

Акционерное общество «Институт реакторных материалов»

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Уральский федеральный университет имени первого Президента

России Б.Н. Ельцина»

Институт новых материалов и технологий

Кафедра термообработки и физики металлов

На правах рукописи

Пастухов Владимир Иванович

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

05.16.09 – Материаловедение (в машиностроении)

Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук

Научный руководитель:  
доктор технических наук, профессор  
Лобанов Михаил Львович

Заречный – 2019

Екатеринбург – 2019

## ОГЛАВЛЕНИЕ

|                                                                                                                                                        |    |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| ВВЕДЕНИЕ.....                                                                                                                                          | 4  |
| ГЛАВА 1 РАДИАЦИОННЫЕ ПОВРЕЖДЕНИЯ И РАСПУХАНИЕ АУСТЕНИТНЫХ СТАЛЕЙ<br>ПОД ДЕЙСТВИЕМ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ.....                                           | 10 |
| 1.1 Радиационное повреждение металлов и сплавов.....                                                                                                   | 10 |
| 1.2 Распухание конструкционных материалов под действием нейтронного облучения .....                                                                    | 13 |
| 1.3 Влияние трансмутационного гелия на распухание материалов в реакторах на быстрых<br>нейтронах .....                                                 | 20 |
| 1.4 Конструкционные материалы активных зон реакторов на быстрых нейтронах .....                                                                        | 24 |
| 1.5 Формирование структуры ГЦК металлов под действием деформационных и термических<br>обработок .....                                                  | 27 |
| 1.6 Связь исходной структуры конструкционных материалов активных зон реакторов на<br>быстрых нейтронах со стойкостью к радиационным повреждениям ..... | 33 |
| 1.7 Цель и задачи исследования.....                                                                                                                    | 42 |
| ГЛАВА 2 МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКИ ИССЛЕДОВАНИЯ .....                                                                                                        | 44 |
| 2.1 Материал исследования.....                                                                                                                         | 44 |
| 2.2 Методики исследования .....                                                                                                                        | 45 |
| 2.2.1 Гидростатическое определение плотности.....                                                                                                      | 45 |
| 2.2.2 Пробоподготовка образцов .....                                                                                                                   | 46 |
| 2.2.3 Сканирующая электронная микроскопия .....                                                                                                        | 46 |
| 2.2.3 Просвечивающая электронная микроскопия .....                                                                                                     | 47 |
| 2.2.3 Рентгеноструктурные исследования .....                                                                                                           | 48 |
| ГЛАВА 3 РАЗРАБОТКА МЕТОДИК АНАЛИЗА МЕЗОСТРУКТУРЫ В<br>КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛАХ ДЛЯ РЕАКТОРОВ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ...                                 | 49 |
| 3.1 Методики анализа радиационной пористости с использованием сканирующей<br>электронной микроскопии.....                                              | 49 |
| 3.2 Анализ элементов мезоструктуры с использованием совмещения электронно-<br>микроскопических изображений и ориентационных карт.....                  | 62 |

|                                                                                                                                                                      |     |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| 3.2.1 Анализ формирования радиационной пористости на различных элементах мезоструктуры .....                                                                         | 62  |
| 3.2.2 Анализ выделения вторых фаз на межкристаллитных границах различных типов .....                                                                                 | 66  |
| 3.4 Заключение по главе 3 .....                                                                                                                                      | 69  |
| ГЛАВА 4 ВЛИЯНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ МЕЗОСТРУКТУРЫ НА ФОРМИРОВАНИЕ РАДИАЦИОННОЙ ПОРИСТОСТИ И РАСПУХАНИЕ АУСТЕНИТНЫХ СТАЛЕЙ ПРИ РАЗЛИЧНЫХ ПАРАМЕТРАХ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ ..... | 70  |
| 4.1 Пространственное распределение радиационной пористости в оболочке твэла.....                                                                                     | 72  |
| 4.2 Распределения радиационной пористости по толщине стенки периферийного твэла по радиальным ортогональным направлениям в пределах его оболочки .....               | 91  |
| 4.3 Влияние элементов мезоструктуры на образование радиационных пор на начальной стадии нестационарного распухания .....                                             | 95  |
| 4.4 Влияние плотности границ двойников на радиационное распухание стали ЧС-68.....                                                                                   | 101 |
| 4.5 Неоднородность радиационной пористости, возникающая у дисперсных выделений, генерирующих $\alpha$ -частицы .....                                                 | 109 |
| 4.6 Заключение по главе 4 .....                                                                                                                                      | 113 |
| ГЛАВА 5 ВЛИЯНИЕ ПРОДОЛЖИТЕЛЬНОГО НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА $\gamma \rightarrow \alpha$ -ПРЕВРАЩЕНИЕ В АУСТЕНИТНЫХ СТАЛЯХ .....                                        | 114 |
| 5.1 Возникновение альфа фазы на наружной поверхности оболочки твэла .....                                                                                            | 114 |
| 5.2 Фазовое $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращение в стали X18H9 после длительного нейтронного облучения .....                                                     | 118 |
| 5.3 Заключение к главе 5 .....                                                                                                                                       | 130 |
| ЗАКЛЮЧЕНИЕ .....                                                                                                                                                     | 131 |
| СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ .....                                                                                                                       | 134 |
| СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ.....                                                                                                                                               | 135 |

## ВВЕДЕНИЕ

### **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 (в том числе учебной) 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. Впервые образование радиационных пор было обнаружено Е. Фалтоном и К. Каусорном в 1966 году. Согласно современным представлениям в металлах и сплавах, находящихся под действием нейтронного облучения, устанавливается неравновесная концентрация точечных дефектов (вакансий и междоузлий). Это обусловлено их массовым появлением в области каскада атомных смещений при попадании высокоэнергичного нейтрона и различными энергиями зарождения и миграции точечных дефектов. Хорошо известно, что продолжительное действие нейтронного облучения приводит к эволюции данной системы, которая проявляется в перераспределении элементов (диффузия, образование обедненных зон, фазовые превращения, ползучесть под облучением), изменении химического состава из-за трансмутации элементов (ядерные превращения вследствие захвата нейтронов) и конгломерации вакансий (кластеры, газонаполненные пузырьки, вакансионные поры). С увеличением продолжительности облучения для аустенитных сталей на первый план выходит проблема распухания, которая приводит к резкому снижению физико-механических свойств (потеря прочности и пластичности, формоизменение).

В середине 1970-ых годов было показано, что развитие радиационной пористости происходит стадийно. По аналогии с диаграммами фазового перехода (поры занимают определенную долю объема материала), было выделено три стадии радиационного распухания: инкубационный период, стадия нестационарного распухания (стадия переходного распухания), стадия установившегося распухания (стадия стационарного распухания). Одной из популярных точек зрения является представление, согласно которому распухание аустенитных сталей на стадии установившегося распухания часто близко к  $\sim 1\%/сна$  и не зависит от структурного состояния материала (основную роль играет поверхность пор как основной сток вакансий и междоузлий). С этой точки зрения влияние на интегральную величину распухания оказывают длительности стадий инкубационного и нестационарного периодов, чувствительные к структурному состоянию материала и его химическому составу. Одним из известных способов повышения стойкости металлов к радиационному распуханию 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 распуханию.

Несмотря на глубокую проработку вопроса взаимодействия точечных дефектов с элементами микроструктуры и общего действия нейтронного облучения на материал, на

сегодня не существует «общей» теории набухания материалов. Существует определенное количество работ, в которых рассматривается характер эволюции радиационной пористости во времени и ее связь со структурными элементами материала. Соответственно все прогностические модели набухания основаны на результатах модельных экспериментов и обладают малым временным отрезком применимости и корректируются при получении верификационных данных при исследовании реальных изделий.

В очень небольшом количестве работ предприняты попытки описания радиационной пористости реальных конструктивных элементов, в которых существует неоднородность физических параметров облучения. Полученной в результате этих исследований информации недостаточно для интерпретации результатов и прогнозирования поведения радиационной пористости реальных изделий в свете современных представлений.

Во многих работах и учебниках большое внимание уделяется изменению структурного состояния, полученного после нейтронного облучения на уровнях соизмеримых, или меньше размера зерна (выделения, дислокации). Но при этом авторы распространяют полученные результаты на интегральное набухание материала, а не на фрагментах процесса на различных стадиях. Также стоит отметить, что в работах, исследующих связь радиационной пористости со структурным состоянием, редко исследуются двойники деформации. Тогда как процесс двойникования занимает значительную часть общей моды деформации для используемых в атомной промышленности аустенитных сталей и общая удельная поверхность двойников деформации сопоставима с границами общего типа.

Необходимо подчеркнуть, что в процессе нейтронного облучения происходит изменение химического состава материала в следствие трансмутационных реакций из-за захвата нейтронов ядрами атомов. Особое внимание в данном аспекте уделяется наработке газов, а в частности гелию. Известно, что повышенная концентрация гелия при нейтронном облучении приводит к образованию газо-вакансионных пузырьков, которые являются зародышами вакансионных пор и, как следствие, влияют на радиационную пористость. Изменение химического состава аустенитных сталей необходимо учитывать при долгосрочной эксплуатации ответственных элементов конструкций.

**Целью данной работы** являлось установление закономерностей формирования радиационных повреждений аустенитных сталей под действием нейтронного облучения в зависимости от их мезоструктурного состояния.

Для достижения цели были поставлены следующие **задачи**:

1. Разработка подходов и методик, позволяющих масштабно и количественно исследовать радиационную пористость и эффекты радиационных повреждений на конструкционных 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 и теоретическая значимость** заключается в том, что в результате экспериментальных исследований методами электронной (сканирующей и просвечивающей) и ориентационной микроскопий, получены новые научные и уточнены имеющиеся результаты по закономерностям формирования радиационных повреждений аустенитных сталей различного легирования от их мезоструктурного состояния:

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 (предположительно боридов) 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 10X18H9 к распаду аустенита по сдвиговому механизму. Выявлены условия реализации распада, а также связь образующейся фазы с мезоструктурным состоянием материала.

**Практическая значимость работы.** На основании проведенных исследований были разработаны методы и выданы практические рекомендации:

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 их 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 Международный Уральский семинар «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, проводимой 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.

#### **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 зарубежных журналах, индексируемых Scopus.

## ГЛАВА 1 РАДИАЦИОННЫЕ ПОВРЕЖДЕНИЯ И РАСПУХАНИЕ АУСТЕНИТНЫХ СТАЛЕЙ ПОД ДЕЙСТВИЕМ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ

### 1.1 Радиационное повреждение металлов и сплавов

Структурные повреждения материалов при попадании в них высокоэнергичных частиц подробно описаны и проанализированы в советской и российской, в том числе учебной литературе [1-11].

Взаимодействие потоков высокоэнергичных частиц с атомами облучаемого вещества делится на упругое и неупругое. Взаимодействие излучений с твердым телом сводится к трем первичным процессам: возбуждение электронной и ядерной подсистем, ядерные реакции и смещение атомов из первоначальных равновесных положений [4]. Первые два процесса относятся к неупругому, а последнее к упругому взаимодействию.

Во время эксплуатации реактора в рабочем режиме, в активной зоне происходит реакция деления ядерного топлива, в результате которой устанавливается определенная концентрация свободных нейтронов, поддерживающих эту реакцию. Сами по себе нейтроны обладают большой проникающей способностью и являются чувствительными, в основном, только к ядрам вещества, через которое происходит их движение. Нейтроны, энергия которых превышает 0,1 МэВ относят к быстрым.

Быстрые нейтроны при упругом взаимодействии с веществом приводят к выбиванию атомов из их положений в кристаллической решетке. В результате полной или частичной передачи энергии, в виде кинетической энергии движения, происходит возникновение первично выбитого атома (ПВА) [1, 4, 5-9]. Энергия ПВА в дальнейшем рассеивается в кристаллической решетке в различной форме, в частности, в виде каскадного взаимодействия. Каскад выбитых атомов представляет собой локализованную область кристаллической решетки (термический пик), в которой за очень короткое время происходит выделение кинетической энергии, такой, что средняя кинетическая энергия превышает энергию, соответствующую температуре плавления (условное «закипание» вещества) с последующей релаксацией («кристаллизацией») [12]. По теоретическим оценкам температура в области локализации каскада достигает порядка нескольких тысяч (3000-10000) °С [12]. В процессе релаксации происходит рассеивание энергии в кристаллической решетке. Взаимодействие с ближайшим окружением в результате смещения атомов приводит к образованию динамических краудинонов, каналонных и фокусионных [1, 4, 5-9]. В результате спонтанного движения и столкновений атомов происходит распределение энергии в области ПВА. Итогом релаксации ПВА является образование пар Френкеля, вакансий и междоузлий, а также состоящих из точечных дефектов

кластеров. Передача энергии от нейтрона веществу и образование дефектов кристаллического строения зависит как от энергии нейтрона, так и от характеристик вещества: типа связи, типа решетки, атомного веса и радиуса иона.

В настоящее время накоплено и обобщено большое количество экспериментального материала об эволюции дефектов в материалах, в том числе в металлах и сплавах, длительно находящихся под воздействием быстрых нейтронов [13-17].

Температура оказывает сильное влияние на подвижность точечных дефектов. В общем, для металлов можно выделить пять температурных интервалов подвижности вакансий и межузельных атомов [13], а также их комплексов. На примере исследования электросопротивления облучаемой меди от криогенных температур до  $0,4T_{пл}$  в работе [18] продемонстрированы стадии отжига точечных дефектов (рисунок 1.1). При низких температурах неподвижны как межузельные атомы, так и вакансии. С увеличением температуры на стадии I становятся подвижны межузельные атомы, при практически неподвижных вакансиях. На стадии II активируется движение комплексов собственных межузельных атомов и атомов внедрения. Дальнейшее повышение температуры приводит к существенному увеличению подвижности вакансий и рекомбинации пар Френкеля (стадия III). На стадии IV происходит миграция комплексов вакансия-примесь. На стадии V, вследствие высокой температуры, практически моментально происходит термический распад наведенных дефектов.

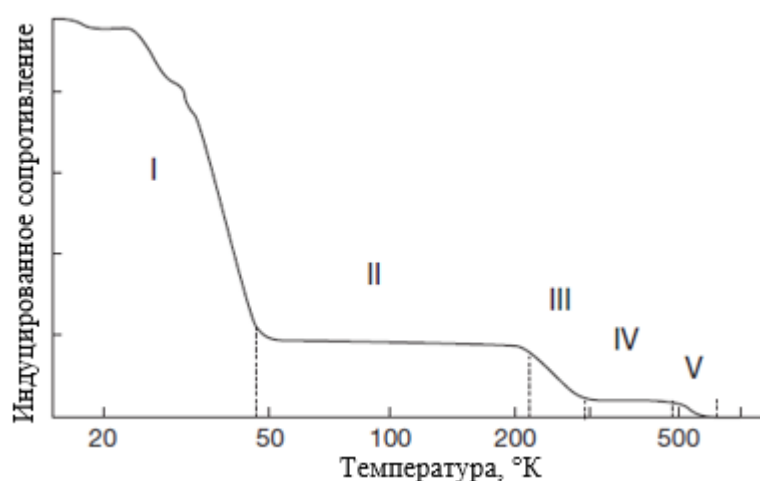


Рисунок 1.1 – Стадии отжига радиационных дефектов (уменьшение наведенного электросопротивления при облучении) от криогенных температур [18]

Температурная зависимость подвижности структурных дефектов приводит также к сильному влиянию облучения на эволюцию микроструктуры (рисунок 1.2) [19]. Распухание металлов происходит, в основном, в температурном интервале от 0,3 до 0,6 $T_{пл}$ .

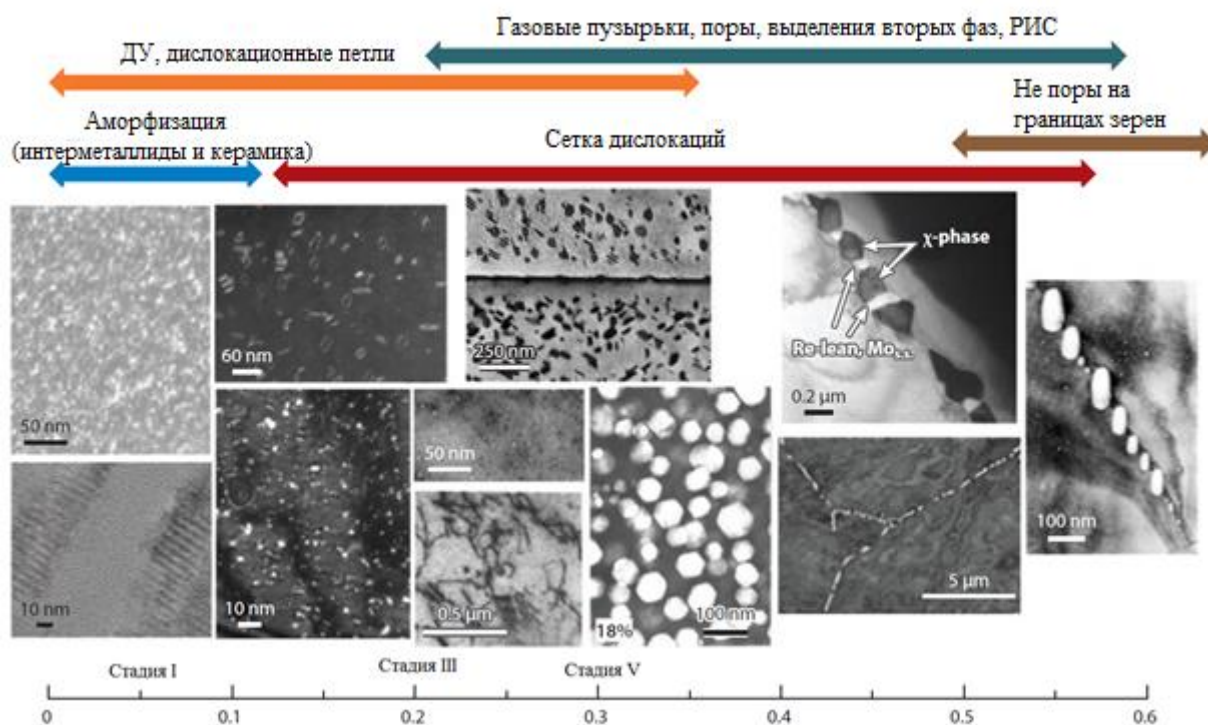


Рисунок 1.2 – Изменения микроструктуры в облученных материалах в зависимости от температуры облучения [19]

В идеальном кристалле в момент образования (при облучении) точечных дефектов противоположного знака, а именно вакансий и межузлий, их концентрации равны. По своей природе вакансии и межузельные атомы обладают различной энергией миграции и, соответственно, разной подвижностью. Соответственно, в общем случае, эволюцию данной системы будет определять изменение локальной концентрации образующихся точечных дефектов [1, 4, 13, 19]. Как было сказано выше, на концентрацию образующихся в результате облучения дефектов влияют такие физические факторы, как температура, скорость повреждения материала (плотность потока нейтронов), тип облучения и его энергия. На поведение дефектов в облучаемом материале оказывают влияние следующие его характеристики: атомный вес и тип связи атомов, тип кристаллической решетки, пространственное перераспределение (наличие и возможность образования сегрегаций и/или вторых фаз) и взаимодействие точечных дефектов с примесями (в том числе образование моляризованных инертных газов). С точки зрения взаимодействия вакансий и межузельных атомов с различными дефектами кристаллического строения, рационально разделить последние

на два типа: являющиеся преференциальными стоками для определенного вида точечных дефектов, и не являющиеся таковыми [10]. Преференциальность, в свою очередь, также оказывает влияние на локальную концентрацию этих точечных дефектов.

Для металлов и сплавов определенное сочетание факторов облучения и характеристик облучаемого материала приводит к образованию и росту пор, и как следствие, при продолжительном воздействии облучения, к объемному распуханию.

## 1.2 Распухание конструкционных материалов под действием нейтронного облучения

Причиной радиационного распухания материалов оболочек твэлов является формирование и рост пор в процессе длительной эксплуатации изделий, обусловленное образованием избыточного, по отношению к межузельным атомам, количества неравновесных вакансий [13, 15, 20-22].

Первые упоминания об образовании пор при облучении аустенитных сталей относятся к 1966 г. [23, 24]. Первоначально образование пор связывали с образованием гелия из никеля в процессе облучения по двухступенчатой реакции  $\text{Ni}^{58} (n, \gamma), \text{Ni}^{59} (n, \alpha)$  и его взаимодействием с вакансиями. Никель входил в состав легирующих элементов или примесную систему облучаемого материала. Термин «Voids» (распухание) был введен С. Cawthorne и Е. J. Fultone в 1967 году [25]. Авторы обнаружили, что количества нарабатываемого в процессе облучения гелия не хватает для заполнения всех наблюдаемых пустот. Эти работы стали отправной точкой в исследовании относительно нового для того времени явления – радиационного распухания металлов. С тех пор в лабораториях по всему миру проведено большое количество исследований и работ, связанных с этим явлением.

Согласно современным представлениям первопричиной образования и роста пор в радиационно облучаемых материалах является массовое появление избыточных (по отношению к межузельным атомам) вакансий в области каскада атомных смещений (термических пиков) при попадании высокоэнергичного нейтрона в один из атомов кристаллической решетки. Межузельные атомы, обладающие большей подвижностью по сравнению с вакансиями (энергия миграции межузельных атомов меньше, чем энергия миграции вакансий [26]), перемещаются на существенно большие, по сравнению с вакансиями за одинаковое время, расстояния и поглощаются дефектами кристаллической решетки, и/или образуют плоские дефекты [13, 22, 26].

Для численного описания процессов образования и роста пор используется термодинамический подход [16]. В основе данного подхода лежит предположение о возникновении при радиационном воздействии концентрации вакансий, существенно

превышающей равновесную, существующую в необлученном материале. Для оценки возможности существования вакансионных скоплений в виде пор, через изменение уровня пересыщения концентрации вакансий, происходит оценка свободной энергии Гиббса. Это позволяет сделать следующий значимый вывод (рисунок 1.3): в зависимости от состояния системы существует определенный критический размер зародыша из  $n$  количества вакансий, при этом абсолютное значение температуры влияет на его критический размер за счет эффекта тепловых колебаний кристаллической решетки.

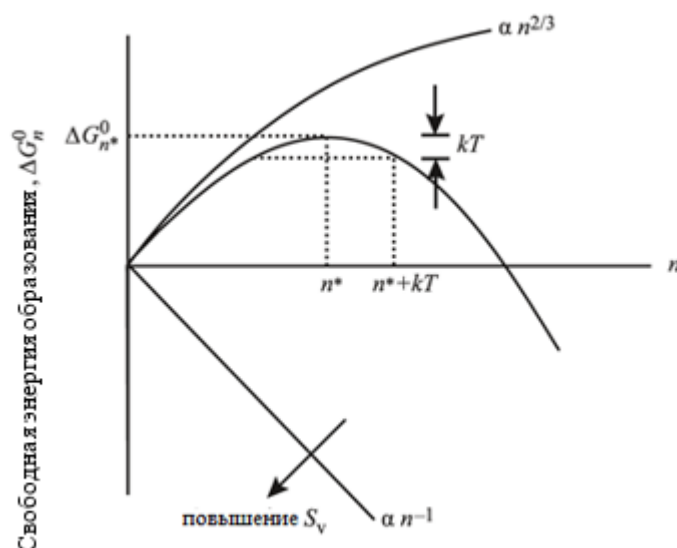


Рисунок 1.3 – Схематическая иллюстрация свободной энергии формирования поры из  $n$  вакансий и эффект тепловых колебаний ( $kT$ ) на критическом размере

Подобный подход позволяет перейти к описанию зарождения пор, в математической модели, со следующими граничными условиями:

- кристаллическая решетка находится в тепловом динамическом равновесии, при этом воздействие от термических пиков и смещений атомов минимальное;
- френкелевские пары (вакансия + межузельный атом) являются единственными мобильными дефектами;
- дефекты удовлетворяют условиям термодинамики разбавленных растворов;
- существует равновесная концентрация вакансий и межузельных атомов.

В результате расчёта потоков вакансий и межузельных атомов, в зависимости от использованных параметров системы, определяется скорость зарождения пор в зависимости от пересыщения концентраций вакансий (рисунок 1.4).

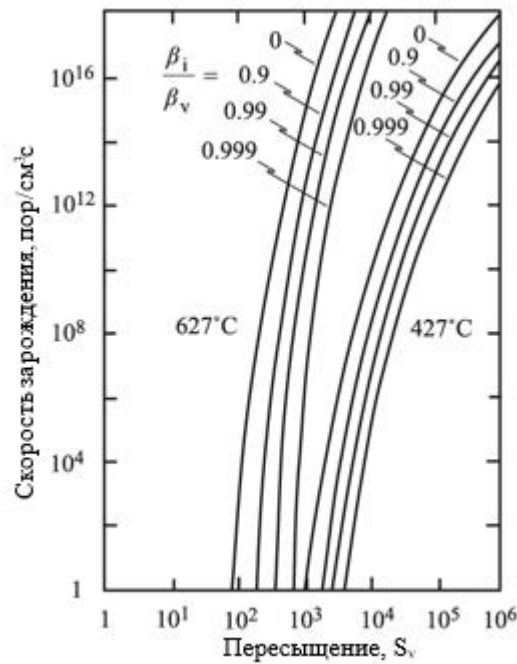


Рисунок 1.4 – Скорость зарождения пор в зависимости от пересыщения системы по вакансиям, скорости поглощения вакансий ( $\beta_v$ ) и скорости поглощения междоузлий ( $\beta_i$ ) [16]

Недостатком данного подхода является использование идеализированной модели кристалла, в котором происходит образование пересыщения по вакансиям. Различная энергия миграции вакансий и межузельных атомов, наличие различных стоков, наличие в реальных материалах структурной и химической неоднородности – это только некоторые факторы, которые также определяют распухание материалов. Полученные при помощи термодинамических расчетов результаты описывают квазистационарное состояние системы на коротком временном промежутке. При облучении реального материала концентрация точечных дефектов, а также поток точечных дефектов к стокам меняются (в зависимости от времени, дозы, и как следствие микроструктурных изменений). Помимо этого, неоднородными являются и сами параметры облучения (поток нейтронов и температура).

Для дальнейшего описания процесса распухания можно использовать подход, при котором задается суммарный объем стоков и величин потоков дефектов к ним [16]. Также можно использовать подход, когда для точечных дефектов задается энергия взаимодействия со стоками и эволюция системы определяется работой, совершаемой при переходе дефекта из кристаллической решетки в сток.

В реальных материалах при облучении существует намного больше параметров, которые влияют на процесс образования и роста пор при облучении. Определение граничных условий и их правильности происходит в более «физически обоснованных» моделях (рассматривается

условия необходимые и достаточные для возникновения и роста пор). Так, например, существуют предположения относительно механизмов зарождения пор [27, 28], которые можно разделить на две группы: гомогенные и гетерогенные. К группе гомогенных механизмов можно отнести образование пор на случайно образовавшихся газовакансионных или вакансионных комплексах и в зарождении пор на месте релаксировавших мощных термических пиков. К группе гетерогенных механизмов относятся образования дефектов кристаллического строения (газовакансионные пузырьки, дислокации, выделения и границы) создающие поля упругих напряжений, способствующие поглощению вакансий. В целом, на сегодня не существует «не подгонной» количественной физической модели процесса зарождения пор.

Принято считать [4, 27], что процесс распухания материала условно можно разделить на инкубационный период, а также стадии нестационарного и стационарного распухания (рисунок 1.5). Инкубационный период предшествует интенсивному зарождению и росту пор в облучаемом материале. Согласно теоретическим представлениям, за время инкубационного периода обеспечивается избыточный, достаточный для интенсивного роста пор, поток вакансий в поры. Инкубационный период, как правило, сокращается с увеличением энергии дефектов упаковки (ЭДУ) в облучаемом материале [20, 26].

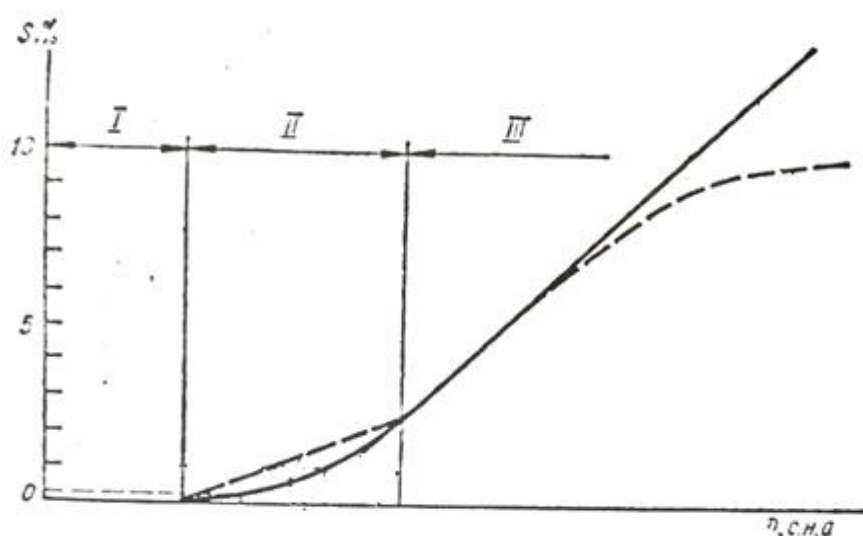


Рисунок 1.5 – Схематическое представление зависимости распухания от дозы [4] (пунктирная линия – «модельное» распухание): I – инкубационный период, II – стадия нестационарного распухания, III – стадия стационарного распухания

В большинстве случаев после узкого температурного интервала сокращения инкубационного периода с повышением температуры облучения его длительность увеличивается [4]. Температурную зависимость длительности инкубационного (рисунок 1.5)

периода можно объяснить изменением критического размера пор с изменением температуры облучения. Инкубационный период сокращается при предварительном и одновременном со смещением атомов, под действием облучения, введением газа, под действием растягивающих напряжений и с уменьшением энергии ПВА (каскадности повреждения) [4].

В большинстве случаев в течение нестационарной стадии, распухание ускоряется с увеличением дозы облучения [4]. В течение стадии нестационарного распухания устанавливается характерная для данного материала и условий облучения плотность дислокаций, а концентрация пор достигает максимального значения [4, 29]. В работе [30] произведена теоретическая оценка условий наступления стадии стационарного распухания. В качестве критерия оценки распухания выбрана интегральная площадь поверхности пор, которая сочетает в себе как их количество, так и размер, то есть параметры, определяемые экспериментальными методами. Авторами работы было установлено, что приближенное значение пористости, полученное в рамках используемой модели, составляет величину около 8,3%, после которой скорость распухания перестает меняться. Также в работе [30] отмечается, что в зависимости от температуры облучения этот параметр может варьироваться (рисунок 1.6). Так, например, при 450...480 °С интегральная поверхность пор перестает меняться раньше по сравнению с температурным интервалом облучения 500...510 °С.

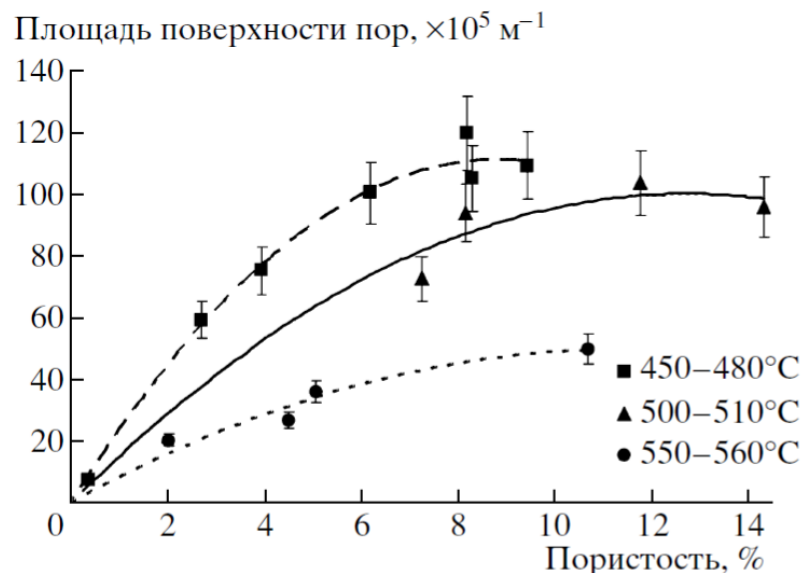


Рисунок 1.6 – Зависимость интегральной площади поверхности пор от пористости в образцах из стали ЧС68, облученных в диапазонах температур 450...560 °С [30]

Для металлов и сплавов с ГЦК решеткой на стационарной стадии распухание линейно увеличивается с ростом повреждающей дозы (0,1...1 %/сна). В работе [31] теоретически

рассчитана скорость распухания на стационарной стадии. В рамках используемой модели для стали ЧС68 в диапазоне температур 300...555 °С расчетная скорость распухания монотонно меняется от 0,92 до 0,82 %/сна. При этом она не зависит от скорости набора повреждающей дозы, а также от энергии образования и миграции вакансий. Это объясняется наличием в системе стабильных стоков точечных дефектов. Там же [31] отмечено, что зависящая от доз облучения скорость стационарного распухания изменяется при изменении характеристик стоков (размера зерна, плотности дислокаций). Повышение плотности дислокаций на порядок увеличивает зависящую от доз облучения скорость распухания на ~ 0,17 %/сна. При подобной закономерности склонность материала к радиационному распуханию определяется длительностями инкубационного периода и стадии нестационарного распухания, а также скоростью распухания на стационарной стадии. Состав и исходное состояние сплавов Fe-Cr-Ni, тип и энергия бомбардирующих частиц, температура облучения и скорость повреждения определяют развитие пористости на стадии нестационарного распухания [31].

Необходимо отметить, что в рассмотренных моделях [4, 28] в качестве основной характеристики принимается размер пор. То есть, по сути, термодинамическая модель говорит о непрерывном зарождении и росте пор. Полученные гистограммы часто представлены и аппроксимированы нормальным распределением. Эволюция системы упрощена до одной популяции пор, с нормальным ростом и редким появлением новых зародышей. В поздних работах [27, 32–34] используется многомодальное описание количественных характеристик радиационной пористости. В настоящее время нет полной и законченной модели эволюции распухания. Происходит развитие и доработка теоретических моделей [35].

Температура и плотность нейтронного потока оказывают значительное влияние на зарождение и рост радиационных пор, и как следствие, на распухание. В реальных устройствах, используемых в ядерной энергетике, наблюдаются значительные градиенты обеих величин [36, 37]. Пространственная неоднородность физических параметров привела к значительному искажению гильз СУЗ реактора БОР-60 и БН-350 по сравнению с первоначальной формой [38]. В работах [39, 40] ультразвуковым методом была определена неоднородность распухания гексагональных блоков, облученных в реакторе EBR-II.

В особо напряженных элементах реактора, а именно оболочках тепловыделяющих элементов, также наблюдается градиент температуры. В работе [41] градиент по толщине оболочки составлял до 36 °С при толщине оболочки порядка 0,5 мм. При указанной толщине оболочки тепловыделяющего элемента определяющим фактором будет являться именно температура, так как ее изменение значительно, а варьирование нейтронного потока незначительно на такой толщине аустенитной стали. Согласно [42], градиент температуры привел к значительной неоднородности распределения пор по толщине оболочки. Наблюдается

уменьшение среднего размера и увеличение концентрации пор от внутренней к наружной поверхности. Также в данной работе применена сканирующая электронная микроскопия с детектором вторичных электронов для оценки этой неоднородности на полированном образце (рисунок 1.7).

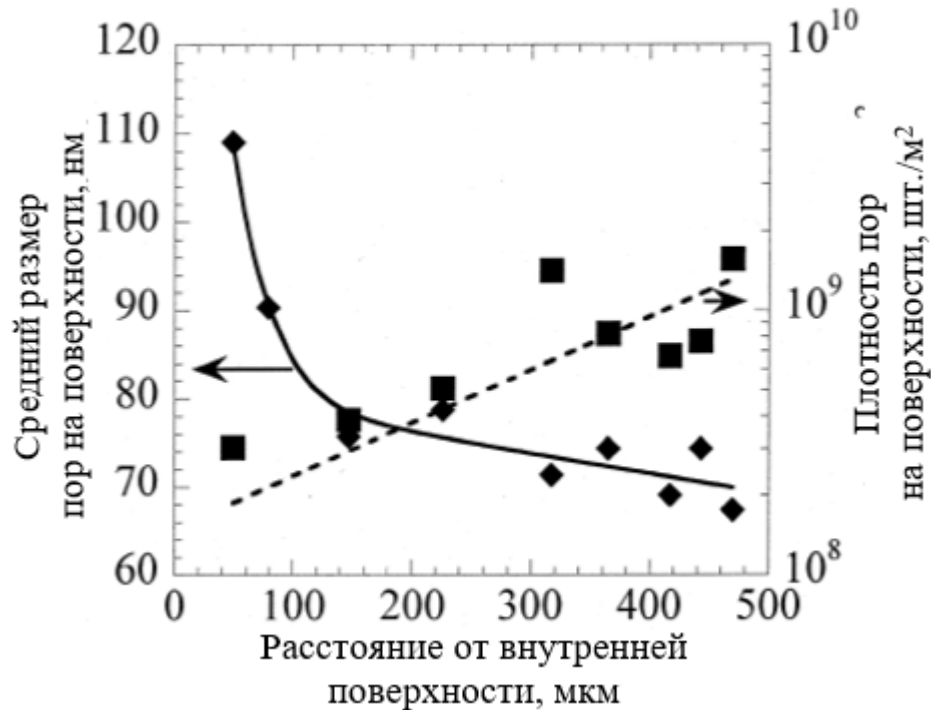


Рисунок 1.7 – Изменение характеристик радиационной пористости по толщине оболочки твэла [42]

В работах [43, 44] также приведены результаты влияния температурного градиента, (рисунок 1.8). В отличие от результатов [42], наблюдается сильный градиент набухания по толщине оболочки. Авторы приводят результаты высокотемпературного участка оболочки, на котором наблюдается температурный градиент порядка 47 °С (рисунок 1.8).

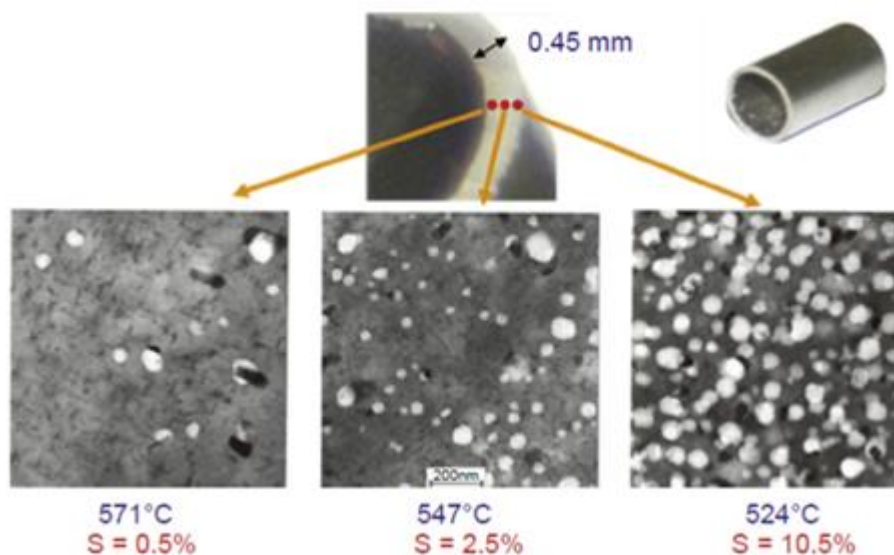


Рисунок 1.8 – Градиент температуры и распухания в оболочке из стали CW316Ti облученной до дозы 77 сна в реакторе Phenix [42, 43]

### 1.3 Влияние трансмутационного гелия на распухание материалов в реакторах на быстрых нейтронах

Значительные изменения структуры и свойств облучаемого материала вызывает генерация в ядерных реакциях атомов различных газов, особенно гелия и водорода, принимающих активное участие в процессах охрупчивания материалов под облучением и в развитии радиационной пористости [4, 45, 48, 49]. В результате имитационного облучения четко показана зависимость распухания металлов от содержания He [51, 52, 53].

Продолжительное нейтронное облучение приводит к изменению исходного состава облучаемых многокомпонентных систем [45, 46]. Известно, что в сплавах, содержащих никель, при облучении быстрыми нейтронами происходит образование атомов He. Также гелий образуется при реакциях распада трития, причем возможно насыщение He материала оболочки твэла со стороны топливной композиции. Нарботка атомов He путем трансмутационных процессов всегда намного ниже, чем количество образующихся пар Френкеля. Однозначно установлено, что атомы газов играют особую роль в развитии радиационной пористости [47]. Эти атомы стимулируют объединение вакансий в комплексы и стабилизируют трехмерные вакансионные скопления, препятствуя их разрушению до дислокационных петель [4].

Взаимодействие растворенных газов с точечными дефектами играет огромную роль в эволюции металлов под действием облучения [50, 54]. Накопление растворенных газов и их взаимодействие с вакансиями может привести к формированию газовакансионных пузырьков

[55]. При этом диффузия гелия является необходимым условием для их формирования и роста. Также важную роль в данных процессах играет нахождение атома He в положении междоузлия или вакансии, и, соответственно, механизмы миграции атомов гелия в этих положениях, имеющих температурную зависимость [50].

Основными параметрами, управляющими концентрацией и размером пузырьков, при возникновении гелия во время имплантации или трансмутации, являются температура, скорость «наработки» He, скорость набора повреждающей дозы и сама повреждающая доза (или время), ответственная за накопленную концентрацию газа. На рисунке 1.9 в упрощенном варианте для гомогенных сред представлена схема эволюции данного процесса от времени, позволяющая получить качественное понимание о происходящих процессах. В этом рассмотрении используется модель гомогенного зарождения. Поскольку дефекты кристаллической решетки являются мощными стоками для атомов He, для реальных кристаллов, с характерным для них набором дефектов, предпочтительна теория гетерогенного зарождения. Также необходимо отметить, что с увеличением времени облучения возможно протекание процессов дрейфа и коагуляции пузырьков (рисунок 1.9).

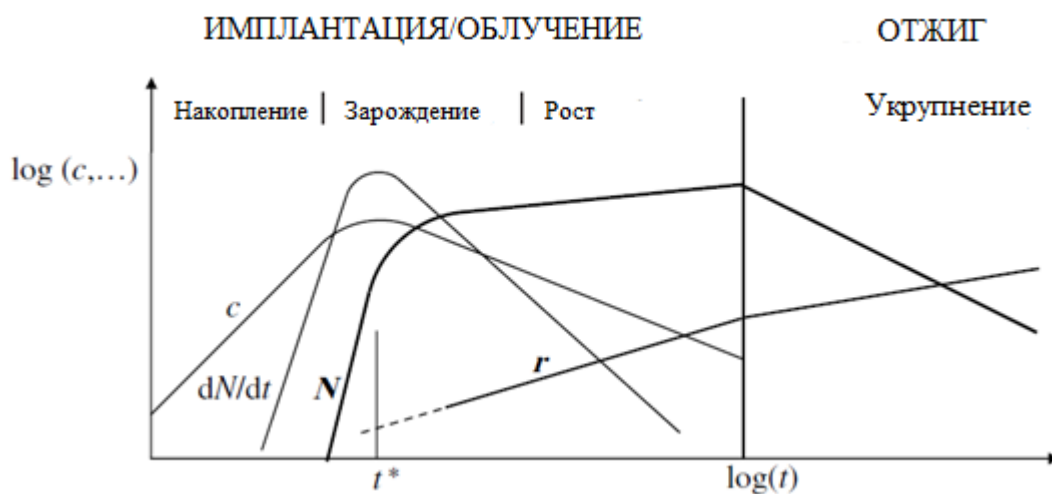


Рисунок 1.9 – Схематическое представление о временной зависимости основных количественных характеристик зарождения газовых пузырьков при облучении и отжиге:  $c$  – количество атомов гелия,  $dN/dt$  – скорость зарождения пузырьков,  $N$  – плотность пузырьков,  $r$  – средний размер [50]

В работе [56] рассматривается влияние He на зарождение пор. Скорость зарождения пор в классической термодинамической модели намного ниже, чем количество пор, которое

наблюдается после нейтронного облучения при 450 °С. С другой стороны, стабилизированные газом пузырьки, при постоянных скоростях генерации и накопления газа, могут расти до критического размера, после которого начинается поглощение вакансий и образование поры. То есть накопление He приводит к росту газовых пузырьков до критического размера и тогда начинается случайный процесс роста пор. Отмечено увеличение критического размера газового пузырька с повышением температуры. В [57] данная модель применяется с учетом динамического изменения дислокационной структуры.

Взаимодействие атомов He с вакансиями и вакансионными кластерами снижает подвижность данных дефектов [58]. Также в этой работе рассмотрена зависимость поглощения атомов He вакансиями от его концентрации в растворе. Определено, что «мощность» стока для атомов He в точечные дефекты повышается, когда уменьшается количество захваченного вакансиями He.

Дислокации, как мощные стоки для растворенных газов, являются местами зарождения газовакансионных пузырьков [59]. При этом не исключена возможность отрыва атома He от дислокации. Однако, данный процесс имеет меньшую вероятность чем, поглощение, поэтому дислокации являются аккумулятором атомов He [60]. Первичное накопление He и его перераспределение в структуре металла может играть определенную роль в длительностях инкубационного и переходного периодов распухания.

В гомогенной теории рост пузырьков возможен за счет одновременного поглощения атомов He и вакансий. При этом происходит постоянное уменьшение пузырьков за счет поглощения межузельных атомов и диффузии He.

Взаимодействие пузырька с дефектами микроструктуры может привести к изменению скоростей поглощения точечных дефектов. Взаимодействие пузырьков с дислокационными петлями проанализировано в работе [61]. В результате образования комплекса дислокационная петля – пузырек, для последнего наблюдается увеличение абсорбционной способности по отношению к He и, соответственно, возникает возможность реализации упрощенного механизма передачи атомов He в матрицу за счет роста петли (рисунок 1.10).

В работе [62] рассмотрено перемещение атомов He к границам зерен в процессе облучения. Для аустенитных сталей и никелевых сплавов это может приводить к охрупчиванию границ зерен. В результате расчётов получены зависимости концентрации He на межзеренных границах от скорости его «наработки». Полученные теоретические результаты находятся в хорошем соответствии с измеренным содержанием газа в алюминии и сплавах PE 16 и AISI 316.



Рисунок 1.10 – Схематическое представление взаимодействия комплекса пузырьков – дислокационная петля [59]

Эффективность влияния границ зерен и свободной поверхности на развитие радиационной пористости уменьшается с введением He или других газов и увеличением концентрации их атомов в материале. В образцах, насыщенных газом, зоны, свободные от пор вдоль границ зерен и поверхности образца, значительно уже или вообще отсутствуют [63]. Кроме того, для газовых пузырьков границы являются местами наиболее интенсивного зарождения и роста [64]. Исследование диффузии He в необлученной нержавеющей аустенитной стали 316 выполнено в работе [65]. Проведенные отжиги показали одинаковый средний размер пузырьков на границах и в приграничных зонах.

Накопление He на границах зерен может привести к охрупчиванию и интеркристаллитному разрушению в аустенитных сталях [66, 67]. Также формирование высокой плотности газовакансионных пузырьков способствует упрочнению материала и затрудняет его деформацию.

На динамику формирования и роста газовакансионных пузырьков может оказывать параметр ЭДУ облучаемого материала. Так при ионном облучении согласно работе [68] сплав 27Fe-19Cr-27Mn-27Ni показал меньшую скорость роста пузырьков по сравнению с AISI 348 (Fe-18Cr-10Ni-1Mn).

В процессе эксплуатации оболочки твэла, накопление He может происходить не только в результате трансмутационных процессов, но и также от облучения внутренней поверхности оболочки  $\alpha$ -частицами, образовавшихся в результате деления топлива. Измерение концентрации He в оболочках реактора EBR-II показало неоднородность его распределения по толщине [69].

#### 1.4 Конструкционные материалы активных зон реакторов на быстрых нейтронах

В настоящее время наибольшее распространение в качестве конструкционных материалов активных зон быстрых реакторов получили нержавеющие аустенитные стали [70, 71]. Ресурс их эксплуатации определяется радиационным распуханием, протекающим при действии нейтронного облучения. Эксплуатационные ограничения этих сталей связаны не только с геометрическим фактором, вызывающим механическое взаимодействие с другими элементами активной зоны (АкЗ) и приводящим к возникновению механических напряжений, но с явлениями, оказывающими существенное влияние на механические свойства материалов [27, 72–74].

Разработка радиационно стойких сталей ведется с учетом следующих структурных факторов, влияющих на распухание [71, 72, 75]:

- твердорастворный фактор, определяемый концентрацией в твердом растворе матрицы легирующих (прежде всего, Ni) и примесных элементов (C, Nb, Ti, B, Si и др.), которые формируют комплексы «точечный дефект-примесь» с измененными характеристиками диффузии;

- фактор фазовой нестабильности, проявляющийся в образовании частиц выделений, природа, состав, объемная доля, морфология и локализация которых во многом определяют процесс зарождения и роста пор;

- дислокационный фактор, учитывающий, что при определенных степенях деформации ( $\epsilon \sim 15...30\%$ ) создается дислокационная плотность, служащая стоком точечных дефектов и позволяющая существенно задержать начало интенсивного образования пор.

Обзор сталей аустенитного класса используемых в реакторах на быстрых нейтронах приведен в работе [76]. К началу работ над техническими проектами активных зон первых отечественных реакторов в промышленности была широко освоена только аустенитная хромоникелевая сталь 12X18Н9Т. Для твэлов первого промышленного реактора БН-350 в качестве базовой была взята ранее разработанная и хорошо изученная сталь ЭИ847 (таблица 1.1). В дальнейшем на ее основе происходило развитие сталей данного класса. Материал был модифицирован бором (0,005...0,008 мас. %), соответственно, появилась марка стали – ЭП172. На основе ЭИ847 была разработана еще одна сталь – ЧС68, легированная, помимо бора, также кремнием и титаном – элементами, положительно влияющими на радиационную стойкость материала. Новая сталь рассматриваемого класса, ЭК164 имеет более высокое содержание никеля и комплексно легирована титаном, ниобием, ванадием, бором, кремнием, фосфором и церием.

Таблица 1.1 – Химический состав российских аустенитных сталей для быстрых реакторов [70, 71, 76]

| Сталь | Содержание элементов, мас. % |      |     |      |      |     |      |      |      |       |       |    |
|-------|------------------------------|------|-----|------|------|-----|------|------|------|-------|-------|----|
|       | C                            | Si   | Mn  | Cr   | Ni   | Mo  | Nb   | Ti   | V    | B     | P     | Ce |
| ЭИ847 | 0,04                         | <0,4 | 0,4 | 15,0 | 15,0 | 2,7 | <0,9 | –    | –    | –     | <0,02 | –  |
|       | ...                          |      | ... | ...  | ...  | ... |      |      |      |       |       |    |
|       | 0,06                         |      | 0,8 | 16,0 | 16,0 | 3,2 |      |      |      |       |       |    |
| ЭП172 | 0,04                         | <0,6 | 0,5 | 15,0 | 14,5 | 2,5 | 0,35 | –    | –    | 0,003 | <0,02 | –  |
|       | ...                          |      | ... | ...  | ...  | ... | ...  |      |      | ...   |       |    |
|       | 0,07                         |      | 0,9 | 16,5 | 16,0 | 3,0 | 0,90 |      |      | 0,008 |       |    |
| ЧС68  | 0,05                         | 0,3  | 1,3 | 15,5 | 14,0 | 1,9 | –    | 0,2  | 0,1  | 0,002 | <0,02 | –  |
|       | ...                          | ...  | ... | ...  | ...  | ... |      | ...  | ...  | ...   |       |    |
|       | 0,08                         | 0,6  | 2,0 | 17,0 | 15,5 | 2,5 |      | 0,5  | 0,3  | 0,005 |       |    |
| ЭК164 | 0,05                         | 0,3  | 1,5 | 15,0 | 18,0 | 2,0 | 0,1  | 0,25 | ~    | 0,001 | 0,01  | ~  |
|       | ...                          | ...  | ... | ...  | ...  | ... | ...  | ...  | 0,15 | ...   | ...   |    |
|       | 0,09                         | 0,6  | 2,0 | 16,5 | 19,5 | 2,5 | 0,4  | 0,45 |      | 0,005 | 0,03  |    |

В результате модернизации аустенитных сталей для реактора БН-600 достигнуто максимальное выгорание топлива ~11,2% т.а. (в планах на ЭК164 14,4% т.а.) [71, 77]. При использовании сталей аустенитного класса в эксплуатации на период 1980–1987 гг. максимальное выгорание ядерного топлива составляло 7,2% т.а.

В России в настоящее время для реакторов типа БН в качестве перспективных конструкционных материалов для поэтапного повышения выгорания топлива рассматриваются стали аустенитного и мартенситного классов, включая полученные методом порошковой металлургии (ДУО-стали) [70,71].

За рубежом программа быстрых реакторов подразумевала так же использование аустенитных сталей в качестве оболочек ТВЭЛов реакторов на быстрых нейтронах [43, 78]. В США одним из первых материалов для оболочек ТВЭЛов была предложена аустенитная сталь AISI 304. В последующем происходила модификация данной серии материалов, наиболее используемым из которых в настоящее время является AISI 316. Наибольшей радиационной стойкостью к распуханию обладает сталь D9, которая является развитием AISI 316.

В Японии с целью достижения повреждающих доз 100–115 сна. разработана сталь PNC 1520, в которой также повышено (до 20 мас. %) содержание никеля, использовано легирование двумя карбидообразующими элементами (Ti и Nb), а также бором и фосфором [43, 70]. Европейская программа разработки аустенитных сталей для реактора на быстрых нейтронах первоначально была основана на материалах 15/15Ti и 1.4970. В рамках Европейской программы для аналогичных целей разработана сталь 16-25Ti.Nb.V, в которой содержание

никеля повышено до 25 мас. %, при этом материал стабилизирован титаном, ниобием и ванадием [43, 70]. Химический состав зарубежных аустенитных сталей, применяемых в реакторах на быстрых нейтронах, приведен в таблице 1.2.

Таблица 1.2 – Зарубежные аустенитные стали, применяемы в быстрых реакторах [43, 78]

| Сталь     | Содержание элементов, мас. % |                   |                   |                     |                     |                   |      |                   |       |       |                     |
|-----------|------------------------------|-------------------|-------------------|---------------------|---------------------|-------------------|------|-------------------|-------|-------|---------------------|
|           | C                            | Si                | Mn                | Cr                  | Ni                  | Mo                | Nb   | Ti                | V     | B     | P                   |
| AISI 304  | ≤0,08                        | ≤1,0              | ≤2,0              | 18,0<br>...<br>20,0 | 8,0<br>...<br>11,0  | –                 | –    | –                 | –     | –     | –                   |
| AISI 321  | ≤0,08                        | ≤1,0              | ≤2,0              | 17,0<br>...<br>19,0 | 9,0...<br>12,0      | –                 | –    | ≥0,4              | –     | –     | –                   |
| AISI 316  | ≤0,08                        | ≤1,0              | ≤2,0              | 16,0<br>...<br>18,0 | 10,0<br>...<br>14,0 | 2,0<br>...<br>3,0 | –    | –                 | –     | –     | –                   |
| D9        | 0,05                         | 0,6               | 2,0               | 13,5                | 15,5                | 1,8               | –    | 0,25              | –     | 0,006 | 0,03                |
| PCA       | 0,05                         | 0,5               | 1,8               | 14                  | 16,2                | 2,3               | –    | 0,25              | –     | –     | –                   |
| FV548     | ≤0,10                        | ≤0,4              | 1                 | 16,0<br>...<br>17,0 | 12,0                | 1,4<br>...<br>2,0 | 1,0  | –                 | –     | 0,004 | –                   |
| 316Ti     | ≤0,08                        | ≤1,0              | ≤2,0              | 16,0<br>...<br>18,0 | 10,0<br>...<br>14,0 | 2,0<br>...<br>3,0 | –    | –                 | –     | –     | –                   |
| 15/15Ti   | 0,1                          | 0,5               | 1,6               | 15,0                | 15,0                | 1,3               | –    | –                 | –     | 0,006 | 0,035               |
| D4        | 0,085                        | 0,95              | 1,5               | 14,9                | 14,8                | 1,5               | –    | –                 | 0,02  | 0,004 | 0,007               |
| AIM1      | 0,08<br>...<br>0,10          | 0,7<br>...<br>0,9 | 1,0<br>...<br>2,0 | 14,0<br>...<br>16,0 | 14,0<br>...<br>16,0 | 1,3<br>...<br>1,7 | –    | 0,3<br>...<br>0,5 | –     | –     | 0,04<br>...<br>0,05 |
| 1.4970    | ≤0,10                        | 0,3               | 1,8               | 15,2                | 14,7                | 1,2               | –    | –                 | –     | –     | –                   |
| PNC 316   | 0,06                         | 0,8               | 1,9               | 16,5                | 14,0                | 2,6               | 0,09 | 0,08              | <0,01 | 0,004 | 0,028               |
| PNC 15/20 | 0,06                         | 0,8               | 1,9               | 15,0                | 20,0                | 2,5               | 0,11 | 1,8               | –     | –     | 0,025               |

В результате выполнения в 1970–1990 гг. национальных программ по разработке радиационно-стойких конструкционных материалов для реакторов на быстрых нейтронах, объектами исследований которых являлся ряд нержавеющей коррозионностойких сталей и сплавов, были выделены следующие материалы [43, 79]:

- аустенитные стали типа 15Cr-15Ni и улучшенные на их основе комплексно-легированные стали;

- ферритно-мартенситные стали и улучшенные на их основе стали, дисперсно-упрочненные окислами (ODS/ДУО).

Как видно из таблиц 1.1 и 1.2, по химическому составу отечественные и зарубежные материалы достаточно близки. При разработке стали ЭК164 реализованы структурные подходы повышения радиационной стойкости известных отечественных и зарубежных оболочечных материалов аустенитного класса. В пределах допусков сталь ЧС68 соответствует французской стали А1М1, сталь ЭК164 – японской РNC 15/20.

### 1.5 Формирование структуры ГЦК металлов под действием деформационных и термических обработок

Большинство материалов, которые применяются в атомной энергетике имеют поликристаллическую структуру, которая характеризуется наличием разнообразных мезоструктурных элементов – субмикро- и микродефектов, и их комплексов (объединений) [81, 82]: от точечных дефектов (вакансии и междоузлия) до объемных (поры и частицы вторых фаз). Микроструктура этих материалов обусловлена и контролируется технологией их производства. Для аустенитных сталей, использующихся для изготовления оболочек твэлов реакторов на быстрых нейтронах, существует отработанный технологический процесс, в котором металл подвергается многократным отжигам и деформациям [49, 83–85]. Заключительная деформация проводится при комнатных температурах для создания повышенной плотности дислокаций.

