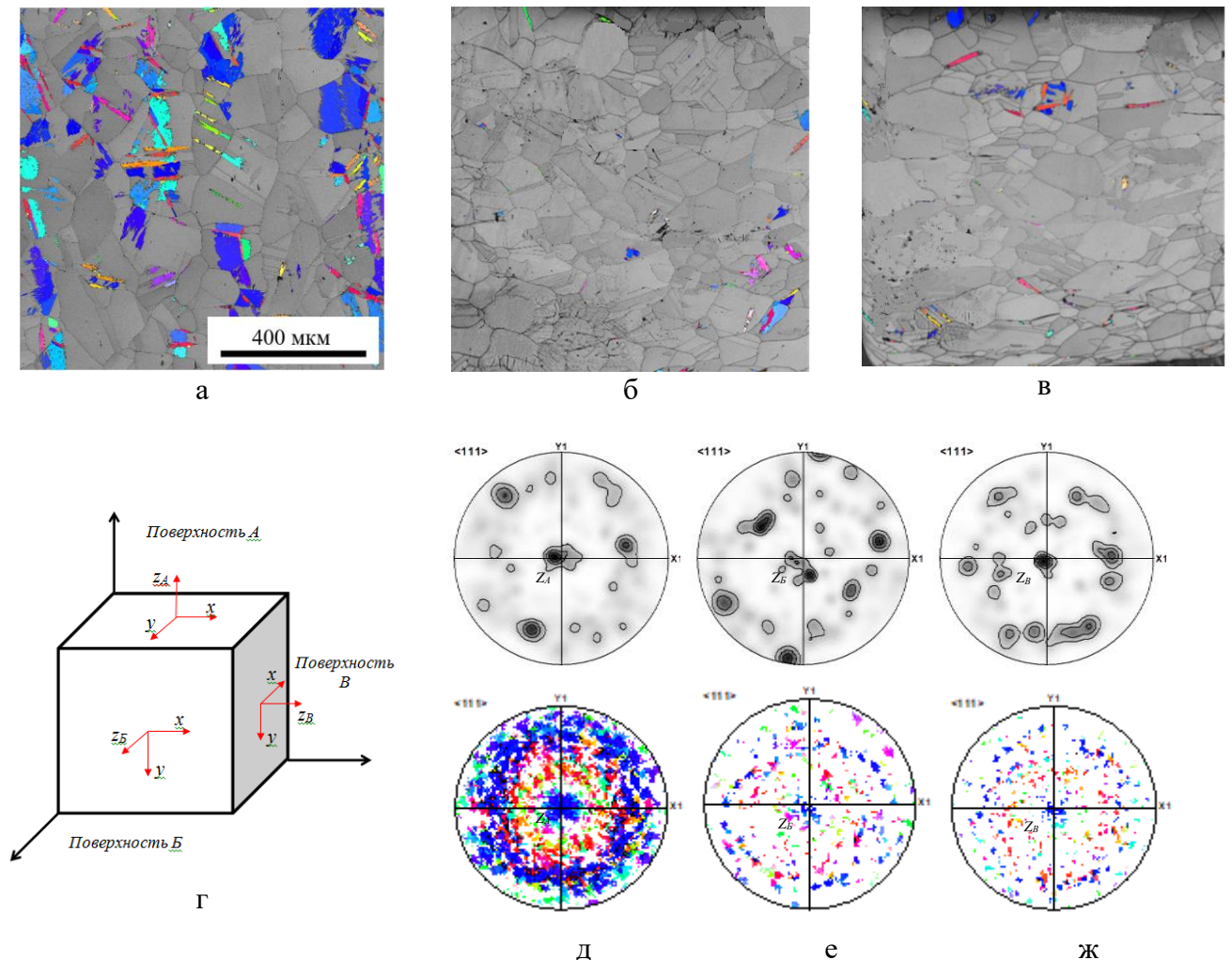


Рисунок 12 – Пространственная зависимость образования поверхностного слоя α -фазы после обработки («пробоподготовки») стали X18H9, облученной быстрыми нейтронами: а – схема обработки образца; б, в, г – полюсные фигуры в плоскости XY поверхностей А, Б, В; д, е, ж – EBSD карты поверхностей А, Б, В с окрашенной IPF цветом альфа фазой в направлении Z

В результате этого, после электролитической полировки на трех взаимно ортогональных поверхностях образца наблюдается $\gamma \rightarrow \alpha$ фазовое превращение (рисунок 12), но с различной долей продуктов распада (бейнита). Для возникшей α -фазы отличительной особенностью является наличие основной компоненты текстуры с направлением $\langle 111 \rangle$ перпендикулярным полированной поверхности, на которой реализуется превращение. На поверхности А доля наблюдаемой альфа фазы достигает 18 %, когда для поверхностей Б и В не превышает 2 %. Образование α -фазы происходит по сдвиговому механизму.