В процессе деформации микроструктура металла изменяется несколькими путями [82, 86, 87, 88]. Первый, и самый очевидный, зерна меняют свою форму, при этом присутствует большое увеличение общего объема материала по границам зерен (зернограницные области). Новые зернограницные области образуются в процессе деформации, и создаются путем включения некоторых дислокаций, которые постоянно создаются в процессе деформации. Вторым путем, визуализируемым на уровне электронной микроскопии, является формирование внутренней структуры зерен, что также является результатом накопления дислокаций.

В ходе деформации ориентации отдельных зерен поликристаллического металла изменяются по отношению к направлению приложенного напряжения. Эти изменения не являются случайными, и связаны с «вращениями» (переориентациями), которые имеют непосредственное отношение к кристаллографии деформации [89-91]. Как следствие, зерна приобретают предпочтительную кристаллографическую ориентацию, или текстуру, которая усиливается в процессе деформации. Совокупность предпочтительных ориентировок в поликристаллическом материале образует макротекстуру (интегральную текстуру) изделия. Многие механические и физические свойства монокристаллов анизотропны, и поэтому

свойства поликристаллической структуры будут зависеть от того, что отдельные зерна или субзерна, которые включает в себя образец, сориентированы случайным образом или, как правило, имеют некоторые преимущественные кристаллографические ориентации [92-94].

Возникновение текстуры является одним из важнейших следствий кристаллографической направленности скольжения в каждом зерне по определенным плоскостям и направлениям пространственной решетки. Данные направления закономерно поворачиваются по отношению к осям деформации изделия. Характер текстуры деформации зависит от вида и условий обработки давлением (в основном от схемы главных деформаций) и от природы металла (типа кристаллической решетки и ЭДУ). Для ГЦК материалов при реализации одноосной деформации растяжением формируется сложная аксиальная текстура, имеющая оси  $\langle 111 \rangle$  и  $\langle 100 \rangle$  [95, 96]. При реализации двухосного напряженного состояния (холодная прокатка с низким трением) формируется сложная текстура преимущественно состоящая из компонент:  $\{110\}\langle 112 \rangle$ ,  $\{112\}\langle 111 \rangle$ ,  $\{110\}\langle 001 \rangle$  [95-99]. То есть при реализации различных схем нагружения будет реализовываться связанная с ними текстура.

В ГЦК-металлах существует две основные моды деформации – скольжение и двойникование [82, 100]. Наиболее значимый параметр материала по отношению к реализации того или иного механизма деформации является значение ЭДУ. В металлах с низкой величиной ЭДУ сопротивление поперечному скольжению снижает способность материала изменять свою форму в процессе пластической деформации только скольжением, и, соответственно, происходит деформация двойникованием.

Дефект упаковки, образующийся при расщеплении единичных дислокаций, не имеет поля напряжений [101]. ЭДУ имеет чисто «электронное» происхождения и поэтому сильно зависит от состава твердых растворов, а в чистых металлах – от их валентности: очень высокая в поливалентных (Al, Mg, Zn), несколько ниже в одновалентных металлах (Cu, Au, Ag). В таблице 1.3 приведены экспериментально измеренные энергии дефектов упаковки для некоторых материалов и сплавов.

Таблица 1.3 – Энергия дефекта упаковки некоторых металлов и сплавов [82]

| Металл (сплав)             | ЭДУ,<br>мДж/м <sup>2</sup> | Металл (сплав)                   | ЭДУ,<br>мДж/м <sup>2</sup> |
|----------------------------|----------------------------|----------------------------------|----------------------------|
| Al                         | 166                        | 70Cu-30Zn                        | 21                         |
| Cu                         | 78                         | Ni                               | 128                        |
| Ag                         | 22                         | 91Cu-9Si                         | 5                          |
| Au                         | 45                         | Zr                               | 240                        |
| 304<br>(нержавеющая сталь) | 20                         | 15Ni-15Cr<br>(нержавеющая сталь) | 20...40                    |

Для аустенитных сталей, используемых в реакторах на быстрых нейтронах, характерные ЭДУ находятся в пределах 10...40 мДж/м<sup>2</sup> [102, 103]. Эти значения ЭДУ низки и согласно [82] при таких значениях ЭДУ возможна деформация как скольжением, так и двойникованием. Согласно [82] при ЭДУ ниже 25 мДж/м<sup>2</sup> двойникование – основная мода деформации. Необходимо отметить, что в большинстве работ, затрагивающих аустенитные стали, используемые в атомной энергетике, недостаточно внимания уделено двойникованию, как одной из основных мод деформации данных материалов.

В сплавах с промежуточными значениями ЭДУ, например, в латуни 90Cu-10Zn и в некоторых нержавеющей сталях, мезоструктура в значительной степени определяется совокупностью локальных ориентаций [82]. В некоторых зернах (или полосах деформации) ориентация кристаллита способствует двойникованию, а в других – скольжению. В результате микроструктура состоит из ячеек и микрополос, расположенных рядом с деформационными двойниками. В некоторых зернах с подходящей ориентацией происходит деформация скольжением и двойникованием, и изменение ориентации будет определяться совокупностью механизмов деформации [104, 105]. Соответственно, локальное напряженное состояние так же будет оказывать влияние на механизм деформации металлов с промежуточными значениями ЭДУ. Двойникование является предпочтительной модой деформации во время прокатки ГЦК-материала в областях с ориентировками  $\{112\}\langle 111 \rangle$  и  $\{100\}\langle 001 \rangle$ , но двойникование практически не наблюдается в областях с ориентировками  $\{110\}\langle 001 \rangle$  и  $\{110\}\langle 112 \rangle$  [96].

Подробный обзор влияния легирования на величину ЭДУ проведен в [103]. В общем случае принято считать, что элементы, стабилизирующие фазу с ГЦК-решеткой (Ni, C) повышают ЭДУ, а элементы, которые стабилизируют ОЦК-решетку снижают ЭДУ. Однако, вероятно, для сложно легированных материалов необходимо рассматривать синергетическое воздействие легирующих элементов. Так для аустенитных сталей Mn является стабилизатором аустенита, но снижает ЭДУ. Также легирование стали углеродом отдельно повышает ЭДУ больше, чем совместное легирование C и N. Также сильную роль играет объемное распределение последних легирующих элементов. Автором в работе [103] отмечается, что размер зерна оказывает сильное влияние на величину ЭДУ (рисунок 1.11). Для стали 1X18H10T при изменении размера зерна с 80 до 50 мкм происходит изменение ЭДУ с 40 до 30 мДж/м<sup>2</sup>.

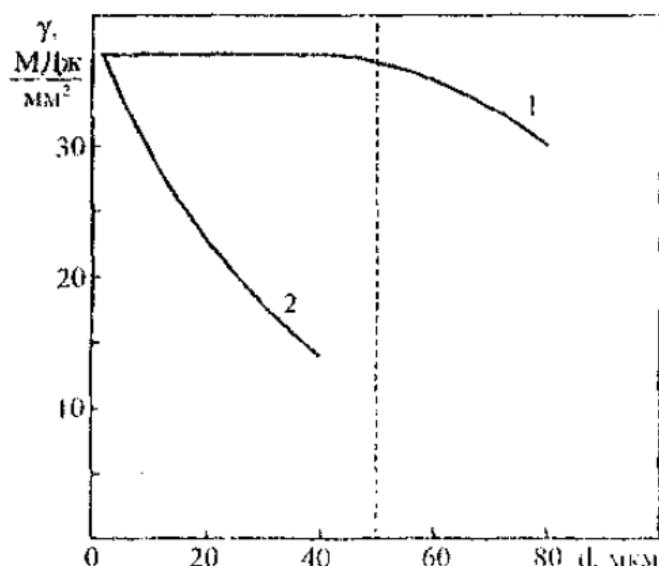


Рисунок 1.11 - Зависимость ЭДУ от размера аустенитного зерна [103]: 1 – 1X18H10T; 2 -45Г18

В работе [106] проведено сравнение механизмов деформации в зависимости от ЭДУ для аустенитных сталей 316L и 904L (таблица 1.4). Для определения ЭДУ использовались первопринципные квантовомеханические расчёты. Авторы предположили, что для реализации механизма деформации двойникованием, напряжения в кристаллите должны превышать критическую величину, зависящую от фактора Шмидта. Деформация двойникованием в большей степени была выражена для сплава 316L в интервале расчётных напряжений. Для стали 904L деформация двойникованием была выражена слабо.

Таблица 1.4 – Состав аустенитных сталей 316L и 904L и их ЭДУ [106]

| Марка | Fe   | Cr   | Ni   | Mo  | C    | ЭДУ, мДж/м <sup>2</sup> |
|-------|------|------|------|-----|------|-------------------------|
| 904L  | 50,0 | 21,8 | 24,2 | 2,5 | 0,05 | 21,3                    |
| 316L  | 70,6 | 18,5 | 9,6  | 1,2 | 0,93 | 14,3                    |

Для высокоэнтропийного сплава CrMnFeCoNi с энергией дефекта упаковки 20...25 мДж/м<sup>2</sup> установлено [107], что при криогенных температурах деформации двойникование происходит как дополнительная мода. При 20 °C двойникование наблюдается только в шейке вблизи места разрушения, то есть при реализации высоких уровней напряжений.

ЭДУ также имеет зависимость от температуры [103] и зачастую повышается с ее увеличением. В работе [108] для аустенитной стали 316L проведён расчёт ЭДУ в зависимости от температуры и показано, что при повышении ЭДУ до 32 мДж/м<sup>2</sup> происходит подавление двойниковой моды деформации, соответственно, основным механизмом деформации становится скольжение.

В работе [109] показано, что выбор температуры прокатки определил конечную структуру стали 304. При холодной прокатке (комнатная температура) деформация привела к образованию мартенсита. Теплая прокатка при 200 °С привела к повышению ЭДУ, в результате чего деформация аустенита происходила только скольжением.

В работе [102] дается обоснование добавления бора в аустенитные стали. Как показали ранее проведенные исследования стали X16H15 легирование бором приводит к значительному снижению ЭДУ. Для стали без бора ЭДУ составляет величину более 50 мДж/м<sup>2</sup>. Легирование бором привело к снижению ЭДУ до 40 мДж/м<sup>2</sup>.

В работе [110] рассматривается влияние размера зерна (20 мкм и 1 мм) на механические свойства аустенитной стали 304 при ее деформации скручиванием. В зависимости от напряженного состояния в структуре наблюдаются дислокации, дислокации и единичные дефекты упаковки, двойники и мартенсит. Двойникование и образование мартенсита происходит в области наибольших напряжений. Зародышами для мартенсита являются дефекты упаковки и границы двойников.

В зависимости от размера зерна происходит изменение критического напряжения двойникования. В работе [111] проведено исследование аустенитной TWIP-стали Fe-15Mn-2Al-2Si-0.7C с ЭДУ около 30 мДж/м<sup>2</sup> с различным исходным средним размером зерен (1,0...84 мкм) после деформации. Авторы обнаружили, что напряжение двойникования имеет обратно пропорциональную зависимость от размера зерна, то есть чем крупнее зерно, тем меньше напряжение двойникования. Также авторы обнаружили, что в крупных зернах двойникование происходило легче вследствие значительного большего количества дефектов упаковки по сравнению с мелким зерном.

Увеличение или уменьшение ЭДУ может привести к изменению механизма деформации. Так, в работе [112] авторами проведено исследование влияния состава аустенитных сталей на ЭДУ и реализацию различных механизмов деформации. На основании предложенной авторами модели механизма формирования двойников и  $\epsilon$ -мартенсита рассчитаны доли структурных составляющих в зависимости от ЭДУ и напряжения (рисунок 1.12).

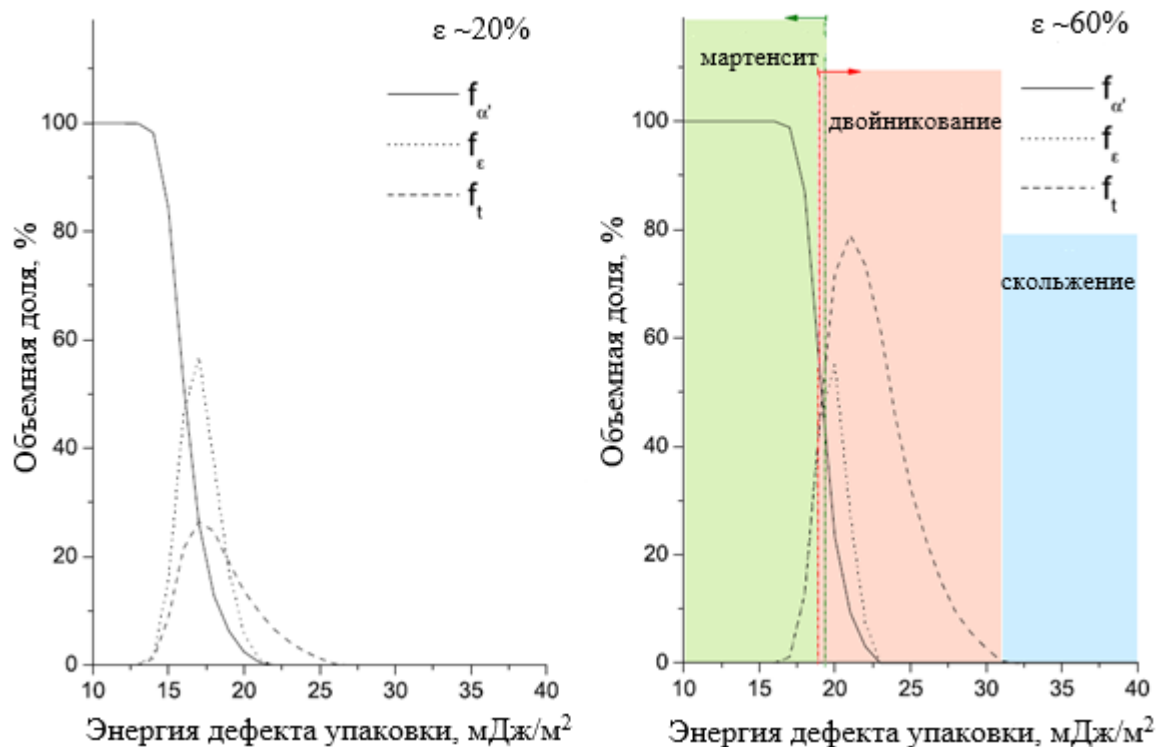


Рисунок 1.12 – Изменение доли структурных составляющих ( $\alpha'$ ,  $\epsilon$ -мартенсита, двойников) в зависимости от энергии дефекта упаковки и напряжения [112]

Авторы считают, что разработанная модель подходит для количественного описания процесса деформации. Это открывает возможность менять механизм деформации в близких системах за счет достаточных изменений химических составов. Так при изменении состава аустенитной стали 304SS можно изменить механизм деформации: повышение содержания Si и Cr, приводит к снижению значения ЭДУ до 15 мДж/м² в стали, наблюдается формирование мартенсита; а при повышении содержания никеля (ЭДУ увеличена до 22 мДж/м²) деформация происходит двойникованием. Однако, как отмечалось в [101], движущей силой двойникования являются напряжения, а при образовании мартенсита имеет место снижение потенциальной энергии за счет фазовых превращений. Возможно, в этом плане двойникование стоит рассматривать как обязательный промежуточный процесс, без которого невозможно бездиффузионное фазовое превращение [113, 114].

Влияние состава на механизм деформации также исследован в работе [115]. Разные марки стали серии 300 были исследованы после усталостных испытаний. Во всех сплавах наблюдался мартенсит, образовавшийся под действием деформации. Авторы [115] связывают распределение мартенсита с неоднородностью распределения химических элементов при выплавке слитков и также отмечают, что последующие термомеханические обработки влияют

на морфологию мартенсита. Локальная неоднородность состава (полосчатость химического состава) приводит к неоднородности значения ЭДУ в объеме материала, и как следствие, приводит к реализации разных механизмов.

При прокатке предполагают, что действуют условия плоской деформации и текстура развивается однородно по всей толщине материала. На практике же даже сама геометрия валков предполагает изменение направления деформации. Температура деформации может влиять на развитие текстуры и, так как многие промышленные операции прокатки осуществляются при теплой или горячей температуре, это является важным параметром [99, 116]. Факторы, которые могут изменить текстуру во время прокатки при повышенных температурах, включают: повышенный уровень динамического восстановления, увеличение однородности деформации или действие различных систем скольжения [99, 116].

#### 1.6 Связь исходной структуры конструкционных материалов активных зон реакторов на быстрых нейтронах со стойкостью к радиационным повреждениям

Несомненно, то, что исходная структура металлов и, в том числе, аустенитных сталей претерпевает серьезные изменения в процессе облучения высокоэнергетическими частицами, в частности нейтронами [47, 117-120]. Исходное состояние аустенитной стали можно описать с помощью характеристик структуры: размер зерна, плотность дислокаций и доля ячеистой структуры, количество двойников деформации, количество и размеры выделений вторых фаз. Для получения гомогенного распределения свойств необходимо соблюдать жесткие технологические условия, что практически неосуществимо на данный момент [115]. Даже переход от лабораторных плавок к серийному производству может оказать существенное влияние на распухание оболочек [117].

Различные модели радиационных повреждений [121], например, основанных только на диффузии пар Френкеля (в том числе комплексов вакансия-атом He), итоговое обобщение которых было сделано в 1994 году [47], не могли объяснить сравнительно упорядоченное распределение пор и видимую связь радиационной пористости с процессом образования вторых фаз. Также наблюдаемая неоднородность пористости не коррелировала с масштабом длин, используемых в данных моделях. Для объяснения подобных эффектов основная модель была дополнена кластеризацией точечных дефектов и одномерной диффузией междоузлий. Модифицированная «Production Bias Model» (PBM, «модель каскадных смещений») [121] объясняет такие явления, как высокая скорость распухания при низкой плотности дислокаций, влияние границ и размеров зерен на образование упорядоченного распределения пор при распухании. Однако ее применимость оказалась ограниченной чистыми металлами и малыми

повреждающими дозами. Для решения проблемы описания подобного рода процессов в настоящее время делаются попытки объединить РВМ и теорию радиационно-индуцированной сегрегации [47]. Теория распухания аустенитных сталей, как многокомпонентных систем с различными дефектами структуры, которые эволюционируют во время облучения, на сегодня не закончена.

В работах [28, 122] было показано, что с увеличением продолжительности облучения происходит изменение механизма аннигиляции точечных дефектов. Механизм аннигиляции точечных дефектов переходит из рекомбинации в объеме в миграцию на стоки (рисунок 1.13). То есть подразумевается, что в процессе облучения на более поздних стадиях происходит накопление различных стоков (дислокации, поры) и вероятность рекомбинации пар Френкеля в объеме кристаллита падает.



Рисунок 1.13 – Изменение механизма аннигиляции точечных дефектов в зависимости от нейтронного флюенса [122]

В качестве первичного стока точечных дефектов всегда рассматривалась дислокационная структура. Плотность дислокаций можно регулировать степенью холодной деформации. В работе Zinkle [123] произведен обзор состояния аустенитных материалов на 1993 год. Рассматривалось изменение плотности дислокаций в отожженных и в деформированных сталях при облучении быстрыми нейтронами. Установлено, что в зависимости от дозы и температуры плотность дислокаций стремится к определенному уровню насыщения (для данной

температуры) [124, 125]. Для реактора EBR-II флюенс  $2 \cdot 10^{21}$  н/см<sup>2</sup> составляет величину порядка 1 сна. Видно, что дислокационная структура меняется для деформированного металла на этапе облучения до 5 сна (рисунок 1.14). В случае деформированного материала плотность дислокаций снижается, для отожженного материала повышается. Подобные результаты были получены на реакторах EBR-II и PHENIX [126] разными группами ученых.

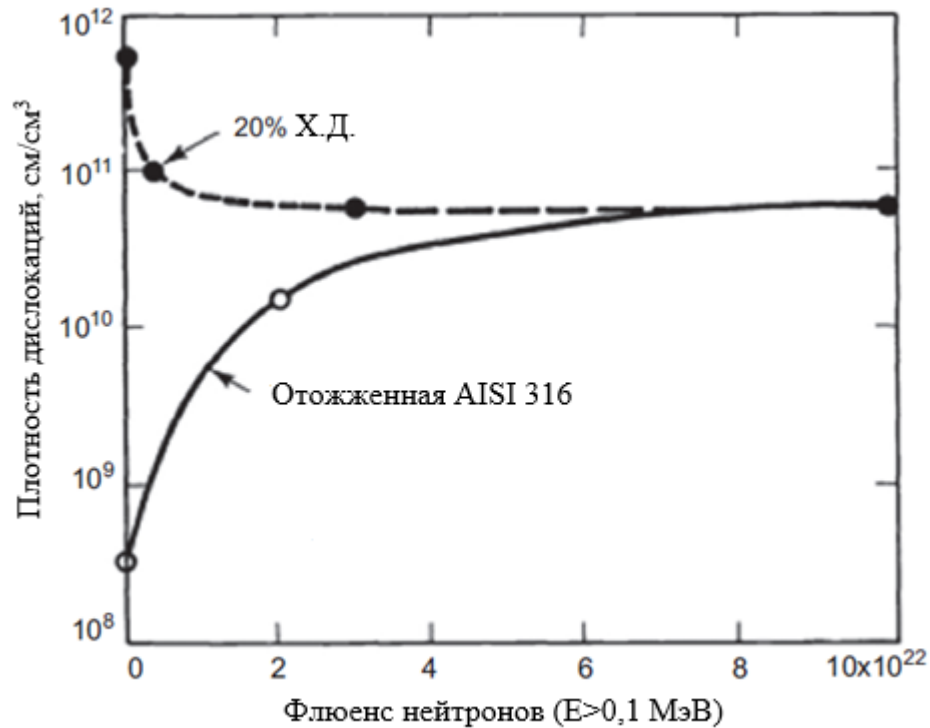


Рисунок 1.14 – Изменение плотности дислокаций отожженной и деформированной на 20 % аустенитной стали AISI 316 SS в зависимости от флюенса быстрых нейтронов [124–126]

Несмотря на относительно быстрое падение исходной плотности дислокаций ранние и поздние работы по определению влияния степени деформации опирались только на плотность дислокаций, как основную причину повышения радиационной стойкости.

Различные характеристики сталей, такие как химический состав, ЭДУ, размер зерна взаимосвязаны. В большом количестве работ еще на начальном этапе изучения радиационной пористости аустенитных сталей проведено исследование влияния исходного состояния аустенитных сталей на радиационное распухание [127–132]. Общей чертой этих работ является то, что холодная деформация аустенитных сталей на конечном этапе производства приводит к увеличению инкубационного периода распухания по сравнению с недеформированным металлом и, как следствие, к снижению распухания при равных повреждающих дозах (рисунок 1.15).

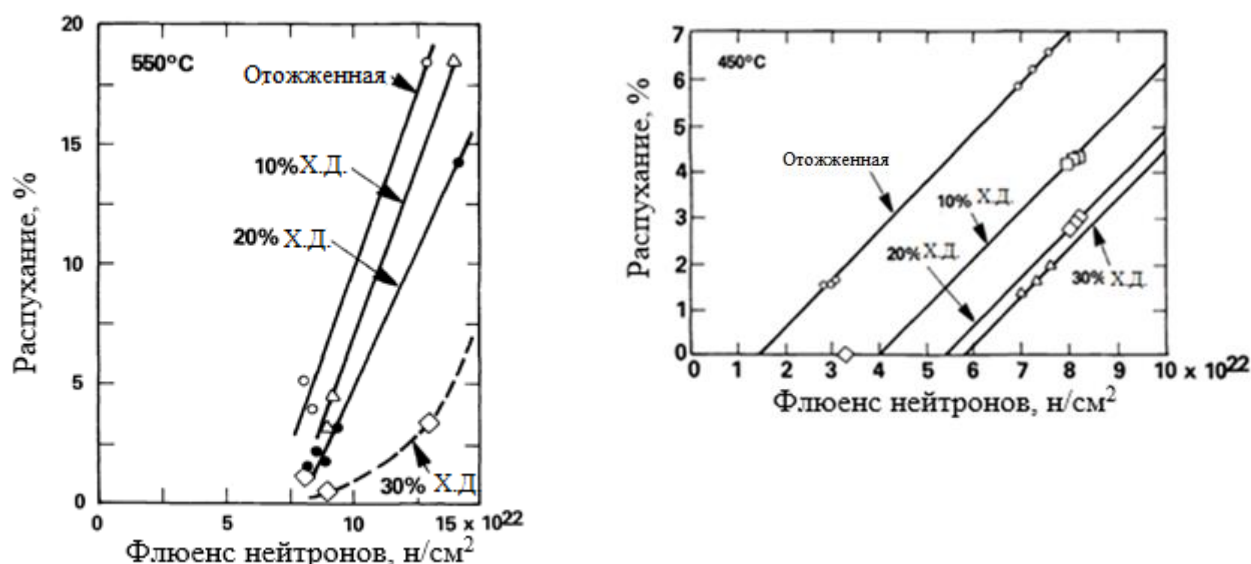


Рисунок 1.15 – Влияние холодной деформации на распухание сталей AISI 316 и AISI 304 [126]

Для облученного материала, в исходном состоянии подвергнутого холодной деформации со степенями  $\sim 5$  и 10% [126], при относительно высоких температурах (порядка 600 °C) наблюдалось самое сильное распухание по сравнению с отожженным и деформированным на 20 и 30% материалом (рисунок 1.16, а). В работе [132] было показано, что при низком уровне деформации скорость распухания при высоких дозах (65...70 снэ) увеличивается (рисунок 1.16, б). Однако, как было рассмотрено выше, имеет место сильное влияние температуры на распухание, которое в данной работе не было рассмотрено.

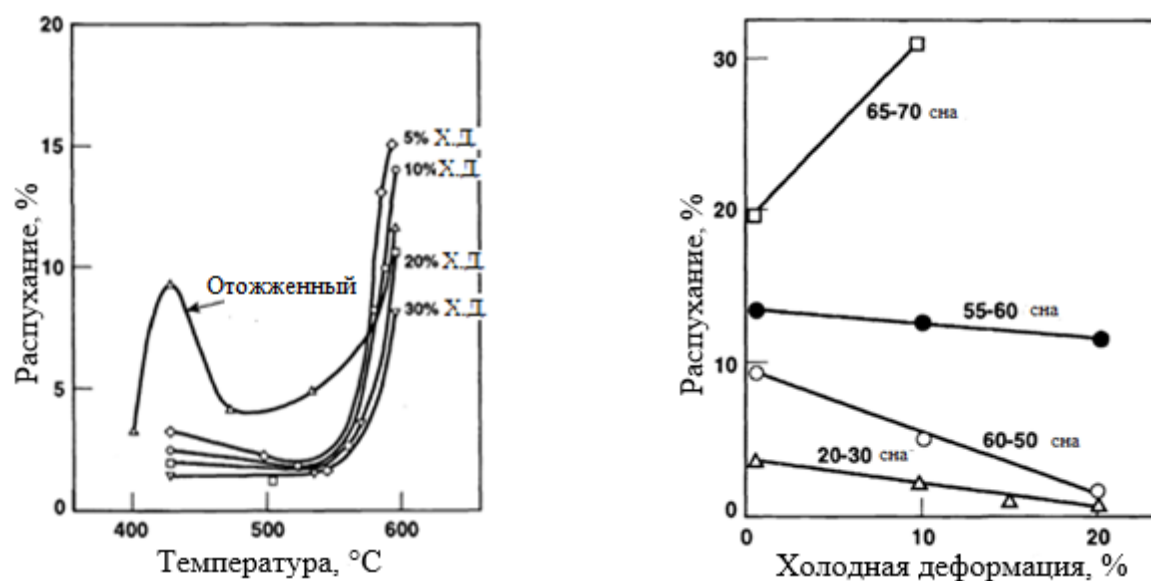


Рисунок 1.16 – Влияние степени деформации на величину распухания стали М316 [126] и стали Х16Н15М3В [126, 132]

В работе [130] проведено исследование аустенитных сталей X16H15M3Б, 0X16H15, 0X16H15M3, 00X16H15M3 и никелевых сплавов 0X17H40Б, 0X20H60Б, ХН77ТЮ после различных термических (гомогенизация, аустенизация), и деформационных обработок ( $\epsilon \sim 5, 10, 20\%$ ) и их различных вариаций после облучения в реакторе БОР–60 до флюенса быстрых нейтронов  $1,1 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2}$ . Авторы приходят к выводу о сильном влиянии структуры, созданной предварительной обработкой, на распухание и характер зарождения пор. По мнению авторов, определяющим фактором в сопротивлении радиационному распуханию являлась дислокационная плотность в образцах до облучения. Отмечается, что наибольшее снижение распухания достигается при 20% холодной деформации. В работе отмечается, что холодная деформация стали 0X16H15M3Б на 10% приводит к неоднородности плотности пор после облучения: от 0,4...7,0% для образцов, подвергнутых холодной деформации на 10%; 7,4...13,5% для образцов, подвергнутых термомеханической обработке при температурах аустенизации, холодной деформации ( $\epsilon \sim 10\%$ ) и отжигу при 800 °С в течение 3 часов. Неоднородное распределение радиационной пористости авторы также объясняют неравномерным распределением дислокаций в объеме образца. Однако стоит отметить, что при термомеханической обработке после отжига при 800 °С дислокационная структура должна была отжечься, при этом неоднородность распухания, определенная гидростатическим методом, сохранилась.

В работе [43, 133] показано, что для стали AISI 316 холодная деформация 30% эффективно снижает распухание при прочих равных условиях (рисунок 1.17).

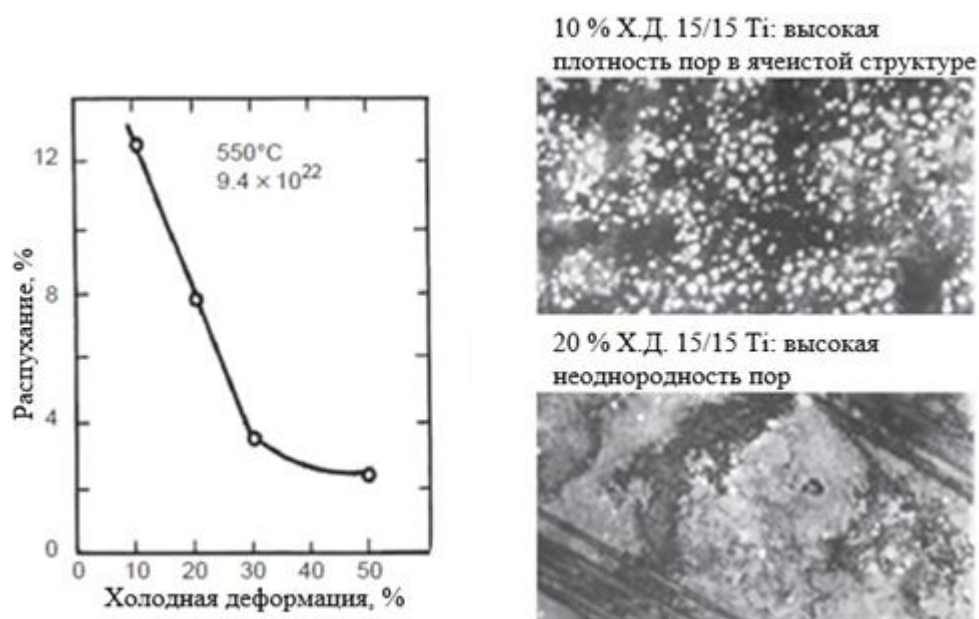


Рисунок 1.17 – Влияние степени деформации на распухание 316 стали при прочих равных условиях [133] и различная структура стали 15/15Ti со степенью деформации 10% и 20% после облучения до  $10^{23}$  см<sup>-2</sup> при 560 °С [43]

Как было отмечено ранее, аустенитные стали для реакторов на быстрых нейтронах имеют энергию дефекта упаковки  $10...40 \text{ мДж/м}^2$ . Это предполагает различное влияние на формирующуюся структуру в зависимости от напряженно деформированного состояния при деформации. В работе [134] проведено сравнение распухания оболочек твэлов, предварительно деформированных на  $\varepsilon \sim 20\%$  разными схемами нагружения. Образцы одинаковой формы, изготовленные различными способами (прокатка, волочение) с одной степенью деформации были помещены под облучение как контрольные (образцы-свидетели) в реактор на быстрых нейтронах. В результате проведенного эксперимента существенно более слабое распухание (почти в два раза меньше) наблюдалось в образцах, изготовленных с применением волочения.

В работе [135] отмечается важность температуры предшествующего отжига перед холодной деформацией 20% на величину распухания. В проведенном эксперименте повышенные температуры отжига приводили к увеличению распухания (рисунок 1.18).

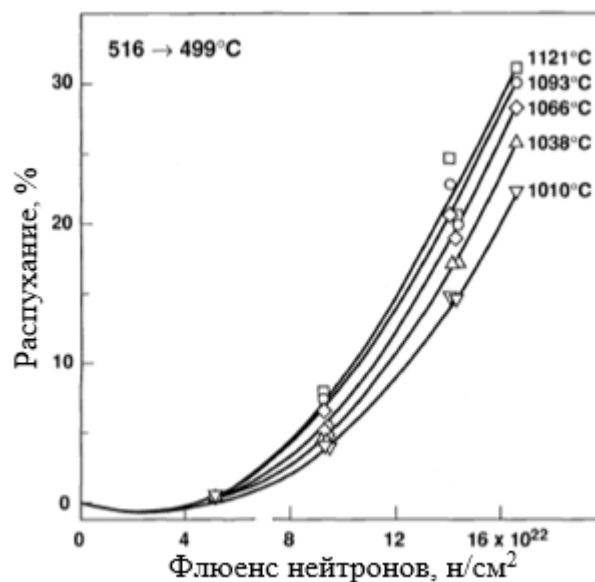


Рисунок 1.18 – Зависимость распухания стали AISI 316 от температуры отжига предшествующего холодной деформации [135]

В то же время старение аустенитной стали 316Ti приводит к более интенсивному распуханию как деформированного, так и отожженного материала [126].

Влияние легирующих и примесных элементов на величину распухания аустенитных сталей рассмотрено в работах [16, 17, 48, 126]. В работе [126] приведены зависимости распухания для сталей с различным содержанием углерода и фосфора (рисунок 1.19). Повышенное содержание углерода в стали 316 в отожженном состоянии приводит к

увеличению инкубационного периода распухания. Увеличение содержания фосфора приводит к подобному эффекту для холоднодеформированной стали 316Ti.

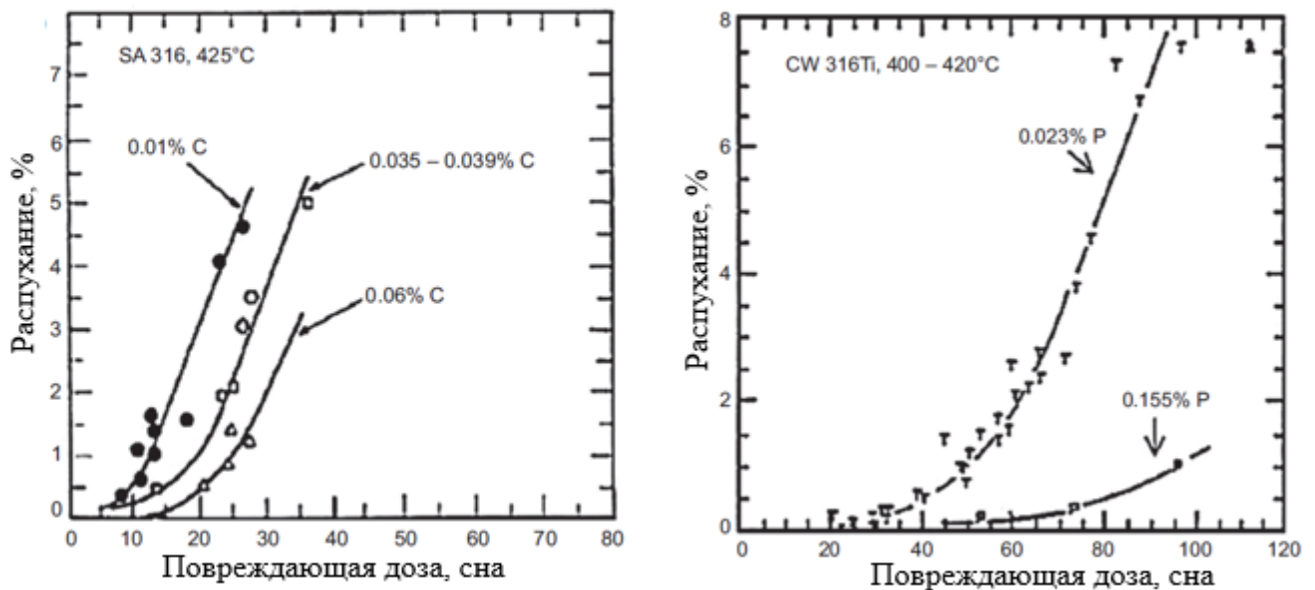


Рисунок 1.19 – Влияние содержания углерода и фосфора на распухание различных вариантов химического состава 316 аустенитной стали [126]

Влияние растягивающих напряжений на распухание стали 316L рассмотрено в работе [136]. Авторами показано, что растягивающие напряжения приводят к ускорению распухания как отожженного материала, так и материала, деформированного на 20%. Авторами объясняется увеличение скорости распухания за счет формирования соответствующей дислокационной структуры и диффузией междоузельных атомов. Исследование газонаполненных труб из аустенитной стали 16X15H2MTГ также показало влияние растягивающих напряжений на увеличение скорости распухания [137]. Влияние напряжений различного знака для стали 08X18H10T на концентрацию дислокационных петель и пор на стадии инкубационного периода распухания приведено в работе [138]. Показано, что независимо от знака напряжения (сжимающее или растягивающее) влияние на концентрацию дислокационных петель и вакансионных пор на стадии инкубационного периода одинаковое.

Термическая обработка и деформация материала определенного состава определяют формирование исходной микроструктуры. Во многих работах, в частности [16, 17, 48, 126] отмечалось, что эволюция материала под действием облучения также играет определенную роль в распухании. В процессе облучения нейтронами возможно формирование радиационно-индуцированных и стимулированных фаз (то есть фаз, которые не образуются при эксплуатации материала при такой же температуре, но без облучения). Также возможна реализация процессов формирования радиационно-индуцированных сегрегаций и процессов

растворения выделений вторых фаз. При этом исходные термическая обработка и деформация металла формируют распределение как легирующих элементов, так и элементов структуры (дислокации, границы) и выделений вторых фаз, то есть локальную концентрацию легирующих элементов.

Для оценки характеристик радиационной пористости обычно используют гистограммы распределения пор по размерам. В работе [139] после облучения стали 316 в реакторе HFIR при температурах 300, 400 и 500 °С до повреждающих доз 35 сна были получены гистограммы распределения пор по размерам для отожженного и деформированного на 20% материала (рисунок 1.20). В результате набухание исходно деформированного материала было заметно меньше. На гистограммах для деформированного материала выделяется заметная многомодальность распределения, в то время как на отожжённом материале распределение близко к одномодальному. Многомодальность распределения пор по размерам наблюдается в современных отечественных аустенитных материалах [27, 32–34, 137].

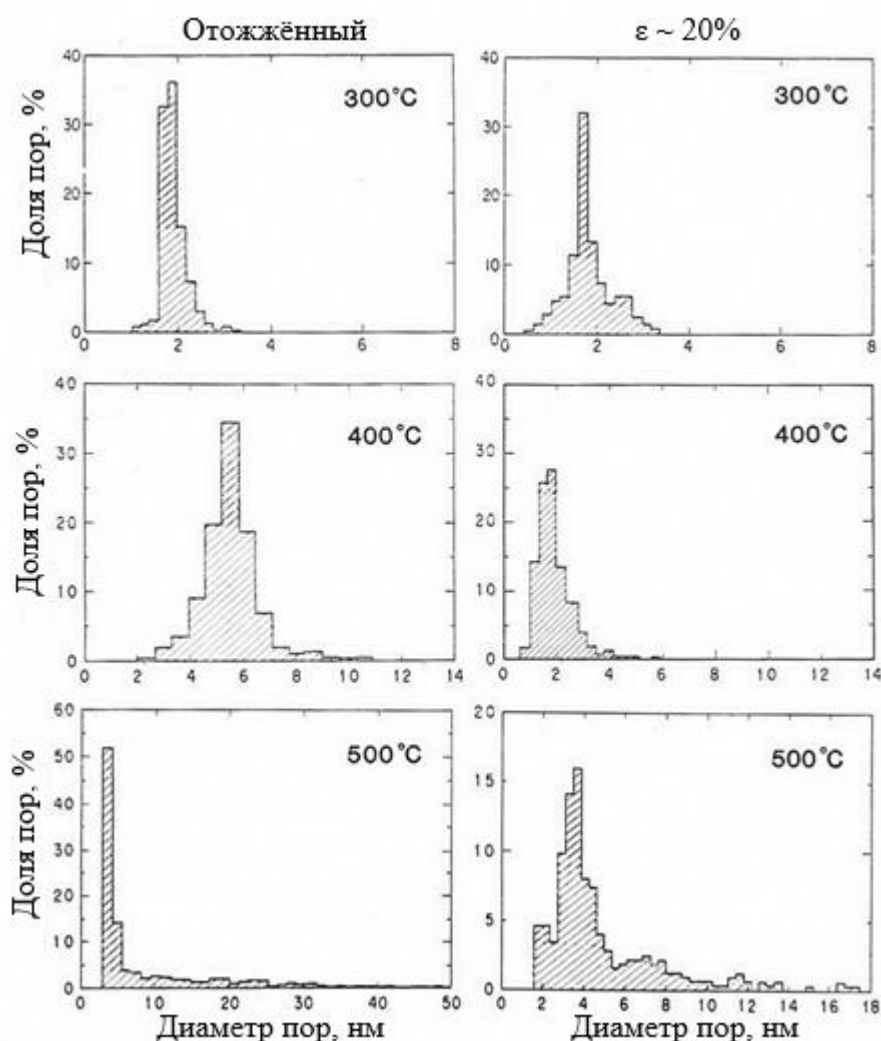


Рисунок 1.20 – Гистограммы распределения пор по размерам для облученной при различных температурах отожженном состоянии и деформированной  $\epsilon \sim 20\%$  стали AISI 316 [139]

Влияние размера зерна на величину распухания аустенитных сталей не однозначно. Уменьшение размера зерна ведет к увеличению распухания. В работе [130] отмечается, что сталь 0X16H15M3Б с мелким зерном (3...5 мкм) распухает почти в 3 раза больше, чем такая же по составу сталь с размером зерна 30...50 мкм. Для наноструктурированных аустенитных сталей получено значительное снижение [140] и даже подавление [141] распухания при имитационном облучении. Для данного класса материалов представляет интерес поведение массивных изделий в условиях реакторного облучения, но данных по этой теме практически нет.

Еще один подход к термической обработке аустенитных сталей связан с инженерией границ зерен (ИГЗ) [142]. В аустенитных сталях, используемых в атомной промышленности, в отожженном состоянии значительную долю границ составляют специальные границы  $\Sigma 3$  (двойниковые) из модели решетки совпадающих узлов [143]. В работе [144] предпринята попытка снижения распухания для стали PNC316, используя подход ИГЗ (рисунок 1.21). В результате облучения отожженной, подвергнутой ИГЗ и ИГЗ с последующей холодной деформацией ( $\epsilon \sim 20\%$ ) стали PNC316 получено повышение распухания для крупнозернистой ИГЗ стали по сравнению с отожженной PNC316. Деформация на 20% привела к заметному снижению распухания.

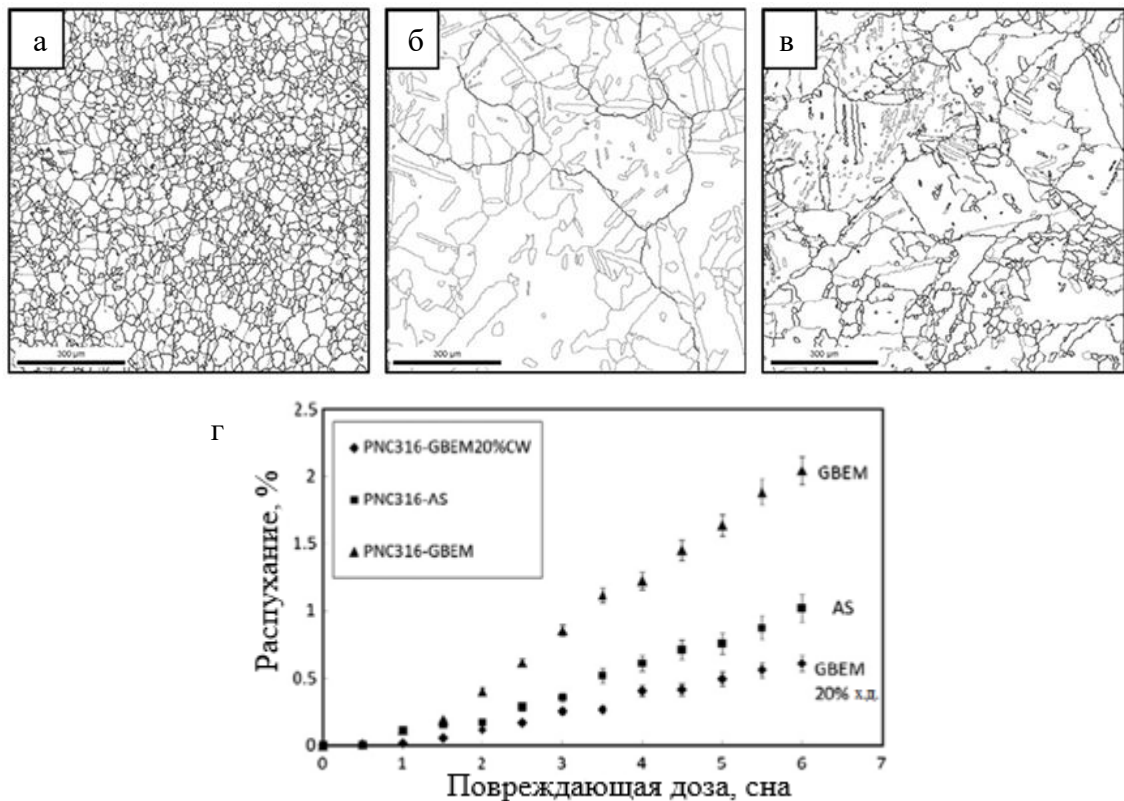


Рисунок 1.21 – Микроструктурное состояние отожженной (а), ИГЗ (б) и ИГЗ с последующей холодной деформацией ( $\epsilon \sim 20\%$ ) (в) стали PNC316 и распухание разных вариантов обработки при определенных повреждающих дозах (г) [144]

В основе использования управлением структурой металлов при помощи наноструктурирования или ИГЗ для снижения распухания лежит предположение о различной силе и склонности элементов структуры к поглощению точечных дефектов [4, 13, 35]. Еще в ранних работах по исследованию распухания было отмечено формирование обедненных по порам зон вблизи границ зерен. В работе [145] рассматривается эффективность стока на границы в зависимости от их типа при облучении меди ионами He. Авторы показали, что ширина обедненной зоны около границы  $\Sigma 3$  была меньше, чем у границы общего типа. Также отмечено, что ширина обедненной зоны коррелирует с разориентацией между решетками соседствующих зерен. На границах зерен наблюдались поры, но меньшего размера, чем в самом кристаллите.

В работе [146] авторы предлагают использование высокоэнтропийных сплавов (концентрированные металлические твердые растворы, включающие не менее чем 5 элементов) в качестве материалов с повышенной стойкостью к радиационным повреждениям. По мнению авторов, за счет природы данных систем зарождение и рост газовакансионных пузырьков и пор происходит медленнее, чем в промышленных аустенитных сталях. Проведено облучение ионами He и Xe сплавов FeCrNiMn и AISI 348. Авторами отмечается меньший средний размер пор в сплаве FeCrNiMn.

Влияние исходного состояния материала перед облучением зависит от состава (в том числе локального) и структурного состояния (в том числе локального). В целом, холодная деформация снижает радиационное распухание металла, по сравнению с недеформированным. Однако в общем случае, синергетический эффект влияния различных параметров мезоструктуры на формирование радиационной пористости в настоящее время сложно предсказуем.

## 1.7 Цель и задачи исследования

Многофакторность процесса радиационного повреждения металлов и сплавов, а также сложности экспериментального исследования эволюции точечных дефектов позволяют исследовать только следствие синергетического действия всех вышеперечисленных факторов.

Исходя из стадийности радиационного распухания, склонность металла или сплава к нему определяется длительностями стадий инкубационного периода и нестационарного распухания, а также скоростью распухания на стационарной стадии. Состав и исходное состояние сплавов Fe-Cr-Ni, сорт и энергия бомбардирующих частиц, температура облучения и скорость повреждения определяют развитие пористости на стадии нестационарного распухания. Вероятно, постоянство скорости распухания на стационарной стадии зависит от

энергетических характеристик точечных дефектов и их комплексов, а также от площадей поверхности, с которыми происходит их взаимодействие.

Различное поведение точечных дефектов и наличие преференциальности для их пространственного перераспределения позволяют поставить вопрос о влиянии микроструктуры на процесс зарождения и роста пор. Как правило, в большинстве моделей, позволяющих проводить количественное описание эволюции точечных дефектов и их влияние на порообразование, это не учитывается в полном объеме. Как было показано в экспериментах в конце 80-х годов, стабильная плотность дислокаций устанавливается в зависимости от условий облучения за относительно короткое время независимо от структурного состояния.

С одной стороны, по химическому составу в пределах допусков промышленного производства отечественные и зарубежные материалы близки. С другой стороны, неоднородность химических элементов кардинально меняет локальное состояние металла (фазовое состояние, ЭДУ). Для аустенитных сталей с ЭДУ от 10...40 мДж/м<sup>2</sup> деформация в зависимости от условий (состав, температура, напряженно-деформированное состояние) может реализовываться не только скольжением, но и двойникованием. Необходимо отметить, что в большинстве работ, затрагивающих аустенитные стали используемые в атомной энергетике, недостаточно внимания уделено двойникованию, как одной из основных мод деформации данных материалов. При этом двойниковые границы являются одним из стабильнейших мезоструктурных элементов в аустенитных сталях.

Длительное действие облучения может приводить к изменению состава и перераспределению элементов в сплаве.

Цель работы: установление закономерностей формирования радиационных повреждений аустенитных сталей под действием нейтронного облучения в зависимости от их мезоструктурного состояния.

Задачи:

- 1 Разработка подходов и методик, позволяющих количественно исследовать радиационную пористость и эффекты радиационного повреждения на конструкционных элементах реактора.

- 2 Выявление особенности формирования радиационной пористости аустенитных сталей различного легирования в полях нейтронного облучения и градиента температур.

- 3 Определение влияния межкристаллитных границ и дисперсных выделений на формирования радиационной пористости в структуре аустенитных сталей.

- 4 Установление влияния длительного нейтронного облучения на стабильность структуры и фазового состава аустенитных сталей.

## ГЛАВА 2 МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКИ ИССЛЕДОВАНИЯ

### 2.1 Материал исследования

В качестве материалов исследования были выбраны образцы промышленных сталей, используемых в ядерной энергетике [147, 148], химический состав которых приведен в таблице 2.1.

Высоколегированные аустенитные стали 06X16H15M2Г2ТФР (ЧС68) и 07X16H19M2Г2БТФПР (ЭК164) используются для изготовления оболочек (оболочечных труб) тепловыделяющих элементов в реакторах на быстрых нейтронах. Подробная схема производства оболочечных труб приведена в [83, 85]. Образцы из сталей ЧС68 и ЭК164 на заключительных этапах изготовления проходили гомогенизирующий отжиг и подвергались холодной деформации на величину  $\sim 20\%$ . После изготовления образцы подвергались нейтронному облучению в реакторе на быстрых нейтронах при температурах от 430 до 590 °С до повреждающих доз от 64 до 93 сна в течение нескольких лет.

Аустенитная сталь 10X18H9 используется для изготовления внутрикорпусных устройств реакторов на быстрых и тепловых нейтронах. Образцы стали перед облучением находились в отожженном состоянии. Исследование состояния образцов из 10X18H9 проведено после многолетнего нейтронного облучения до повреждающих доз до  $\sim 34$  сна при температурах до 550 °С.

Образец из стали ЭП-823 исследовался в состоянии поставки. Заключительным этапом изготовления образцов являлась закалка от 1050 °С с последующим отпуском при 700 °С.

Таблица 2.1 – Химические составы исследованных сталей [147, 148]

| Марка<br>стали | Содержание элементов, мас. % |      |      |      |     |      |      |     |      |      |       |       |       |      |
|----------------|------------------------------|------|------|------|-----|------|------|-----|------|------|-------|-------|-------|------|
|                | C                            | Cr   | Ni   | Si   | Mn  | Mo   | V    | W   | Nb   | Ti   | B     | P     | Ce    | Fe   |
| ЧС68           | 0,06                         | 16,0 | 15,0 | 0,4  | 1,8 | 2,2  | 0,14 | –   | –    | 0,40 | 0,003 | –     | –     | ост. |
| ЭК164          | 0,07                         | 16,0 | 19,0 | 0,4  | 1,8 | 2,0  | 0,15 | –   | 0,25 | 0,35 | 0,003 | 0,022 | 0,015 | ост. |
| 10X18H9        | 0,09                         | 17,7 | 8,8  | 0,38 | 1,4 | –    | –    | –   | –    | –    | –     | 0,025 | –     | ост. |
| ЭП823          | 0,16                         | 11,0 | 0,65 | 1,2  | –   | 0,75 | 0,3  | 0,7 | 0,3  | –    | 0,006 | –     | –     | ост. |

## 2.2 Методики исследования

### 2.2.1 Гидростатическое определение плотности

Определение плотности материала образцов оболочек твэлов методом гидростатического взвешивания проводилось на весах марки "Sartorius", оборудованных приспособлением для определения плотности – модель YDK01.

В качестве вспомогательной жидкости использовался этиловый спирт. Образцами являлись отрезки оболочек твэлов без топлива длиной 30...32 мм. Подготовка образцов перед взвешиванием заключалась в химическом стравливании остатков топливной композиции в технической азотной кислоте в течение 10 минут и последующем удалении шлама в ультразвуковой ванне генератора УЗГ-3-04. Высушивание образцов после операций очистки проводилось при температуре не более 200 °С.

Расчет плотности выполнялся по формуле

$$\gamma = \frac{M_B \times (\gamma_{\text{ж}} - \sigma)}{0,99983 \times (M_B - M_{\text{ж}})} + \sigma, \quad (2.1)$$

где  $\gamma$  – плотность материала образца, г/см<sup>3</sup>;

$\gamma_{\text{ж}}$  – плотность жидкости, г/см<sup>3</sup>;

$M_B$  и  $M_{\text{ж}}$  – показания весов при взвешивании образца на воздухе и в жидкости соответственно, г;

$\sigma$  – типовое значение плотности сухого атмосферного воздуха при давлении 740 мм рт.ст. и температуре 20 °С равное 0,001173 г/см<sup>3</sup>;

0,99983 – корректирующий коэффициент, поправка на погрешность измерений выталкивающей силы от погруженной в жидкость корзинки для образцов (в наборе YDK01 при использовании стакана диаметром 76 мм и двух проволок диаметром 0,7 мм).

Измерение плотности спирта проводилось стеклянным отвесом из набора YDK 01. Температура спирта во время измерений составляла 23...26 °С.

По результатам определения плотности рассчитывалось радиационное распухание  $S$  по формуле

$$S = \frac{\gamma_0 - \gamma}{\gamma} \cdot 100 \%, \quad (2.2)$$

где  $\gamma_0$  – плотность материала образца в районе нижней газовой полости, либо вверху АкЗ.

Погрешность измерения плотности гидростатическим методом составляла 0,1%.

### 2.2.2 Пробоподготовка образцов

Для проведения структурных исследований оболочек твэлов после эксплуатации, в «горячих» камерах института реакторных материалов (АО «ИРМ»), изготавливались сегментные образцы. Из оболочек в виде трубок после разделки твэла и удаления топливной композиции на отрезном станке вырезали кольца или сегменты размером порядка 3х3 мм.

Образцы для исследований (в торцевом сечении твэлов) 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 для полного удаления наклепанного слоя.

Образцы для ПЭМ (продольное сечение) были подготовлены следующим образом - при помощи шлифовки проведено механическое утонение сегмента оболочки размером 3х3 мм до фольги толщиной приблизительно 130 мкм с последующей двухструйной электролитической полировкой в электролите 10% HCl + 90% CH<sub>3</sub>COOH при температуре 10 °С.

### 2.2.3 Сканирующая электронная микроскопия

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 x-Act фирмы Oxford Instruments.

Для определения химического состава использовалась приставка энергодисперсионного анализа характеристического рентгеновского излучения (ХРИ), возникающего при сканировании поверхности образца электронным зондом, x-Act 6 фирмы Oxford Instruments. В результате взаимодействия электронного пучка с поверхностью образуется область генерации ХРИ, которая зависит от состава исследуемого объекта (плотность материала, входящие в состав элементы) и ускоряющего напряжения [149]. Исследование элементного состава проходило при ускоряющем напряжении 20 кВ. Размер зоны ХРИ для исследуемых образцов

сталей при данном ускоряющем напряжении составлял от 1 до 1,5 мкм. Систематическая погрешность определения элементов при помощи энергодисперсионного детектора составляла 0,1 мас. %.

Для определения ориентировки отдельных зерен и анализа локальной структуры [113] использовали приставку дифракции обратно отраженных электронов (EBSD) Nordlys Nano фирмы Oxford Instruments. В зависимости от целей исследования выбирался соответствующий размер области сканирования. Шаг сканирования составлял от 0,1 до 0,5 мкм, погрешность определения ориентации кристаллической решетки – не более  $\pm 1^\circ$  (в среднем  $\sim \pm 0,5^\circ$ ). Для разориентаций  $\geq 10^\circ$  проводились высокоугловые границы.

Выявление границ решетки совпадающих узлов (PCY) между зернами, включая двойниковые –  $\Sigma 3$ , осуществлялся построением их на ориентационных картах с учетом заложенного в программное обеспечение стандартного критерия Брендона  $\pm \Delta\Theta$ . Для каждой PCY-границы он составляет конкретную величину:  $\Delta\Theta = 15^\circ / (\Sigma n)^{1/2}$ , где  $\Sigma n$  – количество совпадающих узлов при наложении трехмерных кристаллических решеток.

Для определения количественных характеристик границ двойников на ориентационных картах определялась их удельная длина  $\Sigma L_{\text{дв}} = L_{\text{дв}} / S_k$  и удельная длина всех высокоугловых межзеренных границ (за исключением двойниковых)  $\Sigma L_{\text{г}} = L_{\text{г}} / S_k$  (где  $\Sigma L_{\text{дв}}$ ,  $\Sigma L_{\text{г}}$  – суммарные длины границ двойников и границ зерен на карте,  $S_k$  – площадь карты) [150, 151]. Удельная площадь границ выражалась через удельную длину, как  $\Sigma S = 4 \Sigma L_{\text{дв}} / \pi$ . Кроме того, методом секущих определялся средний размер зерна, связанный с удельной площадью границ зерен приведенным выше соотношением. Для определения удельных площадей поверхности высокоугловых и двойниковых границ использовались ориентационные карты, полученные на образцах свидетелях.

Для определения распухания была использована доработанная методика анализа числа частиц в объеме при анализе по срезу [150] с учетом видимости пор и граничных поверхностей.

### 2.2.3 Просвечивающая электронная микроскопия

Просвечивающая электронная микроскопия проводилась на микроскопе JEOL 2000EXII с использованием двухосевого гониометра при ускоряющем напряжении 120 кВ. Толщина исследуемого участка фольги определялась по измерению проекционной ширины границ зерен при наклоне образца [152, 153].

Количественная обработка изображений для получения среднего размера пор проводилась с использованием программного обеспечения SIAMS Photolab. В качестве среднего размера пор в работе приводится усредненный видимый размер, полученный по

измерениям наружного диаметра в одном сечении (в плоскости фольги параллельной оси оболочки). Для определения распухания была использована доработанная методика анализа числа частиц в объеме при анализе по срезу [150] с учетом граничных поверхностей.

### 2.2.3 Рентгеноструктурные исследования

Рентгеноструктурный анализ проводился на дистанционном рентгеновском дифрактометре D8 ADVANCE, размещенном в «горячей» камере АО «ИРМ» в излучении  $K_{\alpha}$  Cu. Исследование структурных характеристик образцов проводилось на образцах длиной 5 мм, с которых шлифовкой снимали слой глубиной 100...150 мкм. Последнее выполнялось с целью получения плоской поверхности. Наклепанный слой удаляли электрохимическим травлением.

Съемку на дифрактометре проводили в необходимых интервалах углов с экспозицией 20 секунд и шагом  $0,05^{\circ}$ .

Для расчета параметра решетки материала оболочки использовали рефлексы (111), (200), (220), (311) и (331). Искривленность кристаллической решетки материала оболочки оценивали по линии (331).

Точность определения параметра решетки составляла  $\pm 0,00005$  нм, погрешность в определении полуширины линии – до 10 %.

Для определения фазового состава проводили съемку с поверхности образцов в режиме дискретного сканирования с шагом  $0,05^{\circ}$  в интервалах (по  $2\theta$ ):  $30^{\circ}$ ... $53^{\circ}$  с экспозицией 0,2 с до набора суммарной экспозиции 2 с, с усреднением полученных данных.

### ГЛАВА 3 РАЗРАБОТКА МЕТОДИК АНАЛИЗА МЕЗОСТРУКТУРЫ В КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛАХ ДЛЯ РЕАКТОРОВ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ

#### 3.1 Методики анализа радиационной пористости с использованием сканирующей электронной микроскопии

В результате длительного воздействия быстрых нейтронов (с энергией больше 0,1 МэВ) в аустенитных сталях в интервале температур от 0,3...0,6  $T_{пл}$  происходит образование и рост радиационных пор [19]. Зародышами радиационных пор являются газо-вакансионные пузырьки, которые образуются из вакансий и наработанного в ходе трансмутационных процессов гелия (и других легких газов) [45, 50, 59, 60]. В результате возникновения неравновесных концентраций вакансий и междоузельных атомов в процессе облучения, происходит рост (превращение) газо-вакансионных зародышей в вакансионные поры. Радиационная пористость оказывает влияние как на физические, так и механические свойства элементов конструкций ядерных реакторов на быстрых нейтронах. Установление закономерностей этого влияния является необходимым условием для достаточно продолжительной эксплуатации блоков ядерных реакторов.

В настоящее время радиационную пористость исследуют в основном двумя методами: интегральным (гидростатическое взвешивание, измерение изменения геометрических размеров) и локальным (просвечивающая электронная микроскопия – ПЭМ) [4]. Гидростатическое взвешивание является, по существу, только объемным методом определения физической характеристики материала, а именно плотности, и ничего не говорит о параметрах радиационной пористости. При исследованиях методами ПЭМ наблюдается практически весь спектр размеров пор, а также места их предпочтительного формирования в микроструктуре материала, с возможностью проведения количественных анализов. Однако этот способ включает в себе проблемы, связанные с пробоподготовкой – сложности дистанционной вырезки тонкой фольги из массивной высокоактивной заготовки. Кроме того, небольшой объем исследуемой области и недостаточная точность ее позиционирования по толщине заготовки затрудняют получение статистически представительных результатов и оценку их макроскопической однородности.

Современные сканирующие электронные микроскопы обладают увеличением, сравнимым с просвечивающей электронной микроскопией и возможностью исследовать большие площади поверхности материала. Самым распространённым способом построения картин поверхности исследуемого материала в сканирующей электронной микроскопии (СЭМ)

является детектирование вторичных и отраженных электронов [154, 155]. Эмиссия вторичных электронов зависит от состава материала, параметров кристаллической решетки и физических свойств исследуемой поверхности. Для вторичных электронов глубина выхода с поверхности составляет по разным источникам от 1 до 50 нм [149, 154, 155]. На эмиссию отраженных электронов в большей степени влияет средний атомный номер химических элементов в области генерации электронов и плотность исследуемого вещества. По приблизительным оценкам из [153] глубина выхода отраженных электронов не превышает 100 нм. Согласно [154, 155] для отраженных (упруго рассеянных) электронов глубина выхода зависит от среднего атомного номера и ускоряющего напряжения, и по приблизительным оценкам составляет ~ 30% от длины свободного пробега электронов в материале, рассчитанной по модели Канайи-Окаямы [154]. В таблице 3.1 приведены длины свободного пробега электронов в различных материалах. Результаты работ [153, 154], посвященных моделированию упругого рассеяния электронов методом Монте-Карло, говорят о плавном изменении энергии отраженных электронов и проблематичности определения точного значения глубины выхода отраженных электронов. При этом область генерации отраженных электронов в материале имеет размер больше диаметра первичного пучка электронов [149, 154, 155, 156], что ухудшает пространственное разрешение микроскопа.

Таблица 3.1 – Зависимость длины свободного пробега (глубины выхода –  $R_{\max}$ ) электронов от ускоряющего напряжения и атомного номера химического элемента [153]

| Материал | Z  | $R_{\max}$ при определенном ускоряющем напряжении, мкм |        |        |        |        |
|----------|----|--------------------------------------------------------|--------|--------|--------|--------|
|          |    | 5 кэВ                                                  | 10 кэВ | 20 кэВ | 30 кэВ | 40 кэВ |
| Al       | 13 | 0,41                                                   | 1,32   | 4,20   | 8,27   | 13,37  |
| Si       | 14 | 0,41                                                   | 1,31   | 4,17   | 8,21   | 13,27  |
| Ti       | 22 | 0,27                                                   | 0,88   | 2,80   | 5,51   | 8,91   |
| Fe       | 26 | 0,16                                                   | 0,51   | 1,64   | 3,23   | 5,23   |
| Cu       | 29 | 0,14                                                   | 0,46   | 1,48   | 2,92   | 4,73   |
| Ag       | 47 | 0,13                                                   | 0,43   | 1,37   | 2,71   | 4,38   |
| Au       | 79 | 0,08                                                   | 0,27   | 0,86   | 1,69   | 2,74   |

Диаметр зонда СЭМ в точке контакта с исследуемой поверхностью зависит от параметров электронной системы (хроматическая абберрация, сферическая абберрация, эффект дифракции электронного пучка), ускоряющего напряжения и плотности тока электронного пучка [155]. Современные электронные микроскопы, особенно с полевым катодом Шотки,

обладают диаметром пучка в точке фокусировки около 10 нм (100 Å). При этом возможно добиться размера около 5 нм при ускоряющем напряжении 30 кВ и токе пучка около 500 пА, что по данным работы [156] можно отнести к растровой электронной микроскопии высокого разрешения. При подобных параметрах пучка область генерации электронов представляется в виде «груши» (рисунок 3.1) [155, 157].

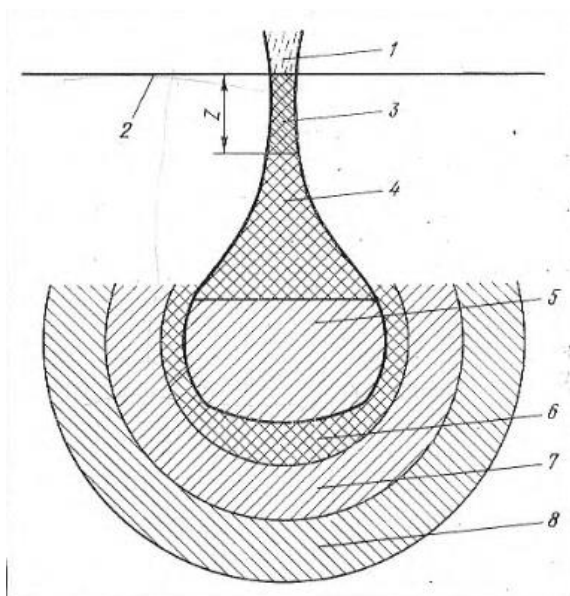


Рисунок 3.1 – Схематическое представление области взаимодействия электронного пучка с веществом [157]: 1 – первичный пучок электронов, 2 – поверхность объекта, 3 – область генерации вторичных электронов (с энергией меньше 50 эВ), 4 – область генерации отраженных электронов, 5 – первичное рентгеновское излучение, 6 – тормозное излучение, 7 – вторичное флуоресцентное (характеристическое и непрерывное) излучение, 8 – отраженные рентгеновские лучи и дифракция по Косселю

В случае если при взаимодействии электронного пучка с веществом область взаимодействия принимает вид подобной груши, то область, в которой электронный пучок проходит через материал с малым рассеиванием представляет интерес для использования в исследовании радиационной пористости. Соответственно, при сканировании поверхности радиационная пора, как объемный дефект должна вносить изменения в величину отраженных электронов при расположении ее в зоне отраженных электронов (рисунок 3.2).

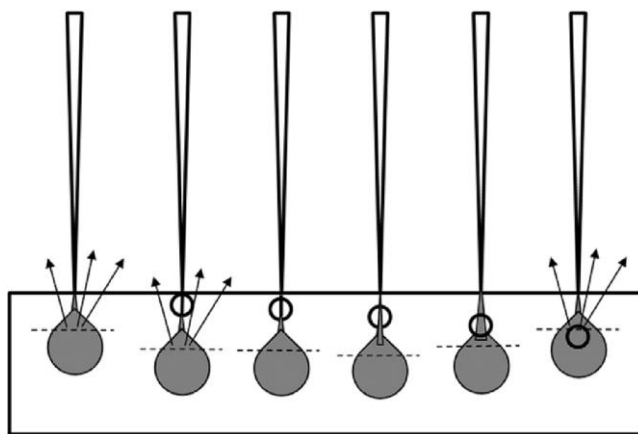


Рисунок 3.2 – Предполагаемая схема взаимодействия пучка электронов с порой, находящейся на различной глубине под поверхностью

Применение СЭМ в исследовании радиационной пористости диоксидного уранового топлива показано в работе [158]. Исследование пористости проведено на сколах керамической композиции после эксплуатации. В АО «ИРМ» исследование радиационной пористости при помощи СЭМ (с использованием отраженных электронов) на шлифах диоксидной композиции проведено Авериным С. А. и Панченко В. Л. [159]. Радиационная пористость, развивающаяся в топливной композиции в большей степени, зависит от выделяющихся газов, в отличие от конструкционных материалов. Отличие характеристик материалов (керамическое топливо и аустенитные стали) приводит к различным требованиям к поверхности для реализации возможности исследования радиационной пористости.

Одно из важнейших требований к исследованию радиационной пористости является соответствие исследуемой поверхности отражению реальной структуры образца. Вследствие этого возникает вопрос качества пробоподготовки и состояния поверхности. При приготовлении шлифов происходит существенное механическое воздействие на поверхность образца. По этой причине на заключительных этапах пробоподготовки механическое воздействие должно сводиться к минимуму, но при этом оно должно устранять следы влияния предыдущих стадий.

В настоящее время, самыми распространёнными методиками, удовлетворяющие предъявляемым условиям, являются – механическая шлифовка с последующим химико-механическим полированием и электролитическая полировка. Механическая обработка поверхности приводит к образованию наклепанного слоя материала, испытавшего пластическую деформацию, толщиной приблизительно 5...10 мкм. Химико-механическая полировка на коллоидном кремнии приводит к устранению данной проблемы для проведения исследований методом ориентационной микроскопии. Однако исследование радиационных пор

на поверхности, обработанной коллоидным кремнием, при помощи детектора вторичных электронов остается проблемным, так как область пластической деформации поверхностного слоя присутствует и составляет величину 10...50 нм, о чем свидетельствуют размазанные края выходящих на поверхность пор.

Электролитическая полировка позволяет удалять материал с минимальным повреждением внутренней структуры. Определяющими параметрами обработки являются напряжение и ток. Равномерное поверхностное удаление материала полируемого образца возможно только в определенном интервале напряжения электрического тока. При недостаточном или избыточном напряжении, то есть величине электрического тока, происходит травление поверхности образца по внутренним структурным неоднородностям. В данном случае это может привести к травлению по отдельным радиационным порам, выходящим на поверхность. При исследовании радиационной пористости при помощи детектора вторичных электронов (так называемое использование топографического контраста) возникает вопрос об отражении ее действительных характеристик. Также применение электролитической полировки на массивных образцах различной геометрической конфигурации приведет к сглаживанию углов из-за возникающего на них повышенного электрического потенциала в однородной среде. Это в свою очередь накладывает ограничение на получение плоской поверхности материала образцов, имеющих определенную геометрическую форму и размеры.

Радиационная пористость приводит к изменению геометрических параметров конструкций. Оценка локального состояния изменения геометрических параметров (изменения локального напряженного состояния) по некоторым источникам [4] необходима для обеспечения прогнозов по работоспособности. Как в случае с гидростатическим взвешиванием, так и при использовании ПЭМ существуют погрешности определения величины распухания. В случае гидростатического взвешивания на определения распухания могут повлиять дефектность и смачиваемость поверхности. Для гидростатического взвешивания минимальным чувствительным изменением объема является 0,1 %.

В случае ПЭМ за величину погрешности определения распухания отвечают определяемая толщина фольги (в том числе ее трапециевидность в сечении), на которой исследуются характеристики радиационной пористости и пространственная однородность распределения пор в исследуемом образце. Также при размере пор в несколько раз больше толщины фольги (краевые эффекты) возникает вопрос об их правильной интерпретации.

Анализ сформулированных тезисов приводит к следующим выводам:

– Основные методы исследования радиационной пористости обладают недостатками, которые частично компенсируются в методе СЭМ.

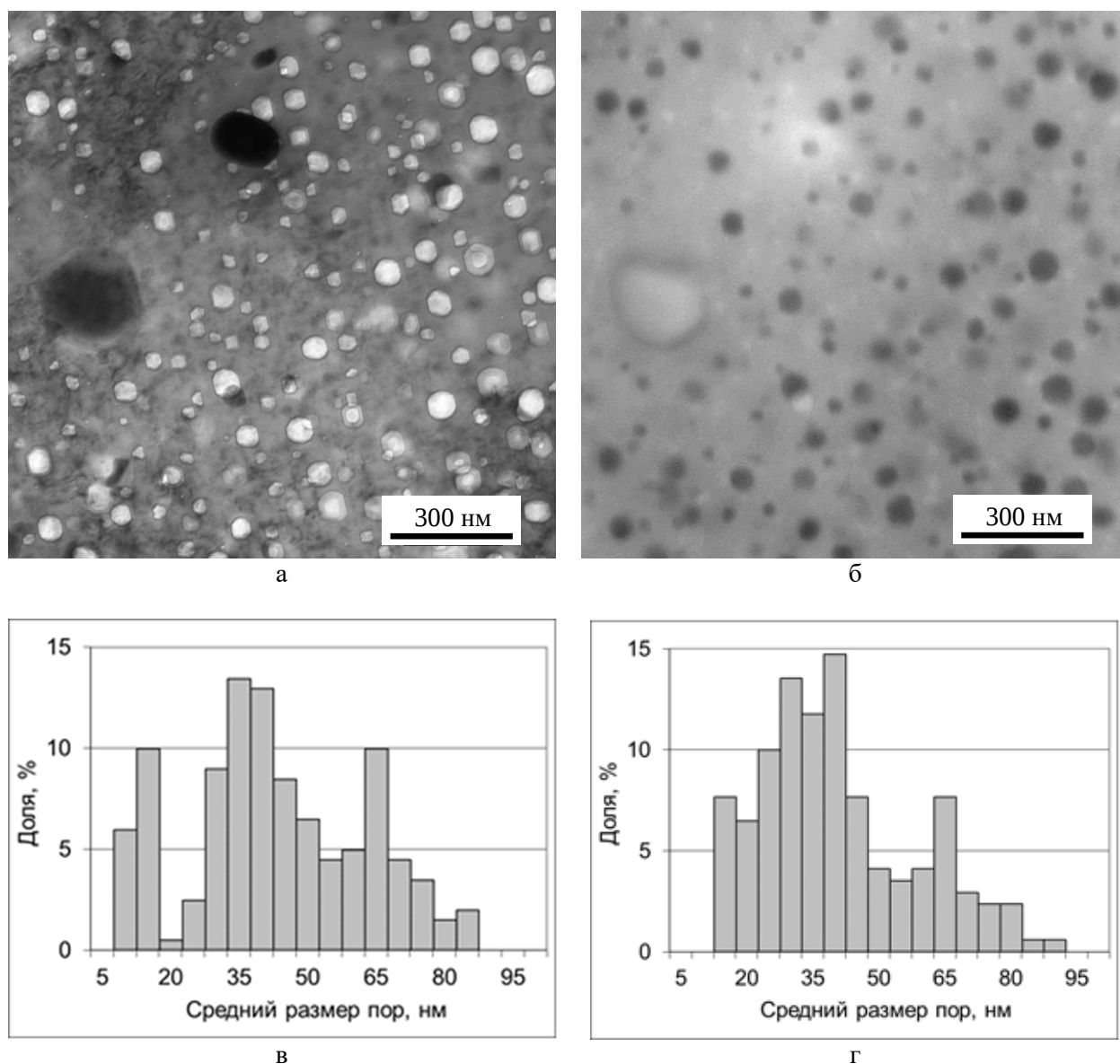
– Для определения точной величины распухания материала необходимо как можно точнее определять характеристики радиационной пористости (средний размер и концентрация), при этом использование детектора отраженных электронов позволяет исследовать слой толщиной не менее 100 нм от поверхности.

– Пробоподготовка может оказать влияние на результаты как ПЭМ, так и СЭМ исследований, но в случае подготовке образцов к СЭМ исследованиям является менее трудоемкой.

– Существует условная предельная глубина определения поры при помощи отраженных электронов. Электронный пучок является щупом, его диаметр имеет значения для разрешающей способности.

Для определения возможного применения СЭМ в исследовании радиационной пористости проведено исследование стали 07X16N19M2Г2БТФПР (ЭК164) после облучения, из которой была приготовлена фольга для ПЭМ исследований [160]. В результате нейтронного облучения стали 07X16N19M2Г2БТФПР до повреждающей дозы 87 сна при средней температуре облучения 490 °С наблюдается радиационная пористость (рисунок 3.3 а). На ПЭМ изображении крупные темные выделения идентифицированы как (NbTi)C, частицы размером меньше чем 100 нм являлись G-фазой. Вакансионные поры выделяются за счет изменения контраста при прохождении пучка электронов через пустоты. На данном увеличении идентифицируются поры размером от 5 до 85 нм. Исследованный методом ПЭМ участок образца показал наличие многомодального распределения размеров пор (рисунок 3.3 в) [27, 32-34].

Исследование того же участка при помощи метода СЭМ (рисунок 3.3 б) показало практически идентичную картину с возможностью идентификации объектов с результатами ПЭМ. За счет разницы в составе на изображении наблюдаются выделения (NbTi)C и наиболее крупные частицы G-фазы. Минимальный размер поры, наблюдаемый при помощи СЭМ от 10 нм. В результате смещения и слияния первой моды распределения пор по размерам ПЭМ в сторону второй на СЭМ распределение размеров пор бимодальное (рисунок 3.3 г).

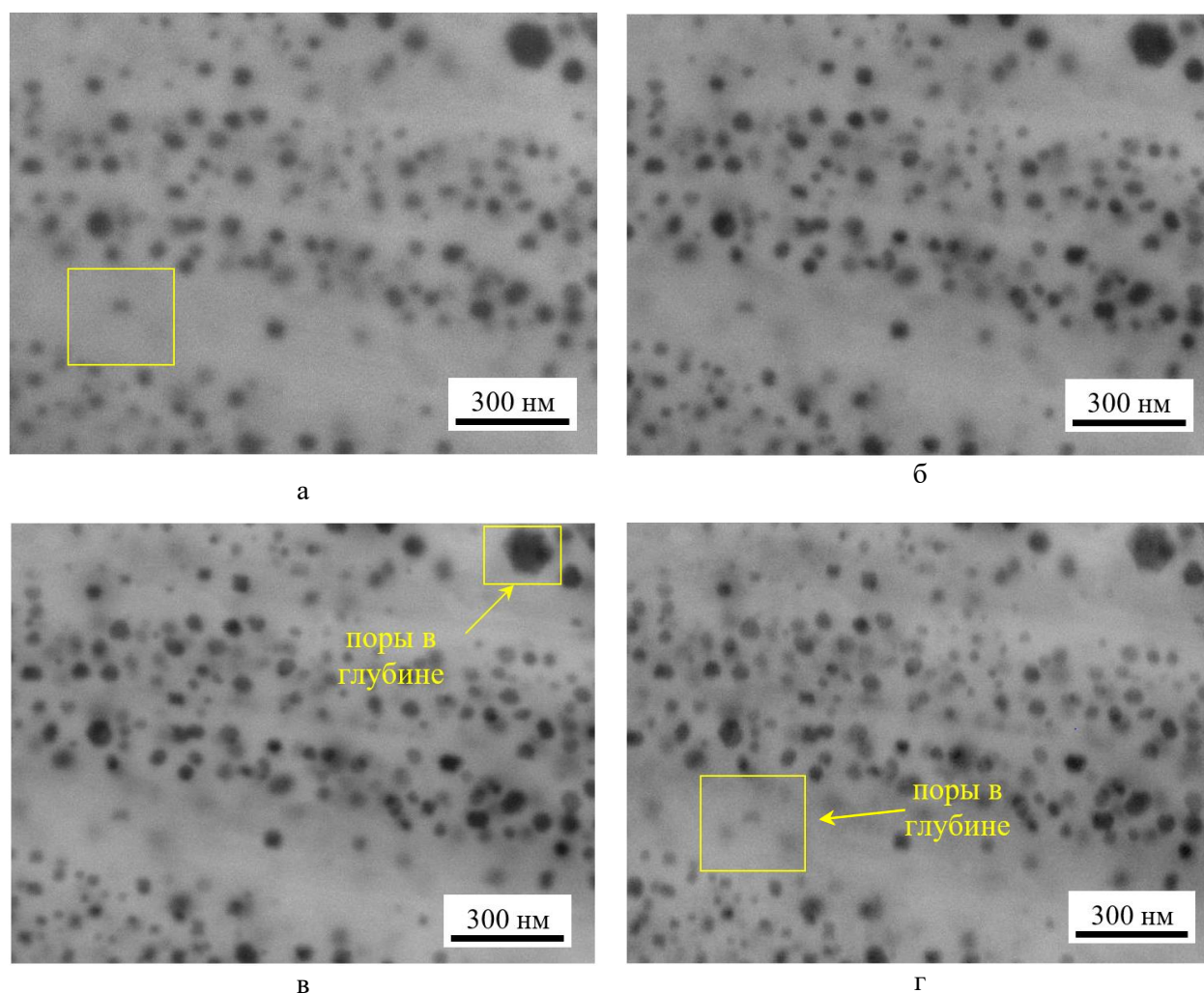


а – ПЭМ изображение; б – СЭМ изображение, полученное при помощи детектора обратно рассеянных электронов (BSE); в, г – гистограммы распределения пор по размерам для ПЭМ и СЭМ изображений

Рисунок 3.3 – Аустенитная сталь 07X16H19M2G2BTФПР (ЭК164) после нейтронного облучения

Основными параметрами электронного пучка являются ускоряющее напряжение и интенсивность (плотность потока электронов). Для определения оптимальных параметров электронного пучка и предельного размера регистрируемых пор проведено два эксперимента: для определения влияния величины ускоряющего напряжения и влияния интенсивности электронного пучка на качество изображений. На рисунке 3.4 приведены изображения одного и того же участка поперечного шлифа сегмента оболочки твэла с накопленной повреждающей

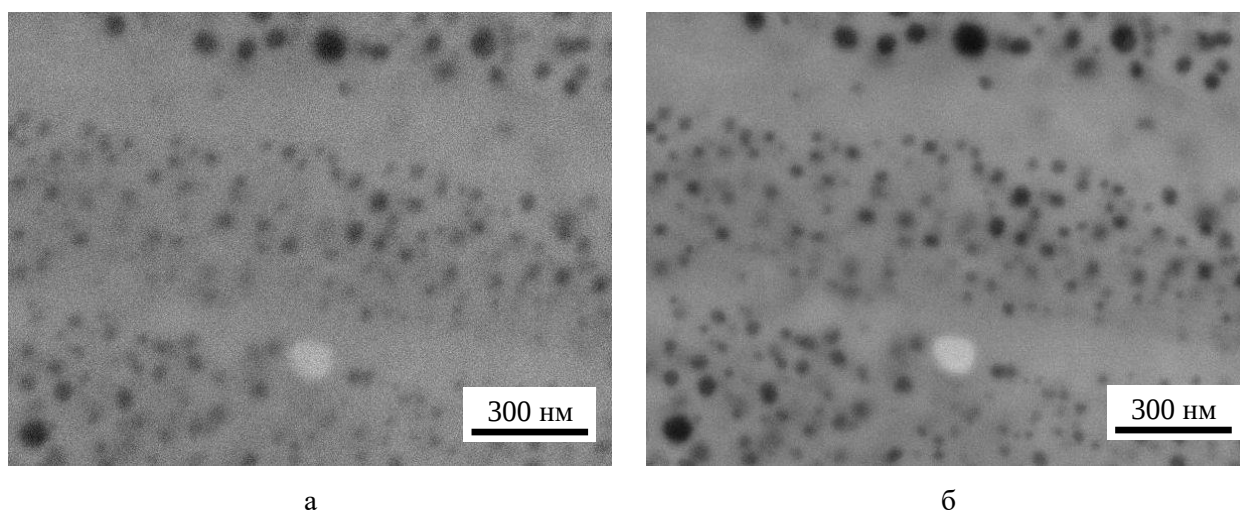
дозой 73 снa при средней температуре облучения 475 °С, полученные с постоянной интенсивностью электронного пучка (постоянная плотность тока), но с различным ускоряющим напряжением. Увеличение ускоряющего напряжения приводит к уменьшению апертурного угла и уменьшению диаметра пучка в точке контакта с поверхностью, что в свою очередь приводит к увеличению разрешающей способности при исследовании радиационной пористости. Это выражается в проявлении кристаллографической огранки пор на изображении. Увеличение энергии электронов приводит к увеличению глубины выхода отраженных электронов и происходит проявление более глубоких пор и их послойного наложения.



а – 15 кВ; б – 20 кВ, в – 25 кВ, г – 30 кВ

Рисунок 3.4 – СЭМ изображения одного и того же участка массивного образца с дозой облучения 73 снa при температуре облучения 475 °С в зависимости от ускоряющего напряжения при постоянной интенсивности пучка

Уменьшение интенсивности электронного пучка приводит к уменьшению количества отраженных электронов, и также наблюдается ослабление полезного сигнала, приводящее к размытию границ пор из-за контраста. Проведено исследование одного и того же участка облученного образца при ускоряющем напряжении 20 кВ и интенсивности пучка 10 и 13 (соответствует измерениям поглощенного тока на образце  $\sim 150$  и  $\sim 450$  пА) (рисунок 3.5). Увеличение времени выдержки приводит к улучшению качества изображения, но также и к размытию вследствие внешних факторов и теплового дрейфа образца. При увеличении интенсивности происходит увеличение диаметра электронного пучка в точке фокусировки, что приводит к размытию границ пор на изображении и снижению общей разрешающей способности.



- а – ускоряющее напряжение 20 кВ, интенсивность 10 (141 пА на образце, условные единицы)  
 б – ускоряющее напряжение 20 кВ, интенсивность 13 (421 пА на образце, условные единицы)

Рисунок 3.5 – Качество СЭМ изображения массивного образца с дозой облучения 73 снА при температуре облучения 475 °С при ускоряющем напряжении 20 и 30 кВ в зависимости от интенсивности зонда

В результате подбора параметров исследования радиационной пористости аустенитных сталей установлено, что оптимальными являются следующие параметры: ускоряющее напряжение в интервале 20...30 кВ, ток зонда от 300 до 600 пА, рабочее расстояние до образца менее 10 мм. При таких условиях реализована возможность регистрации пор размером более 10 нм (рисунок 3.6).

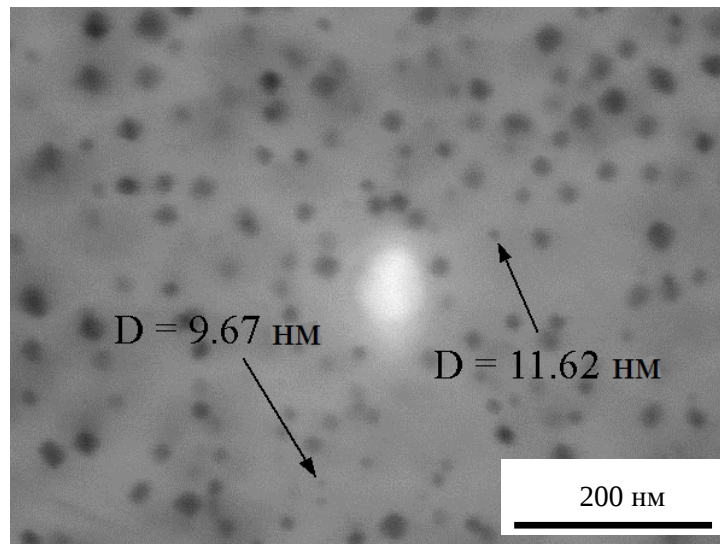
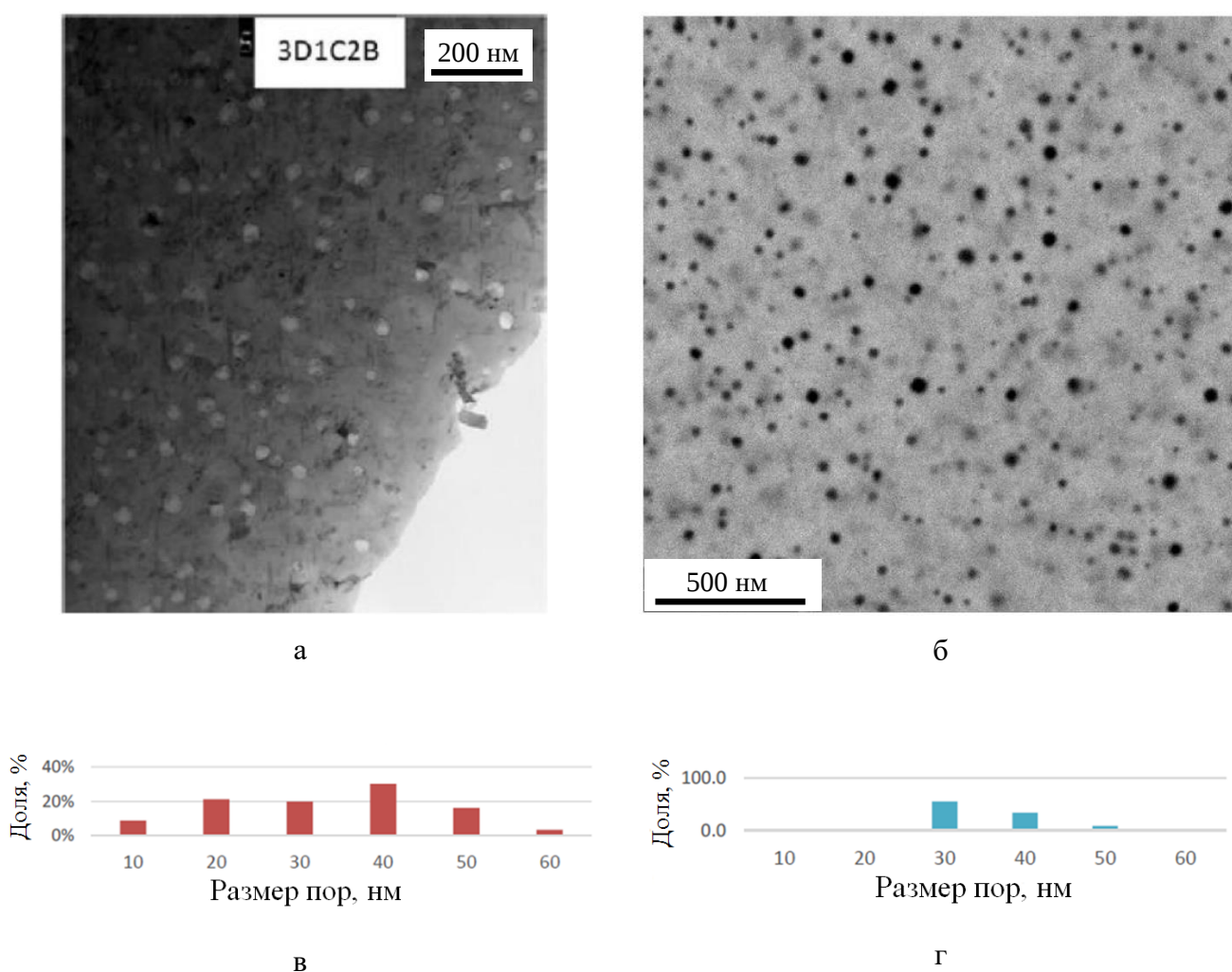


Рисунок 3.6 – Изображение радиационной пористости на массивном образце (минимальный определяемый размер пор от 10 нм)

Верификация метода была проведена Paula Freyer и Lucille A Giannuzzi под руководством F.A. Garner на аустенитной стали AISI 304 облученной в реакторе EBR-II до повреждающей дозы 33 сна [160]. Полученные данные свидетельствуют о применимости метода (рисунок 3.7). Однако необходимо отметить, что минимальный наблюдаемый размер пор значительно больше и начинается от 20 нм. Отмечается, что существующие различия могут быть связаны с различием состава сталей, что представляется маловероятным, условиями съемки (рабочее расстояние, ускоряющее напряжение, интенсивность зонда) или различными распределениями пор в материалах.

Для количественной оценки концентрации пор, и как следствие локального распухания, необходимо уметь определять глубину (толщину слоя), на которой находятся снятые поры.

Вопроса формирования BSE изображения пор при взаимодействии с пучком электронов с теоретической точки зрения рассмотрено в работе [161]. При помощи моделирования рассеяния электронов в материале методом Монте-Карло проведено исследование взаимодействия электронного пучка с чистым железом, в которое помещается пора. Авторы провели несколько модельных экспериментов, в которых различные по размеру поры помещались в тонкий (100, 200 нм) или массивный слой и проводили оценку выхода отраженных электронов при различных ускоряющих напряжениях и параметрах зонда. Согласно авторам, наилучшее изображение с точки зрения контраста должно достигаться при ускоряющем напряжении 10 кВ для фольги и 7,5 кВ для массивного образца (рисунок 3.8).



а – ПЭМ изображение; б – СЭМ изображение, полученное при помощи детектора обратно рассеянных электронов (BSE) при ускоряющем напряжении 15 кВ; в, г – гистограммы распределения пор по размерам для ПЭМ и СЭМ изображений

Рисунок 3.7 – Аустенитная сталь AISI 304 после нейтронного облучения в реакторе EBR-II [160]

Изменение параметров сканирования, а именно шага сканирования с 2,5 нм до 10 нм, и ширины зонда с 1 до 10 нм не привело к значительному ухудшению контрастности и разрешения (рисунок 3.9).

В зависимости от глубины залегания поры от поверхности наблюдается существенное изменение контраста (рисунок 3.10).

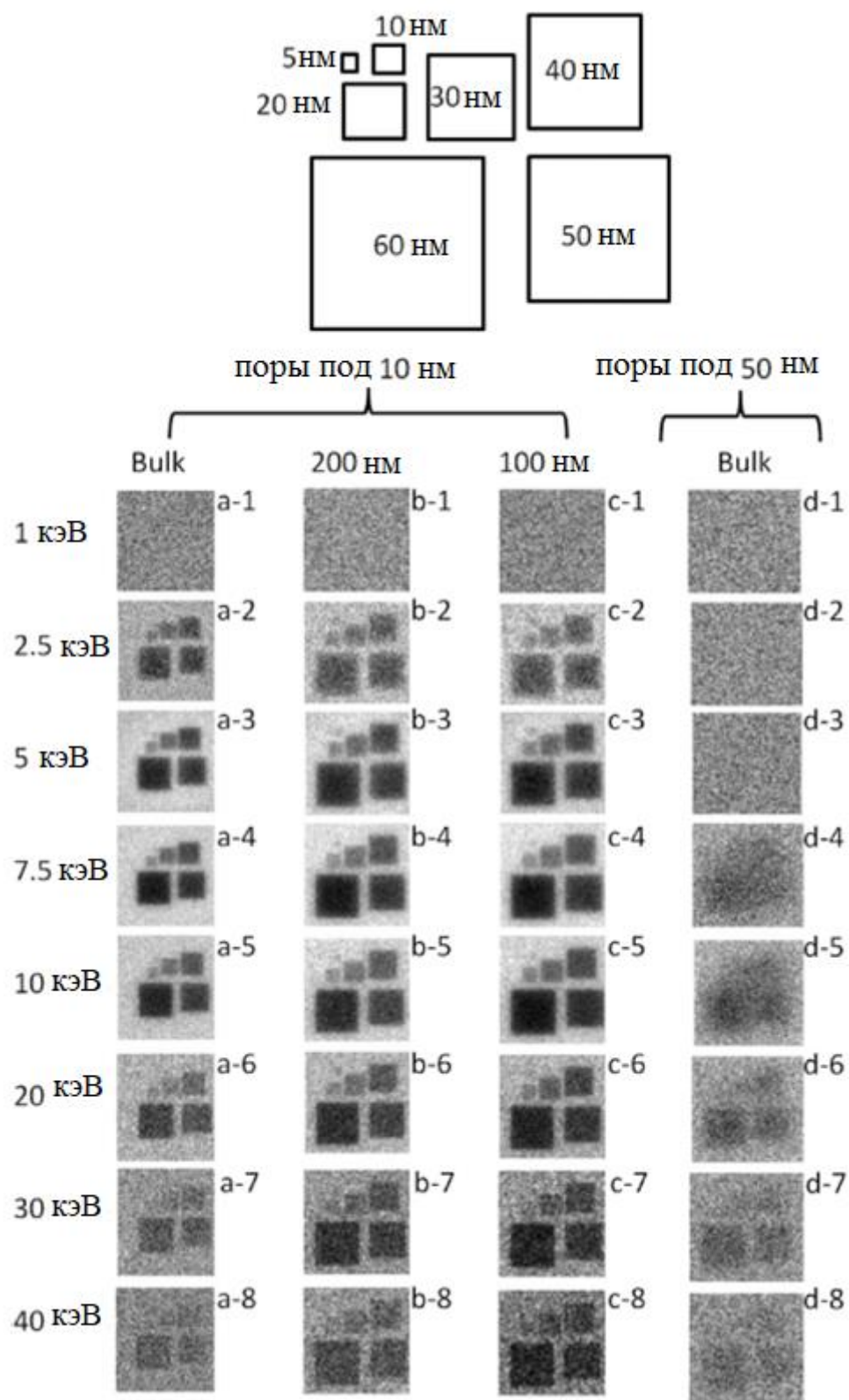


Рисунок 3.8 – BSE изображение кубических пор разного размера при различной глубине под поверхностью и различной толщине образца, смоделированное при различных ускоряющих напряжениях (размер зонда 3 нм, шаг сканирования 2,5 нм) [161]

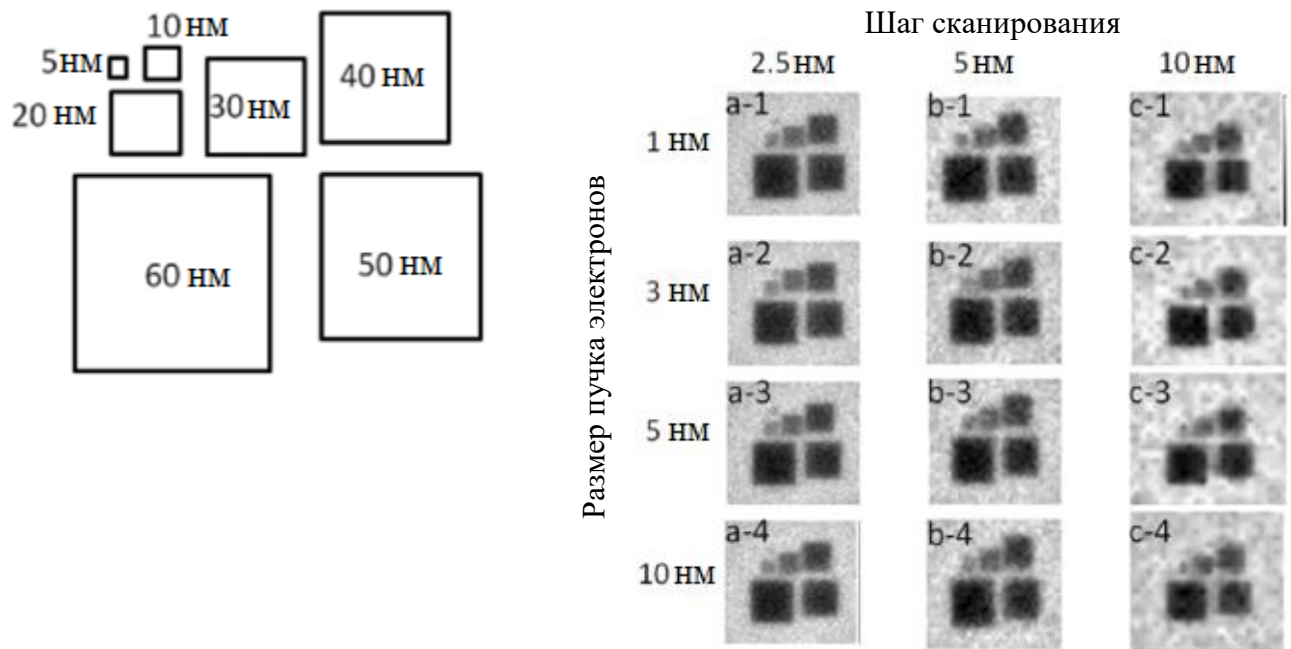


Рисунок 3.9 – Смоделированные изображения кубических пор при различных параметрах пучка (диаметр 1, 3, 5, 10 нм) и шаге сканирования (2,5, 5, 10 нм) [161]

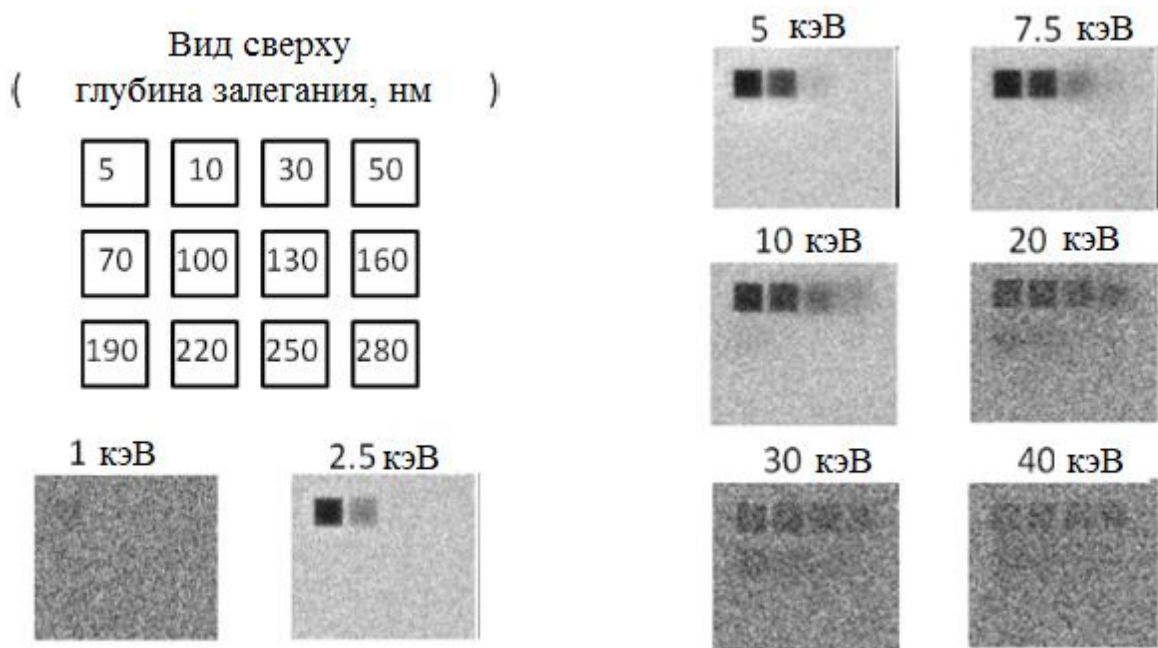


Рисунок 3.10 – Смоделированное BSE изображение кубических пор одинакового размера, находящиеся на различной глубине под поверхностью [161]

Обобщая полученные результаты, авторы приводят оценку глубины разрешения поры в зависимости от ее размера и ускоряющего напряжения. Так для 20 кВ пора размером 30 нм видна только в том случае, если она располагается на глубине до 40 нм под поверхностью. Для поры размером 60 нм глубина расположения, при которой она различима составляет 60 нм.

Авторы также отмечают, что присутствуют несоответствия в расчетных и практических экспериментах. В нашей работе [160] при 25 кВ получено изображение поры размером порядка 10 нм, при этом в работе [161] указывается, что это возможно только при ускоряющих напряжениях меньше 10 кВ. Также необходимо отметить, что использование BSE детектора для исследования радиационной пористости ограничено глубиной выхода отраженных электронов. По оценке авторов [161] глубина ограничена 200 нм, но вероятно этот параметр в реальности составляет несколько большую величину. Необходимо отметить, что моделирование происходило в жестких рамках, авторы не рассматривали влияние положение детектора BSE (то есть зависимость сигнала от телесного угла сбора отраженных электронов) и влияние краевых эффектов (случай, когда пора выходит на поверхность). Одним из самых важных выводов для теоретической работы по моделированию изображения с BSE детектора является – размер поры влияет на глубину слоя, с которого эту пору можно наблюдать. С учетом этого, расчет распухания нужно проводить с необходимыми поправками на толщину слоя.

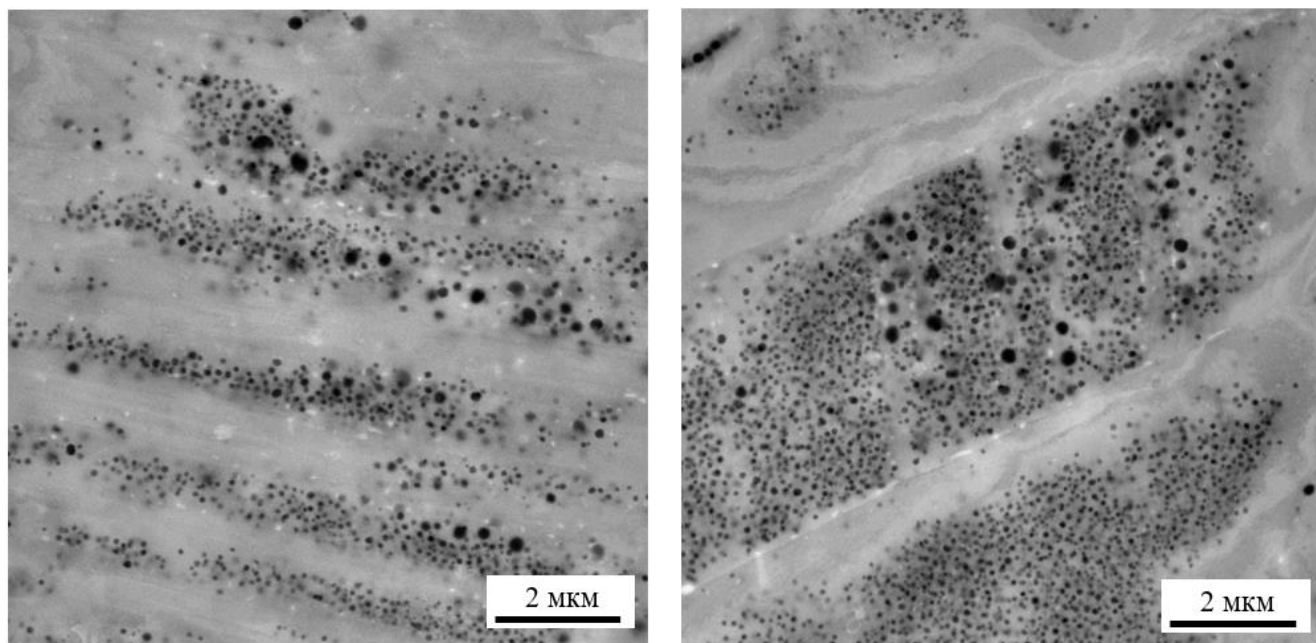
### 3.2 Анализ элементов мезоструктуры с использованием совмещения электронно-микроскопических изображений и ориентационных карт

#### 3.2.1 Анализ формирования радиационной пористости на различных элементах мезоструктуры

Исследование радиационной пористости аустенитных сталей показало неоднородность ее распределения, связанную с наличием различных мезоструктурных элементов. Нейтронное облучение до повреждающей дозы 92 сна при температуре 495 °С привело к развитию радиационной пористости (рисунок 3.11). Наличие пакетов двойников деформации (рисунок 3.11 а) привело к подавлению развития радиационной пористости в связанных с ними объемах материала. Отмечено, что в отдельных областях, прилегающим к границам двойников, наблюдаются поры размером больше, чем в скоплениях пор, связанных с матрицей аустенита.

1. Наличие скоплений линейных и плоских дефектов (рисунок 3.11 б), которое выражается в образовании контуров, напоминающих контура экстинкции, и образующихся в результате различной отражающей способности кристаллической решетки в зависимости от ее ориентации относительно пучка электронов (кристаллографический контраст), также приводят к подавлению развития радиационной пористости в связанных с ними объемах облучаемого

материала. Для границ двойников рекристаллизации образование крупных пор происходит в исключительных случаях. Размер наблюдаемых пор на границах двойников значительно превышает средний пор в матрице.



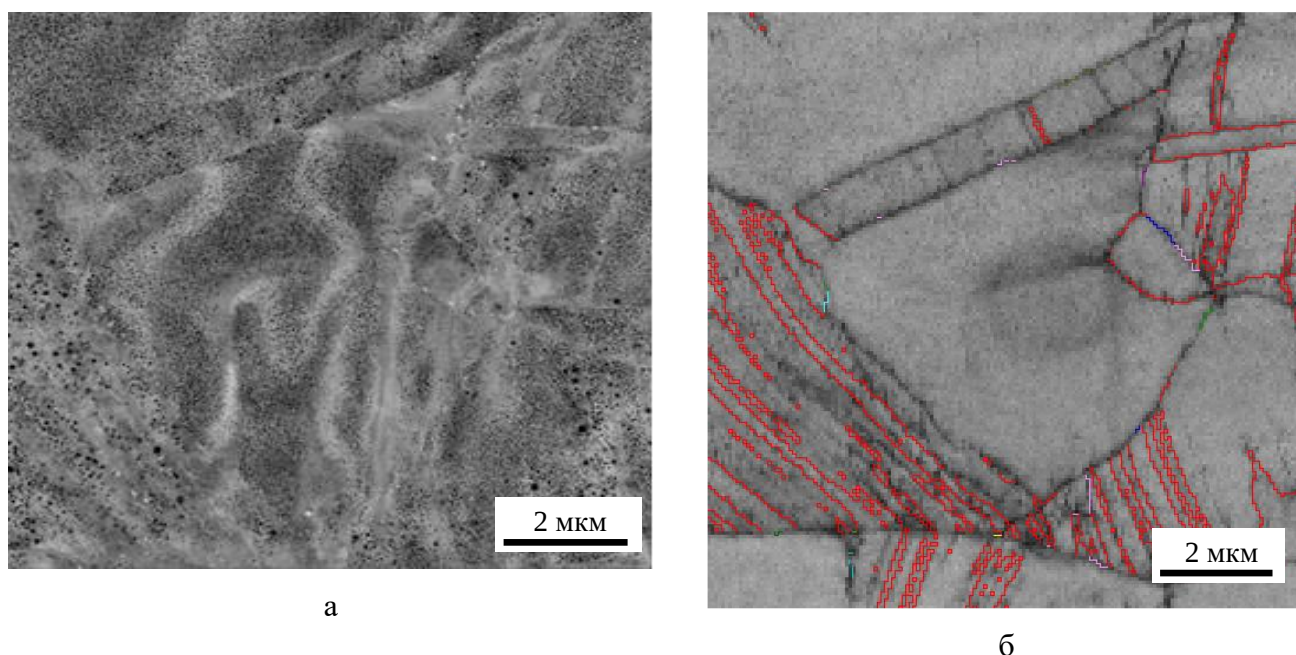
а

б

а – радиационная пористость, связанная с пакетами двойников деформации; б – поры в деформированном кристаллите (деформация выражена в виде полосчатого кристаллографического контраста, зафиксированного с использованием детектора BSE)

Рисунок 3.11 – Неоднородность радиационной пористости в стали ЭК-164 после продолжительного нейтронного облучения

С применением подобного подхода, на основе объединения результатов сканирующей и ориентационной электронных микроскопий создана методика, позволяющая количественно анализировать влияние различных элементов мезоструктуры на радиационное порообразование в материалах (рисунок 3.12), находившихся под воздействием нейтронного облучения. Данный методический подход позволяет получать непосредственное изображение радиационных пор при помощи детектора отраженных электронов (рисунок 3.12 а) сканирующего электронного микроскопа, размером более 10 нм. Параллельно формируется информация о локальном структурном состоянии материала на том же участке с использованием ориентационной микроскопии (рисунок 3.12 б), основанной на дифракции обратно рассеянных электронов (EBSD).



а – СЭМ BSE изображение, б – ориентационный контраст (EBSD) с отображением специальных разориентаций – границ из модели решеток совпадающих узлов (красным цветом обозначена граница РСУ  $\Sigma 3$  (двойниковая))

Рисунок 3.12 – Неоднородность радиационной пористости в стали ЧС-68 после продолжительного нейтронного облучения

Известно, что исследование дислокационной структуры методом ПЭМ накладывает определенные ограничения [156]. Во время приготовления фольги часть дислокаций и дислокационных петель может потеряться за счет релаксации и удаления объема материала. Также в зависимости от индексов  $\{hkl\}$ , отражающих электронный пучок плоскостей, часть дислокаций (в зависимости от их природы и вектора Бюргерса) может быть не видна. В свою очередь ориентационная микроскопия различает с высокой точностью (около  $0,1^\circ$ ) ориентацию соседних кристаллитов, разориентировка которых как раз может быть обусловлена скоплениями двумерных и плоских дефектов.

Исследование аустенитной стали ЭК164 после облучения показало наличие на микроуровне неоднородности радиационной пористости (рисунок 3.13 а).

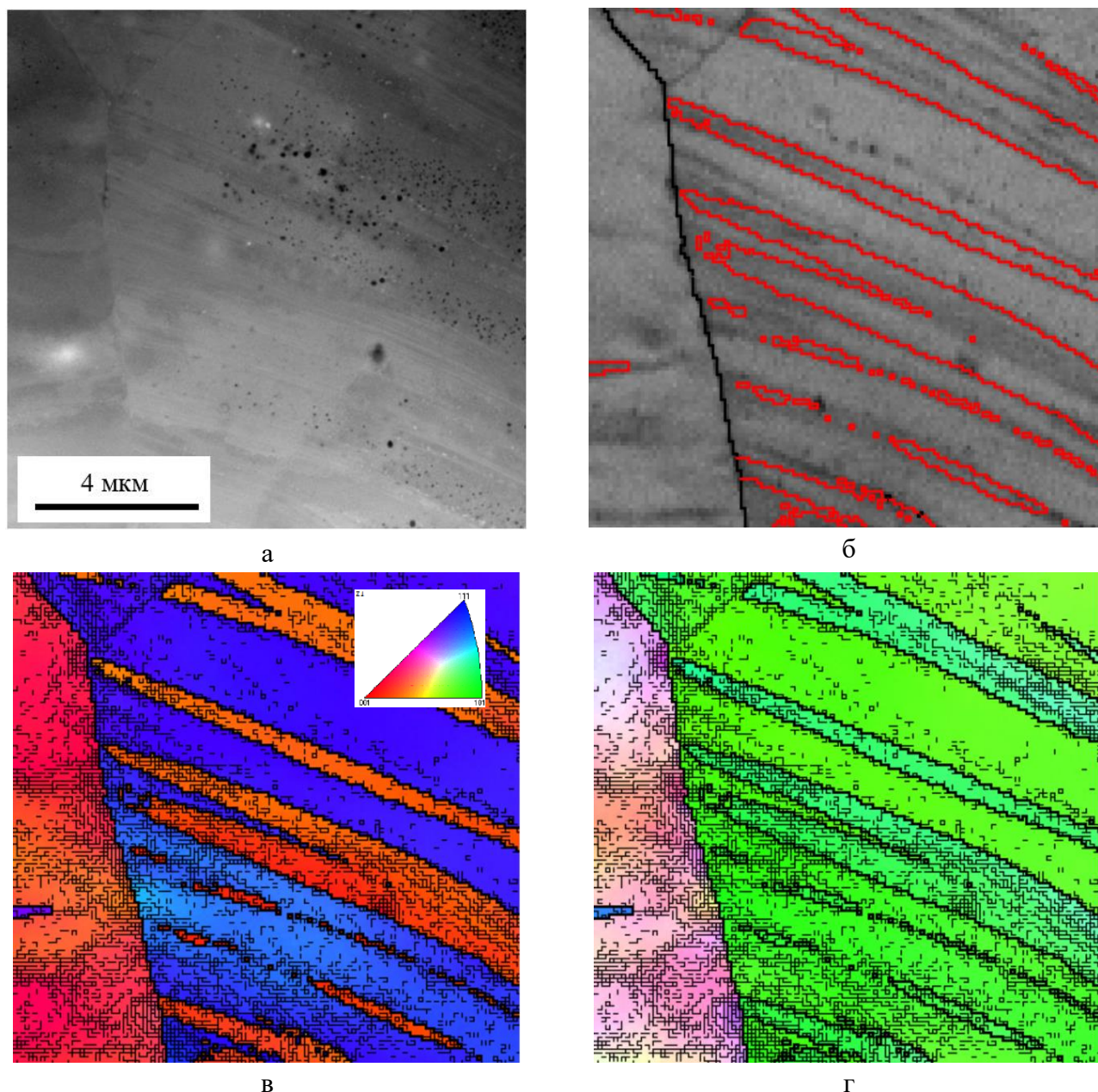


Рисунок 3.13 – неоднородность радиационной пористости стали ЭК-164 после продолжительного нейтронного облучения, связанная с элементами мезоструктуры: а – СЭМ BSE изображение, б – карта качества дифракций с отмеченными высокоугловыми и специальными сигма 3 границами; в, г – IPF карты с отмеченными малоугловыми и высокоугловыми разориентировками.