Исследование образцов с различной накопленной повреждающей дозой и температурой облучения показало зависимость склонности стали 10X18H9 к сдвиговому фазовому превращению от накопленной повреждающей дозы, и в меньшей степени зависящей от температуры эксплуатации изделия.

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. С использованием инструментария сканирующей электронной микроскопии разработана методика количественного анализа характеристик радиационной пористости. Методика за счет многократного увеличения площади исследуемой поверхности позволяет существенно повысить качество статистического анализа радиационной пористости с учетом большего количества пор и неоднородности их распределения, как на уровне кристаллитов, так и на уровне размеров изделия.

2. Установлена зависимость радиационной пористости по толщине и высоте оболочки тепловыделяющего элемента от градиентов температур. В условиях нейтронного облучения при градиенте температур приблизительно 30-50 °С концентрация пор уменьшается на 20-40 %, а средний размер их увеличивается на 10-30 %, при практическом сохранении объемной доли пор.

3. Показано, что наличие различных условий теплосъема, обусловленные местом установки твэла в сборке приводят к различиям в градиентах температур и соответственно различной радиационной пористости.

4. На основе совмещения сканирующей электронной и ориентационной микроскопии разработана методика анализа влияния мезоструктуры на радиационное порообразование. Методика включает анализ количественных характеристик радиационной пористости, таких как средний размер и концентрация и количественных характеристик межкристаллитных границ: высокоугловых, малоугловых, специальных.

5. Зафиксировано, что в зонах с высокой плотностью малоугловых границ наблюдается подавление образования крупных пор.

6. Установлено, что в зависимости от плотности распределения двойников деформации в теле зерна (среднее расстояние $\leq 0,3$ мкм) наблюдается подавление образования крупных радиационных пор во время нейтронного облучения. При увеличении среднего расстояния между двойниками деформации на их границах наблюдается образование одиночных или ряда крупных пор.

7. Показано что, увеличение удельной поверхности (объемной концентрации) двойниковых деформационных границ по отношению к границам общего типа оказывает влияние на радиационную пористость. Оно приводит к увеличению длительности стадий инкубационного и переходного радиационного распухания, а также к снижению общего распухания при близких условиях облучения

8. Установлено различное поведение специальных межзеренных границ, в том числе двойниковых (когерентных и некогерентных) к выделению дисперсных карбидов в процессе старения. Чем совершеннее структура границы, тем меньше на ней происходит карбидных выделений. В результате нейтронного облучения выделения карбидов могут оказать влияние на радиационную пористость.

9. Зафиксирован эффект самооблучения аустенитной матрицы выделениями боридов молибдена, связанный с образованием He и Li по реакции $B(n, \alpha)$, приводящему к образованию шаровых полей радиационных пор высокой концентрацией вокруг выделений на расстоянии 1-1,5 мкм. Для данного эффекта зафиксирована температурная зависимость образования шарового поля пор, характерное для температур ниже 530 °С.

10. Показано, что у стали X18H9 в результате длительного облучения повышается склонность к распаду аустенита по сдвиговому механизму. Распад по бейнитному механизму реализуется в поверхностном слое стали в результате отделения части образца за счет внутренних изотропных напряжений при комнатных температурах. Зародыши бейнита формируются только на двойниковых границах и находятся в точной ориентационной связи с аустенитной матрицей. Ориентационные соотношения (ОС) являются промежуточными между ОС Курдюмова-Закса и Вассермана-Нишиямы, ближе к ОС Курдюмова-Закса.

СПИСОК ОСНОВНЫХ РАБОТ, ОПУБЛИКОВАННЫХ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Статьи, опубликованные в рецензируемых научных изданиях, определенных ВАК

1. Pastukhov V. I. Effect of Grain Boundaries Type on Carbides Precipitates in Tempered Martensite / V. I. Pastukhov, S. S. Khvostov, M. L. Lobanov // Materials Science Forum. – 2019. – V. 946. – P. 368–373; 0,5 п.л. / 0,3 п.л. (Scopus)