Кристаллографический контраст показывает наличие в исследуемой области двойников деформации и области, для которых характерна высокая плотность малоугловых границ и формируется ориентационный контраст наподобие контуров экстинкции в ПЭМ. Применение ориентационной микроскопии позволило выделить границы мезоструктурных элементов и областей с повышенной плотностью малоугловых границ (рисунок 3.13 б, в, г). Отмечено, что в

областях с высокой плотностью малоугловых границ не наблюдается радиационных пор с помощью СЭМ. Вблизи границ двойников деформации в теле зерна наблюдаются поры большего размера, чем в областях с низкой плотностью малоугловых границ. В двойниках деформации с высокой плотностью малоугловых границ также наблюдается подавление образования крупных пор.

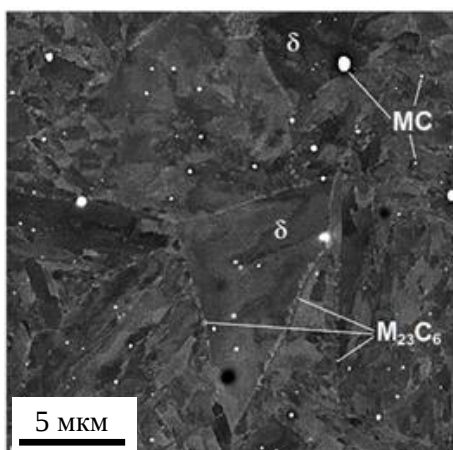
### 3.2.2 Анализ выделения вторых фаз на межкристаллитных границах различных типов

Очевидно, что описанный в разделе 3.2.1 подход к анализу микроструктуры и установлению ее влияния на процессы, протекающие в материале при радиационных воздействиях, основанный на совмещении заданным образом обработанных изображений, полученных различными методами, может быть успешно применен к исследованию любых систем, характеризующихся наличием качественно других элементов мезоструктуры (не радиационных пор). Правомерность данного тезиса была проверена при анализе процесса выделения карбидных фаз при отпуске мартенсита в феррито-мартенситной нержавеющей стали ЭП823, являющейся перспективной для изготовления различных компонент активной зоны быстрых реакторов со свинцовым теплоносителем. Последнее связано с ее высоким сопротивлением к вакансионному распуханию и низкой скоростью радиационной ползучести [162-165]. Образцы стали подвергали закалке от 1050 °С с последующим отпуском при 700 °С.

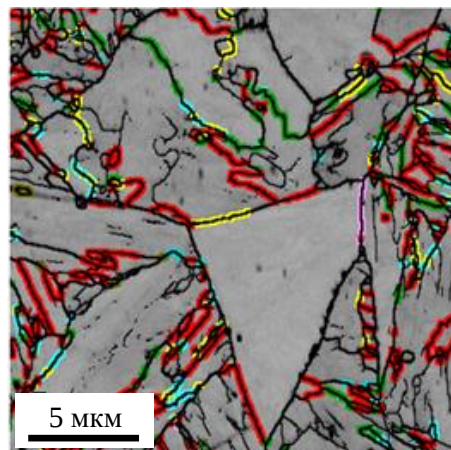
Идентификация карбидных выделений проводилась с использованием результатов расчетов фазовых равновесий в стали при различных температурах, выполненных в программном пакете ThermoCalc, по данным микрорентгеноспектрального анализа областей, содержащих частицы с повышенным количеством Nb, V, W, Mo и Cr.

Структура стали после отпуска состояла из крупных зерен высокотемпературного феррита (~ 15%) без видимой мезоструктуры и мартенситных пакетов с повышенным количеством малоугловых границ (рисунок 3.15). Для мартенсита являлось характерным наличие спектра высокоугловых границ с границами решетки совпадающих узлов (PCY):  $\Sigma 3$ ,  $\Sigma 11$ ,  $\Sigma 25b$ ,  $\Sigma 33c$ ,  $\Sigma 41c$ , являющегося следствием распада аустенита по сдвиговому механизму в соответствии с ориентационными соотношениями (OC), промежуточными между OC Курдюмова-Закса (К-З) и OC Нишиямы-Вассермана (Н-В) [113].

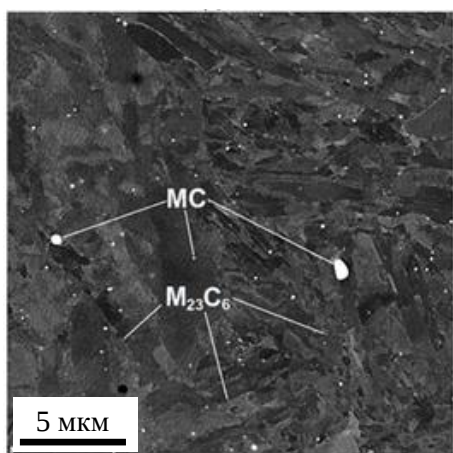
В структуре наблюдались карбидные выделения двух типов: по границам ранее существовавших аустенитных зерен крупные MC [ $\sim \text{NbC}$ ] и преимущественно по границам в мартенситных пакетах дисперсные  $\text{M}_{23}\text{C}_6$  [ $\sim (\text{W}, \text{Mo})_2(\text{Cr}, \text{Fe})_{21}\text{C}_6$ ].



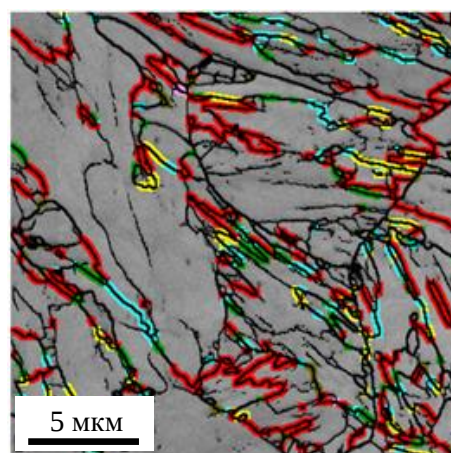
а



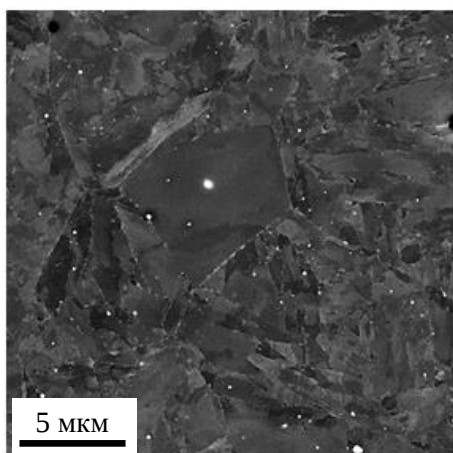
г



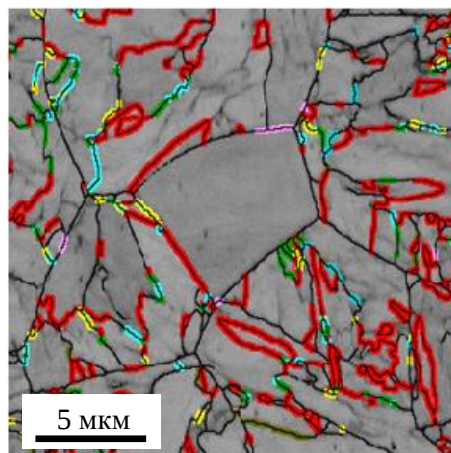
б



д



в



е

а, б, в – изображения в обратно отраженных электронах; г, д, е – ориентационные карты PCY границ: красным цветом выделена граница PCY  $\Sigma 3$ , желтым –  $\Sigma 11$ , зеленым –  $\Sigma 25b$ , голубым –  $\Sigma 33c$ , сиреневым –  $\Sigma 41c$

Рисунок 3.14 – Микроструктура феррито-мартенситной нержавеющей стали ЭП823 после закалки от 1050 °C с последующим отпуском при 700 °C

В структуре наблюдались карбидные выделения нескольких типов (рисунок 3.15 а, б). Во-первых, крупные округлые частицы (0,2...0,5 мкм), находящиеся на высокоугловых границах, идентифицированные как трудно растворимые карбиды MC, преимущественно на основе Nb. Предположительно выделение данных фаз происходило еще на стадии горячей деформации, в области температур выше 1200 °С, на границах деформированных аустенитных зерен. В дальнейшем данные границы по законам структурно-текстурной наследственности, согласно [114, 166], трансформировались в границы  $\alpha$ -фазы.

Во-вторых, также выделения сферической формы (0,05...0,1 мкм), находящиеся в основном внутри кристаллитов, но при этом укладывающиеся в изогнутые линии. Данные выделения, также идентифицированы как карбиды NbC. По-видимому, их выделение происходило на заключительных стадиях горячей деформации на границах аустенитных зерен, которые изменили свое положение в процессе рекристаллизации  $\gamma$ -фазы при выдержке стали перед закалкой.

В третьих, основную долю выделений составляли дисперсные (до 0,1 мкм) карбидные фазы  $M_{23}C_6$  [ $\sim (W, Mo)_2(Cr, Fe)_{21}C_6$ ], находящиеся преимущественно по границам кристаллитов в мартенситных пакетах. При этом плотность выделений на отдельных границах существенно отличалась. Детальный ориентационный анализ типов межкристаллитных границ (рисунок 3.15 г, д, е) показал, что при отпуске мартенсита выделение  $M_{23}C_6$  происходило преимущественно на высокоугловых межзеренных границах общего типа. На малоугловых границах и специальной границе PCY  $\Sigma 3$  карбидные выделения практически отсутствовали. Сравнительно небольшое количество карбидов наблюдалось на специальных границах PCY  $\Sigma 11$ ,  $\Sigma 25b$ ,  $\Sigma 33c$   $\Sigma 41c$ .

Граница PCY  $\Sigma 3$  является двойниковой, максимально упорядоченной и, соответственно, характеризуется пониженной поверхностной энергией [113]. Очевидно, что «специальность» PCY границ определенным образом связана с их упорядоченной структурой. В этом смысле, любые высокоугловые границы можно рассматривать как специальные, но отличающиеся количеством зернограницных дефектов. Таким образом, выделение карбидов при отпуске мартенсита происходит на наиболее «дефектных», с кристаллографической точки зрения, границах.

### 3.4 Заключение по главе 3

1 Предложена гипотеза по поводу формирования изображения пор при сканировании электронным пучком. Проведена оценка пробоподготовки поверхности материала и параметров электронного пучка для получения оптимального изображения для дальнейшего анализа. Разработана методика, позволяющая применять для исследования радиационной пористости сканирующий электронный микроскоп с детектором отраженных электронов. Проведена верификация полученных результатов методикой просвечивающей электронной микроскопии и установлены граничные условия применимости метода.

2 Разработан подход для анализа связи локальной радиационной пористости с мезоструктурой массивных образцов. Совместное использование ориентационной и сканирующей электронных микроскопий позволяет производить качественную и количественную оценку мезоструктуры материалов.

3 Показано, что совмещение методик ориентационной микроскопии с инструментарием сканирующей электронной микроскопии позволяет с высокой точностью разделять мезоструктурные элементы ферритно-мартенситной стали и проводить анализ структурного состояния. С использованием данного метода установлено различное поведение специальных межзеренных границ, в том числе двойниковых к выделению дисперсных карбидов в процессе старения. Установлено, что выделение карбидов при отпуске мартенсита происходит на наиболее «дефектных», с кристаллографической точки зрения, границах.

## ГЛАВА 4 ВЛИЯНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ МЕЗОСТРУКТУРЫ НА ФОРМИРОВАНИЕ РАДИАЦИОННОЙ ПОРИСТОСТИ И РАСПУХАНИЕ АУСТЕНИТНЫХ СТАЛЕЙ ПРИ РАЗЛИЧНЫХ ПАРАМЕТРАХ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ

В настоящее время для используемых в ядерной энергетике оболочек твэлов из аустенитных сталей характерно меньшее распухание, по сравнению с материалами, которые эксплуатировались 20 лет назад. То есть для эквивалентных повреждающих доз оболочек твэлов, произведенных по новым технологиям, достигнуто снижение распухания.

Радиационное распухание аустенитных сталей, как физический процесс, имеет несколько стадий, а именно: инкубационную, нестационарного распухания и стационарного распухания. В свою очередь стадия нестационарного распухания может быть разделена на подстадии в зависимости от скорости распухания [4]. Для стадии стационарной стадии, которая начинается с 8 % объемной доли пор [27, 29, 30], наблюдается линейная зависимость величины распухания от повреждающей дозы. Ожидается, что данному этапу должна соответствовать структура гомогенного распределения пор с их частичной коалесценцией. Предполагается, что снижение распухания достигается за счет увеличения длительности инкубационного периода или стадии нестационарного распухания. С этой точки зрения, представляет интерес структура металла и пространственное распределение пор, которые соответствуют стадиям нестационарного распухания. Также не полностью раскрыт вопрос о пространственной неоднородности радиационной пористости и условиях ее реализации в оболочках твэлов.

В российских реакторах на быстрых нейтронах тепловыделяющая сборка состоит из 127 тепловыделяющих элементов [84] (рисунок 4.1).

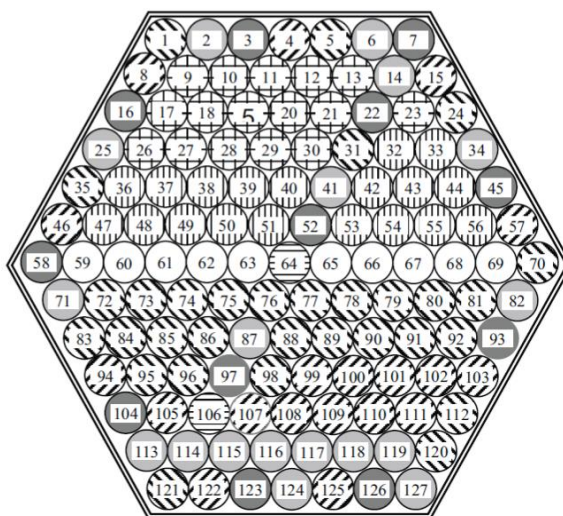


Рисунок 4.1 – Схема тепловыделяющей сборки реактора на быстрых нейтронах [84]

Для твэлов наблюдается неоднородность таких эксплуатационных параметров, как температура и повреждающая доза (рисунок 4.2) по высоте от низа активной зоны к верхней ее части [76]. Для твэлов после эксплуатации невозможно определить истинные значения этих параметров, так как их изменения связаны с режимом работы реактора. По этой причине используются их средневзвешенные значения, определенные расчётными методами. Наблюдается монотонное возрастание температуры от низа активной зоны, связанное с постепенным нагревом теплоносителя. Распределение повреждающей дозы по высоте активной зоны имеет куполообразный вид, так как максимальная плотность потока нейтронов достигается именно в ее центре.

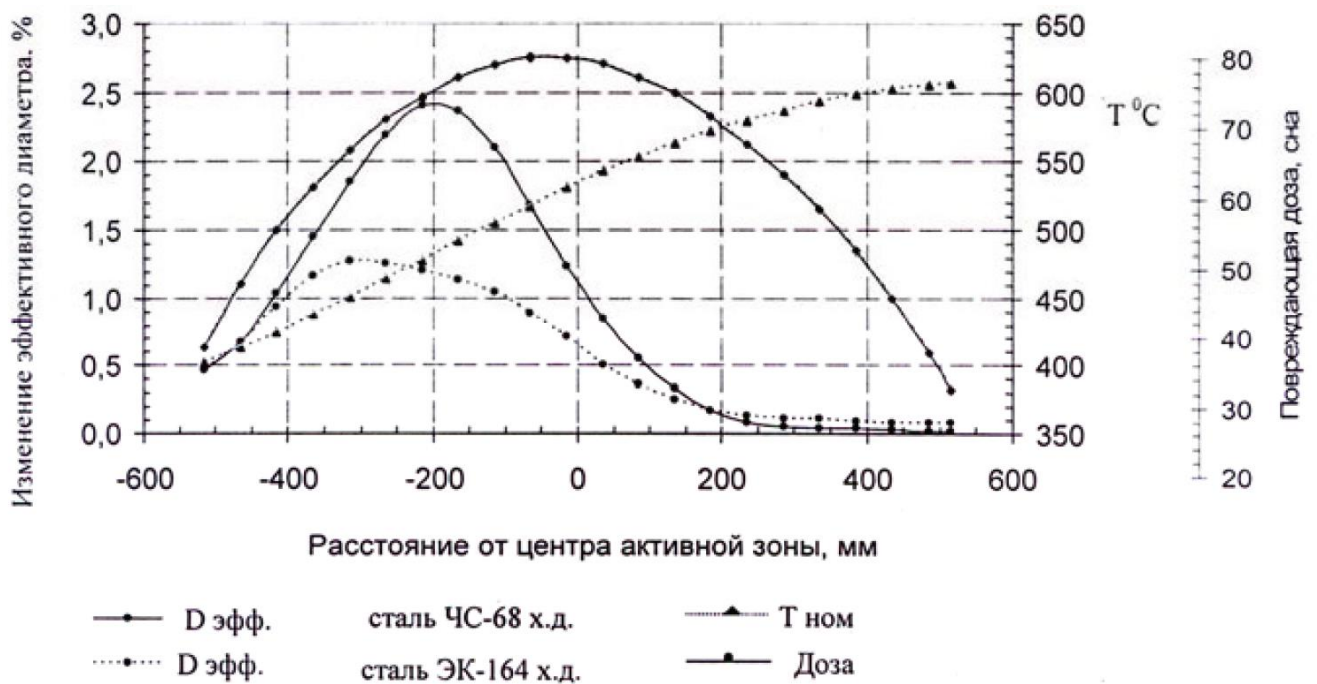


Рисунок 4.2 – Изменение эффективного диаметра, повреждающей дозы и номинальной температуры оболочек твэлов в реакторе на быстрых нейтронах при его эксплуатации [76]

Сама по себе конструкция тепловыделяющих сборок приводит к различиям в температурах и повреждающих дозах для разных твэлов, так как центральные и периферийные тепловыделяющие элементы имеют различное окружение. Также средневзвешенные физические параметры зависят от положения тепловыделяющей сборки в реакторе, то есть от окружения и зоны обогащения, в которой она эксплуатировалась.

#### 4.1 Пространственное распределение радиационной пористости в оболочке твэла

В результате исследования образцов оболочек твэлов, изготовленных из стали 07X16H19M2Г2БТФПР (ЭК164) из одной тепловыделяющей сборки установлена неоднородность характеристик радиационной пористости по толщине и высоте. Исследование проведено на оболочках твэлов из различных областей тепловыделяющей сборки. Характеристика образцов, а именно температура облучения, повреждающая доза и распухание, измеренное гидростатическим методом, приведены в таблице 4.1.

Таблица 4.1 – Характеристика образцов твэлов из стали 07X16H19M2Г2БТФПР (ЭК164)

| Положение твэла в сборке | Образец | T, °C | Доза, сна | Координата, отн ед | Распухание, % |
|--------------------------|---------|-------|-----------|--------------------|---------------|
| Промежуточное            | Пр-1    | 430   | 64,5      | 0,1                | 2,2           |
|                          | Пр-2    | 445   | 72,6      | 0,2                | 3             |
|                          | Пр-3    | 515   | 92,8      | 0,4                | 6,1           |
|                          | Пр-4    | 545   | 92,3      | 0,5                | 4,8           |
|                          | Пр-5    | 580   | 80,1      | 0,7                | 0,9           |
| Центральная область      | Ц-1     | 480   | 85,1      | 0,3                | 3,1           |
|                          | Ц-2     | 515   | 90,7      | 0,4                | 2,3           |
|                          | Ц-3     | 550   | 89,3      | 0,6                | 1,4           |
|                          | Ц-4     | 590   | 69,2      | 0,8                | 0,1           |
| Периферийное             | П-1     | 445   | 73,3      | 0,2                | 2,9           |
|                          | П-2     | 490   | 86,7      | 0,4                | 3,2           |
|                          | П-3     | 515   | 85,6      | 0,6                | 1,5           |
|                          | П-4     | 550   | 63,7      | 0,8                | 0,2           |
|                          | П-5     | 560   | 33,2      | 1,0                | 0,1           |

Проведенное измерение распухания образцов после облучения показывает, что наибольшее распухание достигнуто на твэле из промежуточной области (таблица 4.1). Для твэлов из центральной и периферийной областей тепловыделяющей сборки максимальное распухание составляет величины приблизительно 3,1 и 3,2 %. Можно отметить, что максимум распухания находится ниже центра активной зоны. Последнее в свою очередь связано с температурным смещением максимума распухания.

Существующие на сегодня исследовательские работы, касающиеся пространственного распределения радиационных пор, преимущественно описывают структурные состояния только трех областей: вблизи внутренней и наружной поверхностей и центральную часть [42-44]. Такой выбор исследуемых областей, в первую очередь, связан со сложностью приготовления образцов для исследований методом ПЭМ.

Исследование радиационной пористости на образцах оболочек твэлов данной ТВС проводилось в области вблизи внутренней поверхности, в центральной области и области вблизи наружной поверхности. Характерное макро изображение торцевого шлифа оболочки твэла со схематически отмеченными областями, в которых производилось исследование параметров радиационной пористости, приведено на рисунке 4.3.

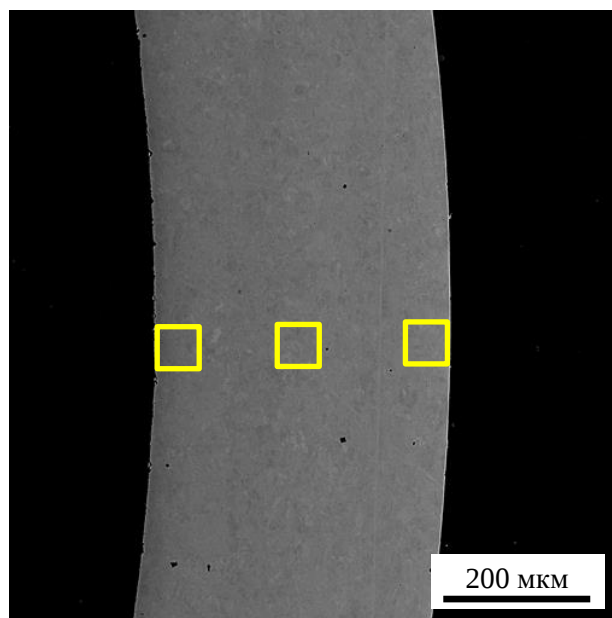


Рисунок 4.3 – Характерное изображение поперечного (торцевого) шлифа оболочки твэла с отмеченными областями проведения исследования радиационной пористости твэлов

Исходя из температурной зависимости радиационного распухания, была проведена группировка имеющихся образцов (результатов) по температурам облучения [27]. В низу активной зоны температуры оболочки сопоставима с температурой теплоносителя. Облучение в области температур 430...450 °С приводит к радиационной пористости, которая характеризуется высокой концентрацией пор и сравнительно небольшим их средним размером (рисунок 4.4).

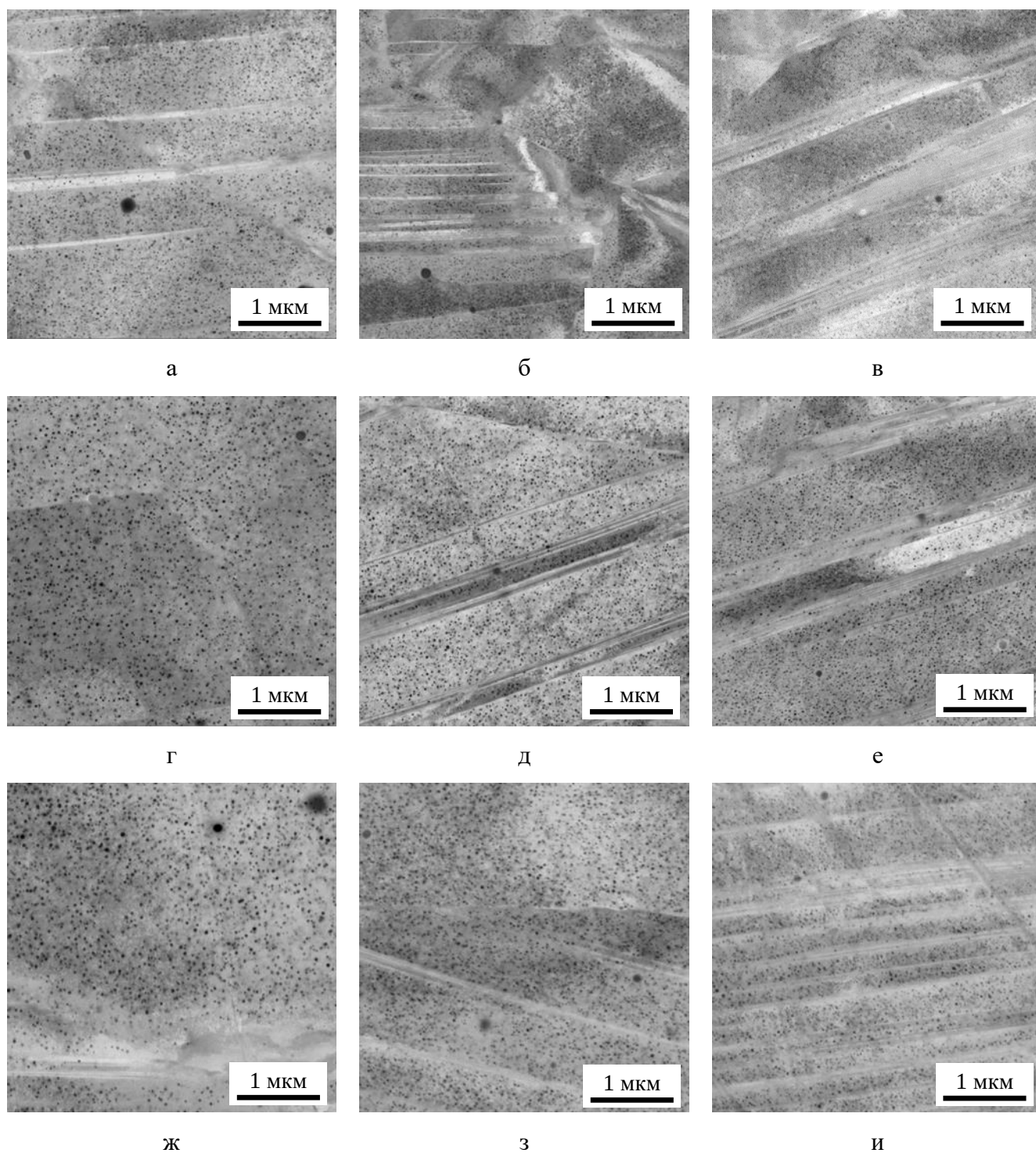


Рисунок 4.4 – Радиационная пористость образцов Пр-1 ( $T_{\text{обл}} - 430\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 64,5 сна), Пр-2 ( $T_{\text{обл}} - 445\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 72,6 сна), П-1 ( $T_{\text{обл}} - 445\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 73,3 сна) вблизи внутренней поверхности (а, г, ж), в центральных областях (б, д, з) и вблизи наружной поверхности (в, е, и) оболочки твэла

Визуально наблюдается больший размер пор у внутренней поверхности исследованных образцов (рисунок 4.4 а, г, ж). Минимальный размер пор наблюдается вблизи наружной поверхности (рисунок 4.4 в, е, и).

Для разных областей тепловыделяющей сборки наблюдается температурная зависимость характеристик радиационной пористости. Так при относительной координате образца 0,1 промежуточной области тепловыделяющей сборки (температура облучения  $\sim 430$  °С) визуальный размер пор по областям меньше, чем для образцов с координатами 0,2 и 0,2 облученных при температуре 445 °С из промежуточной и периферийной частей тепловыделяющей сборки. При этом наблюдаются обедненные по порам зоны вблизи границ двойников деформации.

В нижней части активной зоны для образца, облученного при температуре 430 °С до повреждающей дозы 64,5 сна, наблюдается уменьшение среднего размера радиационных пор от 16 нм у внутренней поверхности твэла до 13 нм вблизи его наружной поверхности. Для образца Пр-2, облученного при температуре 445 °С до повреждающей дозы 72,6 сна наблюдается уменьшение среднего размера пор от внутренней к наружной поверхности твэла от 23 до 16 нм. Для образца П-1, облученного при температуре 445 °С до повреждающей дозы 73,3 сна по толщине оболочки твэла наблюдается уменьшение среднего размера пор от 27 до 20 нм .

Повышение температуры по высоте твэла приводит к увеличению среднего размера пор и снижению их концентрации (рисунок 4.5). В температурной области 480...490 °С со стороны внутренней поверхности наблюдаются поры размером  $\sim 52$  нм для образца оболочки твэла из периферийной и  $\sim 32$  нм для образца оболочки твэла из центральной части тепловыделяющей сборки. Со стороны наружной поверхности для образцов наблюдаются поры размером  $\sim 42$  и  $\sim 25$  нм соответственно.

Необходимо отметить, что даже в одной анализируемой области распределение радиационных пор в соседних зернах может быть неоднородным. В зависимости от мезоструктурных элементов, присутствующих в данной области, можно наблюдать обедненные по порам зоны вблизи двойников деформации и в области тройных стыков зерен (рисунок 4.6).

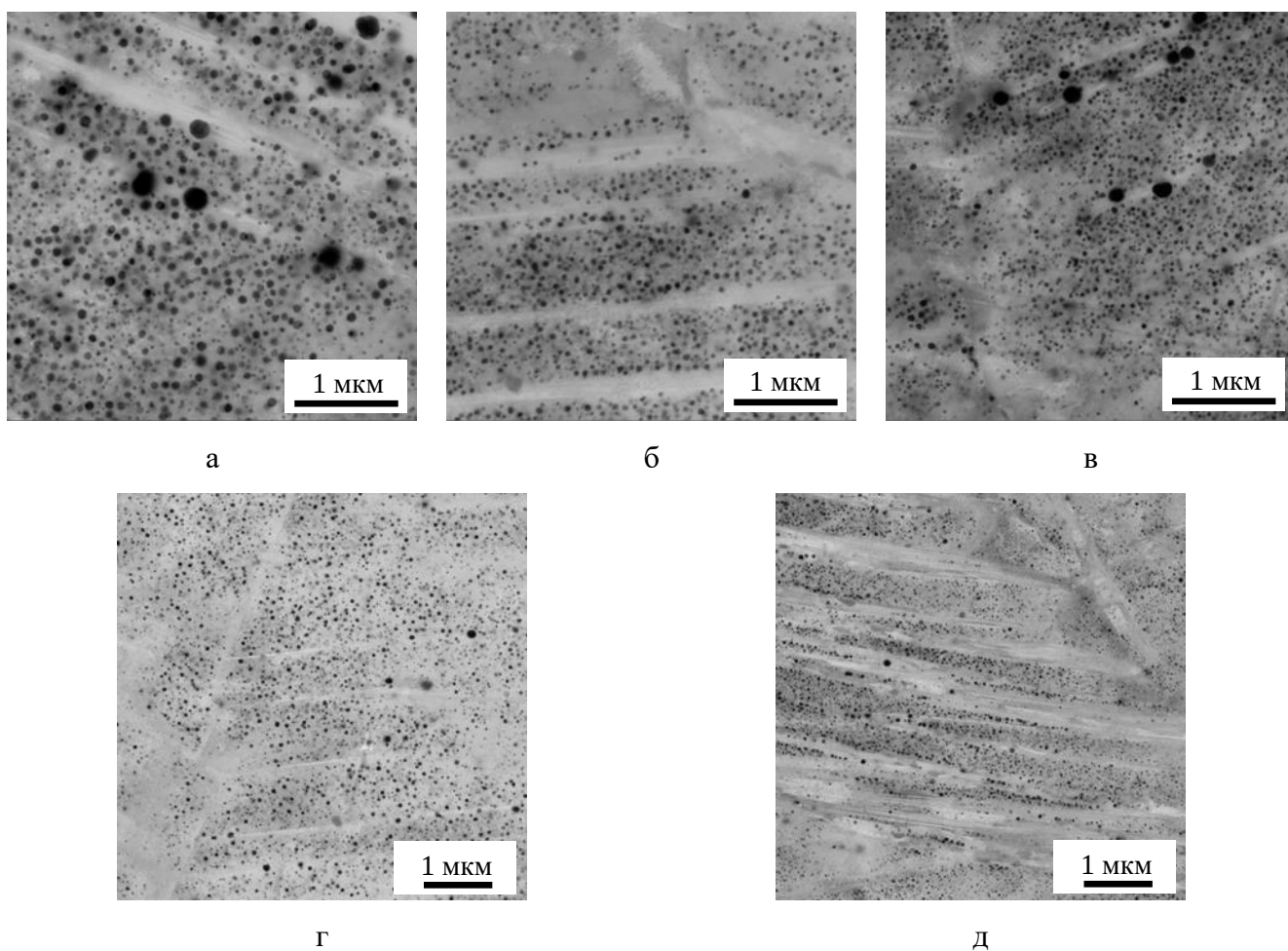


Рисунок 4.5 – Радиационная пористость образцов П-2 ( $T_{\text{обл}} - 490^\circ\text{C}$ , 86,7 сна), Ц-1 ( $T_{\text{обл}} - 480^\circ\text{C}$ , 85,1 сна) вблизи внутренней поверхности (а, г), в центральных областях (б) и вблизи наружной поверхности (в, д) оболочки твэла

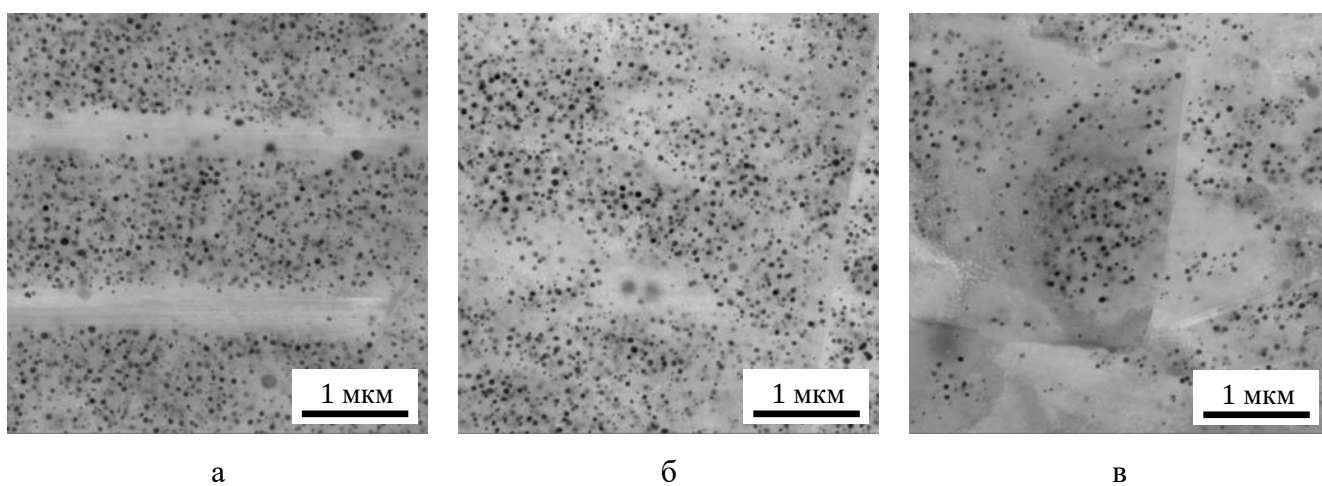


Рисунок 4.6 – Неоднородность радиационной пористости в центральной части образца П-2 в пределах нескольких соседних зерен: а – вблизи двойников деформации; б – в теле зерна, в – вблизи тройного стыка

Реализация различных условий теплосъема по тепловыделяющей сборке в процессе эксплуатации приводит к различным температурам в одинаковых относительных координатах. Для периферийного твэла расчётная температура 515 °С соответствует область твэла с относительной координатой 0,6. Также температуре около 515 °С соответствуют образцы с относительной координатой 0,4 из центральной и промежуточной области тепловыделяющей сборки. Наблюдаемый размер пор на образце твэла из периферийной области тепловыделяющей сборки составляет 80 нм у внутренней и 66 нм у наружной поверхности (рисунок 4.7). Для образцов твэлов из промежуточной и центральной области тепловыделяющей сборки средний размер пор у внутренней поверхности составляет 54 и 56 нм, у наружной поверхности 35 и 35 нм соответственно (рисунок 4.7)

Для исследуемой аустенитной стали, облучённой при температуре 515 °С до повреждающей дозы 90,7 сна наблюдается сильная неоднородность распределения радиационных пор. Изменение характера распределения пор наблюдается в областях двойников деформации и в областях с сильным кристаллографическим контрастом (BSE детектор), свидетельствующим о высокой плотности малоугловых границ. В зависимости от мезоструктурных элементов, присутствующих в данной области можно наблюдать обедненные по порам зоны вблизи двойников деформации и в области тройных стыков зерен (рисунок 4.8). Вероятно, это может быть связано со структурой металла в данных локальных областях и обусловлено стадией нестационарного распухания.

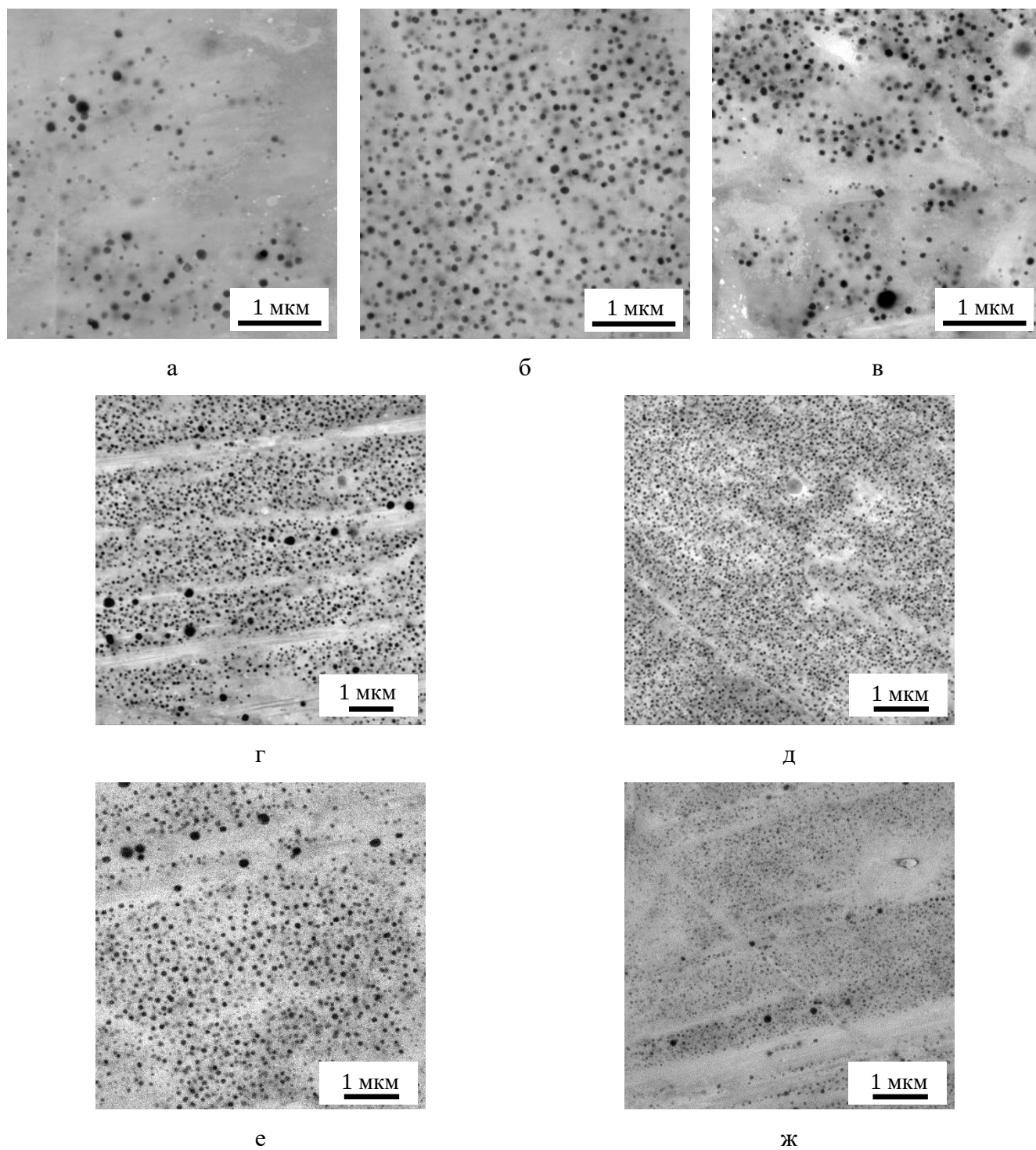


Рисунок 4.7 – Радиационная пористость образцов П-3 ( $T_{\text{обл}} - 515^{\circ}\text{C}$ , 85,6 сна), Пр-3 ( $T_{\text{обл}} - 515^{\circ}\text{C}$ , 92,8 сна), Ц-2 ( $T_{\text{обл}} - 515^{\circ}\text{C}$ , 90,7 сна) вблизи внутренней поверхности (а, г, ж), в центральных областях (б, д, з) и вблизи наружной поверхности (в, е, и) оболочки твэла

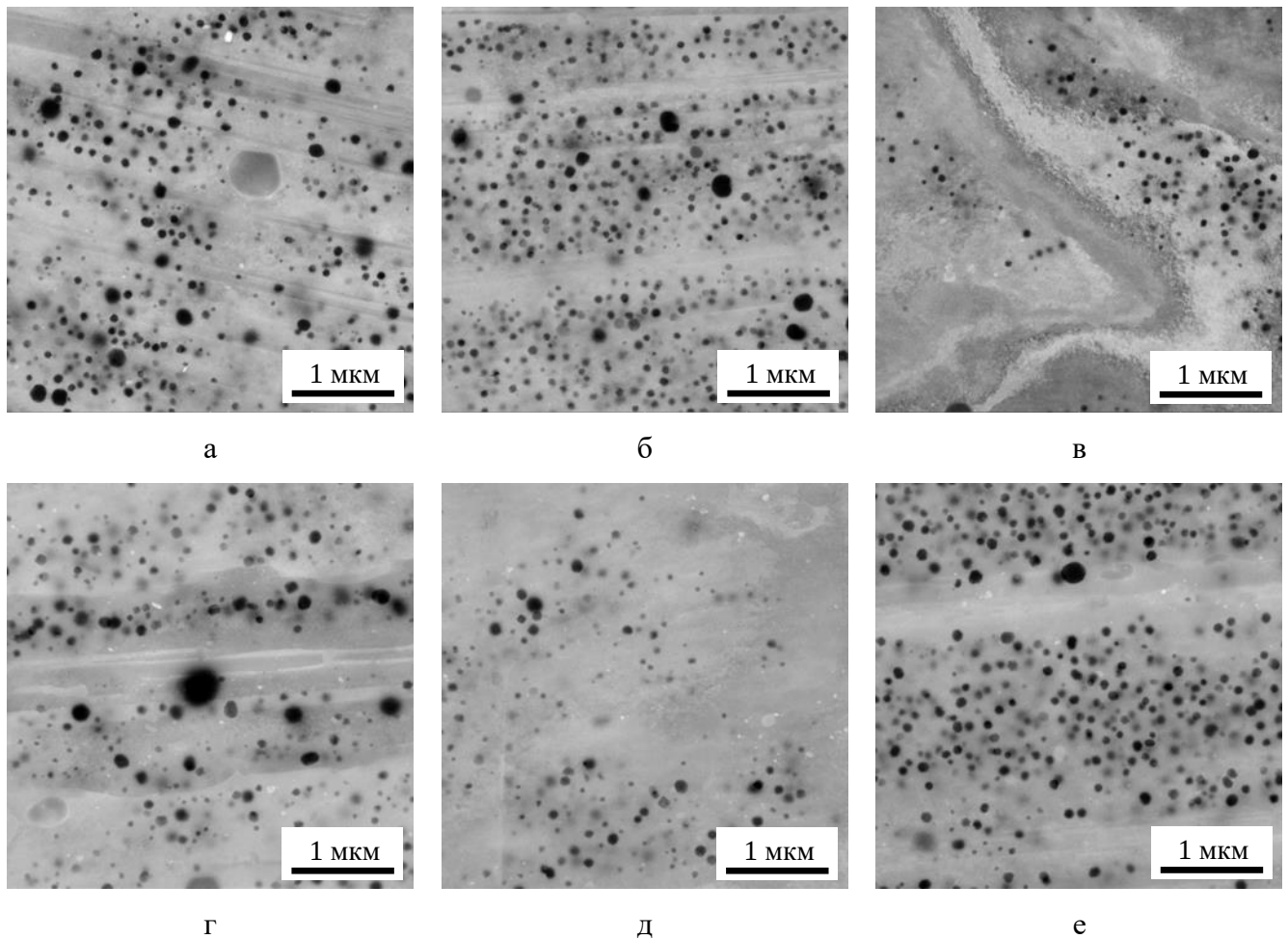


Рисунок 4.8 – Неоднородность радиационной пористости образца Ц-2 в соседних зернах в центральных слоях (а, б, в) оболочки твэла и вблизи внутренней поверхности (г, д, е)

Для периферийного твэла температуре облучения около 550 °С соответствует образец с координатой 0,8 отн. ед. (рисунок 4.9 а, б, в). Температурам облучения 545 °С и 550 °С также соответствуют образцы из центральной (рисунок 4.9 е, ж, з) и промежуточной (рисунок 4.9 г, д) областей тепловыделяющей сборки с координатами 0,5 и 0,5 отн. ед. Наблюдается значительная разница радиационной пористости в этих областях. Вероятно, значительное отличие радиационной пористости можно объяснить существующей разницей в расчётной и реальной температурах эксплуатации верхней части периферийного твэла. Регистрируемый средний размер пор на образце из периферийной области составляет 57 нм у внутренней, и 61 нм у наружной поверхностей. В центральной области образца оболочки твэла наблюдаются редкие крупные поры.

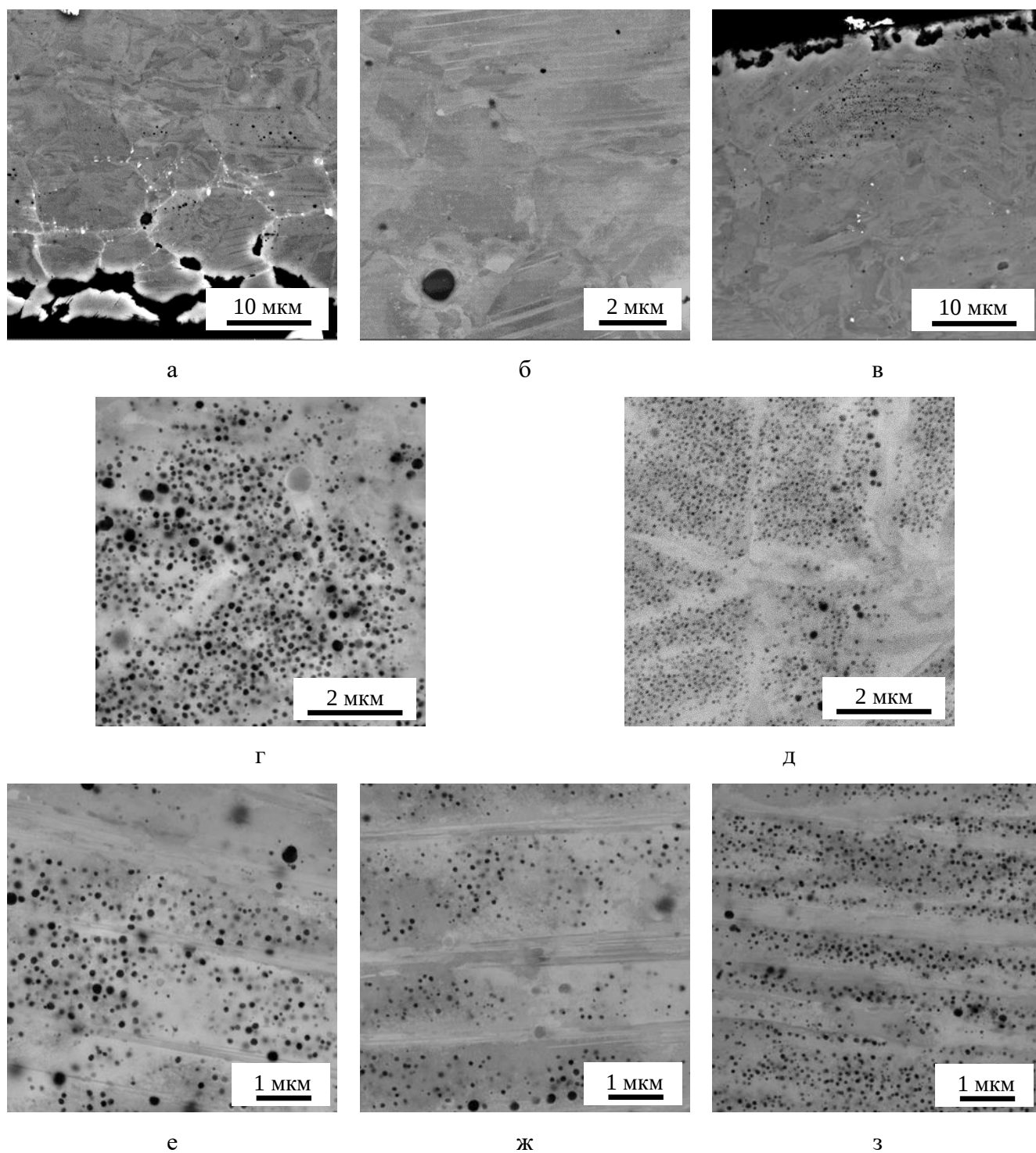


Рисунок 4.9 – Радиационная пористость образцов П-4 ( $T_{\text{обл}} - 550\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 63,7 сна), Пр-4 ( $T_{\text{обл}} - 545\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 92,3 сна), Ц-3 ( $T_{\text{обл}} - 550\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 89,3 сна) вблизи внутренней поверхности (а, г, е), в центральных областях (б, ж) и вблизи наружной поверхности (в, д, з) оболочки твэла

У наружной поверхности наблюдается зона (рисунок 4.9 в), обусловленная «выносом» элементов оболочки в теплоноситель [167-171]. Более подробно описание зоны, в которой происходит «вынос» элементов, будет проведен в главе 5.

Для образцов из промежуточной и центральной областей тепловыделяющей сборки средний размер пор у внутренней поверхности составляет 74 и 76 нм, у наружной поверхности – 51 и 55 нм, соответственно.

Повышение температуры по высоте твэла приводит к увеличению среднего размера пор и снижению их концентрации (рисунок 4.10). В температурной области 580...590 °С для твэла из промежуточной области со стороны внутренней поверхности наблюдаются поры средним размером 63 нм. Со стороны наружной поверхности наблюдаются поры размером 50 нм. Для центрального твэла со стороны внутренней и наружной поверхности наблюдаются поры размером около 90 нм. Для данных температур в середине толщины оболочки твэла поры практически не наблюдаются.

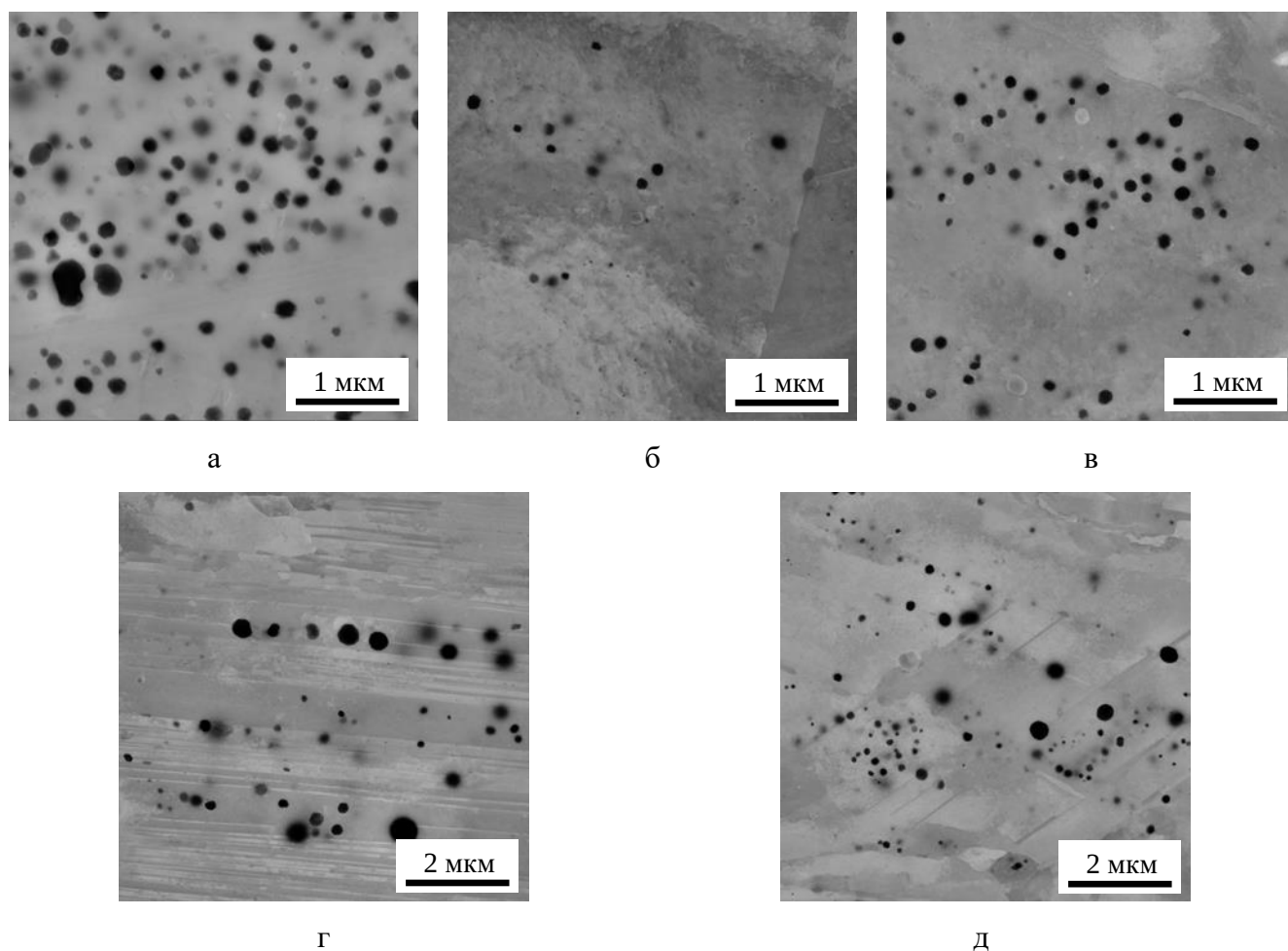


Рисунок 4.10 – Радиационная пористость образцов Пр-5 ( $T_{\text{обл}} = 580$  °С, 80,1 сна), Ц-4 ( $T_{\text{обл}} = 590$  °С, 69,2 сна) вблизи внутренней поверхности (а, г), в центральных областях (б) и вблизи наружной поверхности (в, д) оболочки твэла

В данном температурном интервале радиационная пористость представлена отдельными участками с крупными порами либо их редкими скоплениями с пониженной концентрацией

(рисунок 4.11 а, б). В основном материале оболочки крупных пор практически не наблюдается (рисунок 4.11 в).

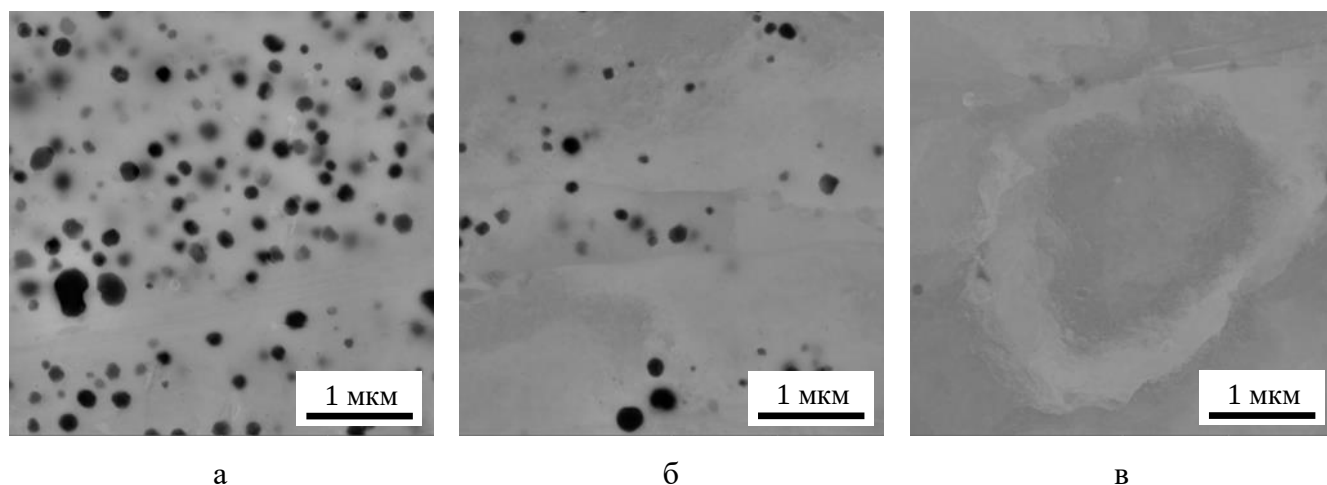
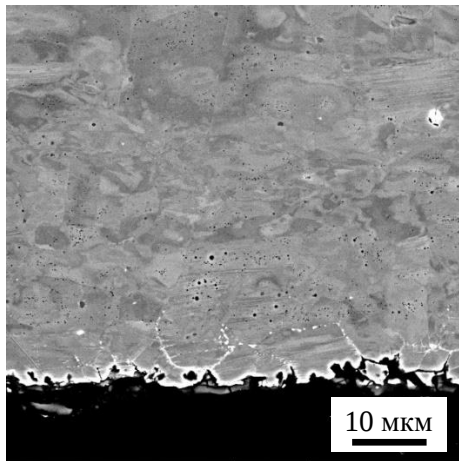


Рисунок 4.11 – Неоднородность радиационной пористости в центральной части образца Пр-5

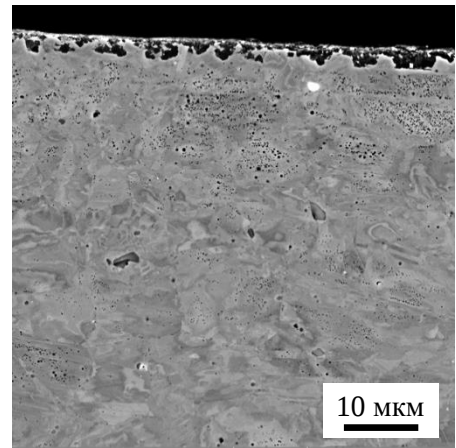
В интервале температур (580...590 °С) на исследованных образцах для наружной и внутренней поверхности наблюдаются различные характеристики радиационной пористости. Со стороны внутренней поверхности наблюдаются крупные поры или их скопления с их локализацией в зоне около 20...40 мкм (рисунок 4.12 а, в). Наблюдаются следы диффузии продуктов деления по границам зерен. Вероятно, интенсивное порообразование в этой зоне связано с влиянием диффузии продуктов деления и выносом легирующих элементов из стали. Со стороны наружной поверхности также наблюдается интенсивное порообразование в зоне 20...40 мкм (рисунок 4.12 б, г). Отличие зоны вблизи наружной поверхности заключается в заметно большей концентрации пор при близком среднем размере.

В верхней части активной зоны при относительной координате 1,0 не наблюдается скоплений радиационных пор (рисунок 4.13). Крайне редкие крупные поры распределены равномерно по оболочке ТВЭЛ.

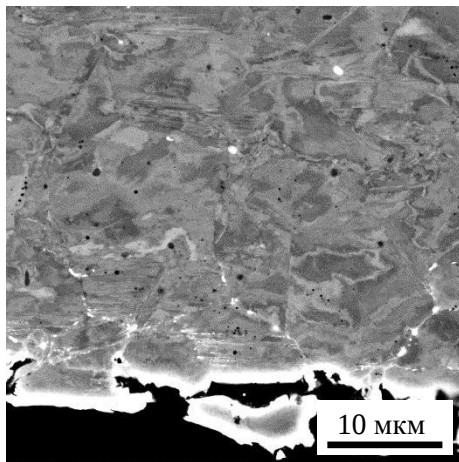
Результаты количественной обработки характеристик радиационной пористости приведены в таблице 4.2.



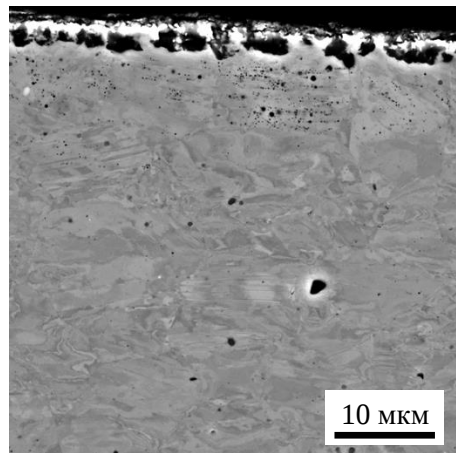
а



б

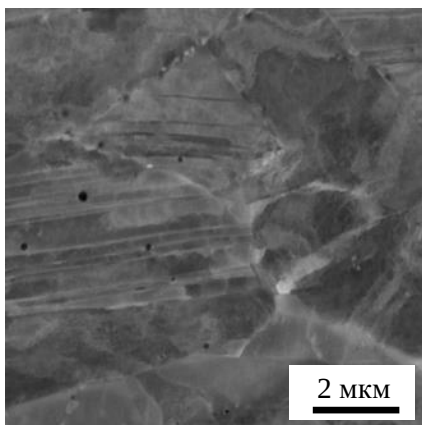


в

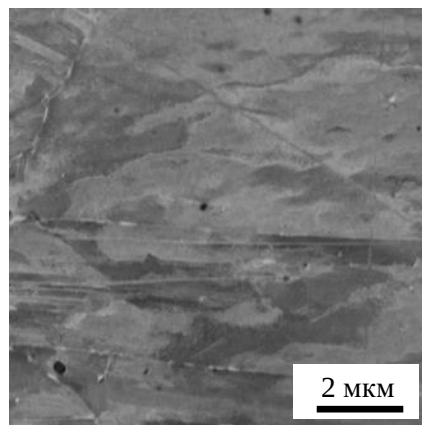


г

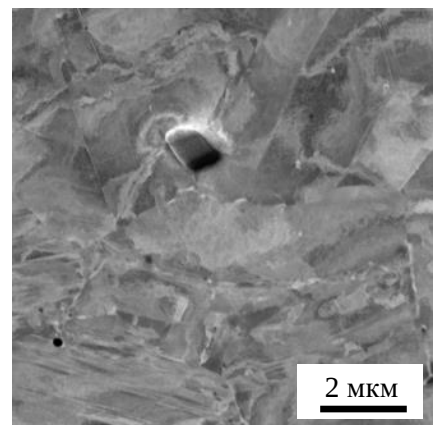
Рисунок 4.12 – Неоднородность радиационной пористости вблизи внутренней (а, в) и наружной (б, г) поверхности образцов Пр-5 и Ц-4



а



б



в

Рисунок 4.13 – Характерный вид структуры образца П-5 (Относительная координата 1,0, повреждающая доза 33,2 сна) вблизи внутренней поверхности (а), центральных областях (б) и наружной поверхности (в)

Таблица 4.2 – Характеристика радиационной пористости и набухания исследованных образцов

| Образец | Т, °С | Доза, сна | Координата, отн ед | Распухание<br>гидростатическое,<br>% | Средний размер пор, нм     |       |       | Количество пор на единице<br>площади 100 мкм <sup>2</sup> |       |       |
|---------|-------|-----------|--------------------|--------------------------------------|----------------------------|-------|-------|-----------------------------------------------------------|-------|-------|
|         |       |           |                    |                                      | Координата по толщине, мкм |       |       | Координата по толщине, мкм                                |       |       |
|         |       |           |                    |                                      | 10,0                       | 200,0 | 400,0 | 10,0                                                      | 200,0 | 400,0 |
| Пр-1    | 430   | 64,5      | 0,1                | 2,2                                  | 16,4                       | 14,0  | 13,4  | 185,9                                                     | 171,2 | 183,6 |
| Пр-2    | 445   | 72,6      | 0,2                | 3                                    | 22,5                       | 17,8  | 15,8  | 104,5                                                     | 150,4 | 146,6 |
| Пр-3    | 514   | 92,8      | 0,4                | 6,1                                  | 53,6                       | н.о.  | 34,6  | 19,4                                                      | н.о.  | 59,0  |
| Пр-4    | 545   | 92,3      | 0,5                | 4,8                                  | 74,1                       | н.о.  | 50,9  | 14,8                                                      | н.о.  | 24,7  |
| Пр-5    | 580   | 80,1      | 0,7                | 0,9                                  | 63,4                       | 30,5  | 50,2  | 11,1                                                      | 5,5   | 20,0  |
| Ц-1     | 480   | 85,1      | 0,3                | 3,1                                  | 32,3                       | 29,2  | 25,4  | 41,4                                                      | 30,2  | 49,8  |
| Ц-2     | 515   | 90,7      | 0,4                | 2,3                                  | 55,7                       | н.о.  | 35,0  | 16,0                                                      | н.о.  | 39,2  |
| Ц-3     | 550   | 89,3      | 0,6                | 1,4                                  | 76,4                       | 57,9  | 54,7  | 12,3                                                      | 10,4  | 23,5  |
| Ц-4     | 590   | 69,2      | 0,8                | 0,1                                  | 93,8                       | н.о.  | 92,6  | 1,9                                                       | н.о.  | 3,8   |
| П-1     | 445   | 73,3      | 0,2                | 2,9                                  | 27,0                       | 22,4  | 19,5  | 87,8                                                      | 142,5 | 140,2 |
| П-2     | 490   | 86,7      | 0,4                | 3,2                                  | 52,3                       | 49,2  | 41,8  | 38,6                                                      | 48,0  | 65,7  |
| П-3     | 515   | 85,6      | 0,6                | 1,5                                  | 79,8                       | 70,2  | 66,3  | 4,8                                                       | 12,5  | 19,8  |
| П-4     | 550   | 63,7      | 0,8                | 0,2                                  | 56,7                       | н.о.  | 61,3  | 1,1                                                       | н.о.  | 3,1   |
| П-5     | 560   | 33,2      | 1,0                | 0,1                                  | 0,0                        | 0,0   | 0,0   | 0,0                                                       | 0,0   | 0,0   |

н.о. – не определялось

Для уточнения тенденций распределения характеристик радиационной пористости по толщине оболочки твэла проведено ее исследование по схеме близких участков в радиальном направлении от внутренней к наружной поверхности на образцах твэла из периферийной области. Первое изображение с размером видимого поля 10 мкм получено в координате 10 мкм от наружной поверхности. Следующее изображение снималось на расстоянии 30 мкм от поверхности. Расстояние между изображениями составляло 10 мкм. Суммарное количество исследованных участков по толщине для образцов оболочки твэлов составляло 20 штук. Схема проведения исследования представлена на рисунке 4.14.

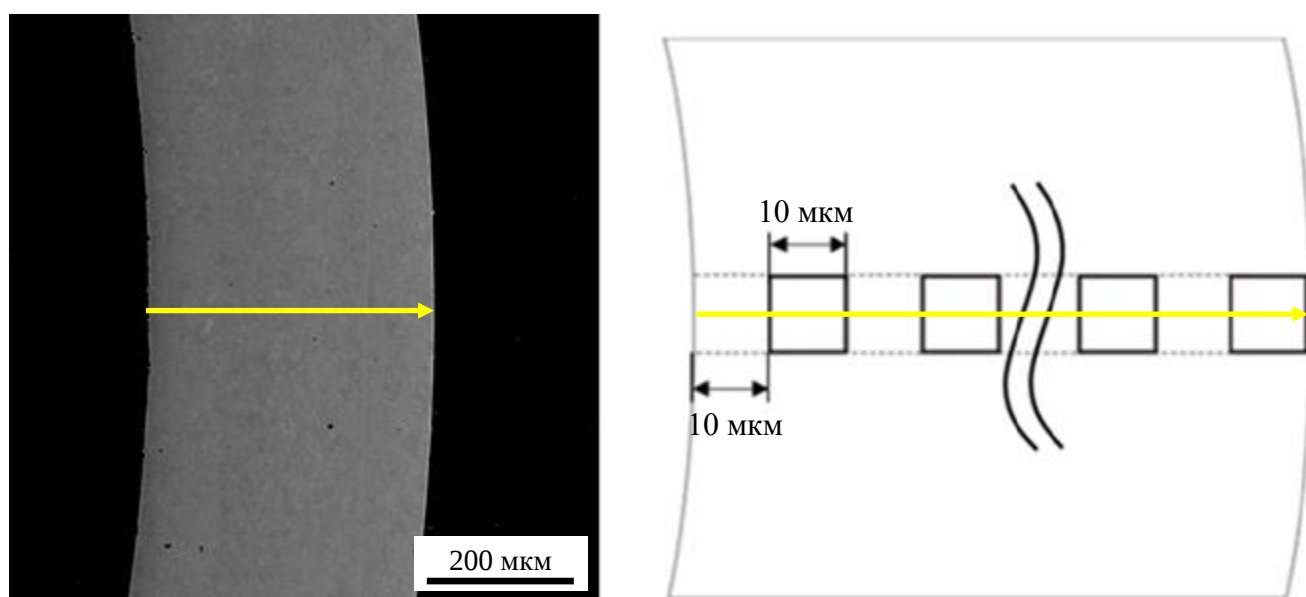


Рисунок 4.14 – Схема исследования поперечных сечений твэлов

Исследование проведено на поперечных шлифах образцов оболочки твэлов (П-6, П-7), изготовленных из аустенитной стали ЭК164, облученных при температурах 480 и 515 °С до повреждающих доз 91,1 и 94,4 сна, соответственно (рисунок 4.17). Подробное исследование показывает, что изменение характеристик радиационной пористости по толщине оболочки на образцах, находящихся на стадии близкой к стадии стационарного распухания, происходят непрерывно (рисунок 4.15 и 4.16).

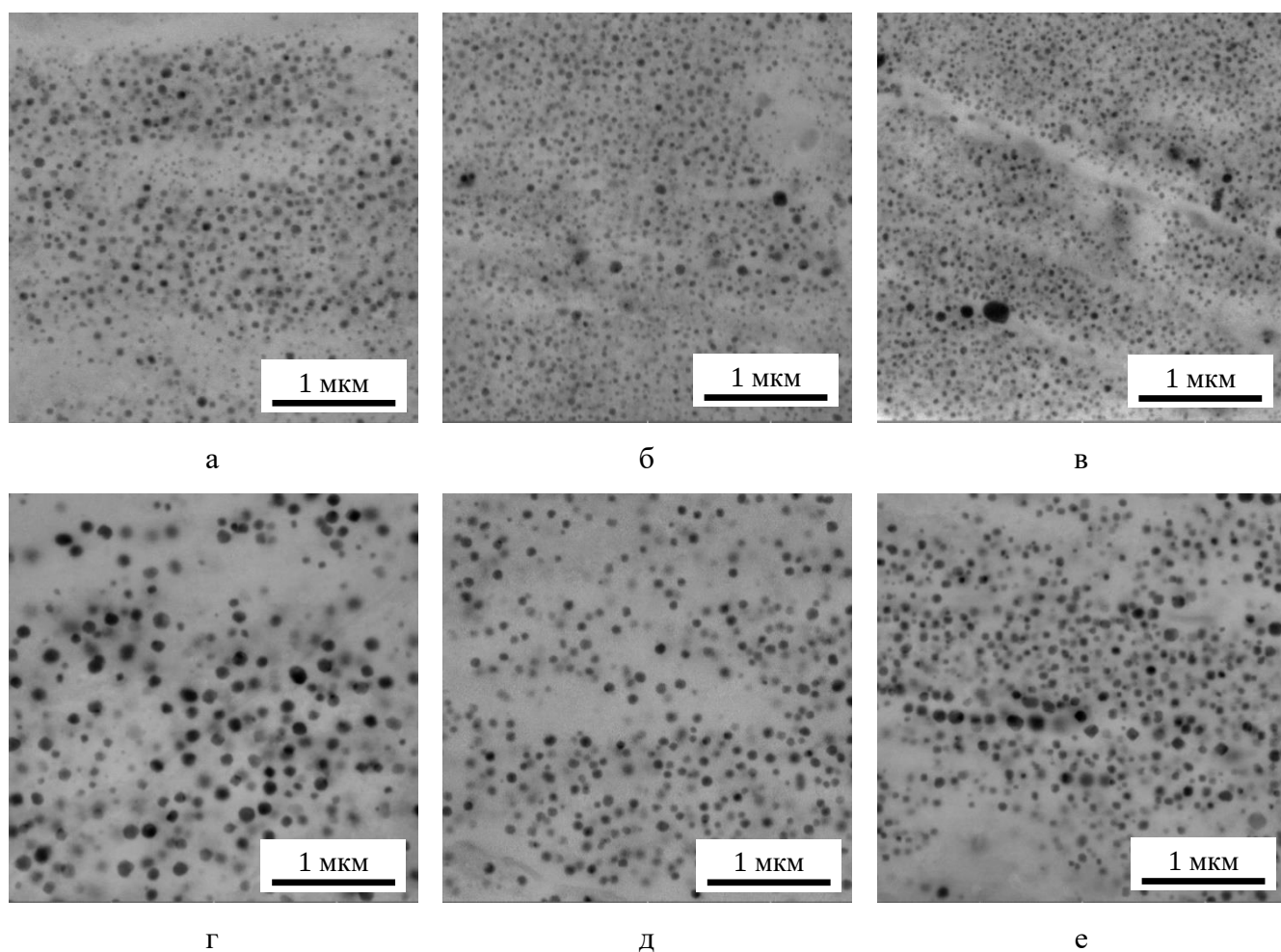
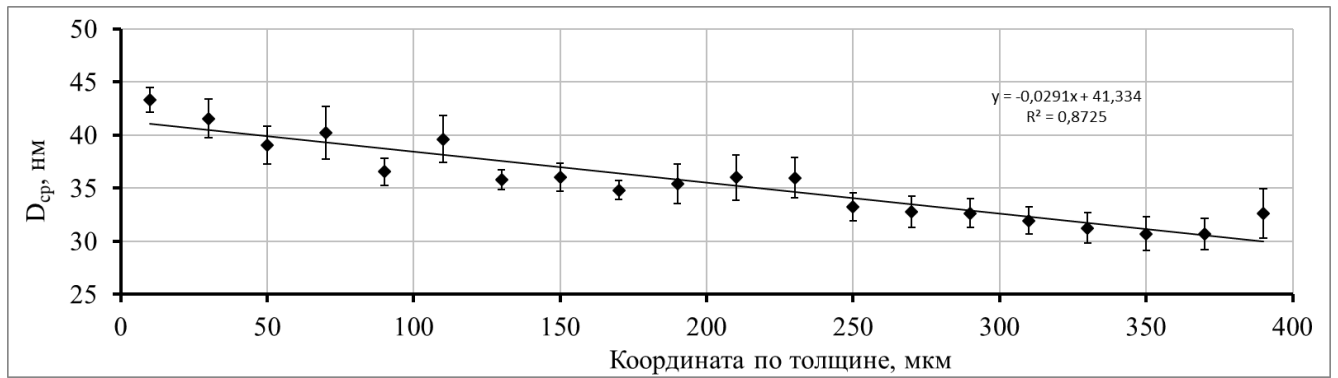
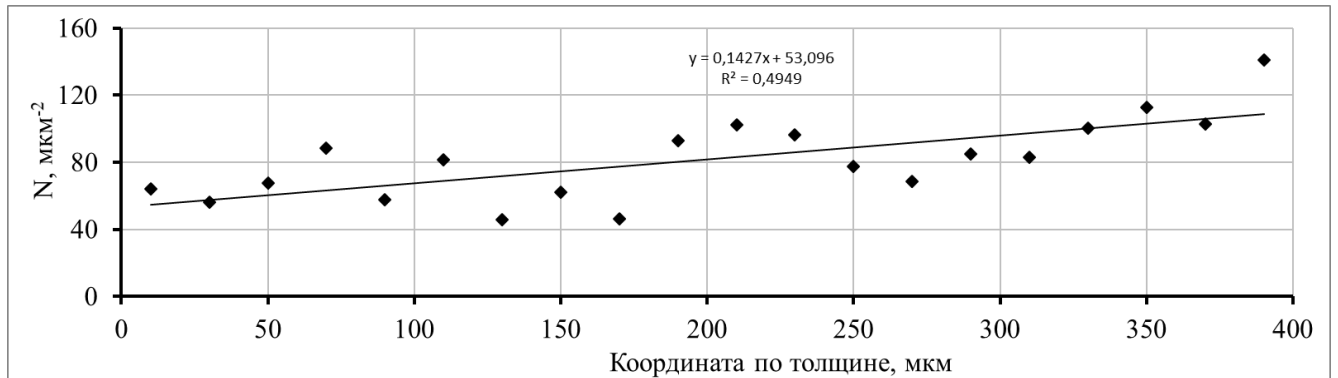


Рисунок 4.15 – Радиационная пористость образцов П-6 ( $T_{\text{обл}} = 480^\circ\text{C}$ , 91,1 сна) и П-7 ( $T_{\text{обл}} = 515^\circ\text{C}$ , 94,4 сна) вблизи внутренней поверхности (а, г), в центральных областях (б, д) и вблизи наружной поверхности (в, е) оболочки ТВЭЛа

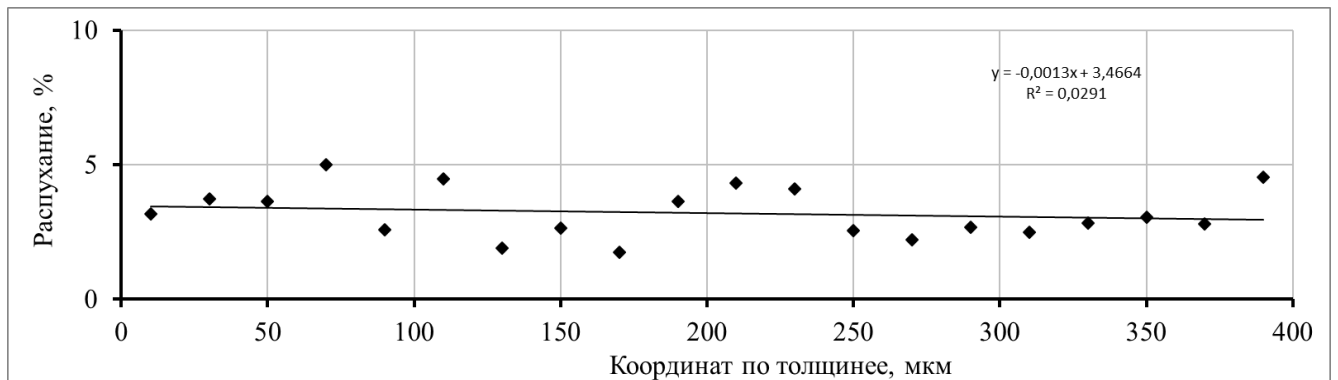
Зависимости изменения концентрации и среднего размера пор от расстояния от внутренней поверхности имеют линейный характер и повторяют основные тенденции (рисунок 4.16), выявленные при исследовании радиационной пористости образцов с температурой облучения до  $550^\circ\text{C}$ . Со стороны внутренней поверхности наблюдаются крупные поры. От внутренней к наружной поверхности происходит уменьшение среднего размера и увеличение концентрации пор. При этом проведенная оценка распухания в локальных областях показывает примерно один и тот же уровень (рисунок 4.17). Аппроксимация точек прямой линией показывает практически не значимый угол наклона (значение  $R^2$  близко к 1). Эти данные близки к результатам работы [172] в которой получены подобные распределение плотности на стенке с градиентом температур.



а

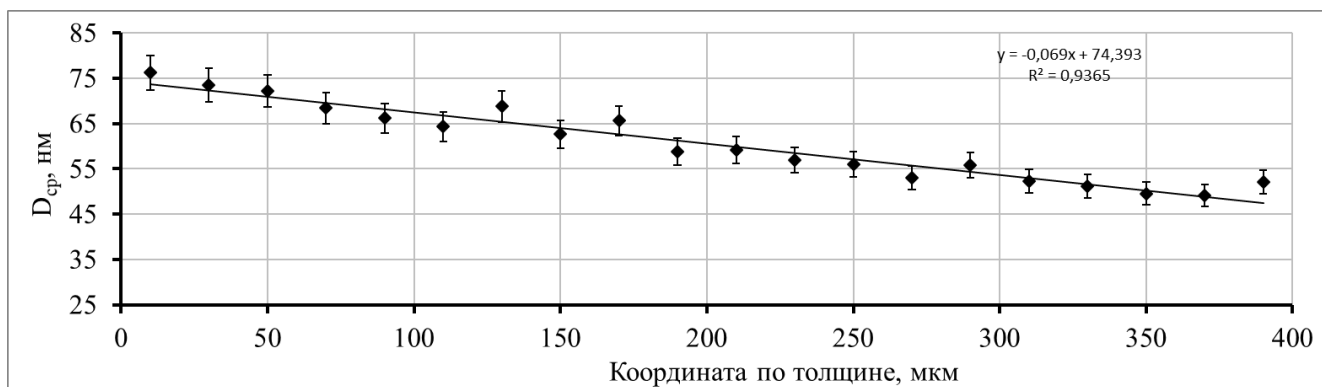


б

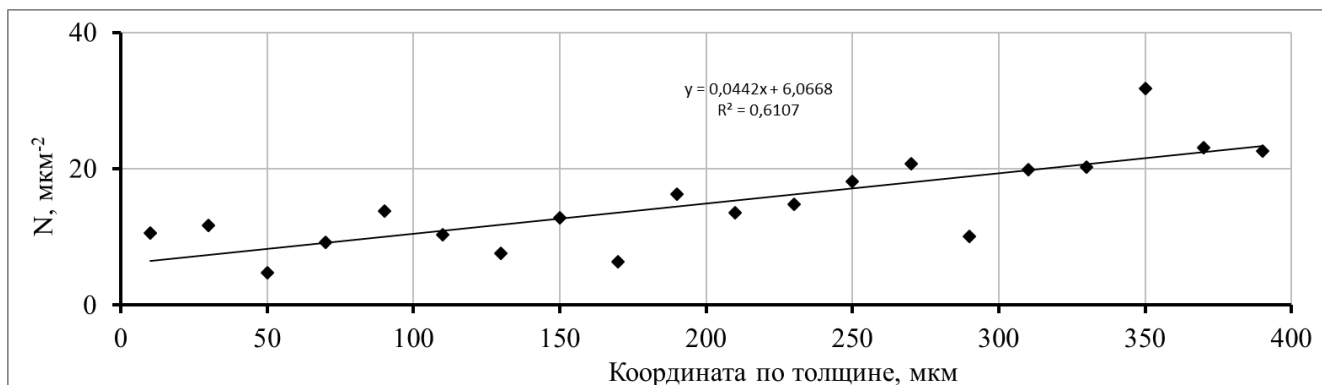


в

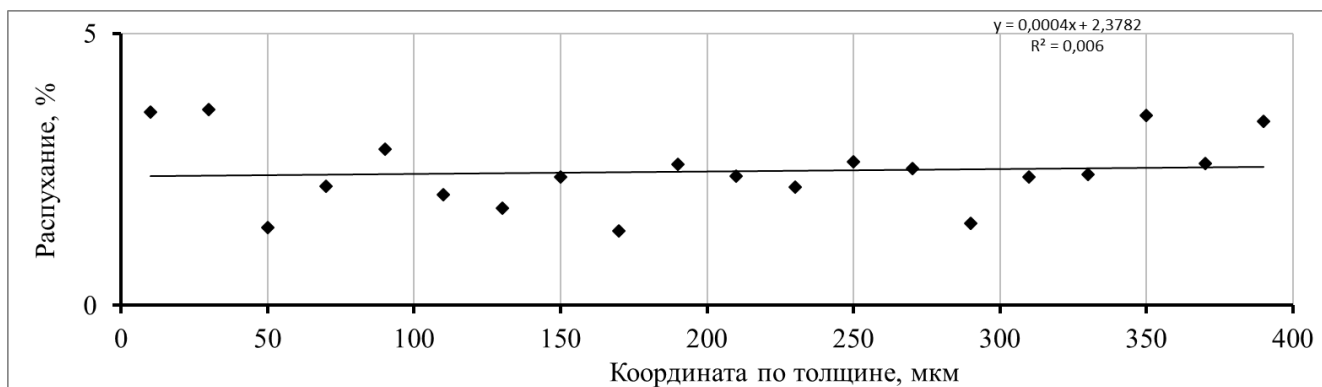
Рисунок 4.16 – Изменение среднего размера (а), концентрации (б) и распухания (в) по толщине оболочки от внутренней поверхности образца П-6, облученного при температуре 480 °С до повреждающей дозы 91,1 сна



а



б



в

Рисунок 4.17 – Изменение среднего размера (а), концентрации (б) и набухания (в) по толщине оболочки от внутренней поверхности образца П-7, облученного при температуре 515 °С до повреждающей дозы 94,4 сна

Обобщая результаты проведенных исследований образцов оболочек твэлов, схематически их можно представить в следующем виде (рисунок 4.18). В результате проведенных исследований образцов, отобранных по толщине и 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 4.18), связанный с конструктивной особенностью, а именно его вертикальным положением и транспортировкой теплоносителя снизу вверх. 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. При этом наблюдается монотонное снижение среднего размера пор и увеличение их концентрации по толщине от внутренней к наружной поверхности, связанные с градиентом температуры. В уточняющем эксперименте проведено определение распухания, которое показывает относительно близкие его значения по толщине оболочки, несмотря на изменение характеристик радиационной пористости из-за градиента температуры.

Данная тенденция существует до тех пор, пока средневзвешенная температура нейтронного облучения не превысит верхний температурный порог образования радиационной пористости для аустенитных сталей, приблизительно равный  $0,6T_{\text{пл}}$ . В верхней части твэла по данным СЭМ из-за существующего градиента температуры по толщине оболочки происходит смещение зоны интенсивного порообразования. Так при высоких температурах наблюдается отсутствие гомогенного распределения пор у внутренней поверхности и центральных частях оболочки, но наблюдаются области с радиационными порами на более холодном участке со стороны наружной поверхности. В самых верхних частях твэлов, где со значительным увеличением температуры и уменьшением повреждающей дозы радиационная пористость неоднородна по толщине. Необходимо отметить, что порообразование в приповерхностных областях может быть усиленно диффузионными процессами, выносом никеля в теплоноситель у наружной поверхности и взаимодействием с продуктами деления и топливом со стороны внутренней поверхности, что в свою очередь обеспечивает ее развитие.

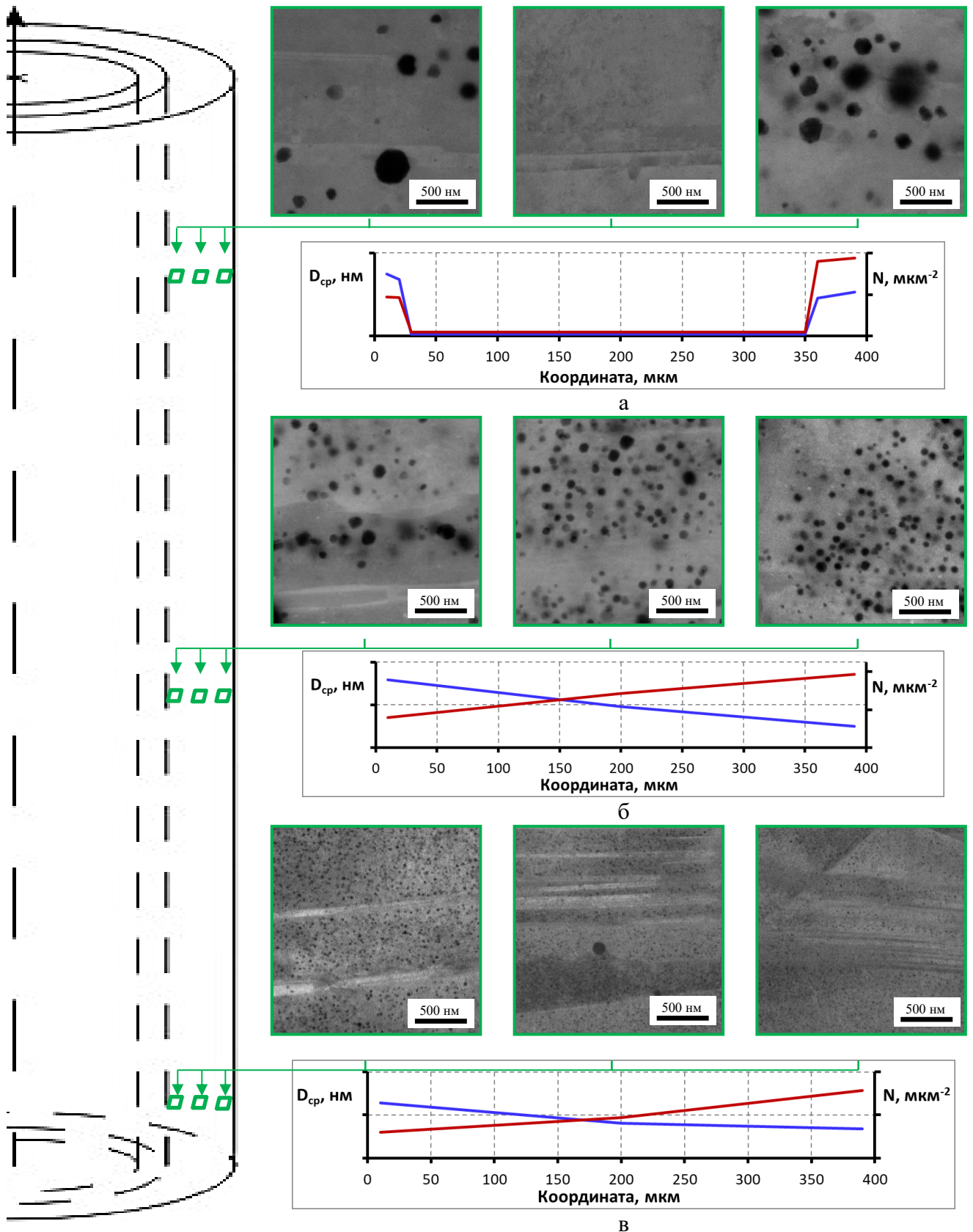


Рисунок 4.18 – Схематическое представление пространственного распределения радиационных пор в оболочке твэла ( $D_{cp}$  – диаметр, нм,  $N$  – условная концентрация, шт./ $\mu\text{m}^2$ ): а – распределение пор по толщине в верхней части; б – распределение пор по толщине в центральной области; в – распределение пор по толщине в нижней части

#### 4.2 Распределения радиационной пористости по толщине стенки периферийного твэла по радиальным ортогональным направлениям в пределах его оболочки

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. На исследуемых в АО «ИРМ» твэлах невозможно определить их пространственное расположение в тепловыделяющей сборке. Так как исследуемый в этой части работы твэл является периферийным, и в ранее проведенных исследованиях наблюдалась сильная зависимость радиационной пористости от температуры, логичным является постановка вопроса о ее неоднородности в различных радиальных направлениях. данного параметра для данного твэла.

Размеры сегментов образцов позволяют проводить исследование состояния материала оболочки твэла в ортогональных направлениях (рисунок 4.19). На исследованном образце наблюдаются отличающиеся характеристики радиационной пористости в ортогональных направлениях на торцевом сечении оболочки твэла, вероятно связанные с различным теплосъемом на краевом твэле в тепловыделяющей сборке.

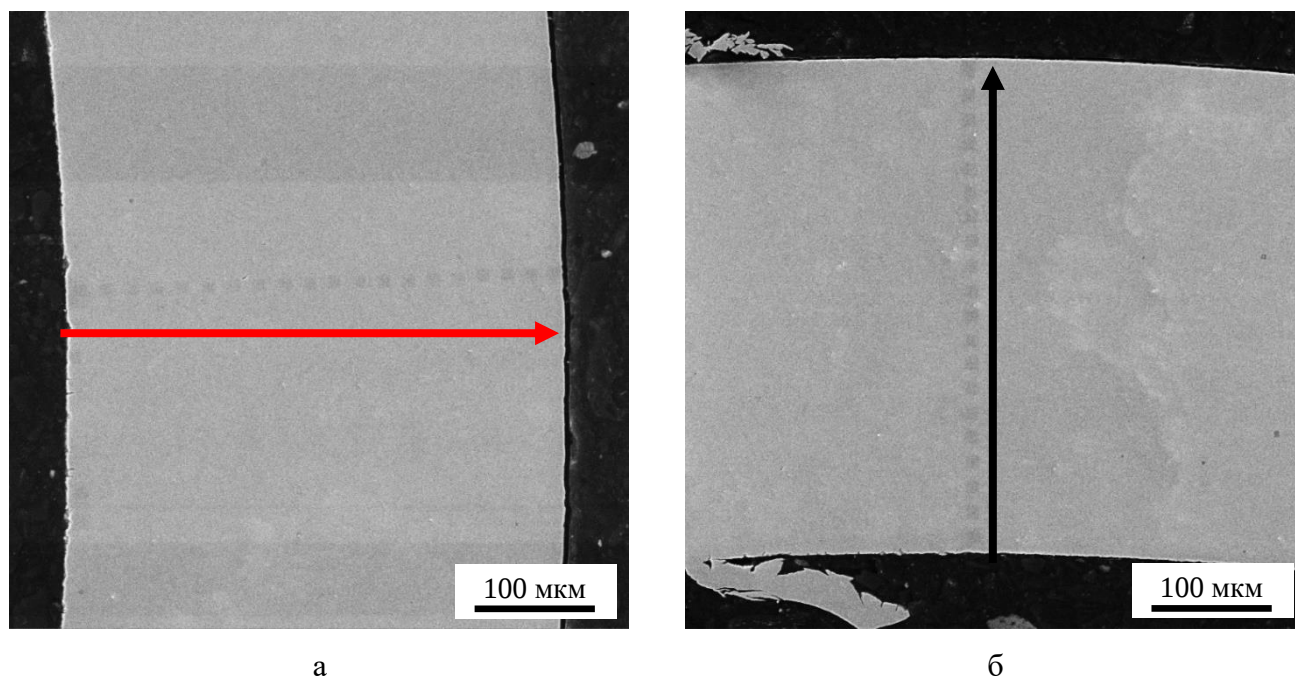


Рисунок 4.19 – Исследование радиационной пористости в ортогональных направлениях по толщине твэла: 0 °(а) и повернутое на 90 °(б)

В результате проведения исследования радиационной пористости наблюдается визуальное различие в размере и концентрации пор на эквивалентных участках ортогональных направлений поперечного шлифа сегмента оболочки твэла (П-8), облученного при температуре 480 °С до повреждающей дозы 98,4 сна (рисунок 4.20). Со стороны внутренней поверхности наблюдаются поры, средний видимый размер которых больше, чем для середины и зоны у наружной поверхности. При повороте сегмента на 90 ° наблюдается визуальное уменьшение размера пор с сохранением тенденции уменьшения размера от внутренней к наружной поверхности. Для обоих направлений наблюдается влияние градиента температуры по толщине оболочки.

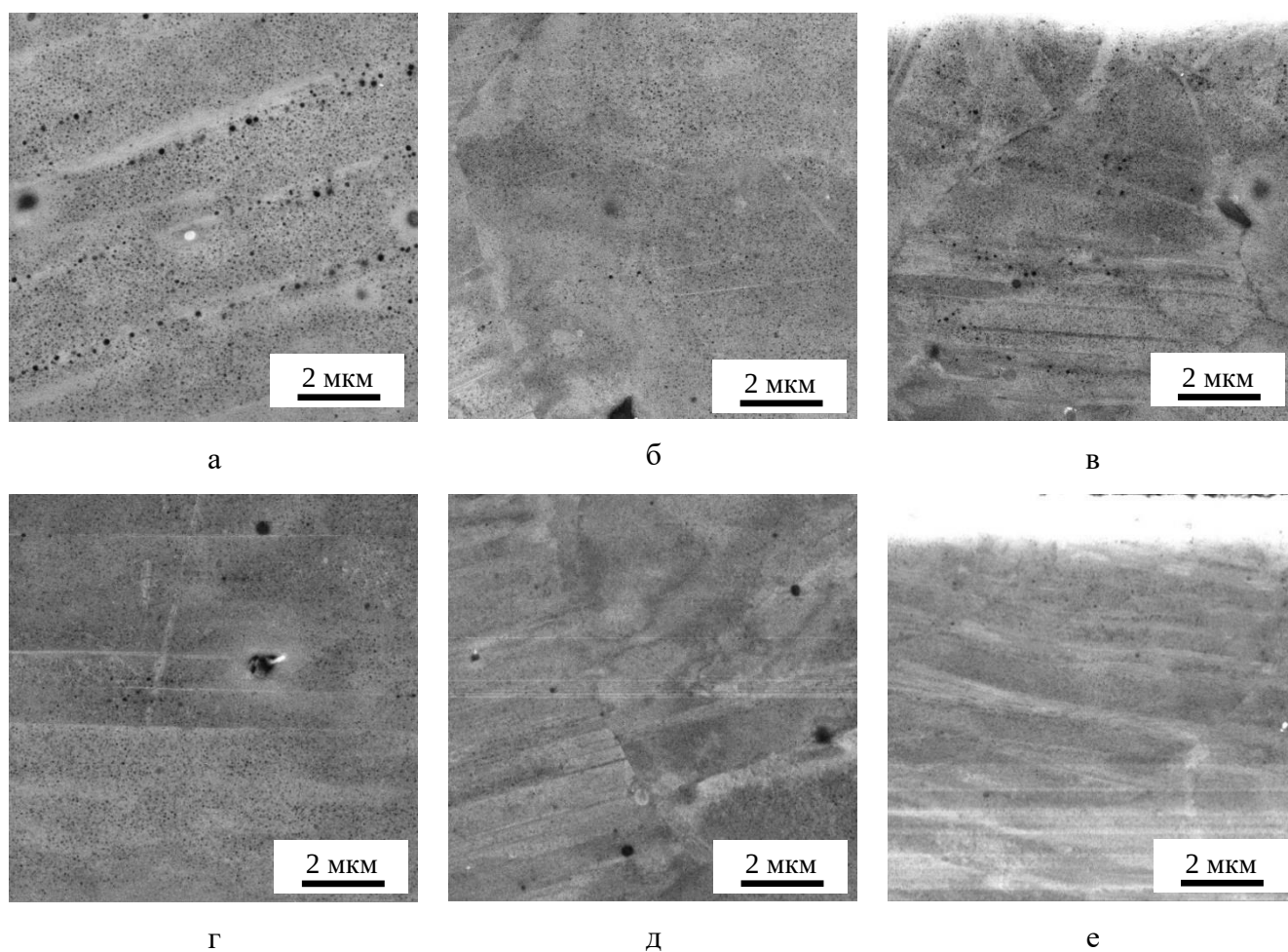


Рисунок 4.20 – Радиационная пористость образца П-8 ( $T_{\text{обл}} = 480\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 98,4 сна) по ортогональным направлениям вблизи внутренней поверхности (а, г), в центральных областях (б, д) и вблизи наружной поверхности (в, е) оболочки твэла: а, б, в – сечение  $0^{\circ}$ ; г, д, е – сечение  $90^{\circ}$

Количественный анализ радиационной пористости по изображениям, полученным с ортогональных участков образца, показывает отличающиеся распределения пор по размерам (рисунок 4.21). Для гистограмм, построенных в направлении «0°» с крупными видимыми порами, характерно несимметричное распределение пор по размерам с выраженным сдвигом распределения в сторону увеличения их диаметра (правая сторона гистограммы). Для направления «90°» со стороны внутренней поверхности наблюдается близкое к симметричному одномодальное распределение без выраженной второй моды на гистограмме. От внутренней к наружной поверхности наблюдается сдвиг мод распределения пор по размерам на гистограммах в меньшую сторону, который связан градиентом температур по толщине оболочки.

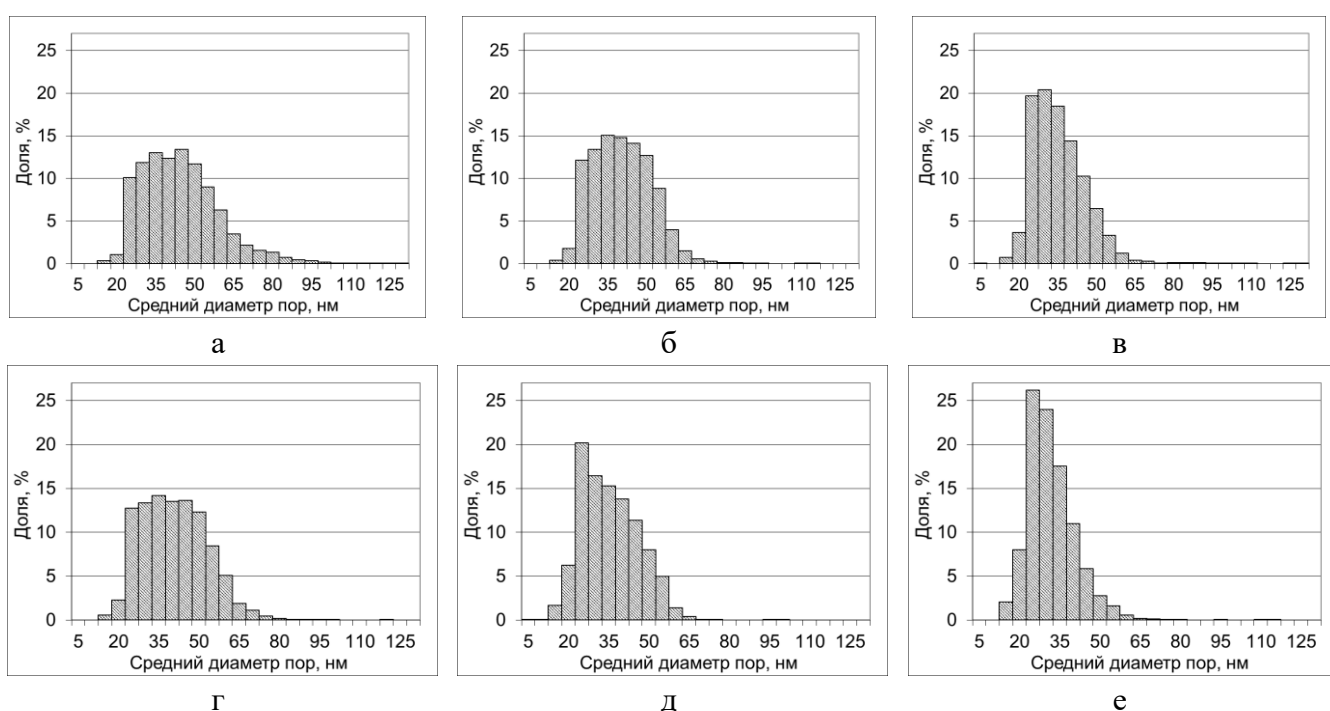


Рисунок 4.21 – Гистограммы распределения пор по размерам образца П-8 ( $T_{\text{обл}} - 480\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 98,4 сна) по ортогональным направлениям вблизи внутренней поверхности (а, г), в центральных областях (б, д) и вблизи наружной поверхности (в, е) оболочки твэла: а, б, в – сечение  $0^{\circ}$ ; г, д, е – сечение  $90^{\circ}$

Анализ изменения характеристик радиационной пористости образцов приведен на рисунке 4.22. По толщине оболочки в ортогональных направлениях наблюдаются различия в среднем размере и концентрации пор от внутренней поверхности к наружной. Для направления «0°» систематически наблюдается больший средний размер пор в эквивалентных координатах, чем для направления «90°». Наблюдается условно монотонное изменение среднего размера пор в обоих направлениях. Концентрация пор на единице площади возрастает от внутренней к

наружной поверхности. Аппроксимация величины распухания, определенного по участкам, линейной зависимостью дает практически горизонтальную прямую в обоих направлениях. Наблюдается несколько большее распухание у внутренней поверхности для направления «0°». У наружной поверхности для обоих направлений распухание принимает близкие значения.

Для анализируемого участка твэла распухание, определенное методом гидростатического взвешивания, составляет порядка 1,5 %. Среднее распухание, определенное по 2 ортогональным направлениям составляет приблизительно 1,1 %.

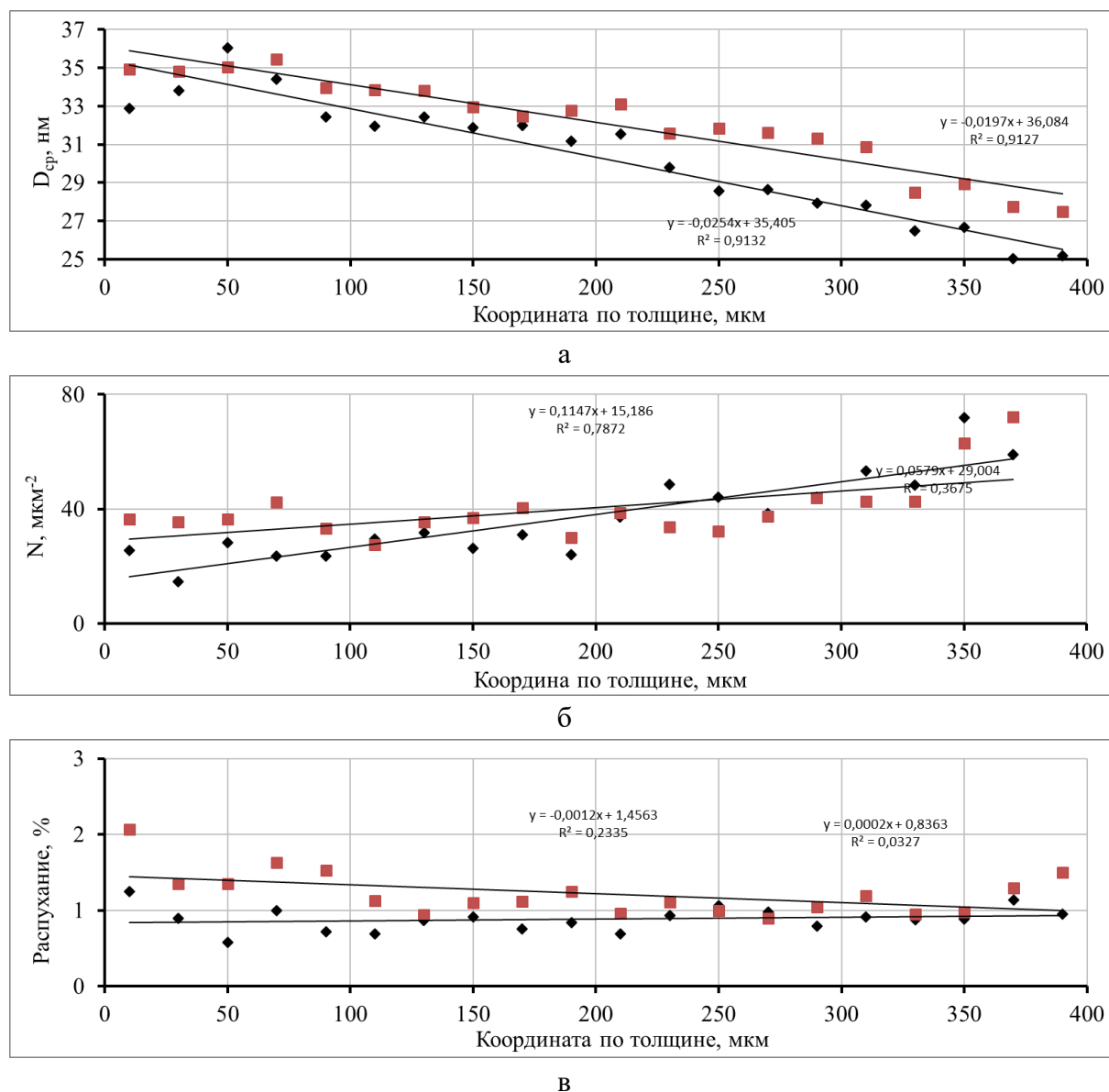


Рисунок 4.22 – Изменение среднего размера (а), концентрации (б) и распухания (б) по толщине оболочки от внутренней поверхности образца П-8, облученного при температуре 480 °С до повреждающей дозы 98,4 сна: красный – сечение 0 °; черный – сечение 90 °

#### 4.3 Влияние элементов мезоструктуры на образование радиационных пор на начальной стадии нестационарного распухания

В условиях, когда распухание не достигло стационарной стадии, наблюдается сильное влияние мезоструктурных элементов материала на характеристики радиационной пористости. В зависимости от мезоструктурного состояния распухание отдельных кристаллитов происходит по-разному.

Продолжительное воздействие высокоэнергетического нейтронного облучения приводит к возникновению дисбаланса концентрации вакансий и междоузлий, в результате которой становится возможен рост пор [17]. Диффузионная природа этого процесса приводит к тому, что различные элементы микроструктуры и условия облучения играют значительную роль на процесс зарождения и роста пор.

Облучение материала при температуре 480 °С до повреждающей дозы 87 сна привело к интегральному распуханию участка твэла до 0,5 %, определенного гидростатическим методом. Для данной стали подобный уровень распухания можно отнести к начальной стадии нестационарного распухания. Исследование радиационной пористости по толщине оболочки (Ц-5) показало ее значительную неоднородность (рисунок 4.23). Наблюдается различие в среднем диаметре ( $D_{cp}$ ) радиационных пор со стороны внутренней и наружной поверхностей, связанное с градиентом температуры по толщине оболочки (рисунок 4.23 а). Вблизи внутренней и наружной поверхности наблюдается повышенное количество пор на единице площади ( $N$ , рисунок 4.23 б). Вероятно, увеличенная концентрация пор связана с повышенной диффузионной активностью материала оболочки, обеспеченной его взаимодействием с внутритвэльной средой и теплоносителем. Общий уровень распухания оболочки в центральных областях находится на одном уровне (рисунок 4.23 в).

Микроструктура оболочки твэла в различных участках по ее толщине в одном сечении может содержать однородно распределенные поры по телу зерна, их скопления вблизи границ, отдельные крупные поры вблизи границ двойников деформации или участки, в которых поры, размером больше 10 нм отсутствуют (рисунок 4.24). Средний размер пор со стороны внутренней поверхности (координата 10 мкм) составляет 50 нм (рисунок 4.24 а). Для наружной поверхности (координата 390 мкм) средний размер радиационных пор составляет 32 нм (рисунок 4.24 б). Межзеренные границы, являясь плоским дефектом, создают условия для нарушения равновесия потоков вакансий и междоузлий во время облучения.

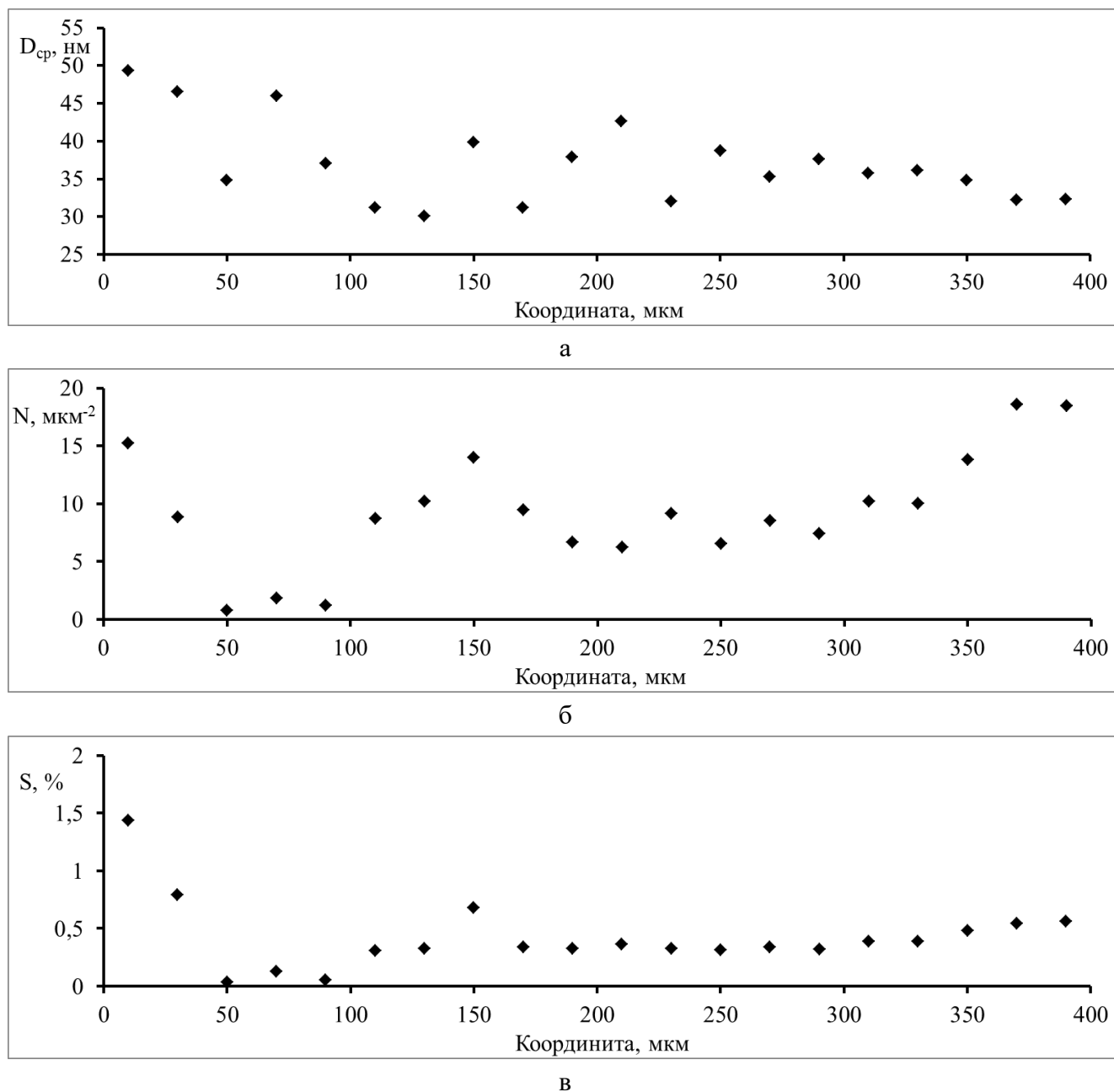


Рисунок 4.23 – Изменение среднего размера (а), концентрации (б) и распухания (б) по толщине оболочки от внутренней поверхности образца Ц-5, облученного при температуре 480 °С до повреждающей дозы 87 сна

В результате, вблизи границ зерен можно наблюдать повышенную концентрацию радиационных пор в виде строчек или зоны без пор (рисунок 4.24 а). Участкам монотонного уменьшения среднего диаметра (рисунок 4.23 а) соответствует монотонное увеличение концентрации (рисунок 4.23 б) в координатах от 210 до 370 мкм. На участке от 30 до 190 мкм наблюдаются неоднородность радиационной пористости, то есть колебание среднего размера и количества пор, приводящее к заметной вариации значений распухания.