2. Pastukhov V. I. Effect of Mesostructural Elements on Radiation-Induced Porosity in 16Cr-19Ni-2Mo-2Mn-Nb-Ti-V-P-B Austenitic Steel / V. I. Pastukhov, I. A. Portnykh, M. L. Lobanov // *Materials Science Forum*. – 2019. – V. 946. – P. 357–361; 0,5 п.л. / 0,3 п.л. (Scopus)
3. Пастухов В. И. Неоднородность радиационной пористости оболочки твэла из аустенитной стали X16H19M2Г2БТФПР / В.И. Пастухов, В.Л. Панченко, И.А. Портных, С.А. Аверин, А.В. Козлов // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы*. – 2018. – В. 5 (96). – С. 13–22; 0,6 п.л. / 0,5 п.л.
4. Pastukhov V. I. Crystallographic Peculiarities of Shear α - γ Transformation in Austenitic Stainless Steel in the High Temperature Area / V. I. Pastukhov, A.V. Kozlov, M. L. Lobanov // *Solid State Phenomena*. – 2018. – V. 284. – P. 253–258; 0,5 п.л. / 0,3 п.л. (Scopus)
5. Kozlov A. V. Migration of Point Defects in the Field of a Temperature Gradient / Kozlov A. V., Portnykh I. A., Pastukhov V. I. // *Physics of Metals and Metallography*. – 2018. – V.119. – P. 396–401; 0,7 п.л. / 0,2 п.л. (WoS, Scopus)
6. Sinel'nikov L.P., Equipment and methods of post-reactor studies of materials in a block of shielded enclosures at institute of reactor materials / L. P. Sinel'nikov, S. A. Averin, A. V. Kozlov, [et al.] // *Atomic Energy*. – 2017. – V. 121. – №4. – P. 240–248; 0,75 п.л. / 0,08 п.л. (WoS, Scopus)
7. Кинев Е. А. Жидкометаллическая коррозия оболочечных сталей в натриевом теплоносителе / Е. А. Кинев, Н. В. Глушкова, В. И. Пастухов // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерно-реакторные константы*. – 2017. – № 3. – С. 80–88; 0,7 п.л. / 0,23 п.л.
8. Pastukhov V. I. Application of backscatter electrons for large area imaging of cavities produced by neutron irradiation / V. I. Pastukhov, S. A. Averin, V. L. Panchenko, I. A. Portnykh, F. A. Garner, P. D. Freyer, L. A. Giannuzzi // *Journal of Nuclear Materials*. – 2016. – V. 480. – P. 289–300; 1,25 п.л. / 0,8 п.л. (WoS, Scopus)
9. Kinev E. A. Physicochemical interaction of EK-164 steel with uranium dioxide during high-temperature irradiation / E. A. Kinev, V. I. Pastukhov, V. S. Shikhalev / *Atomic Energy*. – 2016. – Т. 120. – № 3. – P. 199–204; 0,4 п.л. / 0,12 п.л. (WoS, Scopus)

Другие публикации:

10. Пастухов В. И. Структурное состояние стали X18H9 после продолжительного нейтронного облучения при повышенных температурах / Пастухов В. И., Панченко В. Л., Портных И. А., Козлов А. В. // *Сборник материалов Тринадцатого международного уральского семинара «Радиационная физика металлов и сплавов»*. – Екатеринбург: ИФМ УрО РАН. – 2019. – С. 17; 0,02 п.л. / 0,02 п.л.

11. Пастухов В. И. Неоднородность радиационной пористости оболочек твэлов из аустенитной стали X16H19M2Г2БТФПР / Пастухов В. И., Панченко В. Л., Портных И. А., Аверин С. А., Козлов А. В. // Сборник тезисов межотраслевой научно-технической конференции «Реакторные материалы атомной энергетики». – Екатеринбург. – 2018. – С. 20; 0,02 п.л. / 0,02 п.л.

1. 12. Pastukhov V. I. Statistical Investigation of Radiation-Induced Porosity in BN Fuel Claddings Using Scanning Electron Microscopy / Pastukhov V. I., Portnykh I. A., Averin S. A. // Volume of proceeding International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Next Generation Nuclear Systems for Sustainable Development (FR17). – Yekaterinburg. – 2017. – ID264; 0,5 п.л. / 0,4 п.л.

13. Пастухов В. И. Исследование при помощи сканирующей электронной микроскопии особенностей радиационного порообразования в оболочках твэл / Пастухов В. И., Аверин С. А., Портных И. А. // Сборник материалов Двенадцатого международного уральского семинара «Радиационная физика металлов и сплавов». – Екатеринбург: ИФМ УрО РАН. – 2017. – С. 37; 0,02 п.л. / 0,02 п.л.

14. Пастухов В. И. Применение обратно рассеянных электронов для получения широкоформатных изображений пор, образованных при нейтронном или ионном облучении конструкционных сталей / Пастухов В. И., Аверин С. А., Панченко В. Л., Портных И. А., Фрэйар П. Д., Джануци Л. А. Гарнер Ф. А. // Материалы 13-й Международной школы-конференции для молодых ученых и специалистов. – Москва: НИЯУ МИФИ. – 2016. – С. 123–124; 0,02 п.л. / 0,02 п.л.

15. Пастухов В. И. Исследование радиационной пористости с использованием сканирующего электронного микроскопа / Пастухов В. И., Аверин С. А., Панченко В. Л., Портных И. А. // Сборник материалов Одиннадцатого международного уральского семинара «Радиационная физика металлов и сплавов». – Екатеринбург: ИФМ УрО РАН. – 2015. – С. 95; 0,02 п.л. / 0,02 п.л.