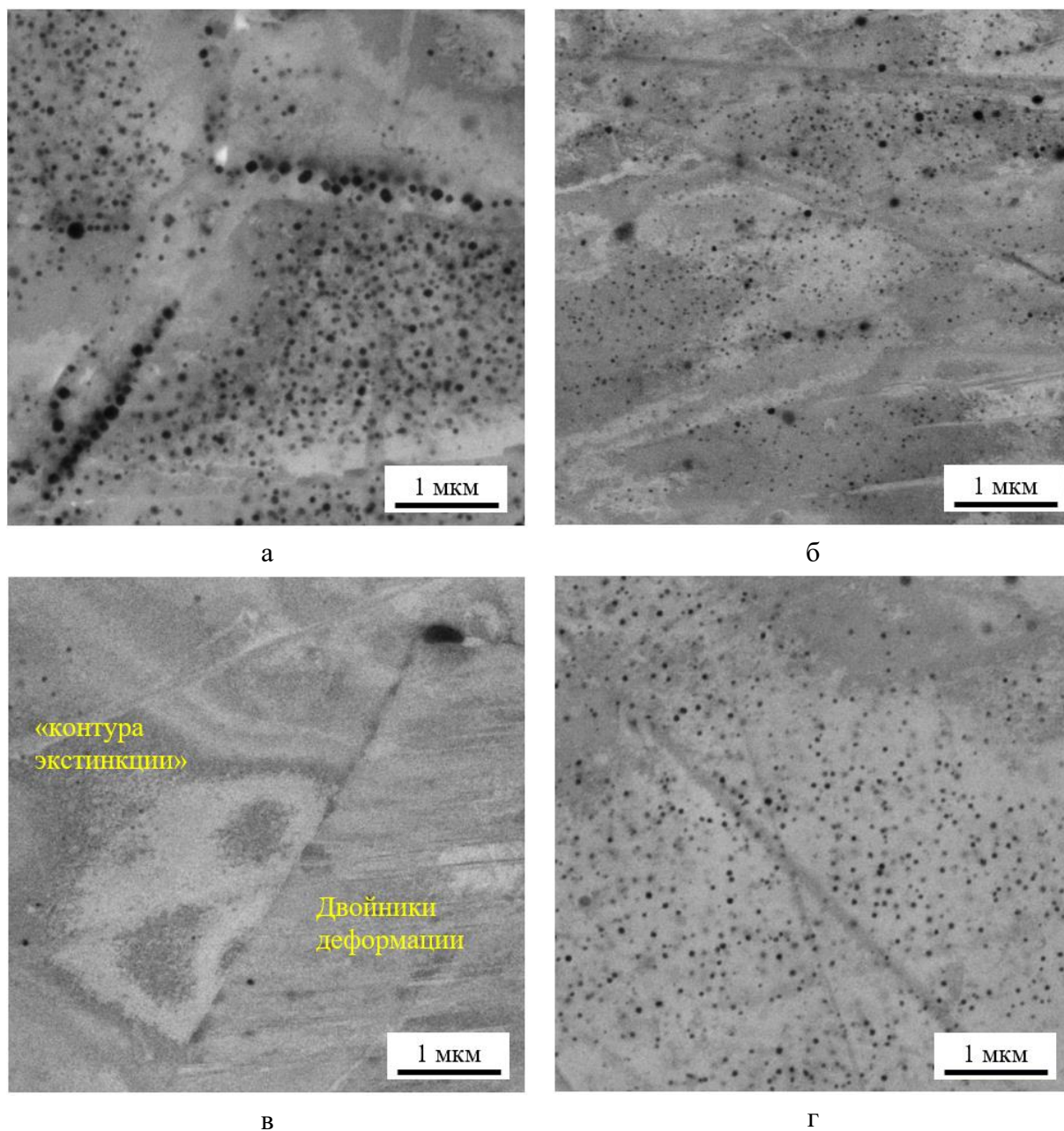


Рисунок 4.24 – Микроструктура аустенитной стали ЭК164 и морфология пор в различных координатах по толщине (Ц-5) на расстоянии от внутренней к наружной поверхности 10 мкм (а), 390 мкм (б), 50 мкм (в) и 150 мкм (г)

На рисунках 4.24, в, г приведены микроструктуры участков, с координатами 50 и 150 мкм от внутренней поверхности, соответственно. Участок с координатой 50 мкм характеризуется редкими порами, наблюдаемыми при помощи СЭМ. На изображении видна межзеренная граница, разделяющая кристалл с высокой плотностью двойников деформации (среднее расстояние между двойниками деформации  $\sim 0,3$  мкм), и кристалл, в котором наблюдается накопленная малоугловая разориентировка (повышенная плотность малоугловых границ). О малоугловой разориентировке зерна вблизи границы свидетельствует наличие «узора»,

подобного контурам экстинкции для ПЭМ. На участке с координатой 150 мкм (рис. 4.24, г) наблюдается равномерное распределение пор по исследуемому участку без видимых структурных элементов.

Гидростатическое взвешивание исследуемого образца показало интегральное набухание на уровне 0,5%. Усреднение рассчитанного при помощи метода СЭМ набухания по толщине дает оценку  $(0,5 \pm 0,2\%)$ . Наблюдаемое колебание определяемых характеристик радиационной пористости связано с локальным структурным состоянием материала в исследуемой области и условиями облучения.

Радиационная пористость на исследованном образце может значительно отличаться даже в соседних зернах. На рисунке 4.25 «а» приведено изображение участка вблизи внутренней поверхности, на котором наблюдается три соседних зерна, характеризующиеся различной радиационной пористостью и разными структурными элементами, определенными при помощи карт дифракции обратно отраженных электронов (EBSD) (рисунок 4.25 б, в, г).

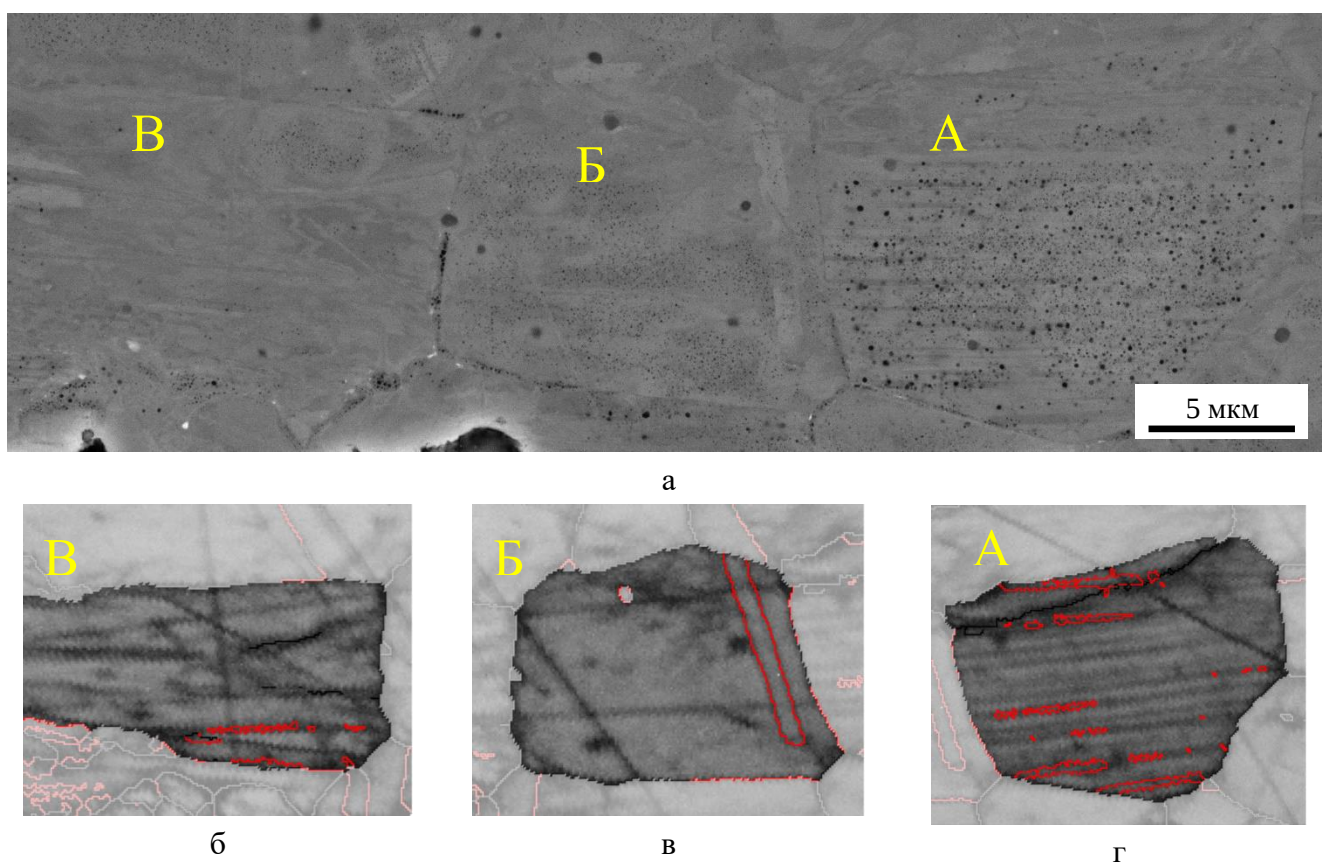


Рисунок 4.25 – Радиационная пористость в зернах вблизи внутренней поверхности, содержащих различный набор мезоструктурных элементов, карты качества дифракционных картин (нижний ряд), красными линиями выделены границы двойниковой разориентации

В зерне «А» наблюдаются двойники деформации, проходящих через все зерно. Толщина некоторых позволяет определить ориентацию, и соответственно выделить их границы. Для тонких участков двойников наблюдается характерный полосчатый контраст на картах качества картин дифракции. Внутри зерна «В» не наблюдается двойников деформации. Внутри зерна «Б» наблюдается крупный двойник отжига, образовавшийся во время изготовления оболочки.

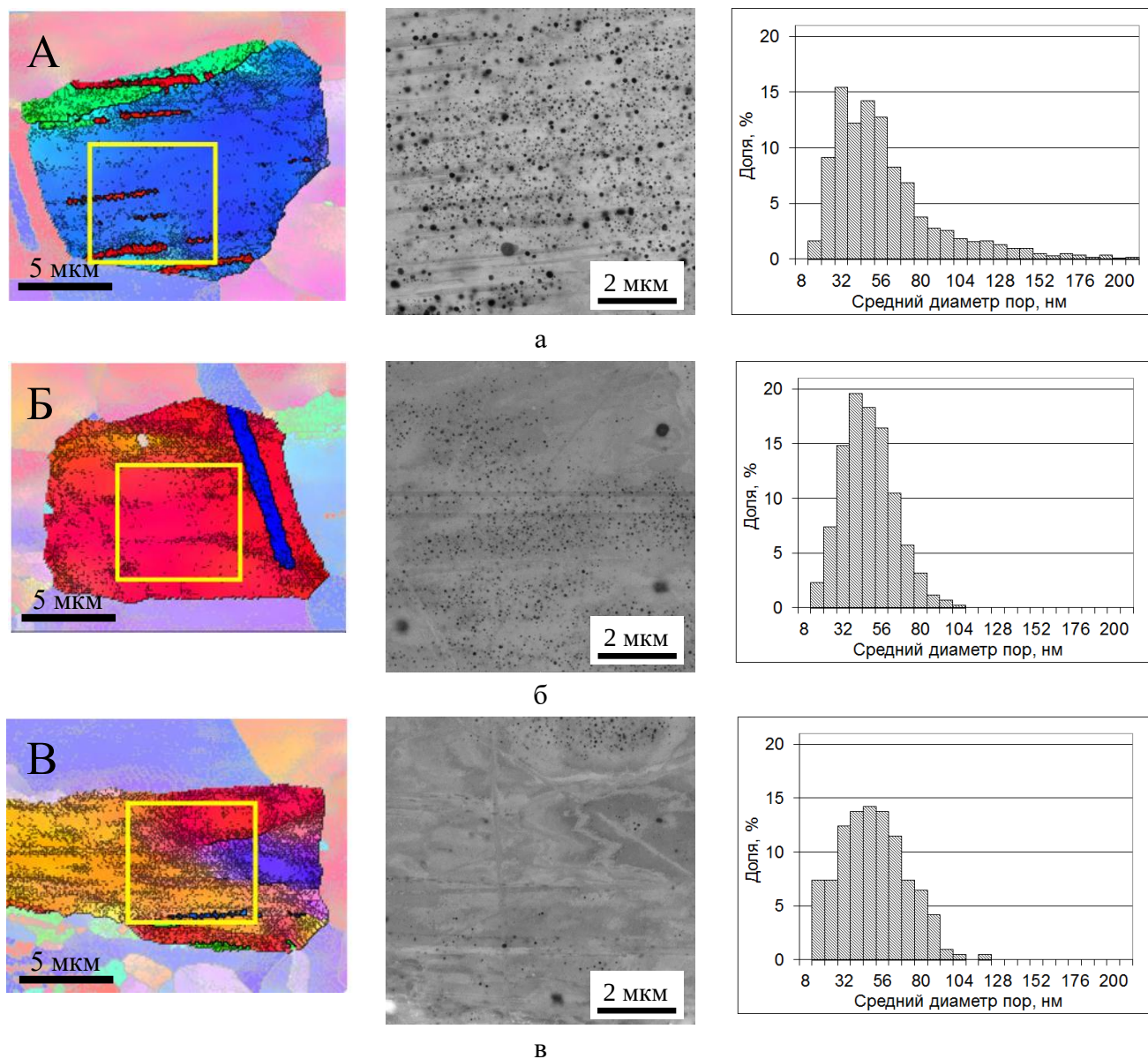


Рисунок 4.26 – Радиационная пористость в зернах «А» (а), «Б» (б) и «В» (в) на участке вблизи внутренней поверхности, содержащих различный набор мезоструктурных элементов; левая часть - карты ориентации дифракционных картин, тонкими черными линиями выделены локальные разориентировки  $> 0,6^\circ$ , середина – изображения выделенных участков, полученных в режиме BSE, правая часть – диаграммы распределения пор по размерам

Диаграммы распределения пор по размерам, полученных с одинаковых участков ( $64 \text{ мкм}^2$ ) зерен «А», «Б» и «В», приведены на рисунке 4.26. Количественная характеристика приведена в таблице 4.3. В зерне «А» наблюдается относительное равномерное распределение пор по площади (1247 шт.). Это зерно имеет высокую плотность микродвойников со средним расстоянием между ними  $\sim 0,8 \text{ мкм}$  и большое количество связанных с ними крупных пор. По сравнению с зерном «Б», в котором на исследованном участке не наблюдается отличительных мезоструктурных элементов, количество пор имеет один порядок (1022 шт.), но средний их размер значительно меньше. В зерне «В» наблюдается высокая плотность малоугловых разориентаций, в сумме приводящая к нарушению общей ориентировки зерна, в которой практически не наблюдается пор.

При различной мезоструктуре в зернах «А», «Б» и «В» рассчитанное распухание составило 2,9, 1,0 и 0,3 % соответственно. Отличительной чертой всех исследованных участков являлось то, что в областях наибольшего скопления малоугловых разориентаций радиационных пор при помощи метода СЭМ практически не наблюдается.

Таблица 4.3 – Количественная характеристика радиационной пористости зерен «А», «Б» и «В»

| Область                | Зерно «А» | Зерно «Б» | Зерно «В» |
|------------------------|-----------|-----------|-----------|
| Количество пор, шт.    | 1247      | 1022      | 218       |
| $D_{\text{макс}}$ , нм | 340       | 100       | 116       |
| $D_{\text{ср}}$ , нм   | 55        | 44        | 46        |
| Распухание, %          | 2,9       | 1,0       | 0,3       |

Таким образом, выявлена связь радиационной пористости с локальной структурой материала. В зонах с высокой плотностью малоугловых разориентировок наблюдается подавление образования крупных пор. Влияние двойников деформации, как было показано, в одном случае приводит к подавлению распухания при их высокой плотности (среднее расстояние  $\sim 0,3 \text{ мкм}$ ), а в другом при их относительно невысокой плотности (среднее расстояние  $\sim 0,8 \text{ мкм}$ ) к развитию радиационной пористости, в частности крупных пор. Для определения влияния двойников деформации на радиационную пористость в дальнейшем требуется детальный статистический анализ материала. Но при превышении критической плотности микродвойников проявляется явное подавление распухания.

#### 4.4 Влияние плотности границ двойников на радиационное распухание стали ЧС-68

Первоначально, оболочки твэлов изготавливались при помощи прокатки на стане ХПТР [83]. С целью модернизации технологии число проходов было сокращено и, соответственно, увеличена степень обжатия за проход [83]. Также было использовано короткооправное волочение для заключительной холодной деформации с  $\varepsilon \sim 20\%$ . На сегодня в данной технологии использовано увеличение температуры отжига на этапе производства, предшествующем последней деформации [85].

Изготовленные по технологии 1 (этапы холодной прокатки исходной трубной заготовки согласно схеме [83], между прокатками аустенизирующий отжиг при 1060 °С, заключительная деформация с использованием волочения на короткой оправке  $\varepsilon \sim 20\%$ .) оболочки твэлов имели сравнительно мелкозернистую структуру (рисунок 4.27, а). Текстура, в данном случае представляет собой совокупность трех рассеянных ограниченных ориентировок: одной из  $\{110\}\langle 001 \rangle$  и двух из  $\{112\}\langle 111 \rangle$  (рисунок 4.27, г). При переходе на технологию 2 (этапы холодной прокатки исходной трубной заготовки согласно схеме [85], между прокатками аустенизирующий отжиг в шахтной печи при 1060 °С, заключительная деформация с использованием волочения на короткой оправке  $\varepsilon \sim 20\%$ ) наблюдается увеличение зерна аустенита и ослабление текстурной компоненты  $\{110\}\langle 001 \rangle$ . Технология 3 (этапы холодной прокатки исходной трубной заготовки согласно схеме [85], между прокатками аустенизирующий отжиг в установке форсированного нагрева при 1200 °С, заключительная деформация с использованием волочения на короткой оправке  $\varepsilon \sim 20\%$ ) приводит к практически полному исчезновению ориентировки  $\{110\}\langle 001 \rangle$ , а также к укрупнению зерна аустенита.

Проведено исследование образцов из аустенитной стали ЧС68 изготовленных по технологии ТО<sub>1</sub> (использована технология 2 с гомогенизирующим отжигом при 1080 °С), ТО<sub>2</sub> (использована технология 3 с гомогенизирующим отжигом при 1140 °С) и ТО<sub>3</sub> (использована технология 3 с гомогенизирующим отжигом при 1200 °С) после облучения до повреждающих доз около 80 сна.

В процессе исследования микроструктуры образцов была выявлена локальная неоднородность радиационной пористости, связанная с особенностями микроструктуры, характерными для различных областей (рисунок 4.28). Основное количество сравнительно мелких, однородно распределенных пор наблюдается во внутренних объемах зерен (области I, рисунок 4.28, а). Близость межзеренных высокоугловых границ (за исключением границ РСУ  $\Sigma 3$ ) не оказывает влияния на величину или характер распределение пор по объему. Исключение составляли внутризеренные области, характеризующиеся повышенной плотностью дислокаций, в которых поры практически не образовывались (II, рисунок 4.28, а). По данным EBSD-анализа

в этих областях (рисунок 4.28, б) наблюдалась высокая плотность малоугловых границ, с углами разориентации  $\geq 1^\circ$ . Следует отметить, что данные границы, составленные из однотипных дислокаций, создают в локальных областях структуры определенный уровень микронапряжений одного знака.

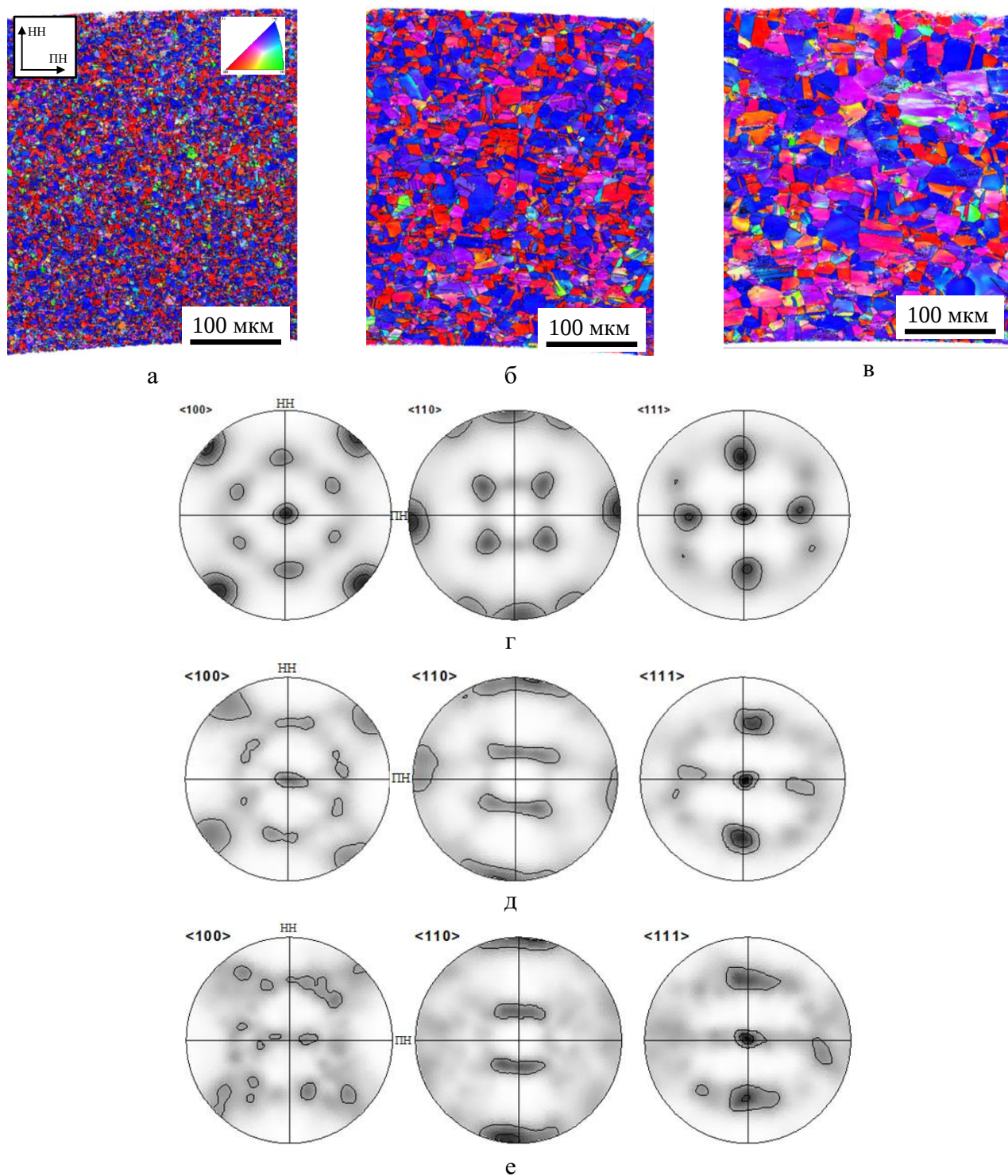


Рисунок 4.27 – Структура и текстура аустенитных сталей технологии 1, технологии 2 и технологии 3: а, б, в – карты разориентации в цветах полюсной фигуры в плоскости ННхПН; г, д, е – прямые полюсные фигуры (X1 – ПН, Y1 – НН, Z1 – НП)

Наличие границ  $\Sigma 3$  в структуре радиационно-повреждаемых материалов существенно изменяло кинетику порообразования в локальных областях, содержащих двойники деформации и отжига (III, рисунок 4.28, а). Поры образовывались в существенно меньшем количестве. При этом они вырастали до заметно более крупных размеров. Очевидно, что даже при равных концентрациях мелких матричных и крупных пор, расположенных рядом с двойниками, в данном случае, первые оказывали более сильное влияние на набухание облучаемых образцов.

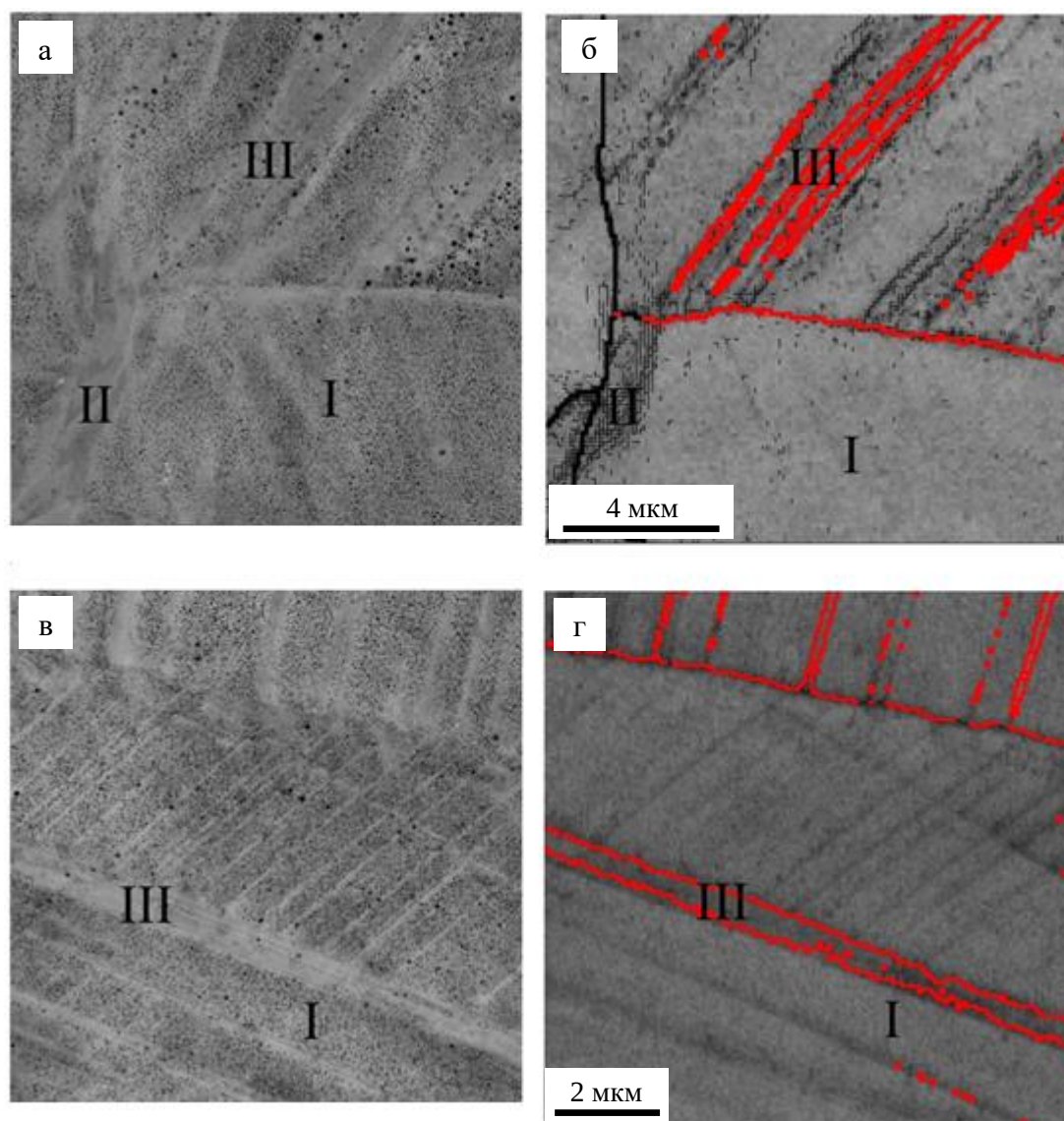


Рисунок 4.28– Влияние мезоструктурных элементов на радиационное порообразование в ЧС-68; (а) - СЭМ изображение; (б) – EBSD карта с отмеченными высокоугловыми и двойниковыми границами участка стали ЧС68 после облучения при температуре 495 °С до дозы 77,6 сна.

Отметим также, что двойниковые границы, возникшие в структуре при деформации, сформировались в результате однотипных сдвигов в кристаллической решетке. Вследствие

этого окружающий их материал характеризуется наличием полей микронапряжений одного знака.

По-видимому, в областях, где имеются направленные субмикронапряжения, созданные дислокационными полями, «восстановление» кристаллической решетки после каскада атомных смещений происходит с максимальной рекомбинацией вакансий и межузельных атомов. То есть в областях, содержащих повышенную плотность малоугловых или двойниковых границ, не происходит появления избыточных вакансий, способствующих порообразованию. В случае с образованием крупных пор (рисунок 4.28 а, б) наблюдается неоднородное, по сравнению с рисунком 4.28 в, г распределением мезоструктурных элементов.

Существенные различия в радиационном набухании образцов, отличающихся предварительными обработками, было также зафиксировано на макроуровне (таблица 4.4). Важно отметить, что максимальное достигнутое набухание исследованных оболочек твэлов произошло в близких по температуре и повреждающей дозе условиях. При этом на всех образцах максимальное набухание достигнуто на участках твэлов, на которых не достигается максимальная повреждающая доза (таблица 4.4).

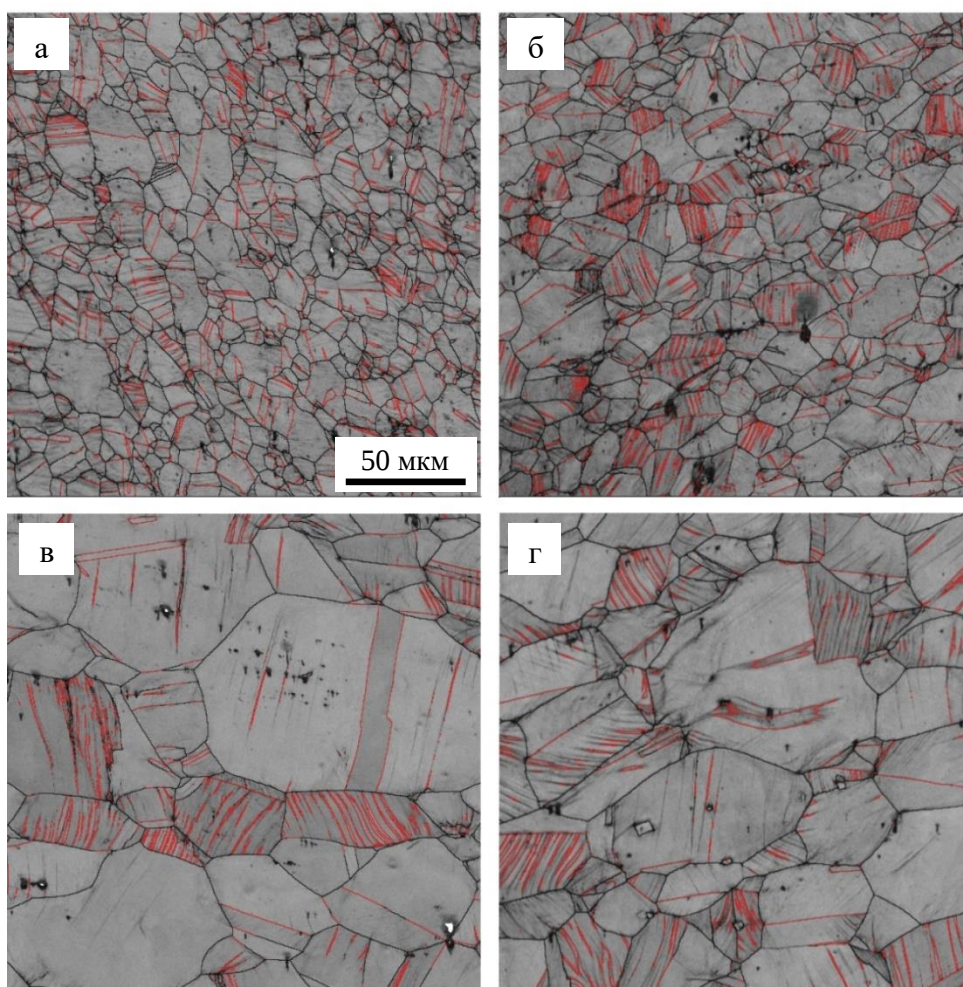
Таблица 4.4 – Накопленная повреждающая доза исследованных образцов, соответствующая максимальному набуханию и набухание и температура в зоне максимальной повреждающей дозы

| Условное обозначение образца | Условия облучения в зоне максимального набухания |       |           | Условия облучения в зоне с максимальной повреждающей дозой |       |                        |
|------------------------------|--------------------------------------------------|-------|-----------|------------------------------------------------------------|-------|------------------------|
|                              | Максимальное набухание, %                        | Т, °С | Доза, сна | Набухание, %                                               | Т, °С | Максимальная доза, сна |
| ТО <sub>1</sub>              | 10,6                                             | 495   | 78,8      | 8,4                                                        | 515   | 80,6                   |
| ТО <sub>2</sub>              | 7,3                                              | 495   | 78,3      | 5,2                                                        | 515   | 80,0                   |
| ТО <sub>3-1</sub>            | 5,2                                              | 495   | 78,5      | 3,6                                                        | 515   | 80,3                   |
| ТО <sub>3-2</sub>            | 4,5                                              | 495   | 78,8      | 3,8                                                        | 515   | 80,7                   |

Известно, что с повышением температуры гомогенизации на этапе производства оболочек твэлов происходит повышение концентрации углерода в твердом растворе (аустените). Последнее приводит к смещению максимума набухания в сторону повышенных температур («углеродный» эффект, вследствие радиационно индуцированного выделения карбидов) [126]. Сильное проявление данного эффекта должно приводить к снижению набухания в зависимости от температуры предварительной термической обработки. То есть в

случае проявления данного эффекта должно наблюдаться смещение максимума распухания в области с большими температурой и повреждающей дозой. Однако, этого не наблюдалось в проведенных исследованиях. По-видимому, в данном случае более сильным фактором, влияющим на распухание, явилась микроструктура образцов, а не состав их твердого раствора.

Исходная термическая обработка привела к существенным различиям в микроструктуре образцов (рисунок 4.29). При температуре 1080 °С наблюдалось самое мелкое зерно. При увеличении температуры до 1140 и 1200 °С происходил нормальный рост с существенным увеличением среднего размера зерен. В структуре всех отожжённых образцов наблюдалось формирование двойников рекристаллизации. Холодная деформация привела к массовому образованию двойников деформации.



а – ТО<sub>1</sub>; б – ТО<sub>2</sub>; в – ТО<sub>3-1</sub>; г – ТО<sub>3-2</sub>;

Рисунок 4.29 – Микроструктура оболочек из стали ЧС-68, отличающихся температурой термической обработки, с выделением межзеренных (черный цвет) и двойниковых ( $\Sigma 3$ , красный цвет) границ

Увеличение среднего размера зерна, очевидно, привело к уменьшению удельной поверхности границ зерен (таблица 4.5). 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) ( $>10^\circ$ ).

Таблица 4.5 – Характеристики микроструктуры оболочек из стали ЧС68 с различными термообработками

| Условное обозначение образца | $\Sigma S_{\text{г}}, \text{м}^2/\text{м}^3$ | $\Sigma S_{\text{дв}}, \text{м}^2/\text{м}^3$ | $K$  | Размер зерна, мкм |
|------------------------------|----------------------------------------------|-----------------------------------------------|------|-------------------|
| ТО <sub>1</sub>              | $2,52 \cdot 10^5$                            | $2,07 \cdot 10^5$                             | 0,82 | 12                |
| ТО <sub>2</sub>              | $1,76 \cdot 10^5$                            | $2,27 \cdot 10^5$                             | 1,29 | 18                |
| ТО <sub>3-1</sub>            | $1,00 \cdot 10^5$                            | $1,85 \cdot 10^5$                             | 1,84 | 30                |
| ТО <sub>3-2</sub>            | $0,92 \cdot 10^5$                            | $1,79 \cdot 10^5$                             | 1,98 | 33                |

Проведенные исследования показали, что с увеличением соотношения различных типов межкристаллитных границ ( $K$ ) радиационное распухание твэлов существенно снижается (рисунок 4.30). Необходимо отметить, что по результатам ориентационной микроскопии значение полученной удельной поверхности для всех вариантов термообработок находится близком уровне.

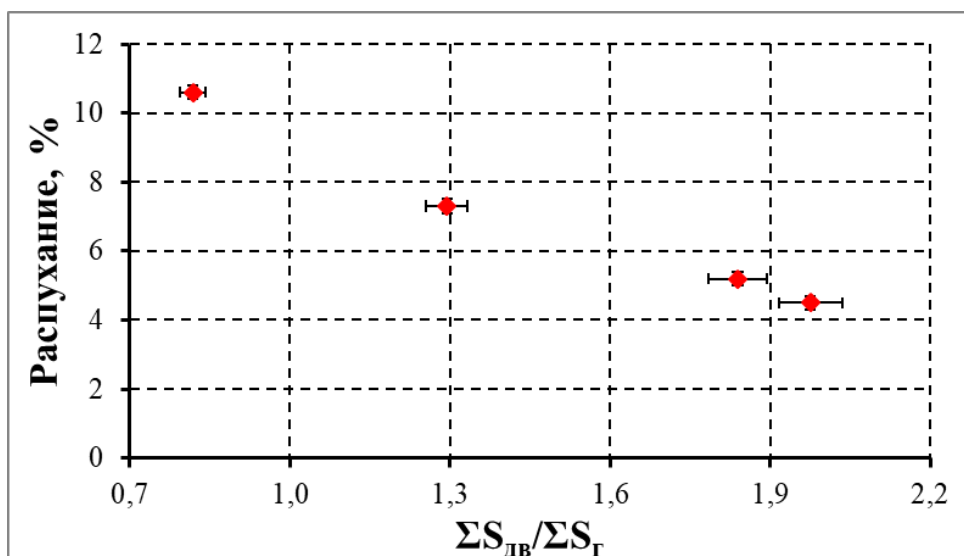
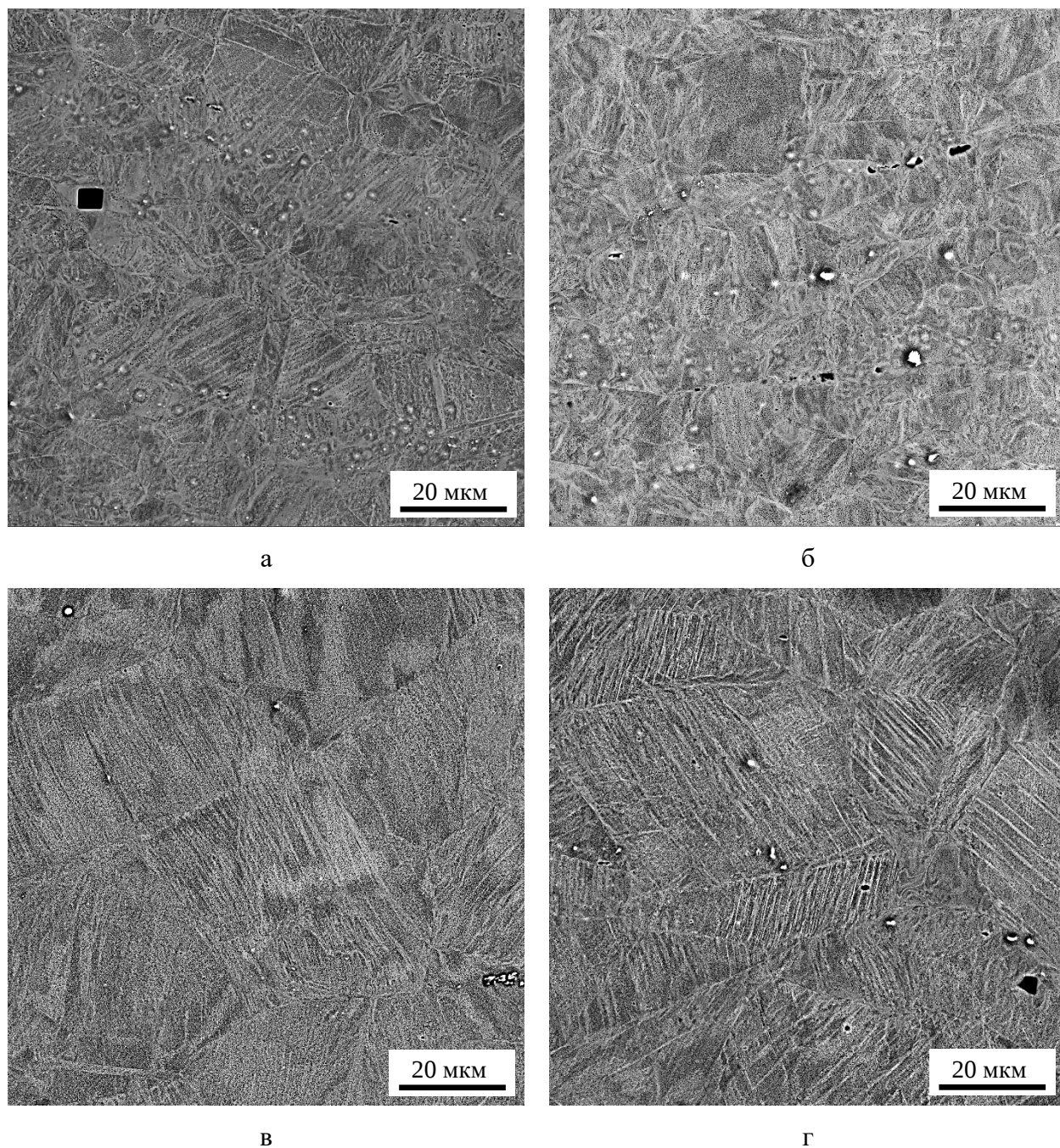


Рисунок 4.30 – Зависимость радиационного распухания оболочек твэлов из стали ЧС-68 при облучении от соотношения различных типов межкристаллитных границ в их структуре, полученная при помощи ориентационной микроскопии (EBSD)

Структурное состояние материала различных вариантов термообработок ( $TO_1$ ,  $TO_2$ ,  $TO_3$ ) после облучения приведено на рисунке 4.31. В результате радиационной пористости и ее неоднородности вблизи границ и пакетов двойников деформации наблюдается характерный контраст, позволяющий провести оценку удельной поверхности двойниковых границ методом секущих линий [150]. Для  $TO_1$  и  $TO_2$  наблюдается неоднородность распределения двойников деформации, в то время, когда для  $TO_3$  в каждом зерне исследуемой области характерна их высокая плотность.



а –  $TO_1$ ; б –  $TO_2$ ; в –  $TO_3-1$ ; г –  $TO_3-2$ ;

Рисунок 4.31 – Микроструктура оболочек из стали ЧС-68, отличающихся температурой термической обработки после нейтронного облучения

Существенное различие определения величины удельной поверхности заключается в методической части при применении ориентационной микроскопии. Вероятно, что при увеличении температуры гомогенизации привело к более однородной текстуре и деформации материала. Наблюдается высокая плотность двойников деформации и их пакетов, следы которых на поверхности имеют малую толщину, соответственно трудно различимы методом EBSD даже при высокой плотности точек сканирования.

Применение метода секущих линий для определения параметров структуры на изображениях, полученных при помощи СЭМ, показало незначительное отличие в определении удельной поверхности границ общего типа (таблица 4.6), но продемонстрировало значительное отличие в величине определяемых двойниковых границ. Данный метод имеет сильную погрешность, так как двойники деформации являются ориентированными структурами, и данные результаты являются «первым приближением». Также данные результаты демонстрируют синергетическое влияние на распухание от изменения технологии в целом.

Таблица 4.6 – Характеристики микроструктуры оболочек из стали ЧС68 с различными термообработками, определенные методом секущих линий

| Условное обозначение образца | $\Sigma S_{\varepsilon}, \text{м}^2/\text{м}^3$ | $\Sigma S_{\text{дв}}, \text{м}^2/\text{м}^3$ | K     | Размер зерна, мкм |
|------------------------------|-------------------------------------------------|-----------------------------------------------|-------|-------------------|
| ТО <sub>1</sub>              | 2,11                                            | 8,00                                          | 3,79  | 12                |
| ТО <sub>2</sub>              | 1,86                                            | 12,53                                         | 6,74  | 18                |
| ТО <sub>3</sub> -1           | 1,52                                            | 14,80                                         | 9,74  | 30                |
| ТО <sub>3</sub> -2           | 1,46                                            | 15,33                                         | 10,50 | 33                |

То есть увеличение размеров зерен при термической обработке твэлов и последующей их деформации приводит к формированию определенных микроструктур, в которых в процессе облучения пересыщение по вакансиям уменьшается, соответственно, снижается радиационное распухание.

Также температура гомогенизирующего отжига определяет растворимость выделений (карбидов, нитридов, боридов). Повышение его температуры увеличивает количество примесных атомов в твердом растворе (C, B, Ti и других), что также повышает стойкость к радиационному распуханию.

Изменение технологии изготовления оболочек привело к значительному усилению текстуры  $\{112\}<111>$ , которая характеризуется склонностью к двойникованию при деформации. Вероятно, высокая температура гомогенизирующего отжига, в совокупности с

текстурными изменениями материала привели к формированию определенной, более однородной мезоструктуры аустенитной стали.

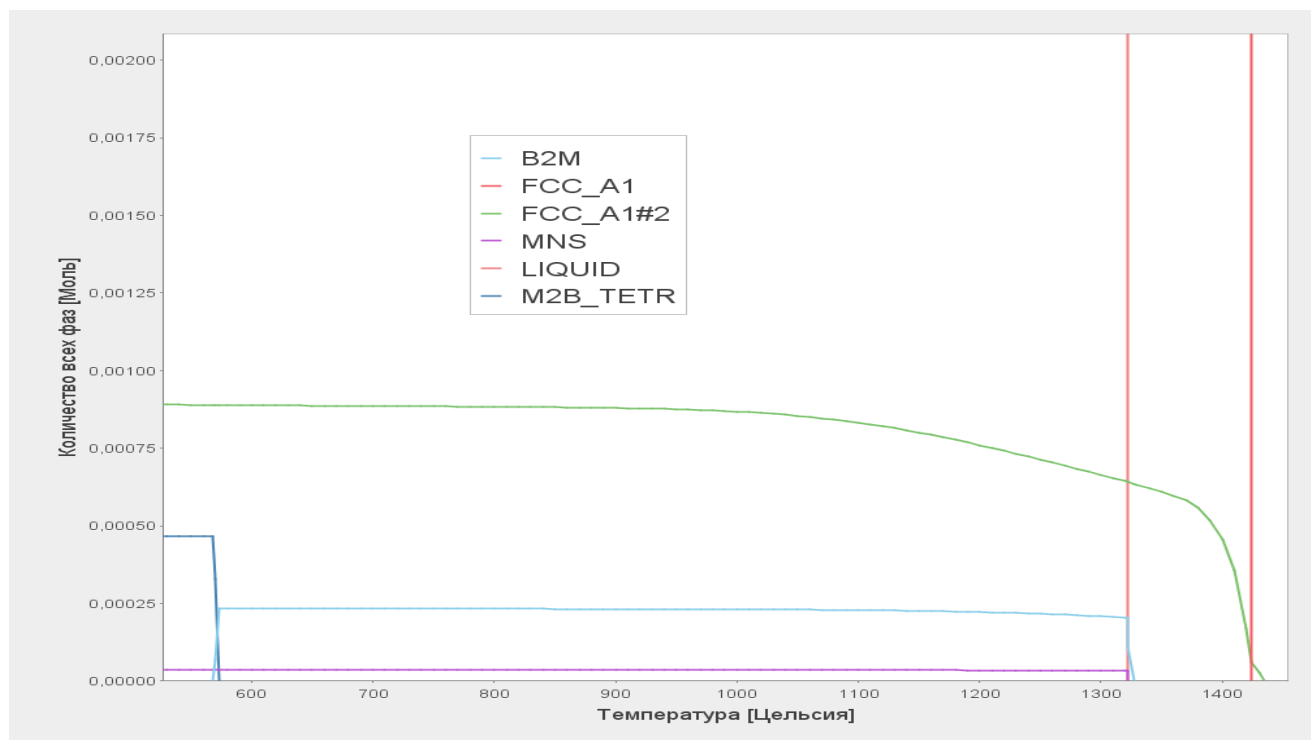
Полученные результаты в дальнейшем будут использованы в качестве опорного материала в работах, нацеленных на оптимизацию технологии производства оболочечных труб из аустенитных сталей и получения материалов с заданными параметрами радиационной стойкости.

#### 4.5 Неоднородность радиационной пористости, возникающая у дисперсных выделений, генерирующих $\alpha$ -частицы

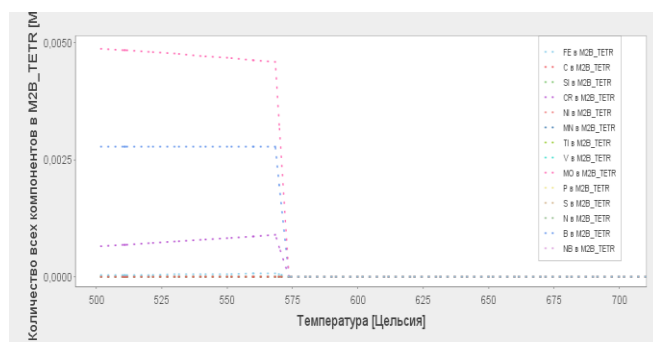
Материал исследованных оболочек твэлов характеризуется широким спектром легирующих элементов. Для повышения радиационной стойкости в состав легирующей системы входит бор, находящийся как в выделениях, так и в твердом растворе.

По результатам термодинамического расчета (рисунок 4.32) исследуемой системы бориды молибдена выделяются в твердом растворе при температурах ниже 580 °С. Выше температуры 580 °С, по данным термодинамического расчета предполагается существование в системе бориды титана.

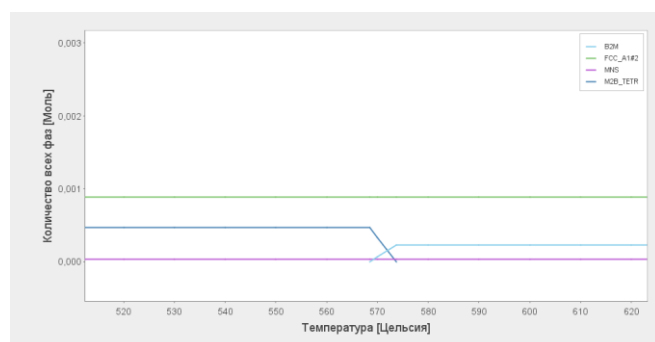
Нейтронное облучение стали ЧС68 привело к образованию специфичного распределения радиационных пор в виде «орбитальных» сферических облаков (гало) вокруг молибденсодержащих выделений (рисунок 4.33). Данный эффект наблюдался ранее при облучении нейтронами материалов с борсодержащими фазами в работах [173-183]. Радиус максимальной плотности пор в гало объяснялся величинами свободных пробегов (без взаимодействия с кристаллической решеткой) осколков деления ядер бора в виде полностью ионизированных  $\text{He}^{+2}$  и  $\text{Li}^{+3}$  по реакции  $(n, \alpha)$ :  $^{10}\text{B} + n \rightarrow ^{11}\text{B}^* \rightarrow ^4\text{He} + ^7\text{Li} + 2,31 \text{ МэВ}$ . 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.



а



б



в

Рисунок 4.32 – Термодинамические расчеты для стали ЧС68: а- фазовый состав в зависимости от температуры, б, в – содержание элементов и граница существования фазы борида молибдена

При помощи СЭМ при ускоряющем напряжении от 20 кВ гало на исследуемых образцах различимы даже при больших увеличениях (рисунок 4.34).

Наблюдается слабая чувствительность облаков пор к структурному состоянию материала (рисунок 4.35). Высокоугловые межкристаллитные границы любых типов слабо влияют на формирование облака пор вокруг выделений (рисунок 4.35, а). С другой стороны, наблюдается влияние двойниковых границ  $\Sigma 3$  на распределение пор (рисунок 4.35, б). Двойниковая граница, попадающая на «гало» приводит к образованию редких, но заметно более крупных пор.

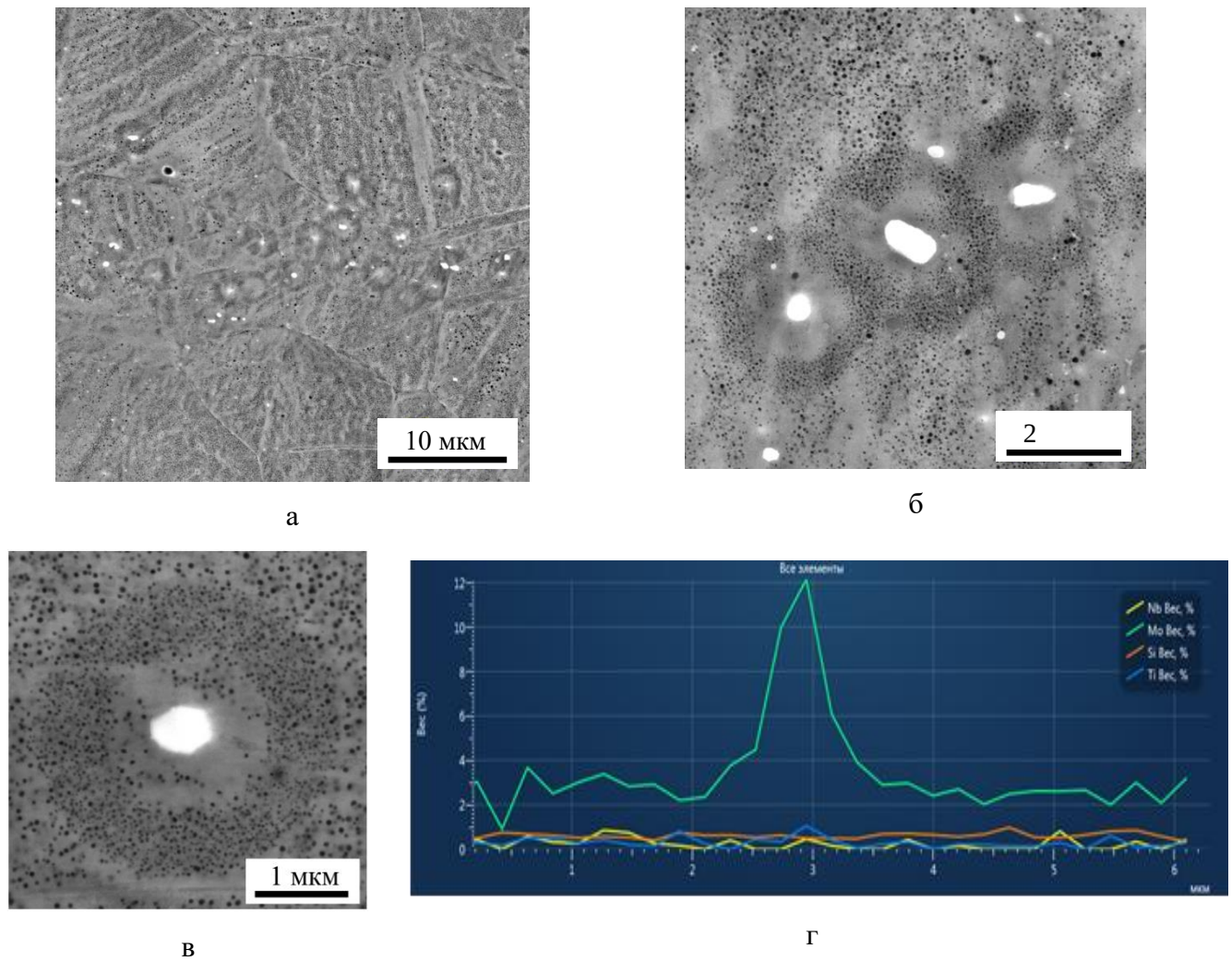


Рисунок 4.33 – Облако пор вокруг выделения на основе молибдена: а, б, в – СЭМ BSE изображение; г – распределение легирующих элементов стали ЧС68 по линии сканирования через выделение на рисунке 4.32 в

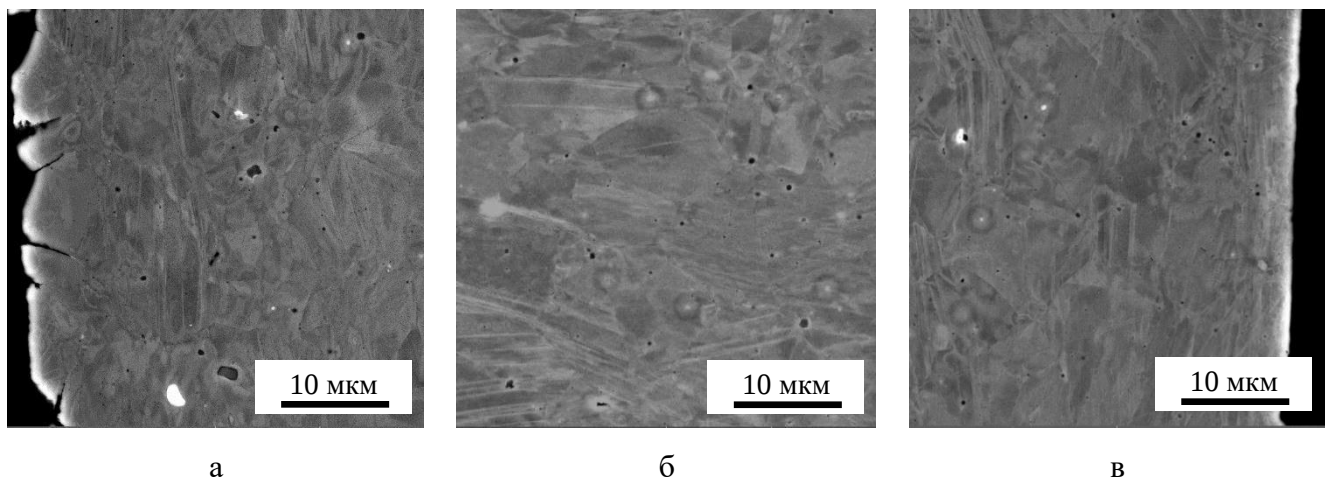
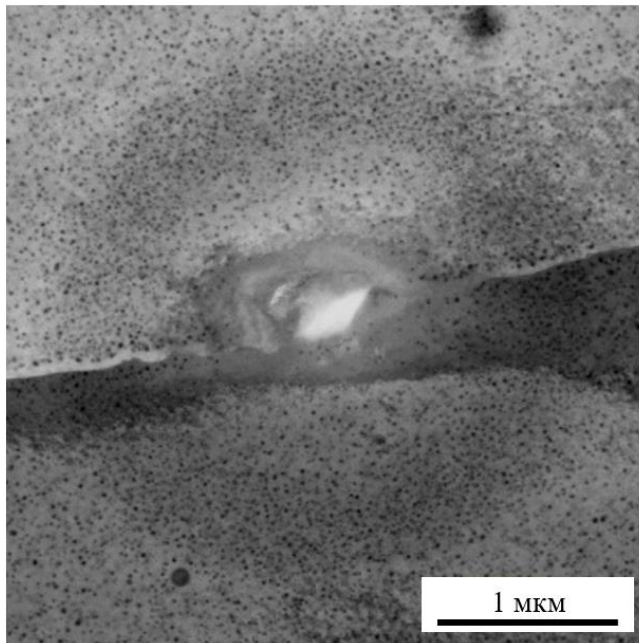
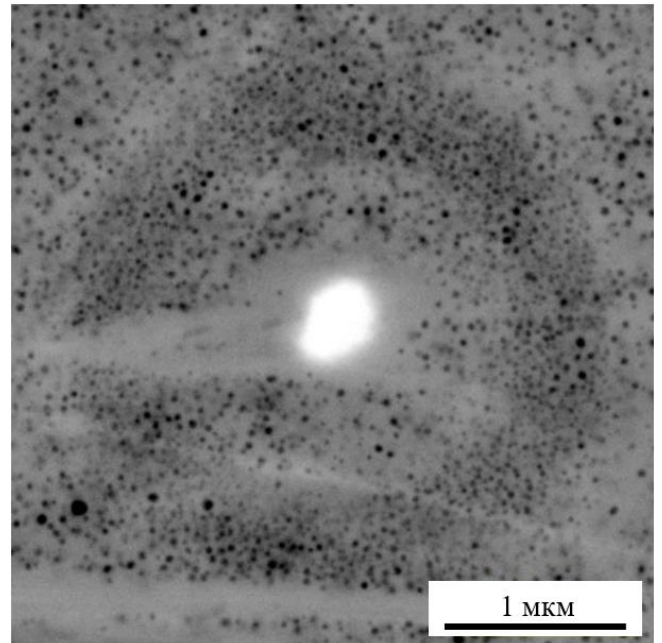


Рисунок 4.34 – Распределение «гало» по толщине оболочки у внутренней поверхности (а), центральных областях (б) и наружной поверхности (в) облученной при температуре 445 °С до повреждающей дозы 73,3 сна

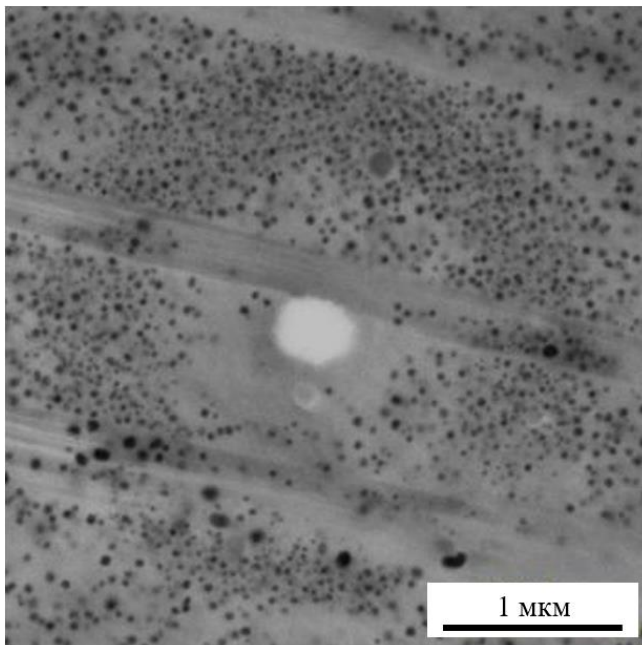
Исследование образцов из различных температурных диапазонов облучения показало, что облака пор вокруг молибденсодержащих выделений формируются и существуют при температурах облучения ниже 530 °С (рисунок 4.35). При более высоких температурах они не были зарегистрированы.



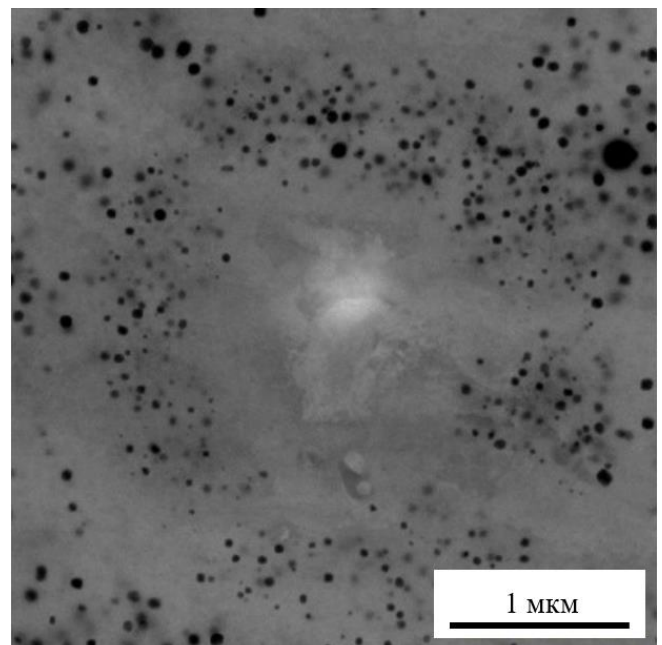
а



б



в



г

Рисунок 4.35 – Характеристика облаков пор вокруг выделений МоВ в зависимости от температуры облучения: а – 430 °С, 64,5 сна; б – 480 °С, 91,1 сна; в – 515 °С, 92,8 сна; г – 530 °С, 89,3 сна

## 4.6 Заключение по главе 4

1 Проведенные при помощи СЭМ исследования распределения пористости на твэлах экспериментально подтвердили существование неоднородности условий облучения, и соответственно зависимость радиационной пористости от них. Наблюдается тенденция к уменьшению среднего размера и увеличению концентрации радиационных пор от внутренней к наружной поверхности, что обусловлено градиентом температуры по толщине оболочки.

2 Показано, что чувствительность методики, приведенной в третьей главе работы, позволяет установить различия в радиационной пористости, связанные с неоднородностью условий облучения в пределах одного твэла, вытекающих из конструктивных особенностей тепловыделяющих сборок. На образце облученной оболочки твэла из периферийной области тепловыделяющей сборки наблюдаются различные характеристики радиационной пористости в ортогональных направлениях торцевого сечения.

3 В условиях, когда радиационное распухание не достигло стационарной стадии, наблюдается сильное влияние мезоструктурных элементов материала, а именно высокой плотности двойников, и пакетов двойников деформации и скоплений плоских малоугловых границ, на характеристики радиационной пористости. В зависимости от мезоструктурного состояния распухание отдельных кристаллитов происходит по-разному.

4 Экспериментально показано, что материал оболочки твэлов (ЧС-68), содержащий в структуре более высокую плотность двойниковых границ, оказывается менее склонным к радиационному распуханию. Изменение технологии изготовления оболочек привело к значительному усилению текстуры  $\{112\}<111>$ , которая характеризуется склонностью к двойникованию при деформации. Вероятно, высокая температура гомогенизирующего отжига, в совокупности с текстурными изменениями материала привели к формированию определенной, более однородной мезоструктуры аустенитной стали. Применение метода ориентационной микроскопии разработан подход для определения удельных поверхностей структурных элементов для изотропных сред.

5 С помощью методики, описанной в главе три, проведено исследование специфического распределения пор (в виде гало) вокруг молибден содержащих выделений (предположительно боридов) в аустенитной стали после нейтронного облучения. Выявлена слабая чувствительность облаков пор к структурному состоянию материала. Высокоугловые межкристаллитные границы любых типов слабо влияют на формирование облака пор вокруг выделений. Исследование образцов из различных температурных диапазонов облучения показало, что облака пор вокруг молибденсодержащих выделений формируются и существуют при температурах облучения ниже 530 °С.

## ГЛАВА 5 ВЛИЯНИЕ ПРОДОЛЖИТЕЛЬНОГО НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА $\gamma \rightarrow \alpha$ -ПРЕВРАЩЕНИЕ В АУСТЕНИТНЫХ СТАЛЯХ

### 5.1 Возникновение альфа фазы на наружной поверхности оболочки твэла

В процессе долговременной эксплуатации происходит взаимодействие наружной поверхности оболочек твэлов из аустенитных сталей с натриевым теплоносителем. Повышение выгорания топлива в твэлах напрямую связано с их работоспособностью оболочек, которую в свою очередь ограничивают внутренняя и наружная коррозия. Соответственно, для обеспечения эксплуатационных свойств на заданный период, оболочка твэла должна быть стойкой к коррозионным воздействиям.

Аустенитные стали обладают удовлетворительной совместимостью с натриевым теплоносителем [167-171]. В соответствии с [184, 185], жидкометаллическая коррозия аустенитных хромоникелевых сталей – физико-химический процесс растворения, вызванный диффузионным селективным выносом Cr и Ni из твердого раствора металла в циркулирующий неизотермический поток натрия с активирующими примесями. Взаимодействие натрия с оболочками из стали ЧС68 и ЭК164 при исследовании металлографическим способом выражается в изменении структуры поверхностного слоя [171]. Вид повреждений соответствует точечной коррозии. Участки питтинга равномерно распределены по поверхности металла, омываемого теплоносителем [171].

Исследование образца оболочки твэла из аустенитной стали ЭК164 облученного до повреждающей дозы 50 сна при температуре 570°C. У наружной поверхности наблюдается зона (рисунок 5.1), обусловленная выносом элементов оболочки в теплоноситель [167-171, 184, 185]. Исследование торцевого сечения оболочки показало, что основной материал имеет ГЦК решетку. Со стороны наружной поверхности, в зоне контакта оболочки с теплоносителем, наблюдается слой, индексируемый методом EBSD как ОЦК решетка. Для слоя  $\alpha$ -фазы характерен меньший размер кристаллитов, по сравнению с размером зерна аустенитной матрицы. В торцевом сечении, между кристаллитами  $\alpha$ -фазы наблюдаются участки питтинговой коррозии, которые не были распознаны методом EBSD.

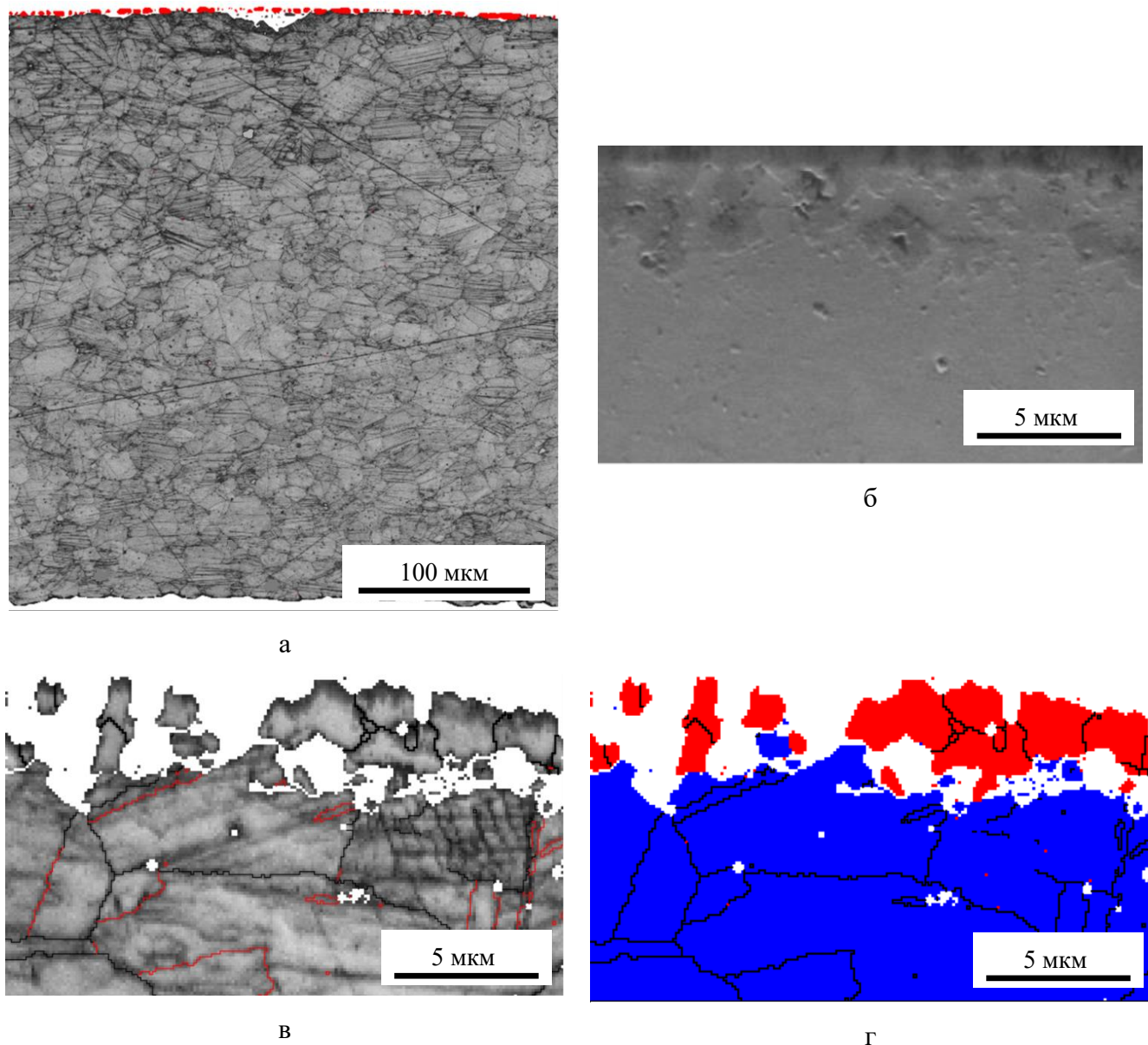


Рисунок 5.1 – Состояние наружной поверхности образца оболочки твэла, облученной при температуре 570 °С до повреждающей дозы 50 сна: а – общий вид, карта контраста полос EBSD с наложенной фазовой картой (красным цветом выделена  $\alpha$ -фаза); б – изображение во вторичных электронах; в – карта контраста полос с отмеченными высокоугловыми границами и границами  $\Sigma 3$ ; г – фазовая карта с отмеченными высокоугловыми границами (синий цвет –  $\gamma$ -фаза, красный цвет –  $\alpha$ -фаза)

Предпосылкой для  $\gamma \rightarrow \alpha$  превращения является перераспределение легирующих элементов аустенитной стали вблизи наружной поверхности оболочки твэла (рисунок 5.2). Перераспределение элементов происходит в результате частичного выноса никеля и хрома в теплоноситель (натрий) при повышенных температурах под действием нейтронного облучения.

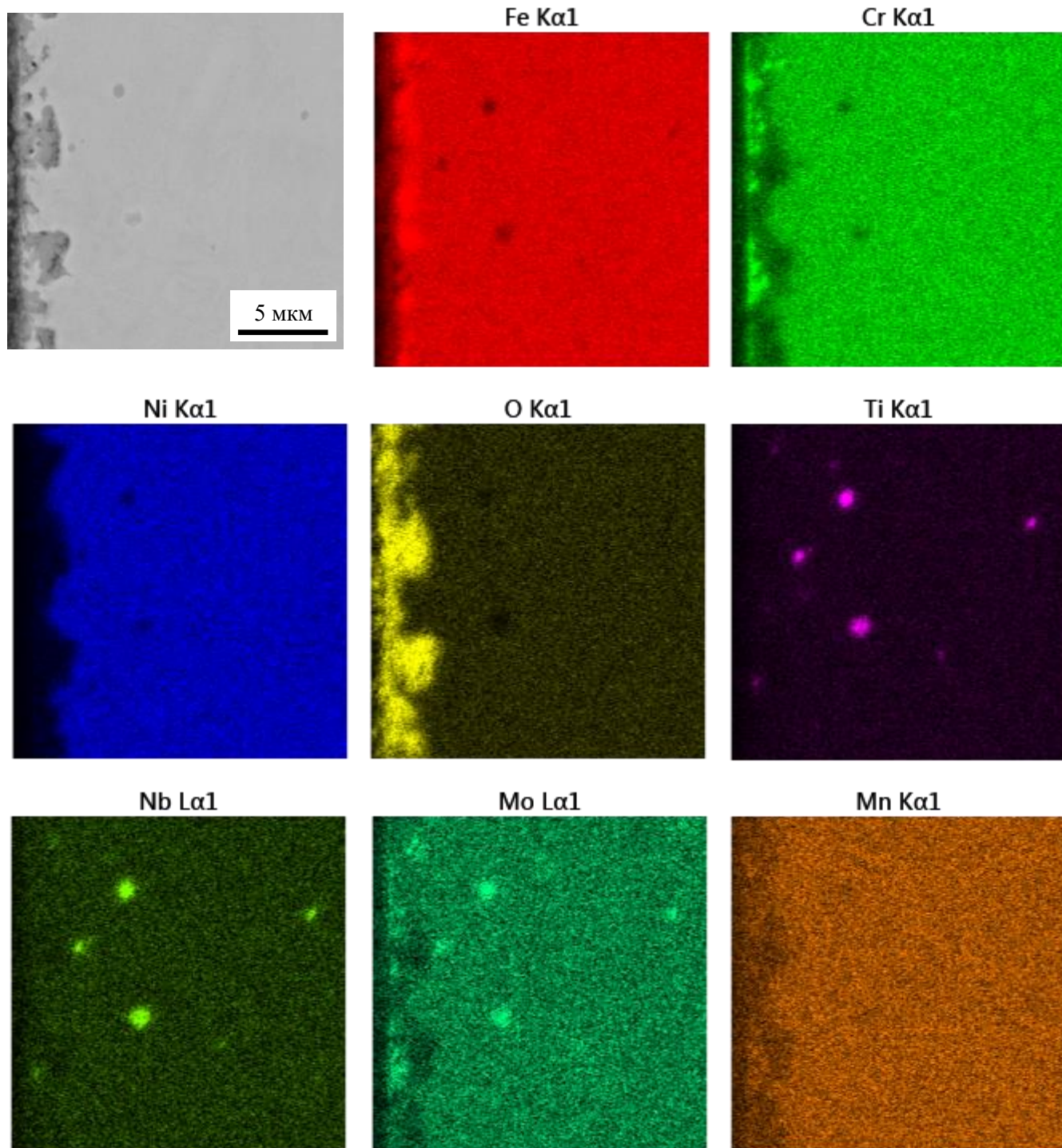


Рисунок 5.2 – Карты распределения элементов образца облученного при температуре 580 °С до повреждающей дозы 54 сна вблизи наружной поверхности

Мокрое хранение (в воде) в бассейне выдержки [171] приводит к частичному окислению образовавшегося слоя  $\alpha$ -железа. Неоднородность перераспределения хрома (рисунок 5.2) приводит к характерному виду коррозионных повреждений (рисунок 5.3). На участках, не

подверженных коррозии наблюдается содержание хрома выше 9 % вес (рисунок 5.3. б, таблица 5.1). Основным продуктом коррозии являются оксиды железа (таблица 5.1).

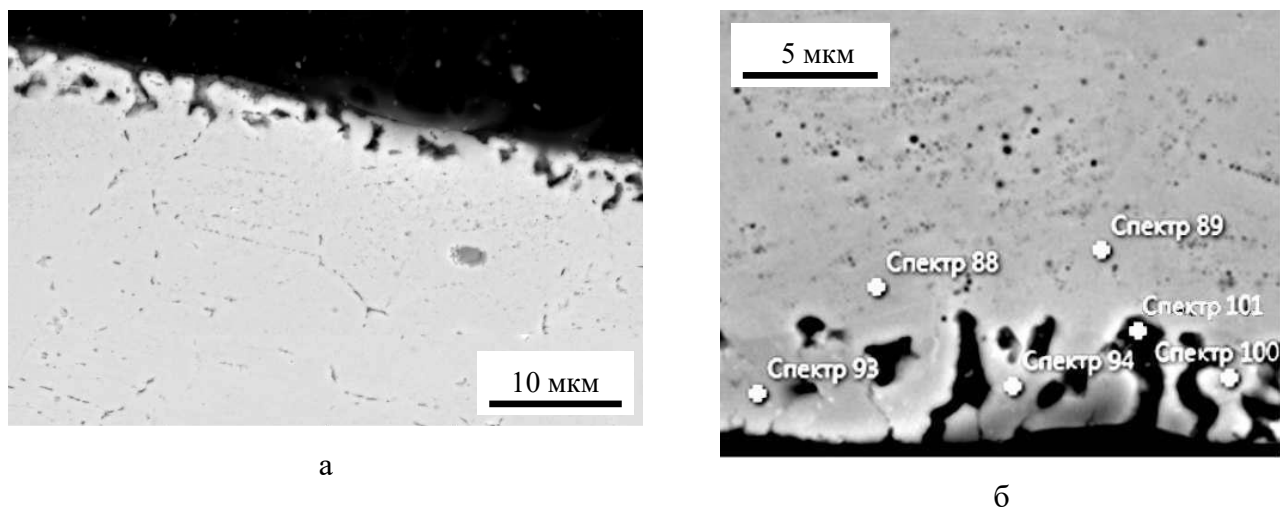


Рисунок 5.3 – Состояние оболочки твэла вблизи наружной поверхности в верхней части твэлов

Таблица 5.1 – Результаты определения элементного состава вблизи наружной поверхности, вес. %

| Название спектра    | O  | Ti  | Cr   | Ni   | Mo  | Fe   |
|---------------------|----|-----|------|------|-----|------|
| Спектр 88 (матрица) | -  | 0,2 | 17,5 | 14,3 | 2,5 | 65,5 |
| Спектр 89 (матрица) | -  | 0,2 | 17,5 | 14,9 | 2,3 | 65,0 |
| Спектр 93           | -  | 0,2 | 9,0  | 2,3  | 1,3 | 87,2 |
| Спектр 94           | -  | 0,2 | 12,7 | 2,9  | 2,9 | 81,4 |
| Спектр 100          | -  | 0,1 | 26,2 | 3,0  | 9,2 | 61,5 |
| Спектр 101          | 24 | -   | 6,8  | 1,1  | -   | 68,1 |

В проведенных исследованиях [171] на большом количестве образцов установлено, что для оболочек из аустенитных сталей реактора на быстрых нейтронах вынос элементов в теплоноситель приводит к  $\gamma \rightarrow \alpha$  переходу в данном слое для образцов, облучаемых при температуре выше 550 °С. Ниже данной температуры подобного эффекта не наблюдается.

## 5.2 Фазовое $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращение в стали X18H9 после длительного нейтронного облучения

Сложное легирование сталей ЧС68 и ЭК164 приводит к стабильности ГЦК решетки при термических и деформационных воздействиях, а также при продолжительном нейтронном облучении. Как было показано в главе 5.1 фазовая стабильность основного материала (ГЦК решетки) нарушается только при значительном изменении состава.

Одними из наиболее распространённых материалов внутри корпусных устройств реакторов на быстрых и тепловых нейтронах являются стали аустенитного класса X18H10 и их разновидности. Для длительного прогнозирования состояния элементов конструкций из данного класса сталей необходимо, чтобы структурное состояние не менялось или менялось незначительно на протяжении всего срока планируемой эксплуатации.

Радиационно-стимулированная сегрегация, эффект при котором под действием облучения происходит усиление диффузионных процессов, приводит к образованию фаз, неравновесных в обычных условиях [186]. Для сталей аустенитного класса X18H10 под действием нейтронного облучения характерно образование  $\alpha$ -фазы [148, 187]. Продолжительное нейтронное облучение приводит к изменению механических свойств данных сталей [188, 189]. В работах [188, 189] и [190, 191] независимо друг от друга было показано, что сталь класса X18H10 после определенной повреждающей дозы может испытывать  $\gamma \rightarrow \alpha$  превращение во время механических испытаний. Для образцов в данном случае характерны высокие значения удлинения при деформации [192-194] с подвижной деформационной шейкой (деформационная волна) [191].

Вызванный интерес к данному явлению привел к более глубокому изучению этого вопроса. В работе [193] методом EBSD картирования деформированного образца из стали AISI 304 облученной до повреждающей дозы 5,8 сна в BWR-реакторе. В результате облучения в материале развивается склонность к деформации путем TRIP. Образование мартенсита происходило на пересечениях линий скольжения и двойников деформации, а также на границах зерен формируя тонкие пластины. В работе [194] проведено исследование механических свойств стали AISI 304L методом наноиндентирования в облученном и необлученном состоянии. В необлученном состоянии для материала характерно деформирование путем двойникования. Для облученного до повреждающей дозы 23 сна при температуре 415 °C наблюдается образование мартенсита деформации вследствие воздействия индентора. Авторы показывают, что для превращения характерны ориентационные соотношения Бейна, плоскости  $(10-1)_{\gamma} \parallel (21-1)_{\alpha}$  и направления  $[0-10]_{\gamma} \parallel [0-1-1]_{\alpha}$ . Авторы считают, что в результате облучения и развития радиационной пористости произошло значительное повышение свободной энергии

Гиббса, что в свою очередь привело к снижению уровня необходимых механических воздействий (напряжений) для реализации мартенситного превращения.

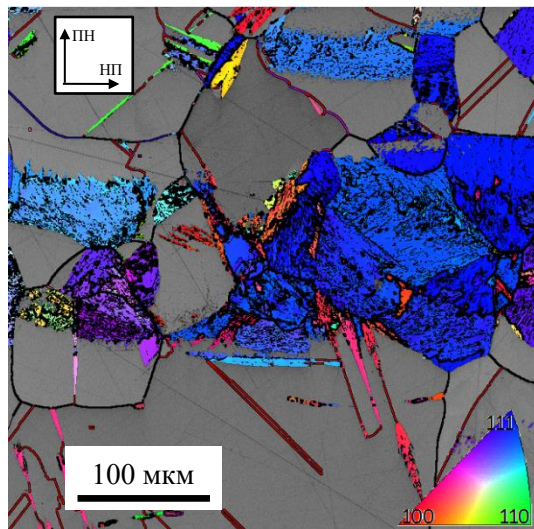
Метод ориентационной микроскопии (EBSD) позволяет с высокой точностью исследовать результаты фазовых превращений. Проведенное исследование поверхности шлифов образцов аустенитной стали 10X18H9 после продолжительной эксплуатации в виде трубного изделия при температурах в интервале от 370 до 430 °С с накопленным флюенсом быстрых нейтронов  $5,3 \times 10^{22}$  нейтр./см<sup>2</sup> (энергия больше 0,1 МэВ) показало осуществление в поверхностных слоях, исследуемых образцов, фазового  $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращения (рисунок 5.4), характеризующееся следующими особенностями:

1 В некоторых аустенитных зернах превращение происходило практически полностью. В других – реализовывалось только в кристаллите, находящимся в двойниковой разориентации с основным объемом аустенитного зерна. В большом количестве аустенитных зерен превращение либо практически отсутствовало, либо только начиналось на высокоугловых границах.

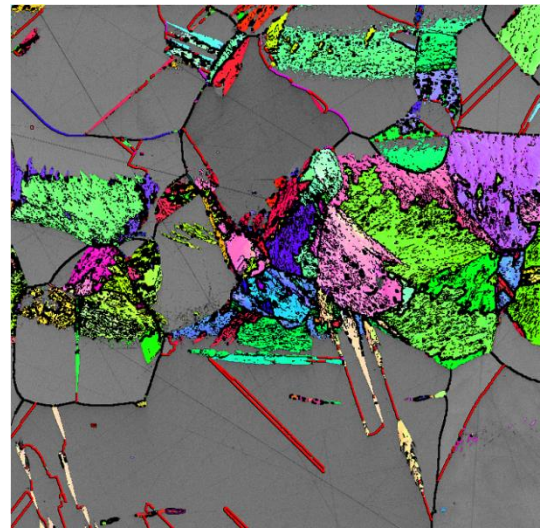
2 Не превращённые аустенитные зерна практически не содержат малоугловых границ, то есть являются совершенными («рекристаллизованными»), практически не содержащими дефектов в виде дислокаций. В отличие от зерен аустенита, сформированные в результате превращения зерна  $\alpha$ -фазы, характеризуются высокой плотностью малоугловых границ, иногда объединяющихся в высокоугловые границы. Последнее свидетельствует о сдвиговом характере фазового превращения.

3 Зерна, в которых превращение реализовалось практически полностью, характеризуются выраженной аксиальной текстурой  $\langle 111 \rangle$   $\alpha$ -фазы, ось которой является нормальной к плоскости, анализируемой при EBSD поверхности. Последнее предполагает реализацию определенного напряженного состояния, при котором вектор максимального нормального напряжения также является перпендикуляром к анализируемой поверхности.

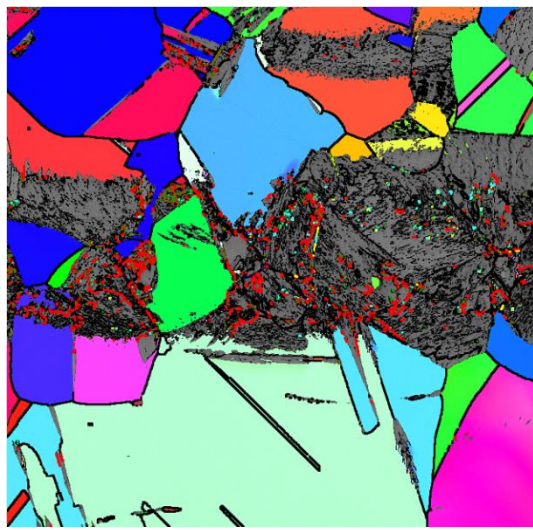
Возможности метода позволили определить структурные элементы, а именно специальные границы  $\Sigma 3$  (рисунок 5.5), на которых образуются зародыши новой фазы и показать выраженную кристаллографическую направленность распада.



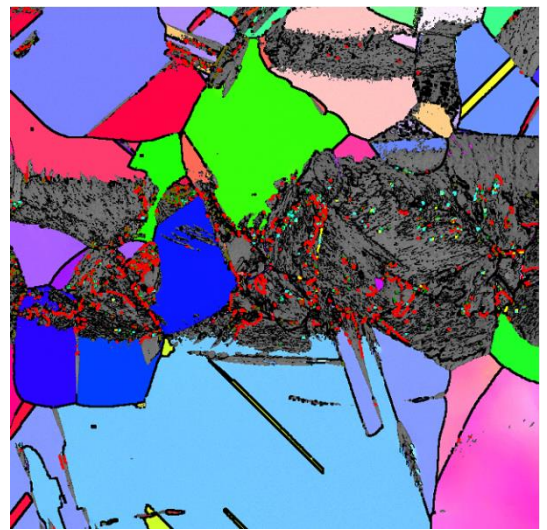
а



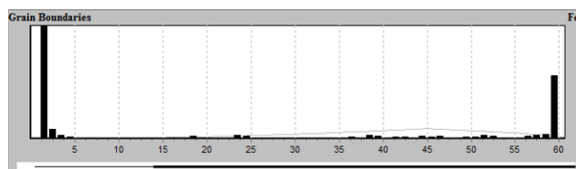
б



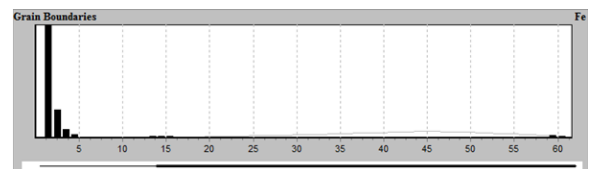
в



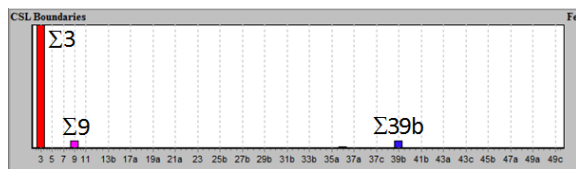
г



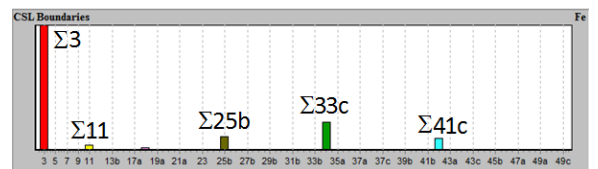
д



е



ж



з

Рисунок 5.4 – Частичный распад аустенита в стали 10X18H9; а, б, в, г – ориентационные карты с выделением ориентировок  $\alpha$ -фазы (а, б) и  $\gamma$ -фазы (в, г); а, в – ориентационные карты в расцветке с TD; б, г – ориентационные карты в расцветке с RD; д, е – распределение межкристаллитных границ по углам разориентации в  $\gamma$ - и  $\alpha$ -фазах, соответственно; ж, з – распределения PCY границ в  $\gamma$ - и в  $\alpha$ -фазах, соответственно

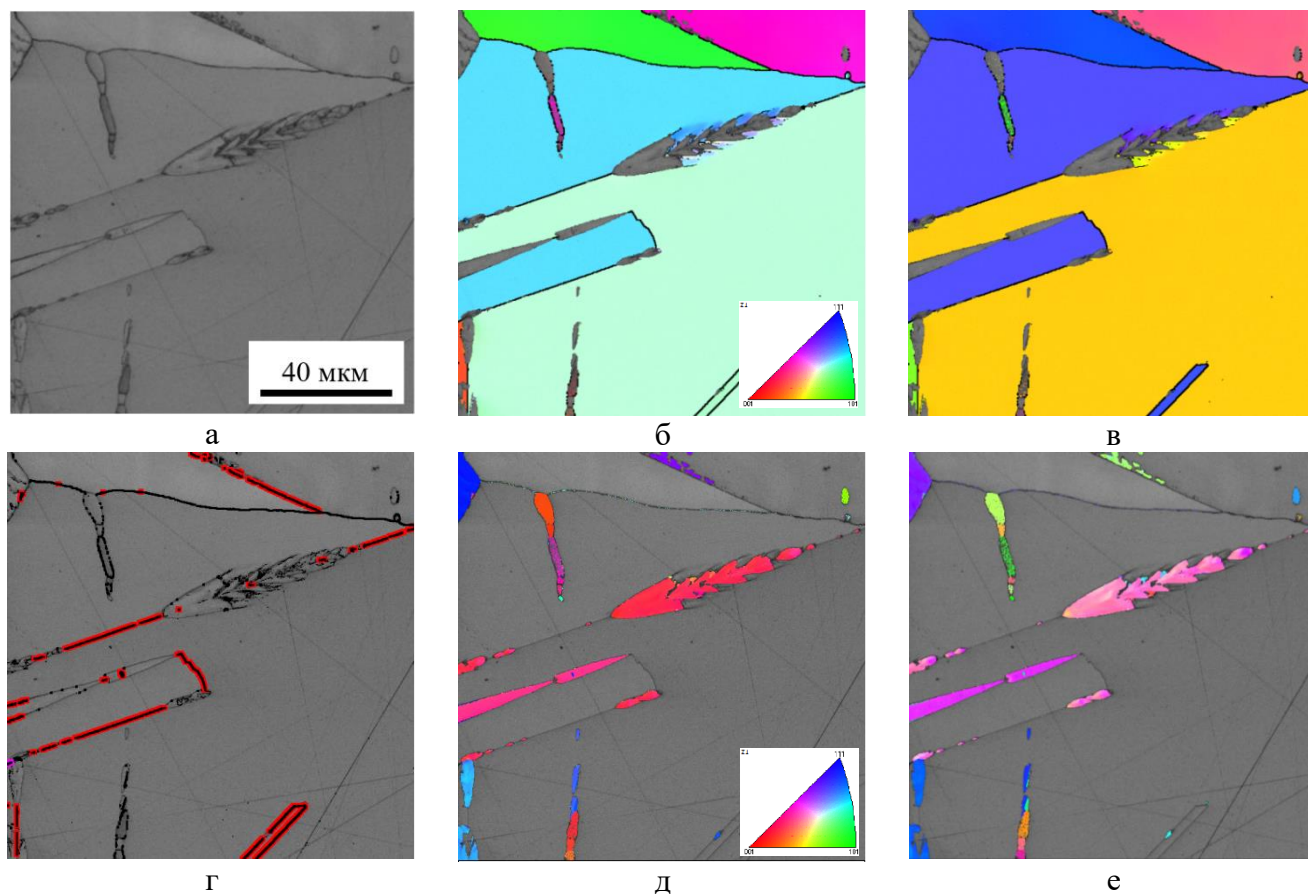


Рисунок 5.5 – Фазовое превращение  $\gamma \rightarrow \alpha$  связанное со специальными границами: а – карта качества картин дифракции; б, в – IPF карты в направлениях Z и X аустенитной фазы; г – границы различного типа; д, е - IPF карты в направлениях Z и X ферритной фазы

Поскольку у исследуемой стали точка мартенситного ниже  $0\text{ }^{\circ}\text{C}$  становится важным вопрос о температурном интервале и временном моменте протекания  $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращения. Исследование химического состава при помощи микрозондового рентгеноспектрального анализа показывает, что элементные составы исследованных областей  $\gamma$  и  $\alpha$ -фаз имеют близкие значения (рисунок 5.6). Высокое содержание никеля в  $\alpha$ -фазе (таблица 5.2) говорит о том, что превращение произошло после прекращения термических воздействий, то есть уже после окончания эксплуатации изделия в реакторе. Продолжительное термическое воздействие привело бы к изменению морфологии и перераспределению элементов в  $\alpha$ -фазе.

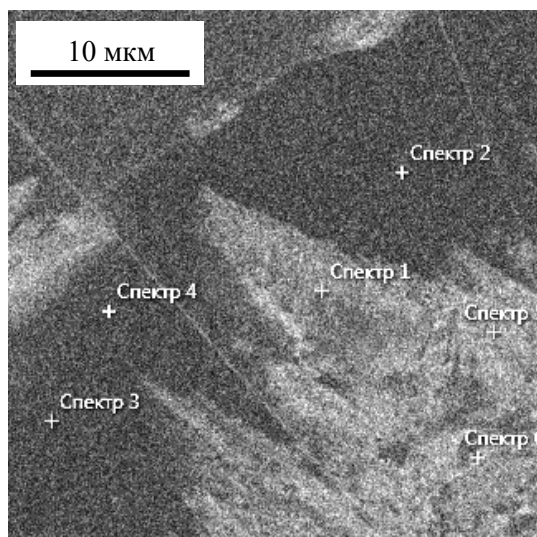


Рисунок 5.6 – Области  $\gamma$  и  $\alpha$ -фаз стали 10X18H9 с отмеченными участками МРСА (таблица 5.2)

Таблица 5.2 – Результаты определения элементного состава областей  $\gamma$  и  $\alpha$ -фазы (рисунок 5.6)

| Тип кристаллической решетки анализируемой микрообласти | Обозначение спектра | Содержание элемента, мас. % |      |     |
|--------------------------------------------------------|---------------------|-----------------------------|------|-----|
|                                                        |                     | Cr                          | Fe   | Ni  |
| ГЦК                                                    | Спектр 2            | 19,2                        | 72,5 | 8,3 |
|                                                        | Спектр 3            | 18,8                        | 72,2 | 9,0 |
|                                                        | Спектр 4            | 19,0                        | 72,1 | 8,9 |
| ОЦК                                                    | Спектр 1            | 19,3                        | 72,6 | 8,1 |
|                                                        | Спектр 5            | 19,0                        | 73,3 | 7,7 |
|                                                        | Спектр 6            | 19,3                        | 72,6 | 8,1 |

Анализ ориентационных соотношений фаз (рисунок 5.7) показал, что распад аустенита реализовывался по сдвиговому (с учетом повышенной температуры «бейнитному») механизму. Наблюдаемый спектр отклонений межфазных разориентаций между аустенитной и ферритной фазами является промежуточным между спектрами, соответствующими ориентационными соотношениям Курдюмова-Закса и Нишиямы-Вассермана, но ближе к ОС Курдюмова-Закса.

Проведенные рентгенографические исследования также показывают характерное для сдвигового превращения расщепление пиков в плоскостях  $\{110\}$ ,  $\{002\}$  и  $\{112\}$   $\alpha$ -фазы (рисунок 5.8)

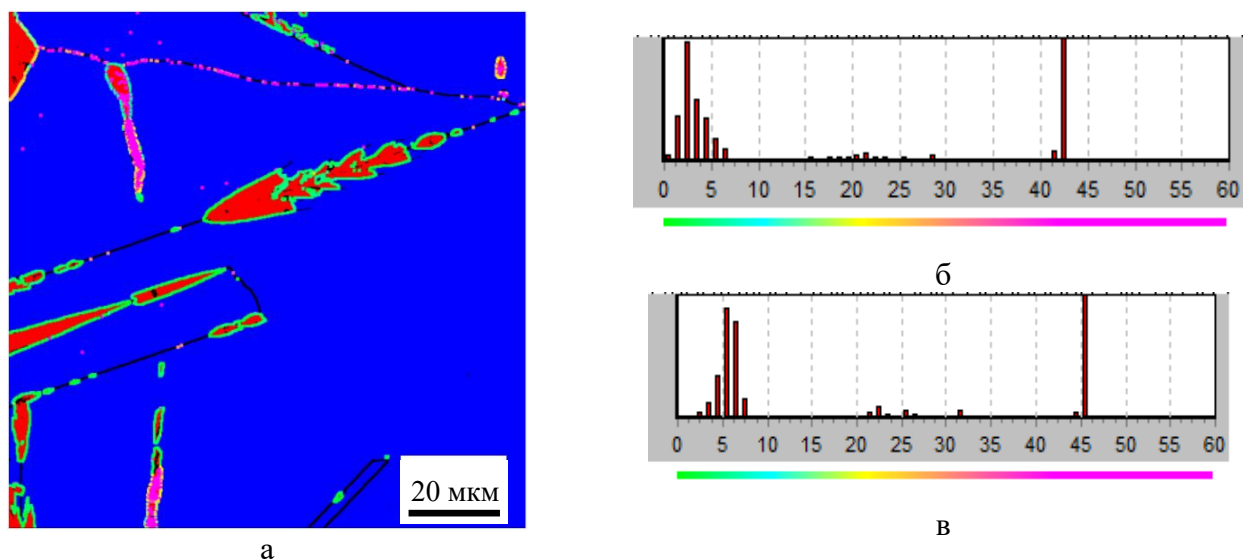


Рисунок 5.7 – Анализ процессов фазовых превращений при помощи ориентационной микроскопии: а – фазовая карта с выделенными границами; б – ориентационные соотношения Курдюмова-Закса; в – ориентационные соотношения Нишиямы-Вассермана

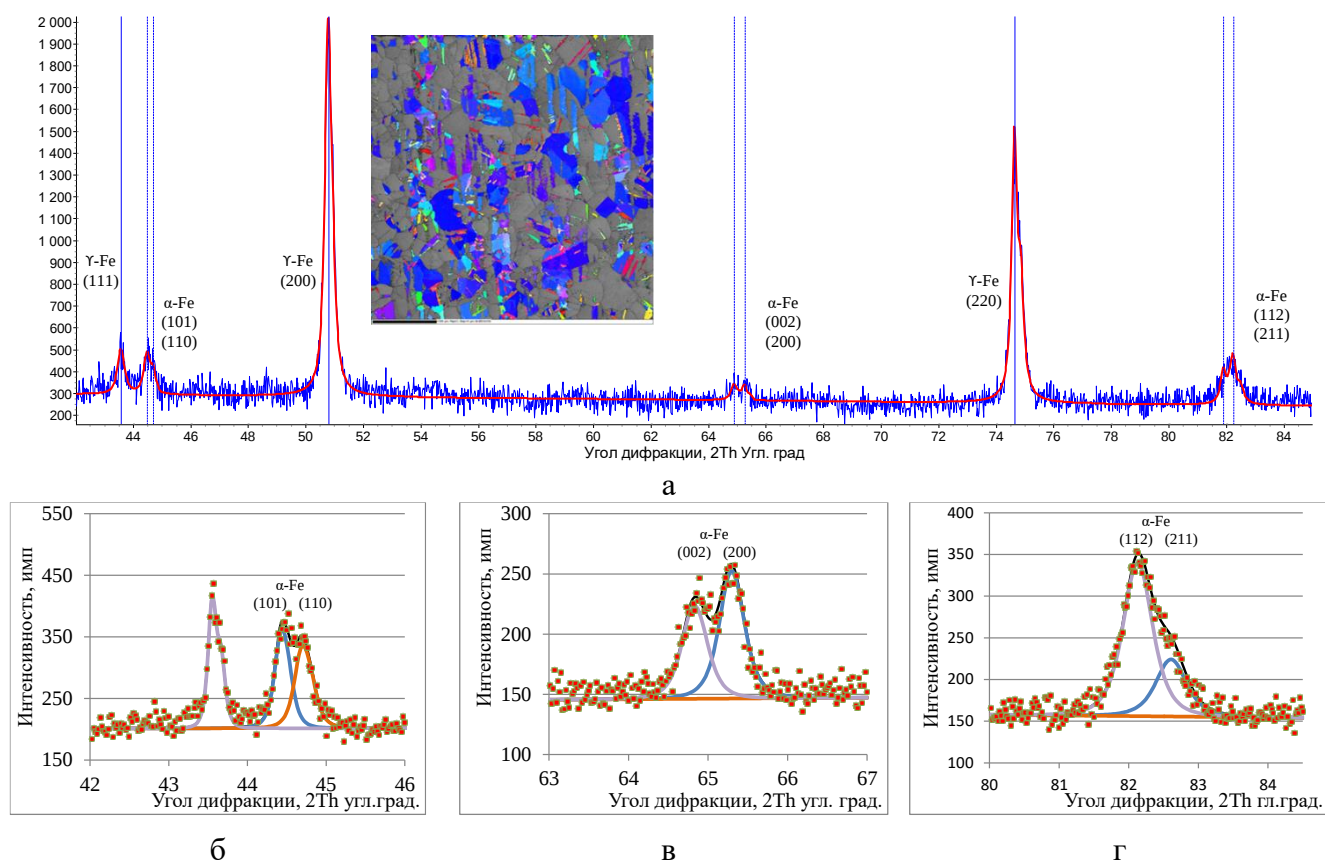


Рисунок 5.8 – Результаты рентгенографических исследований образца, облученного при температуре 380 °C до повреждающей дозы 25 сна: а – рентгенограмма с поверхности содержащей γ и α-фазу; б, в, г – обработанные пики {110}, {002} и {112}

Нейтронное облучение при температурах в интервале от 370 до 430 °С приводит к структурным изменениям аустенита стали 10X18Н9 (рисунок 5.9) – в нем образуются и растут радиационные поры. По-видимому, радиационное порообразование, характерное для данных интервалов температур облучения, приводит к распуханию материала с возникновением изотропного напряженного состояния. Также нейтронное облучение приводит к радиационно-стимулированному выделению карбидов типа  $M_{23}C_6$ , что в свою очередь приводит к обеднению аустенита углеродом, являющимся сильнейшим стабилизатором  $\gamma$ -фазы в сталях [197].

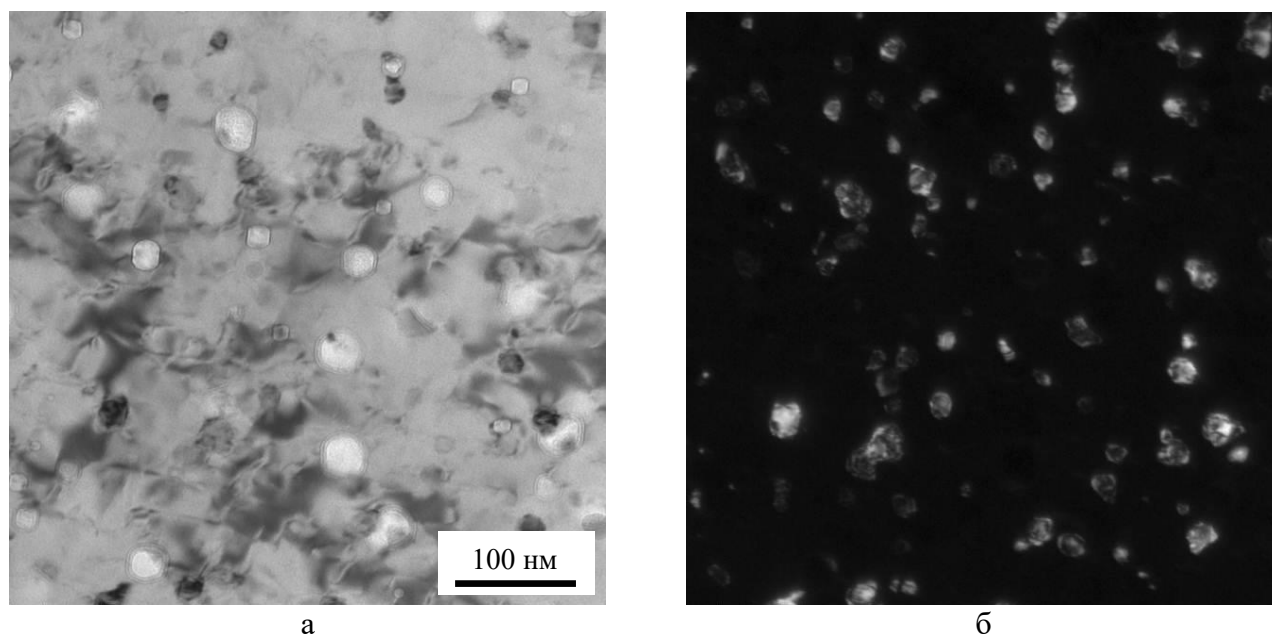


Рисунок 5.9 – Микроструктура стали X18Н9 после продолжительной эксплуатации при повышенных температурах и нейтронном облучении (ПЭМ): а - радиационные поры; б – темнопольное изображение карбидов типа  $M_{23}C_6$

Также о сдвиговом характере превращения свидетельствует радиационная пористость, наблюдаемая как в  $\gamma$ , так и  $\alpha$  фазах (рисунок 5.10). Здесь необходимо отметить, что участок  $\alpha$ -фазы разделен на два кристаллита, на границе которого располагаются крупные выделения карбидов типа  $M_{23}C_6$ . Вероятно, данные карбиды изначально находились на границе аустенитных зерен стали 10X18Н9, и вероятно, граница являлась зародышем  $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращения.

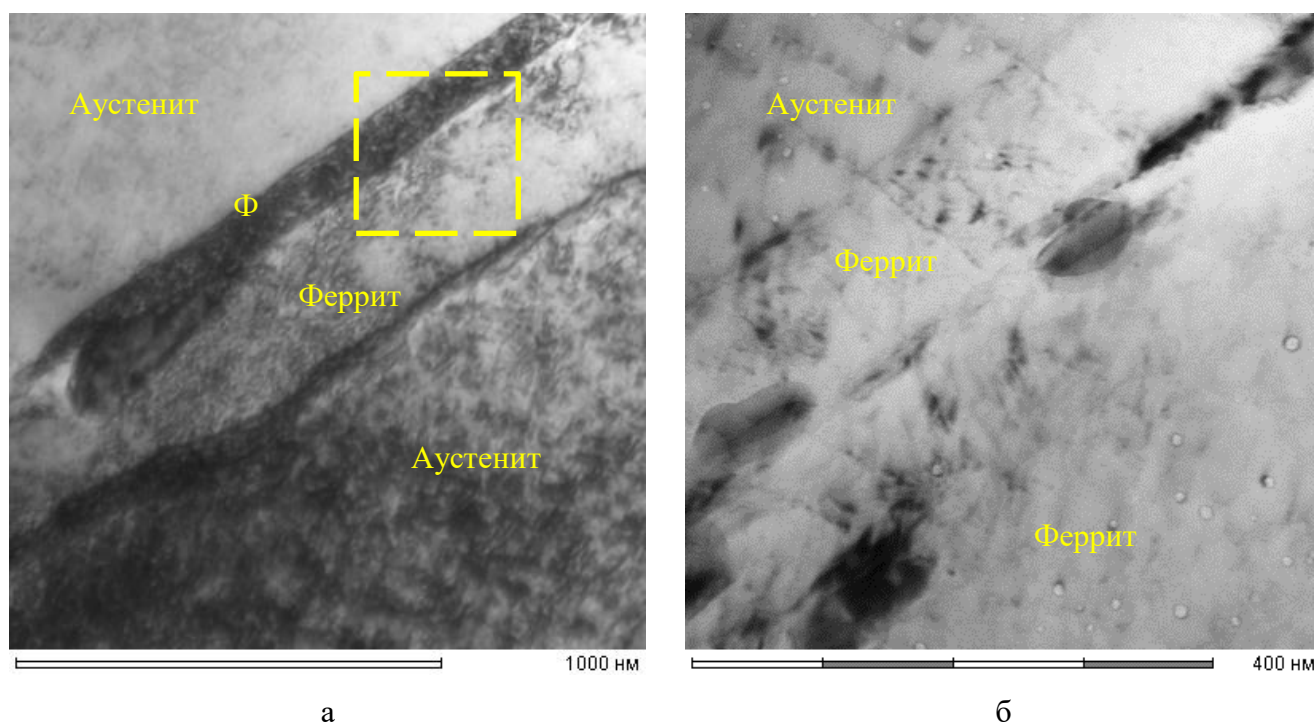


Рисунок 5.10 – Радиационная пористость, наблюдаемая в  $\gamma$  и  $\alpha$  фазах образца 10X18N9 облученного при температуре 370 °С до повреждающей дозы 1 сна (ПЭМ): а – участки феррита между двух аустенитных зерен; б – радиационная пористость в аустените и прослойке феррита

Таким образом, совместные действия двух факторов – внутренние напряжения и обеднение матрицы углеродом – приводят к повышению точки мартенситного превращения для стали 10X18N9 и его реализации либо в процессе охлаждения, либо в процессе приготовления образцов за счет дополнительного деформационного воздействия.

Образцы для данной части проведения исследований вырезались на электроискровом станке в форме кубов. В результате этого, после электролитической полировки облученных образцов на трех взаимно ортогональных поверхностях наблюдается  $\gamma \rightarrow \alpha$ -фазовое превращение (рисунок 5.11), но с различной долей продуктов распада (бейнита). На поверхности «А» доля наблюдаемой  $\alpha$ -фазы достигает 18%, в то время как для поверхностей «Б» и «В» не превышает 2% (рисунок 5.11, а, б, в). Причем наблюдаемая на всех ортогональных поверхностях  $\alpha$ -фаза характеризовалась одной и той же аксиальной текстурой  $\langle 111 \rangle$ , ось которой является нормальной к плоскости, анализируемой при EBSD.

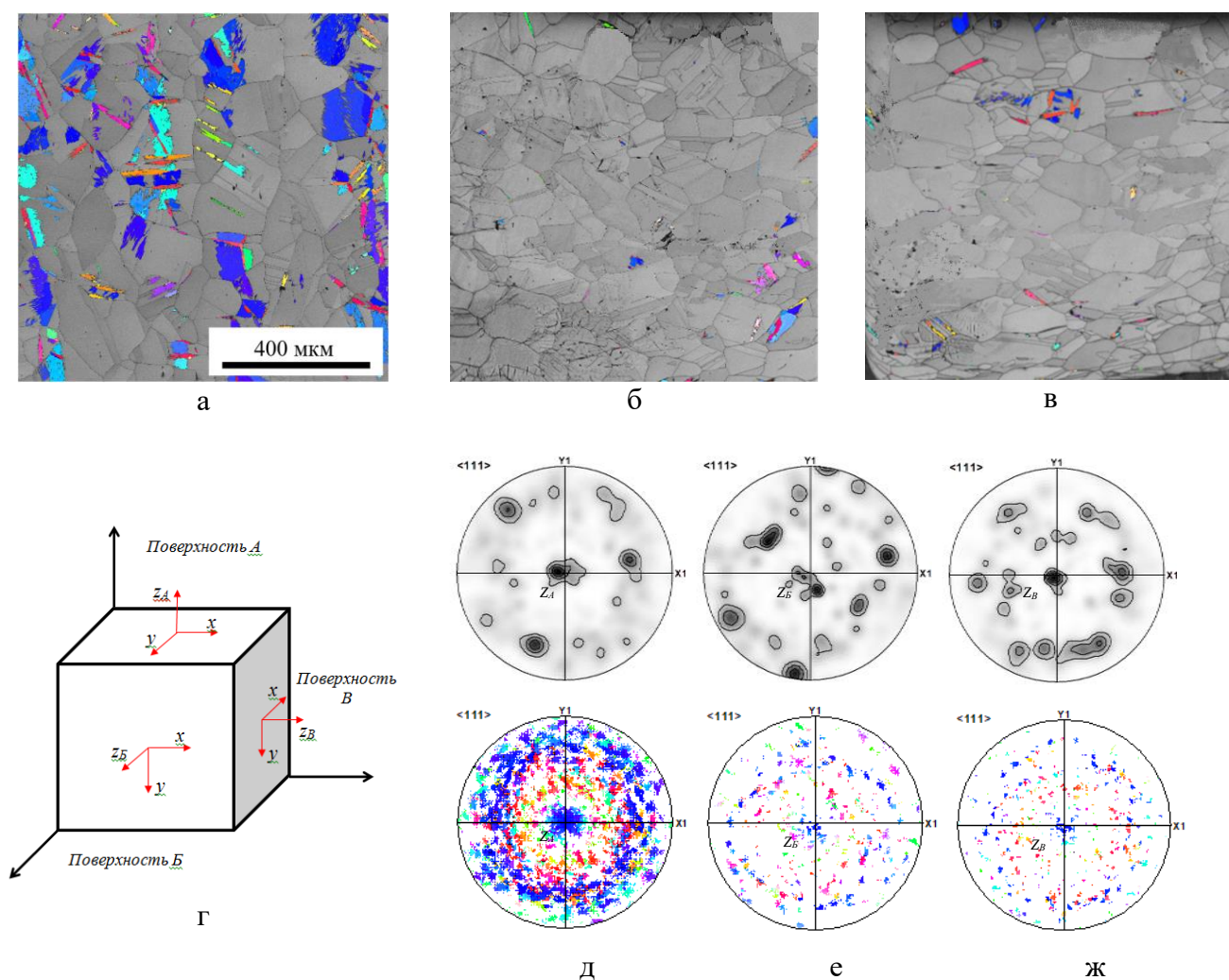


Рисунок 5.11 – Пространственная зависимость образования поверхностного слоя  $\alpha$ -фазы после обработки («пробоподготовки») стали X18H9, облученной быстрыми нейтронами при температуре 380 °С до повреждающей дозы 25 сна: а, б, в – EBSD карты поверхностей А, Б, В с окрашенной IPF цветом альфа фазой в направлении Z; г – схема обработки образца; д, е, ж – полюсные фигуры в плоскости XY поверхностей А, Б, В;

Проведенная термическая обработка (отжиг при 1050 °С в течение 1 часа) образца из стали 10X18H9 облученного при температуре 380 °С до повреждающей дозы 25 сна привела к значительному снижению эффекта фазового превращения в поверхности, но ни к его полному подавлению. Основная ориентировка альфа фазы, направление  $\langle 111 \rangle$ , перпендикулярна исследуемой поверхности образца. Максимальная доля альфа фазы на поверхности Б составляет 5 %, когда на поверхности А и В не превышает 1 % (рисунок 5.12).

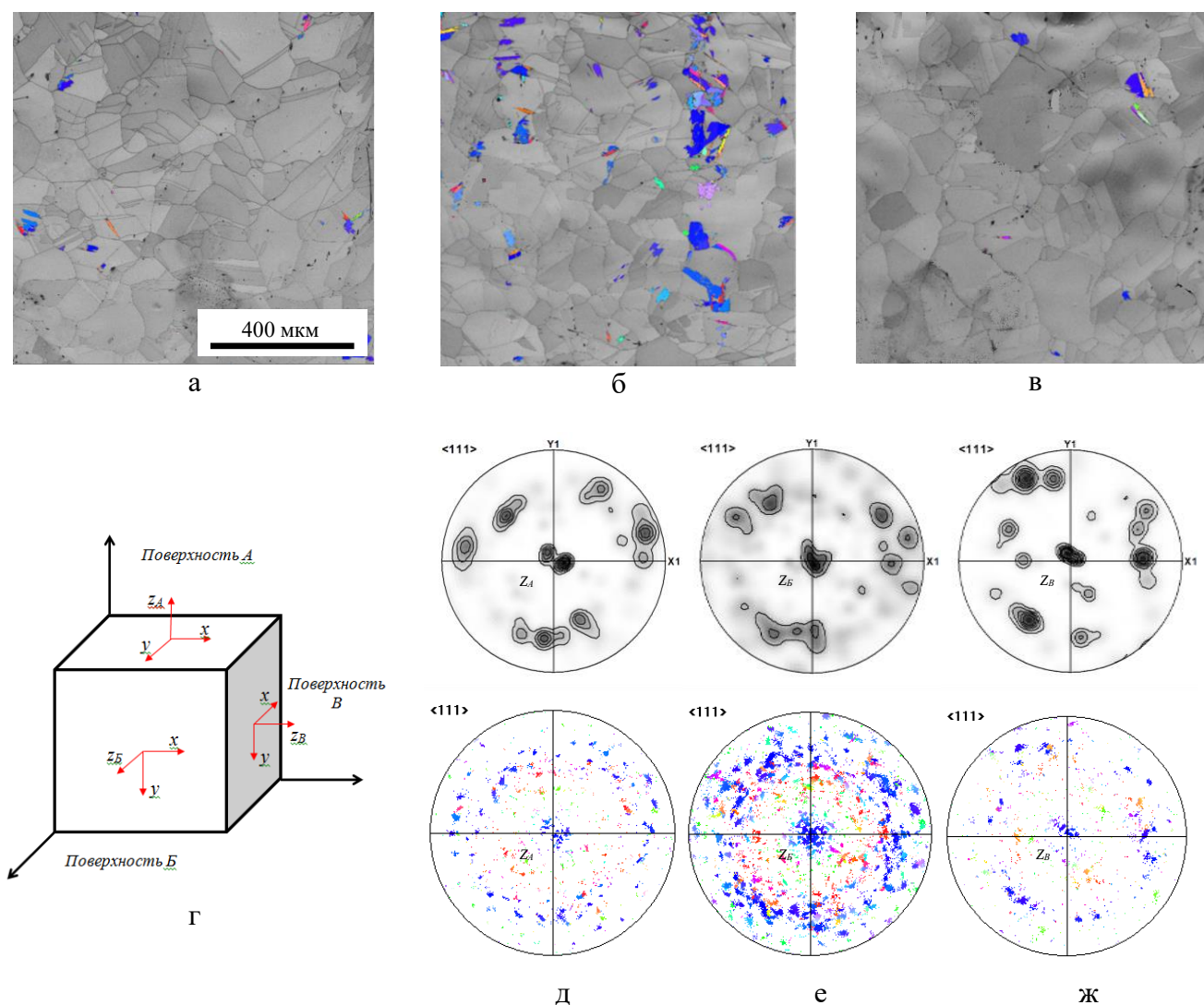


Рисунок 5.12 – Пространственная зависимость образования поверхностного слоя  $\alpha$ -фазы после обработки («пробоподготовки») стали X18H9, облученной быстрыми нейтронами с последующим отжигом: а, б, в – EBSD карты поверхностей А, Б, В с окрашенной IPF цветом альфа фазой в направлении Z; г – схема обработки образца; д, е, ж – полюсные фигуры в плоскости XY поверхностей А, Б, В;

Интересно отметить, что проведенный фазовый рентгеноструктурный анализ массивных образцов всегда показывал количество феррита менее 1%, что существенно расходится результатами ориентационной микроскопии (EBSD). Также феррит практически не обнаруживался при проведении магнитометрических исследований массивных образцов. При этом магнитометрические исследования тонких образцов (фольг) показывало наличие  $\alpha$ -фазы. Данные факты в совокупности с результатами исследования текстуры (сильная аксиальная  $\langle 111 \rangle$  перпендикулярная трем ортогональным поверхностям кубического образца) позволяют предполагать реализации  $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращения в тонком поверхностном слое в момент

бездеформационной вырезки образцов за счет релаксации изотропных напряжений, созданных радиационной пористостью. Причем реализация данного эффекта также спровоцирована изменением локального химического состава аустенита при радиационных воздействиях.

Исследование образцов с различной накопленной повреждающей дозой и температурой облучения показало зависимость склонности стали 10X18Н9 к сдвиговому фазовому превращению от накопленной повреждающей дозы, и не зависящей от температуры эксплуатации изделия. Для образцов, приготовленных в виде шлифов с финальной полировкой на коллоидном кремнии, наблюдается сдвиговое фазовое превращение в тонком поверхностном слое (рисунок 5.13). Образцы характеризуются различными условиями облучения. Так при повышении температуры облучения доля образовавшейся  $\alpha$ -фазы сначала увеличивается, затем происходит ее уменьшение, что означает либо отсутствие зависимости, либо ее косвенную связь. При анализе величины повреждающей дозы для исследованных образцов, наблюдается ее прямая связь с величиной образовавшейся  $\alpha$ -фазы (рисунок 5.14).

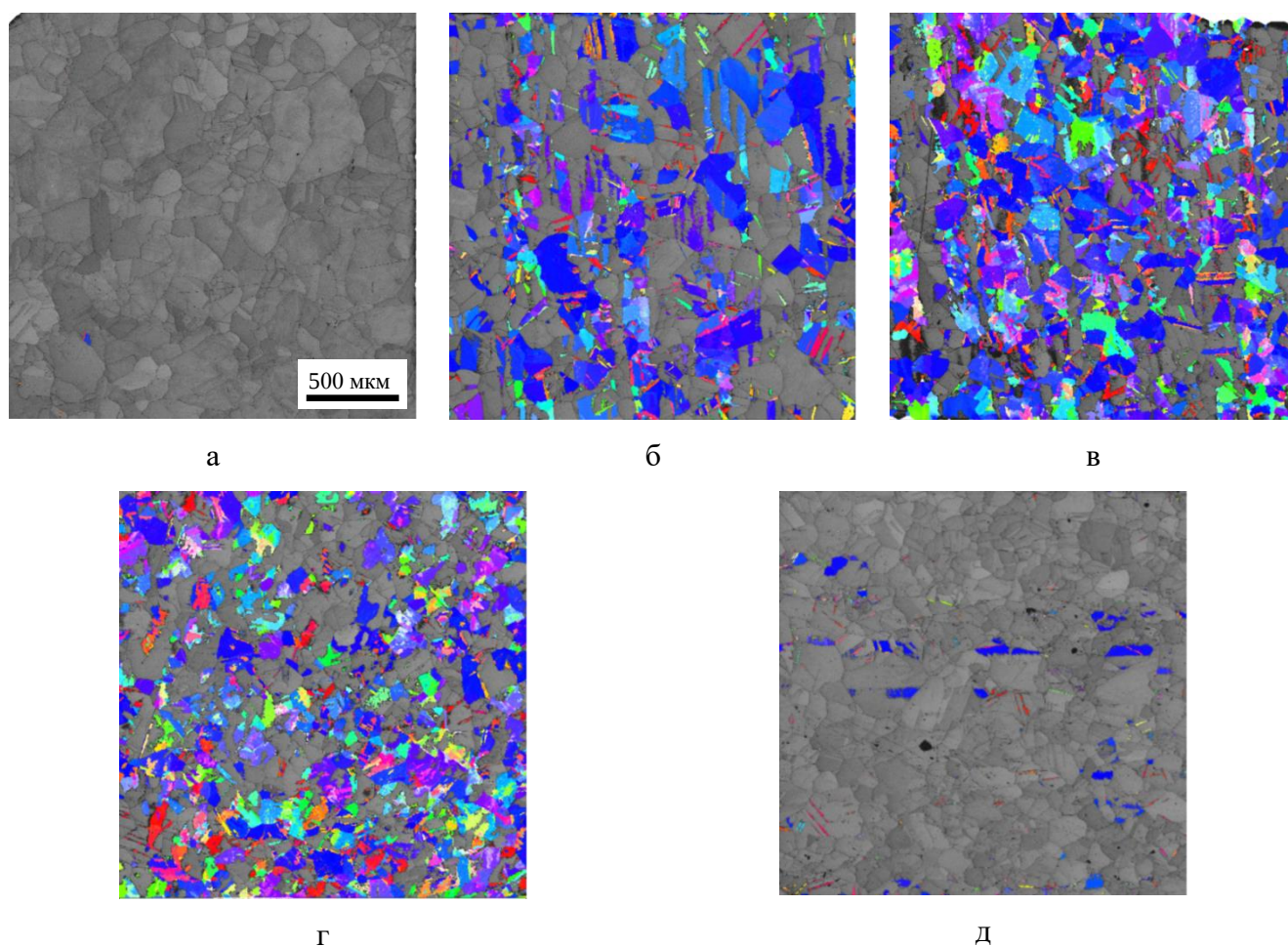
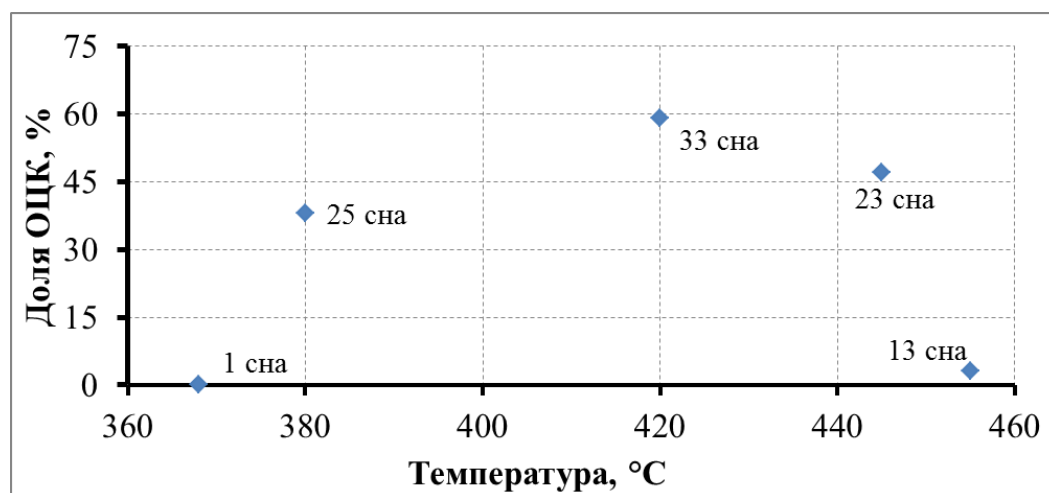
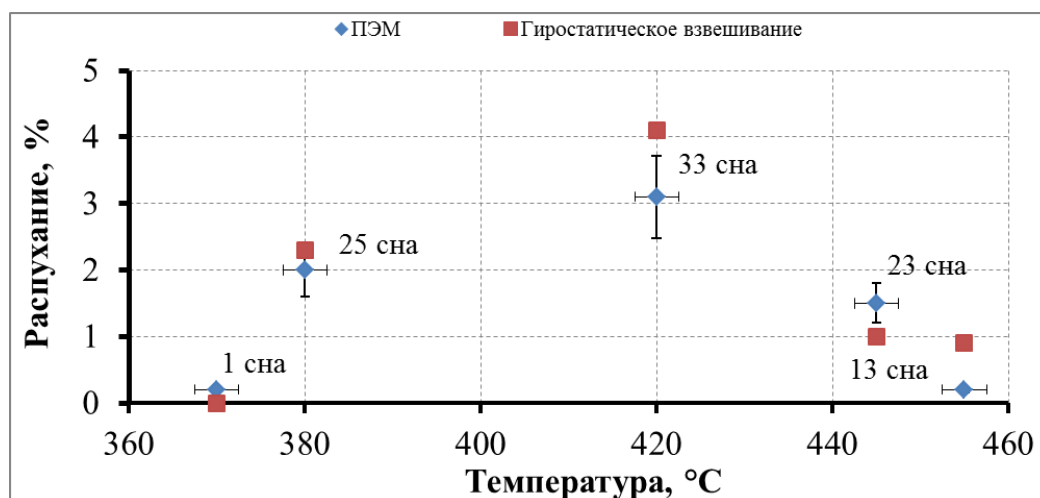


Рисунок 5.13 –  $\gamma \rightarrow \alpha$  превращение на металлографических образцах стали 10X18Н9: а – 370 °С 1 сна; б – 380 °С 25 сна; в – 420 °С 33 сна; г – 445 °С 23 сна; д – 455 °С 13 сна

Исходя из зависимости доли образовавшейся  $\alpha$ -фазы и набухания образцов нельзя сделать однозначный вывод о однозначной склонности к  $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращению в зависимости от набухания, как это было предложено в работе [196]. Максимальной повреждающей дозой 33 сна характерно максимальное набухание и максимальное образование  $\alpha$ -фазы. Но необходимо отметить, что для образцов с одинаковой повреждающей дозой  $\sim 25$  сна облученных при температурах 380 и 445 °С наблюдаются высокие значения ( $\sim 38$  и  $\sim 48$  % соответственно) образовавшейся  $\alpha$ -фазы. При этом, для образца с меньшим набуханием и большей температурой наблюдается большая доля  $\alpha$ -фазы. Данный факт свидетельствует о роли радиационно-стимулированной сегрегации легирующих элементов, так как более высокая температура обеспечивает повышенную диффузионную активность. Выраженная кристаллографическая зависимость распада показывает действие радиационно-стимулированной сегрегации в формировании зародышей сдвигового превращения.



а



б

Рисунок 5.14 – Зависимость доли  $\alpha$ -фазы (а) на поверхности и радиационного набухания (б) образцов в зависимости от температуры и повреждающей дозы нейтронного облучения

## 5.3 Заключение к главе 5

1. Продолжительная эксплуатация оболочек твэлов из стабильных сталей ЧС68 и ЭК164 при температурах выше 550 °С сопровождается выносом легирующих элементов из зоны контакта в теплоноситель. Это приводит к фазовому  $\gamma \rightarrow \alpha$  превращению в обедненном легирующими элементами слое.

2. Методом ориентационной микроскопии (EBSD) были исследованы структурно-текстурные состояния в аустенитной нержавеющей стали типа X18H9 после длительной эксплуатации трубного изделия при повышенных температурах. В поверхностном слое исследованных образцов, приготовленных в виде шлифов и при помощи электролитической полировки, обнаружено значительное содержание  $\alpha$ -фазы с решеткой близкой к ОЦК. Показана выраженная кристаллографическая направленность распада, инициированная исходными ориентировками зерен аустенита и действием растягивающих напряжений. Это позволяет утверждать, что распад аустенита реализовывался по сдвиговому (с учетом повышенной температуры «бейнитному») механизму в соответствии с ориентационными соотношениями промежуточными между ОС Курдюмова-Закса и ОС Нишиямы-Вассермана Сдвиговое  $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращение начиналось в аустените на двойниковых границах (PCY  $\Sigma 3$ ) и реализовывалось в пределах, определенных исходной ориентацией кристаллов  $\gamma$ -фазы и величиной действующих напряжений.

3. Для возникшей  $\alpha$ -фазы в образцах 10X18H9 после нейтронного облучения при повышенных температурах отличительной особенностью является наличие основной компоненты текстуры с направлением  $\langle 111 \rangle$  перпендикулярным полированной поверхности, на которой реализуется превращение.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проблемой эксплуатации установок на быстрых нейтронах является высокий уровень радиационных повреждений конструкционных материалов, формирующих активную зону реактора. Стабильность структуры и свойств конструкционных материалов является необходимым условием для увеличения длительности безопасной эксплуатации элементов ядерных реакторов. В настоящей работе с использованием оригинальных методов, в том числе авторских, показано, что радиационные повреждения аустенитных сталей под действием нейтронного облучения существенно определяются состоянием микроструктуры. Неоднородность радиационной пористости в большой степени зависит от наличия и количества в структуре комплексов дефектов кристаллического строения, а именно, скоплений малоугловых границ и пакетов двойников деформации. Также в работе проанализировано влияние продолжительного нейтронного облучения при повышенных температурах на склонность материала к реализации  $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращения.

## Выводы

1. С использованием инструментария сканирующей электронной микроскопии разработана методика количественного анализа характеристик радиационной пористости. Методика за счет многократного увеличения площади (масштабности) 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 градиента температуры. В условиях нейтронного облучения при градиенте температуры 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 и пор разрешаемых в СЭМ во время нейтронного облучения. При увеличении среднего расстояния между двойниками деформации на их границах наблюдается образование одиночных или ряда крупных пор.

7. Зафиксирован эффект самооблучения аустенитной матрицы выделениями боридов молибдена, связанный с образованием He и Li по реакции  $B(p, \alpha)$ , 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.

8. Зафиксировано, что для границ двойников рекристаллизации образование крупных пор происходит в исключительных случаях. Размер наблюдаемых пор на границах двойников значительно превышает средний пор в матрице.

9. 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 набухания, а также к снижению общего набухания при близких условиях облучения

10. 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.

11. Показано, что у стали 10X18N9 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.

### **Перспективы дальнейшей разработки темы исследования**

Полученные в проведенном исследовании результаты в дальнейшем будут использованы в качестве опорного материала в работах, нацеленных на оптимизацию химических составов, а также совершенствования технологий производства оболочечных труб и элементов конструкций из сталей и сплавов для получения изделий с заданными параметрами радиационной стойкости.

Разработанные экспериментальные подходы к анализу локальных структурно-текстурных состояний могут быть использованы при проведении исследований, посвященных развитию физических представлений о микромеханизмах фазовых и структурных превращений в функциональных металлических материалах.

## СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ

АкЗ – активная зона

Твэл – тепловыделяющий элемент

ТВС – тепловыделяющая сборка

сна – смещения на атом

ПЭМ – просвечивающая электронная микроскопия

СЭМ – сканирующая электронная микроскопия

EBSD – electron backscatter diffraction (дифракция обратно рассеянных электронов)

ГЦК – гранецентрированная кубическая

ОЦК – объёмно-центрированная кубическая

ПВА – первично выбитый атом

ЭДУ – энергия дефекта упаковки

СУЗ – система управления и защиты

ДУО-стали – дисперсно-упрочненные оксидами стали

флакс – поток нейтронов через сечение

флюенс – отношение числа частиц, прошедших через сечение за определенное время

ИГЗ – инженерия границ зерен

BSE – back scattered electron (обратно отраженные электроны)

ХРИ – характеристическое рентгеновское излучение

PCY – решетка совпадающих узлов

$\Sigma 3$  – специальная граница с числом совпадающих узлов 3 (двойниковая)

ОС – ориентационные соотношения

К-З – ориентационные соотношения Курдюмова-Закса

Н-В – ориентационные соотношения Нишиямы-Вассермана

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Конобеевский, С. Т. Действие облучения на материалы. / С. Т. Конобеевский. – Москва : Атомиздат, 1967. – 402 с.
2. Калинин, Б. А. Проблемы выбора материалов для термоядерных реакторов. Радиационная эрозия. / Б. А. Калинин, Д. М. Скоров, В. Л. Якушин. – Москва : Энергоатомиздат, 1985. – 184 с.
3. Ма, Б. М. Материалы ядерных энергетических установок / Б. М. Ма. – Пер. с англ. – Москва : Энергоатомиздат, 1987. – 408 с.
4. Зеленский, В. Ф. Радиационные дефекты и набухание металлов / В. Ф. Зеленский, И. М. Неклюдов, Т. П. Черняева. – Киев : Наукова думка, 1988. – 296 с.
5. Трушин, Ю. В. Физическое материаловедение / Ю. В. Трушин. – СПб. : Наука, 2000. – 286 с.
6. Иванов, Л. И. Радиационная физика металлов и ее приложения / Л. И. Иванов, Ю. М. Платов. – М. : Интерконтакт Наука, 2002. – 300 с.
7. Паршин, А. М. Материаловедение. Технология конструкционных материалов. Радиационное материаловедение : Учебник для вузов / А. М. Паршин, А. Н. Тихонов, Ю. С. Васильев [и др.]. – СПб. : Издательство СПбГУ, 2003. – 331 с.
8. Акишин, А. А. Физика воздействия концентрированных потоков энергии на материалы : учебник / А. И. Акишин, Г. Г. Бондаренко, Д. В. Быков [и др.]. – М.: Издательство УНЦ ДО, 2004. – 418 с.
9. Григорьев, Е. Г. Физические основы прочности. Радиационная физика твердого тела. Компьютерное моделирование. Том 4. / Е. Г. Григорьев, Ю. А. Перлович, Г. И. Соловьев [и др.]. – М.: МИФИ, 2008. – 696 с.
10. Томпсон, М. Дефекты и радиационные повреждения в металлах : перевод с англ. / М. Томпсон ; под ред. В. Е. Юрасовой — 1971. – 368 с.
11. Ковальченко, М. С. Радиационное повреждение тугоплавких соединений / М. С. Ковальченко, В. В. Огородников, Ю. И. Роговой [и др.]. – М.: Атомиздат, 1979. – 160 с.
12. Соловьев, В. А. Роль термических пиков (областей локального плавления) в радиационном набухании металлов / В. А. Соловьев, В. П. Тарасиков // Препринт ФЭИ-3286. – Обнинск: ГНЦ РФ-ФЭИ, 2019. – 31 с.
13. Comprehensive Nuclear Materials / Editor in chief Rudy J. M. Konings. – Amsterdam: Elsevier Ltd, 2012. – V. 1. – 501 p.
14. Comprehensive Nuclear Materials / Editor in chief Rudy J. M. Konings. – Amsterdam: Elsevier Ltd, 2012. – V. 2. – 658 p.

15. Comprehensive Nuclear Materials / Editor in chief Rudy J. M. Konings. – Amsterdam: Elsevier Ltd, 2012. – V. 4. – 727 p.
16. Was, G. S. Fundamentals of Radiation Materials Science. Metals and Alloys / G.S. Was. – New York : Springer Berlin Heidelberg, 2007. – 827 p.
17. Вотинов, С. Н. Облученные нержавеющие стали / С. Н. Вотинов, В. И. Прохоров, З. Е. Островский. – М.: Наука, 1987. – 127 с.
18. Agullo-Lopez, F. Points Defects in Materials / F. Agullo-Lopez, C. R. A. Catlow, P. D. Townsend. – San Diego, CA : Academic Press, 1988. – 445 p.
19. Zinkle, S. J. Designing Radiation Resistance in Materials for Fussion Energy / S. J. Zinkle, L. L. Snead // Annual Review of Materials Research. – 2014. – V.44. – P. 241–268
20. Козлов, А. В. Зависимость концентрации точечных дефектов в аустенитной стали ЧС-68 от скорости их генерации и температуры при нейтронном облучении / А. В. Козлов // Физика металлов и металловедение. – 2009. – Т. 107. – № 6. – С. 574-581.
21. Никулин, С.А. Ванадиевые сплавы для ядерной энергетики / С. А. Никулин, С. Н. Вотинов, А. Б. Рожнов. – М. : Изд. ДомМИСиС, 2014. – 206 с.
22. Russell, K. C. Nucleation of voids in irradiated metals / K. C. Russell. – Acta Metallurgica. – 1971. – V. 19. – No. 8. – P. 753–758.
23. Sumerling, R. Formation of Intergranular Voids and Cracks in an Irradiated Austenitic Steel tensile-tested in the Temperature Range 650-850 °C / R. Sumerling // Nature. – 1966. – V.211. – P. 512–514
24. Fraser, A. S. Formation of Intergranular Voids and Cracks in an Irradiated Austenitic Steel tensile-tested in the Temperature Range 650-850 °C / A. S. Fraser, I. R. Birss, C. Cawthorne // Nature. – 1966. – V.211. – P. 291–292
25. Cawthorne, C. Voids in Irradiated Steel / C. Cawthorne, E. J. Fulton // Nature. – 1967. – V.216. – P. 575–576
26. Козлов, А. В. Образование и эволюция радиационных кластеров в ГЦК-металлах при низкотемпературном нейтронном облучении до малых повреждающих доз / А. В. Козлов, Е. Н. Щербаков, О. И. Асипцов, Л. А. Скрябин, И. А. Портных // Физика и химия обработки материалов. – 2006. – №1. – С. 9–17
27. Портных, И. А. Зависимость характеристик ансамбля радиационных пор, образующихся в стали 06X16H15M2Г2ТФР, от температуры и повреждающей дозы нейтронного облучения [Текст] : дис. ... канд. физ.-мат. наук : 01.04.07 : защищена 28.05.2004 : утверждена 28.05.2004 / Портных Ирина Александровна. – Екатеринбург, 2004. – 145 с.
28. Advances in Nuclear Science and Technology / Editor(s) : Ernest J. Henley, Jeffery Lewins, New-York: Academic Press, 1973. – 394 p.

29. Бредихин, М. Ю. Влияние холодной деформации на радиационное распухание стали 09X16H15M3Б при облучении тяжелыми ионами / М. Ю. Бредихин, В. В. Брык, В. Н. Воеводин [и др.] // Вопросы атомной науки и техники. Серия Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. – 1981. – Вып. 3. – С. 56–60
30. Козлов, А. В. Условия достижения стадии стационарного распухания / А. В. Козлов, И. А. Портных // Физика металлов и металловедение. – 2007. – Т.103. - №1. – С. 108–112
31. Козлов, А. В. Зависимость скорости стационарного распухания оболочек твэлов из стали ЧС68 от характеристик нейтронного облучения / А. В. Козлов, И. А. Портных // Физика металлов и металловедение. – 2016. – Т.117. – №8. – С. 871–874
32. Портных, И. А. Характеристики радиационной пористости, сформировавшейся при облучении в реакторе БН-600 в материале оболочек из стали ЭК164(06X16H20M2Г2БТФР)-ИД Х.Д. / И. А. Портных, А. В. Козлов, В. Л. Панченко, Н. М. Митрофанова// Физика металлов и металловедение. – 2012. – Т.113. – № 5. – С. 549–560
33. Портных, И. А. Влияние дозово температурных параметров нейтронного облучения до максимальной повреждающей дозы 77 сна на характеристики пористости, сформировавшейся в стали 0.07C–16Cr–19Ni–2Mo–2Mn–Ti–Si–V–P–B / И. А. Портных, А. В. Козлов, В. Л. Панченко // Физика металлов и металловедение. – 2014. – Т.115. – № 6. – С. 664–672
34. Портных, И. А. Характеристики радиационной пористости и структурно-фазового состояния реакторной аустенитной стали 07C-16Cr-19Ni-2Mo-Ti-Si-V-P-B после нейтронного облучения при температурах 440-600 С до повреждающих доз 36-94 сна / И. А. Портных, В. Л. Панченко // Физика металлов и металловедение. – 2016. – Т.117. – № 6. – С. 632–644
35. Портных, И. А. Рост вакансионных пор на начальной стадии нестационарного распухания / И. А. Портных, А. В. Козлов // Физика металлов и металловедение. – 2018. – Т.119. – №6. – С. 636–644
36. Bullough, R. The effects of temperature changes on void swelling / R. Bullough, M. R. Hayns // Journal of nuclear materials. – 1975. – V.55. – P. 237–245.
37. Porollo, S. I. Swelling and microstructure of austenitic stainless steel ChS-68 CW after high dose neutron irradiation / S. I. Porollo, Yu. V. Konobeev, F. A. Garner // Journal of Nuclear Materials. – 2009. – V.393. – P.61–66
38. Поролло, С. И. Распухание направляющих гильз стержней СУЗ быстрых реакторов в неоднородных температурных и радиационных полях / С. И. Поролло, Ю. В. Конобеев, Ф. А. Гарнер // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2015. – №1. – С. 66–75
39. Okita, T. Validation of Ultrasonic Velocity Measurements for Detecting Void Swelling in First-Wall Structural Materials / T. Okita, J. Etoh, M. Sagisaka, T. Matsunaga, Y. Isobe, P. D. Freyer,

Y. Huang, J. M. K. Wiezorek, F. A. Garner // *Fusion Science and Technology*. – 2014. – V.66. – P. 77–82

40. Etoh, J. Development of a nondestructive inspection method for irradiation-induced microstructural evolution of thick 304 stainless steel blocks / J. Etoh, M. Sagisaka, T. Matsunaga, Y. Isobe, F. A. Garner, P. D. Freyer, Y. Huang, J. M. K. Wiezorek, T. Okita // *Journal of Nuclear Materials*. – 2013. – V.440. – P. 500–507

41. Foster, J. P. Residual stress behavior in fast neutron irradiated SA AISI 304L stainless steel cylindrical tubing / J. P. Foster, J. E. Flinn // *Journal of Nuclear Materials*. – 1980. – V.89. – P.99–112

42. Akasaka, N. Effect of temperature gradients on void formation in modified 316 stainless steel cladding / N. Akasaka, I. Yamagata, S. Ukai // *Journal of Nuclear Materials*. – 2000. – V.283–287. – P. 169–173

43. *Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors* / Edit by Pascal Ivon, N.Y. : Woodhead Publishing Series in Energy, 2017. – 664 p.

44. Séran, J. L. Swelling and microstructure of neutron-irradiated Ti-modified type 316 stainless steel / J. L. Séran [et al.] // *Effect of Radiation on Materials*, 12th Conference, Williamsburg. – 1985 : ASTM STP 870. – P. 233–247

45. Залужный, А. Г. Гелий в реакторных материалах / А. Г. Залужный, Ю. Н. Сокурский, В. Н. Тебус. – М. : Энергоатомиздат, 1988. – 224 с.

46. Bates, J. F. The Effect of Solid Transmutation Products on Swelling in 316 Stainless Steel / J. F. Bates, F. A. Garner, F. M. Mann // *Journal of Nuclear Materials*. – 1981. – V.103&104. – P. 999–1004

47. Mansur, L. K. Theory and experimental background on dimensional changes in irradiated alloys / L. K. Mansur // *Journal of Nuclear Materials*. – 1994. – V.216. – P. 97–123

48. Glasgow, B. D. Helium Bubble Formation and Swelling in Metals / B. D. Glasgow, A. Si-Ahmed, W. G. Wolfer, F. A. Garner // *Journal of nuclear materials*. – 1981. – V.103&104. – P. 981–986

49. Oliver, B. V. Helium and hydrogen generation in pure metals irradiated with high-energy protons and spallation neutrons in LANSCE / B. M. Oliver, M. R. James, F. A. Garner, S. A. Maloy // *Journal of Nuclear Materials*. – 2002. – V.307–311. – P. 1471–1477

50. Trinkaus, H. Helium accumulation in metals during irradiation – where do we stand? / H. Trinkaus, B. N. Singh // *Journal of Nuclear Materials*. – 2003. – V.323. – P. 229–242

51. Конобеев, Ю. В. Распухание и газы в металлах под облучением / Ю. В. Конобеев, С. И. Голубов, В. А. Печенкин // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение*. – 1981. – В. 3. – С. 44–55

52. Печенкин, В. А. Роль примесей в зарождении скоплений точечных дефектов в облучаемых материалах / В. А. Печенкин, Ю. В. Конобеев // Журнал технической физики. – 1981. – В.50. – №11. – С. 2442–2450
53. Конобеев, Ю. В. Влияние температуры имплантации и содержания гелия на концентрацию пор в металлах после облучения тяжелыми ионами / Ю. В. Конобеев, А. В. Субботин // Физика металлов и металловедение. – 1980. – В.49. – С. 1101–1103
54. Белозеров, С. В. Исследование накопления гелия в сталях аустенитного класса для оценки радиационной повреждаемости материалов внутрикорпусных устройств реакторов ВВЭР / С. В. Белозеров, В. С. Неустроев, В. К. Шамардин // Физика металлов и металловедение. – 2008. – Т.106. – №5. – С. 520–526
55. Parker, C. A. Calculation of cavity nucleation under irradiation with continuous helium generation / C. A. Parker, K. C. Russell // Effect of Radiation on Materials: Eleventh International Symposium, H. R. Brager and J. S. Perrin, Eds., American Society for Testing and Materials, Baltimore, 1982. – ASTM STP 782. – P. 1042–1053.
56. Stoller, R.E. A Comparison of the Relative Importance of Helium and Vacancy Accumulation in Void Nucleation / R. E. Stoller, G. R. Odette // Radiation Induced Change of Microstructure: 13th International Symposium, F. A. Garner, N. H. Packan, A. S. Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1987. – ASTM STP 955. – P. 358–370.
57. Stoller, R. E. A Composite Model of Microstructural Evolution in Austenitic Stainless Steel Under Fast Neutron Irradiation / R. E. Stoller, G. R. Odette // Radiation Induced Change of Microstructure: 13th International Symposium, F. A. Garner, N. H. Packan, A. S. Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1987. – ASTM STP 955. – P. 371–392.
58. Murphy, S. M. The Influence of Helium Trapping by Vacancies on the Behavior of Metals Under Irradiation / S. M. Murphy // Radiation Induced Change of Microstructure: 13th International Symposium, F. A. Garner, N. H. Packan, A. S. Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1987. – ASTM STP 955. – P. 330–344.
59. Козлов, А. В. Зависимость критического диаметра зародыша пор в аустенитной стали ЧС-68 от температуры нейтронного облучения в модели образования гелий-вакансионных пузырьков / А. В. Козлов, И. А. Портных, А. И. Блохин, Д. А. Блохин, Н. А. Демин // Физика и химия обработки материалов. – 2012. – №1. – С. 16–22
60. Козлов, А. В. Миграция и накопление на дислокациях трансмутационного гелия в аустенитных сталях при нейтронном облучении / А. В. Козлов, И. А. Портных // Физика металлов и металловедение. – 2016. – Т.117. – №4. – С. 414–421
61. Hartmann, M. Evolution of Gas-Filled Nanocracks in Crystalline Solids / M. Hartmann, H. Trinkaus // Physics Review Letters. – 2002. – V.88. – 055505

62. Singh, B. N. Transport of Helium to Grain Boundaries During Irradiation / B. N. Singh, A. J. Foreman // Radiation Induced Change of Microstructure: 13th International Symposium, F. A. Garner, N. H. Packan, A. S. Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1987. – ASTM STP 955. – P. 345-357.
63. Odette, G. R. Fission-fusion correlations for swelling and microstructure in stainless steels: effect of the helium to displacement per atom ratio / G. R. Odette, P. J. Maziasz, J. A. Spitznagel // Journal of Nuclear Materials. – 1981. – V.103&104. – P. 1289–1304
64. Kesternich, W. Helium trapping at dislocations, precipitates and grain boundaries / Kesternich W. // Radiation Effect. – 1983. – V.78. – P. 189–211.
65. Villacampa, I. Helium bubble evolution and hardening in 316L by post-implantation annealing / I. Villacampa, J. C. Chen, P. Spatig, H. P. Seifert, F. Duval // Journal of nuclear materials. – 2018. – V.500. – P. 389–402
66. Yamamoto, N. Microstructural observation of helium implanted and creep ruptured Fe-25%Ni-15%Cr alloys containing various MC and MN formers / N. Yamamoto, J. Nagakawa, Y. Murase, H. Shiraishi // Journal of Nuclear Materials. – 1998. – V.258-263. – P. 1628–1633.
67. Terumitsu, M. Micro-mechanical investigation for effects of helium on grain boundary fracture of austenitic stainless steel / M. Terumitsu, F. Katsuhiko, F. Koji // Journal of Nuclear Materials. – 2015. – V.457. – P. 279–290
68. Tunes, M. A. Investigating sluggish diffusion in a concentrated solid solution alloy using ion irradiation with in situ TEM / M.A. Tunes, H. Le, G. Greaves [et. al.] // Intermetallics. – 2019. – V.110. – P. 1–9
69. Garner, F. A. The Origin and Consequences of Radial Helium Profiles in Fast Reactor Cladding / F. A. Garner, C. W. Hunter, G. D. Johnson, E. P. Lippincott, J. O. Schiffgens // Nuclear Technology. – 1982. – V.58. – P. 203–217
70. Агеев, В. С. Конструкционные материалы активных зон российских быстрых реакторов. Состояние и перспективы. / В. С. Агеев, Ю. П. Буданов, А. Г. Иолтуховский, [и др.] // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2009. – №2. – С. 210–218
71. Баканов, М. В. Основные результаты эксплуатации конструкционных материалов в активных зонах реактора БН-600 / М. В. Баканов, В. В. Мальцев, Н. Н. Ошканов, В. В. Чуев // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2011. – №1. – С. 177–186
72. Неустроев, В. С. О связи микроструктуры и характера разрушения стали X18H10T, облученной нейтронами до 70 сна / В. С. Неустроев, В. К. Шамардин // Атомная энергия. – 1991. – Т.71. – В.4. – С. 345–348

73. Щербак, В. И. Структурные особенности при деформации облученных нейтронами аустенитных сталей / Щербак В.И. Дмитриев В.Д. // Физика металлов и металловедение. – 1987. – Т.64. – С. 591–595
74. Hamilton M.L., Huang F.-H., Yang W.J.S., Garner F.A. Mechanical properties and fracture behavior of 20% cold-worked 316 stainless steel irradiated to very high neutron exposures. // Influence of Radiation in Material Properties: 13<sup>th</sup> International Symposium (Part II), ASTM STP 956 / Eds F.A. Garner, C.H. Henager, Jr. and N. Igata. American Society for Testing and Materials, Philadelphia/ - 1987. – P.245–270
75. Целищев, А. В. Развитие и применение микроструктурного подхода для создания радиационно-стойких сталей аустенитного класса / А. В. Целищев, В. С. Агеев, Ю. П. Буданов [и др.] // Вопросы атомной науки и техники. – 2006. – №1. – С. 304–312
76. Митрофанова, Н. М. Конструкционные материалы для оболочек твэлов и чехлов твс реактора БН-600 / Н. М. Митрофанова, А. В. Целищев, В. С. Агеев [и др.] // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2011. – №1. – С. 211–223
77. Васильев, Б. А. Опыт и перспективы модернизации активной зоны реактора БН-600 / Б. А. Васильев, Н. Г. Кузавков, О. В. Мишин [и др.] // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2011. – №1. – С. 158–168
78. Garner, F. A. Irradiation performance of cladding and structural steels in liquid metal reactors / F. A. Garner // in Materials Science and Technology, eds. R. W. Cahn, P. Haasen and E. J. Kramer, 1994. – P. 419–543
79. Чуев, В. В. Исследование конструкционных материалов элементов активной зоны быстрых натриевых реакторов / В. В. Чуев, В. Н. Ланских, А. Н. Огородов [и др.] // В сборнике научных трудов «Исследования конструкционных материалов элементов активной зоны быстрых натриевых реакторов». – Екатеринбург: УрО РАН, 1994. – С. 85–140
81. Физическое металловедение / Под ред. Кана Р. У., Хаазена П. Т. Т.1: Атомное строение металлов и сплавов : Пер. с англ. – М. :Металлургия, 1987. – 640 с.
82. Humphreys, F. J. Recrystallization and related annealing phenomena / F.J. Humphreys, M. Hatherly. – Elsevier, 2004. –574 p.
83. Баканов, М. В. Оптимизация структурного состояния материала оболочечных труб из стали ЧС68 в холоднодеформированном состоянии / М. В. Баканов, В. В. Чуев, О. В. Крюков [и др.] // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2005. – №1. – С. 139–145
84. Баканов, М. В. Основные результаты контроля работоспособности твэлов с оболочками из аустенитных сталей нового поколения / М. В. Баканов, В. В. Мальцев, Н. Н. Ошканов, В. В. Чуев // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2011. – №1. – С. 187–195

85. Спицын, Е. В. Исследование влияния режимов аустенитизирующего отжига на структурное состояние и характеристики длительной прочности и ползучести твэльных труб из аустенитной стали ЧС68-ИД / Е. В. Спицын, А. В. Целищев, Ю. П. Буданов // Вопросы атомной науки и техники. Серия: материаловедение и новые материалы. – 2015. – №2(81). – С. 4–14
86. Новиков, И.И. Теория термической обработки металлов / И. И. Новиков. – М. : Металлургия, 1978. – 392 с.
87. Гуляев, А. П. Металловедение / А. П. Гуляев. – М. : Металлургия, 1986. – 544 с.
88. Физическое металловедение / Под ред. Кана Р. У., Хаазена П. Т. Т.3: Физико-механические свойства металлов и сплавов : Пер. с англ. – М. : Металлургия, 1987. – 663 с.
89. Rusakov, G. M. Reorientation of body-centered cubic single crystals in cold rolling / G. M. Rusakov, M. L. Lobanov, A. A. Redikul'tsev, I. V. Kagan // Steel in Translation. – 2010. – V.40. – No. 3. – P. 219–224
90. Rusakov, G. M. Formation mechanism for orientation relationship between  $\{110\}<001>$  and  $\{111\}<112>$  grains during twinning in Fe-3%Si alloy / G. M. Rusakov, A. A. Redikultsev, M. L. Lobanov // Metallurgical and materials transactions. – 2008. – V.39. – №10. – P. 2278–2280
- 91.. Rusakov, G. M. Model of  $\{110\}<001>$  Texture Formation in Shear Bands during Cold Rolling of Fe-3 Pct Si Alloy / G. M. Rusakov, M. L. Lobanov, A. A. Redikultsev, I. V. Kagan // Metallurgical and materials transactions. – 2009. – V.40A. – № 5. – P. 1023–1025
92. Готтштайн, Г. Физико-химические основы материаловедения / Г. Готтштайн, пер. с англ. К. Н. Зологовой, Д. О. Чаркина, под ред. В. П. Зломанова. – М. :БИНОМ. Лаборатория знаний, 2011. – 400 с.
93. Rusakov, G. M. Mechanism of Formation of Shear Bands upon Cold Deformation of a Commercial Fe–3% Si Alloy / G. M. Rusakov, A. A. Redikul'tsev, I. V. Kagan, M. L. Lobanov // The Physics of Metals and Metallography. – 2010. – V.109. – No.6. – P. 662–669
94. Rusakov, G. M. Special Misorientations and Textural Heredity in the Commercial Alloy Fe–3% Si / G. M. Rusakov, M. L. Lobanov, A. A. Redikul'tsev, A. S. Belyaevskikh // The Physics of Metals and Metallography. – 2014. – V.115. – No.8. – P. 775–785
95. Zorina, M. A. Fiber vs Rolling Texture: Stress State Dependence for Cold-Drawn Wire / M. A. Zorina, M. S. Karabanalov, S. I. Stepanov [et al.] // Metallurgical and Materials Transaction A. – 2018. – V. 49A. – P. 427–433.
96. Zorina, M. A. Primary recrystallization texture in FCC-Metal with low packing defect energy / M. A. Zorina, M. L. Lobanov, E. A. Makarova, G. M. Rusakov // Metal Science and Heat Treatment. – 2018. – V.60. – No.5–6. – P. 329–336
97. Holscher, M. Relationship between rolling textures and shear textures in F.C.C. and B.C.C. metals / M. Holscher, D. Rabbe, K. Lucke // Acta metal. mater. – 1994. – V.42. – №3. – P. 879–886

98. Rusakov, G. M. Interrelation of crystallographic orientations of grains in aluminum alloy  $\text{Al-Mg}$  under hot deformation and recrystallization / G. M. Rusakov, A. G. Illarionov, Yu. N. Loginov, M. L. Lobanov, A. A. Redikul'tsev // *Metal Science and Heat Treatment*. – 2015. – V.56. – No.11-12. – P. 650–655
99. Lobanov, M. L. Effect of Hot Rolling Rate on the Structure and Texture Condition of Plates of the Al-Si-Mg Alloy System / M. L. Lobanov, Yu. N. Loginov, S. V. Danilov [et al.] // *Metal Science and Heat Treatment*. – 2018. – V.60. – No.5–6. – P. 322–328
100. Штремель, М. А. Прочность сплавов. Часть II. Деформация: Учебник для вузов. / М. А. Штремель. – М. : МИСИС, 1997. – 527 с.
101. Штремель, М. А. Прочность сплавов. Часть I. Дефекты решетки: Учебник для вузов. / М. А. Штремель. – М. : МИСИС, 1999. – 384 с.
102. Целищев, А. В. Развитие и применение микроструктурного подхода для создания радиационно-стойких сталей аустенитного класса / А. В. Целищев, В. С. Агеев, Ю. П. Буданов, Н. М. Митрофанова, В. В. Новиков // *ВАНТ. Серия: Материаловедение и новые материалы*. – 2006. – В.1(66). – С. 304–312
103. Максимкин, О. П. Дефекты упаковки, их энергия и влияние на свойства облученных металлов и сплавов / О. П. Максимкин. – Алматы, 2010. – 70 с.
104. Rusakov, G. M. Specific Features of Cold Deformation of a (110)[001] Single Crystal of an Fe–3% Si–0.5% Cu Alloy Related to Twinning / G. M. Rusakov, M. L. Lobanov, A. A. Redikul'tsev, I. V. Kagan // *The Physics of Metals and Metallography*. – 2011. – V.111. – No.5. – P. 530–536
105. Lobanov, M. L. Formation of Special Disorientations Related to Transition Bands in Structure of Deformed and Annealed Single Crystal (110)[001] of Fe-3% Si Alloy / M. L. Lobanov, G. M. Rusakov, A. A. Redikul'tsev, L. V. Lobanova // *The Physics of Metals and Metallography*. – 2013. – V.114. – No.1. – P. 27–32
106. Molnar, D. Deformation Properties of Austenitic Stainless Steels with Different Stacking Fault Energies / D. Molnar, G. Engberg, W. Li, L. Vitos // *Materials Science Forum*. – 2018. – V.941. – P.190–197
107. Laplanche, G. Microstructure evolution and critical stress for twinning in the CrMnFeCoNi high-entropy alloy / G. Laplanche, A. Kostka, O. M. Horst, G. Eggeler, E. P. George // *Acta Materialia*. – 2016. – V.118. – P. 152–163
108. Molnar, D. Effect of temperature on the stacking fault energy and deformation behavior in 316L austenitic stainless steel / D. Molnar, X. Sun, S. Lua, W. Lia, G. Engberg, L. Vitos // *Materials Science & Engineering A*. – V.759. – 2019. – P. 490–497

109. Sun, G. On the influence of deformation mechanism during cold and warm rolling on annealing behavior of a 304 stainless steel / G. Sun, L. Dua, J. Hu, B. Zhang, R.D.K. Misra // *Materials Science & Engineering A*. – 2019. – V.746. – P. 341–355
110. Gu, J. Effects of grain size on the microstructures and mechanical properties of 304 austenitic steel processed by torsional deformation / J. Gu, L. Zhang, S. Ni, M. Song // *Micron*. – 2018. – V.105. – P. 93–97
111. Rahman, K. M. The effect of grain size on the twin initiation stress in a TWIP steel / K. M. Rahman, V. A. Vorontsov, D. Dye // *Acta Materialia*. – 2015. – V.89. – P. 247–257
112. Galindo-Nava, E. I. Understanding martensite and twin formation in austenitic steels: A model describing TRIP and TWIP effects / E. I. Galindo-Nava, P. E. J. Rivera-Díaz-del-Castillo // *Acta Materialia*. – 2017. – V.128. – P. 120–134
113. Lobanov, M. L. Research of special boundaries in lath martensite of low-carbon steel by orientation microscopy / M. L. Lobanov, G. M. Rusakov, A. A. Redikultsev [et al.] // *Physics of Metals and Metallography*. – 2016. – V.117. – P. 254–259
114. Lobanov, M. L. Textural Heredity at Phase Transformations in Low-Carbon Low-Alloy Pipe Steel after Controlled Thermomechanical Processing / M. L. Lobanov, M. D. Borodina, S. V. Danilov [et al.] // *Steel in Translation*. – 2017. – V.47. – No.11. – P. 710–716
115. Man, J. Effect of metallurgical variables on the austenite stability in fatigued AISI 304 type steels / J. Man, M. Smaga, I. Kubena [et al.] // *Engineering Fracture Mechanics*. – 2017. – V.185. – P. 139–159
116. Lobanov, M. L. Interrelation between the orientations of deformation and recrystallization in hot rolling of anisotropic electrical steel / M. L. Lobanov, A. A. Redikul'tsev, G. M. Rusakov, S. V. Danilov // *Metal Science and Heat Treatment*. – 2015. – V.57. – No.7-8. – P. 492–497
117. Чуев, В. В. Особенности поведения конструкционных материалов в спектре нейтронов быстрого реактора большой мощности / В. В. Чуев, В. Ф. Росляков, В. В. Мальцев // *Известия вузов. Ядерная энергетика*. – 2005. – №1. – С. 113–126
118. Garner, F. A. Insight on the swelling and creep of irradiated austenitic alloys / F. A. Garner // *Journal of Nuclear Materials*. – 1984. – V.122&123. – P. 459–471
119. Zinkle, S.J. Designing Radiation Resistance in Materials for Fusion Energy /S. J. Zinkle, L. L. Snead // *Annual Review of Materials Research*. – 2014. – V.44. – P. 241–267
120. Garner, F. A. in *Comprehensive Nuclear Materials* / Editor in chief Rudy J. M. Konings. – Amsterdam: Elsevier Ltd, 2012. – V. 4. – P. 34–97
121. Golubov, S. I. Reaction Rate Theory / S. I. Golubov, A. V. Barashev, R. E. Stoller // *Reference Module in Materials Science and Materials Engineering*, Elsevier, 2016. – P. 1-41

122. Li, C. Considerations of Metal Swelling and Related Phenomena Caused by Fast Neutron Irradiation / C. Li, D. Franklin, S. Harkness // *Irradiation Effects on Structural Alloys for Nuclear Reactor Applications*, ed. A. Bement, West Conshohocken, PA : ASTM STP 484, 1970. – P. 347–360
123. Zinkle, S. J. Dose Dependence of the microstructural evolution in neutron- irradiated austenitic stainless steel // S. J. Zinkle, P. J. Maziasz, R. E. Stoller // *Journal of Nuclear Materials*. – 1993. – V.206. – P. 266–286
124. Ehrlich, K. Irradiation creep and interrelation with swelling in austenitic stainless steels / K. Ehrlich // *Journal of Nuclear Materials*. – 1981. – V.100. – P. 149–166
125. Brager, H. R. Radiation effects in breeder reactor structural materials / H. R. Brager, F. A. Garner, E. R. Gilbert, J. E. Flinn, W. G. Wolfer // in *Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials*, eds. M. L. Bleiberg and J. W. Bennet. – AIME, New York, 1977. – P. 727
126. Garner, F. A. Irradiation Performance of Cladding and Structural Steels in Liquid Metal Reactors / F. A. Garner. – *Materials Science and Technology*, eds. R. W. Cahn, P. Haasen and E. J. Kramer, 2006. – P. 419-543
127. Stiegler, J. O. The Effect of Thermo-Mechanical Treatments on Void Formation in Irradiated Stainless Steel / J. O. Stiegler, E. E. Bloom // *Journal of Nuclear Materials*. – 1971. – V.41. – P. 341–344
128. Brager, H. R. The effects of cold working and pre-irradiation heat treatment on void formation in neutron-irradiated type 316 stainless steel / H. R. Brager // *Journal of Nuclear Materials*. – 1975. – V.57. – P. 103–118
- 129.. Kenfield, T. A Swelling of Type-316 Stainless Steel at High Fluences in EBR-II / T. A. Kenfield, W. K. Appleby, H. J. Busboom, W. L. Bell // *Journal of Nuclear Materials*. – 1978. – V.75. – P. 85–97
130. Агапова, Н. П. Исследование распухания сталей и сплавов, облученных в реакторе БОР-60 до флюенса  $1,1 \cdot 10^{23}$  нейтр./см<sup>2</sup> / Н. П. Агапова., В. С. Агеев., И. Н. Африкантов [и др.] // *Атомная энергия*. – 1978. – Т.45. – В.6. – С. 433–439
131. Maziasz, P. J. Preirradiation Microstructural Development Designed to Minimize Properties Degradation during Irradiation in Austenitic Alloys / P. J. Maziasz, T. K. Roche // *Journal of Nuclear Materials*. – 1981. – V.103&104. – P. 797–802
132. Krasnoselov, V. A. Effects of Previous Heat Treatment and Mechanical Working on the Swelling of 0Kh16N15M3B Stainless Steel / V. A. Krasnoselov, V. I. Prokhorov, A. N. Kolesnikov, Z. A. Ostrovskii // *Atomnaya Energiya*. – 1983. – V.54 – P. 121–124
133. Uematsu, K. Swelling Behavior of Cold Worked Type316 Stainless Steel / K. Uematsu [et al.] // in *Conférence de Scottsdale*, M. L. Bleiberg, J. W. Bennett Eds., The Metallurgical Society of AIME, 1977. – P. 571–589

134. Аверин, С. А. Влияние холодной деформации, полученной прокаткой и волочением, на радиационную стойкость стали ЧС68 / С. А. Аверин, А. В. Козлов, Н. И. Будылкин, В. В. Романеев // В сборнике научных трудов «Исследования конструкционных материалов элементов активной зоны быстрых натриевых реакторов». – Екатеринбург: УрО РАН, 1994. – С. 153–159
135. Garner, F. A. The strong influence of temper annealing conditions on the neutron-induced swelling of cold-worked austenitic steels / F. A. Garner, J. F. Bates, M. A. Mitchell // *Journal of Nuclear Materials*. – 1992. – V.189 – P. 201–209
136. Gilbert, E. R. The influence of cold-work level on the irradiation creep and swelling of AISI 316 stainless steel irradiated as pressurized tubes in the EBR-II fast reactor / E. R. Gilbert, F. A. Garner // *Journal of Nuclear Materials*. – 2007. – V.367–370. – P. 954–959
137. Portnykh, I. A. The Mechanism of Stress influence on Swelling of 20% cold-worked 16Cr15Ni2MoTiMnSi steel / I. A. Portnykh, A. V. Kozlov, V. L. Panchenko, V. M. Chernov, F. A. Garner // *Journal of Nuclear Materials*. – 2007. – V.367-370. – P. 925–929
138. Неустроев, В. С. Влияние растягивающих и сжимающих напряжений на радиационное распухание и деформацию ползучести аустенитной стали X18H10T / В. С. Неустроев, С. В. Белозеров, Е. И. Макаров, З. Е. Островский // *Физика металлов и металловедение*. – 2010. – Т.110. – №4. – С. 412–416
139. Hamada, S. Microstructural Evolution and Swelling Behavior of Type 316 Stainless Steel Irradiated in HFIR / S. Hamada, M. Suzuki, P.J. Maziasz, A. Hishinuma, M.P. Tanaka // 14<sup>th</sup> International Symposium Effects of Radiation on Materials., N. H. Packan, R. E. Stoller, A.S. Kumar, Eds., Philadelphia. – ASTM STP 1046, 1989. – V.1. – P. 172–184
140. Sun, C. Superior radiation-resistant nanoengineered austenitic 304L stainless steel for applications in extreme radiation environments / C. Sun, S. Zheng, C. C. Wei [et al.] // *Scientific reports*. – 2015. – V.5. – 7801
141. Du, C. Ultrastrong nanocrystalline steel with exceptional thermal stability and radiation tolerance / C. Du, S. Jin, Y. Fang [et al.] // *Nature communications*. – 2018. – V.9. – 5389
142. Tan, L. Grain Boundary Engineering for Structure Materials of Nuclear Reactors / L. Tan, T. R. Allen, J. T. Busby // *Journal of Nuclear Materials*. – V.441. – 2013. – P. 661–666
143. Liu, T. Three-dimensional study of grain boundary engineering effects on intergranular stress corrosion cracking of 316 stainless steel in high temperature water / T. Liu, S. Xia, Q. Bai [et al.] // *Journal of Nuclear Materials*. – 2018. – V.498. – P. 290–299
144. Sekine, M. Grain boundary engineering of austenitic steel PNC316 for use in nuclear reactors / M. Sekine, N. Sakaguchi, M. Endo [et al.] // *Journal of Nuclear Materials*. – 2011. – V.414. – P. 232–236.

145. Han, W. Z. Effect of grain boundary character on sink efficiency / W. Z. Han, M. J. Demkowicz, E. G. Fu [et al.] // *Acta Materialia*. – 2012. – V.60. – P. 6341–6351
146. Tunes, M. A. Investigating sluggish diffusion in a concentrated solid solution alloy using ion irradiation with in situ TEM / M. A. Tunes, H. Le, G. Greaves [et al.] // *Intermetallics*. – 2019. – V.110. – P. 1-9
147. Калинин, Б. А., Том 6. Конструкционные материалы ядерной техники / Б. А. Калинин, П. А. Платонов, Ю. В. Тузов, И. И. Чернов, Я. И. Штромбах. – М.: НИЯУ МИФИ, 2012. – 736 с.
148. Shcherbakov, E. N. Influence of damage rate on physical and mechanical properties and swelling of 18Cr–9Ni austenitic steel in the range of  $3 \times 10^9$  to  $4 \times 10^8$  dpa/s / E. N. Shcherbakov, A. V. Kozlov, P. I. Yagovitin [et al.] // *Journal of Nuclear Materials*. – 2009. – V.386–388. – P. 152–156
149. Гоулдстейн, Дж. И. Основы аналитической электронной микроскопии : Под ред. Грена Дж. Дж. / Дж. И. Гоулдстейн, Д. К. Джоя, А. Д. Ромига : Пер. с англ; Под ред. Усикова М. П. – М. : Металлургия, 1990. – 584 с.
150. Салтыков, С.А. Стереометрическая металлография / С. А. Салтыков. – М. : Металлургия, 1976. – 272 с.
151. Чернявский, К. С. Стереология в металловедении / К. С. Чернявский. – М. : Металлургия, 1977. – 280 с.
152. Хирш, П. Электронная микроскопия тонких кристаллов. Пер. с англ. по ред. Утевского Л. М. / П. Хирш, А. Хови, Р. Николсон [и др.]. – М. : Мир. – 1968. – 574 с.
153. Утевский, Л. М. Дифракционная электронная микроскопия в металловедении / Л. М. Утевский. – М. : Металлургия, 1973. – 584 с.
154. Goldstein, J. I. Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis / J. I. Goldstein, D. E. Newbury, P. Echlin [et al.]. – N.Y. : Kluwer Academic, 2003. – 689 p.
155. Практическая растровая электронная микроскопия / Под ред. Гольдштейна Дж. И., Х. Яковица : Пер. с англ. Под ред. Петрова В. И. – М. : Мир, 1978. – 656 с.
156. Основы аналитической электронной микроскопии / Под ред. Грена Дж. Дж., Гольдштейна Дж. И., Джоя Д. К., Ромига А. Д.: Пер. с англ. Под ред. Усикова М.П. – М. : Металлургия, 1990. – 584 с
157. Кальнер, В. Д. Практика микронзондовых методов исследования металлов и сплавов / В. Д. Кальнер, Зильберман А. Г. – М. : Металлургия, 1981. – 216 с.
158. Kashibe, S. Formation and growth of intragranular fission gas bubbles in UO<sub>2</sub> fuels with burnup of 6-83 GWd/t / S. Kashibe, K. Une, K. Nogita // *Journal of Nuclear Materials*. – 1993. – V.206. – P. 22-34

159. Golosov, O. A. The stereometric analysis of gas porosity of fission products in irradiated U-Mo fuel / O. A. Golosov, S. A. Averin, V. L. Panchenko, M. S. Lyutikova // 13th Int. Mtg. RRFM'2009, Vienna (Austria), 22-25 March. – 2009
160. 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 [et al.] // Journal of Nuclear Materials. – 2016. – V.480. – P. 289–300
161. Yan, Q. Monte Carlo modeling of cavity imaging in pure iron using backscatter electron scanning microscopy / Q. Yan, J. Gigax, D. Chen [et al.] // Journal of Nuclear Materials. – 2016. – V.480. – P. 420–428
162. Little, E. A. Microstructural stability of 10-12% Cr ferritic-martensitic steels irradiated in fast reactors / E. A. Little, L. P. Stoler // Effects of Irradiation on Materials: Eleventh Conference, Eds. H.R. Brager and J.S. Perrin, Philadelphia, 1982. – ASTN STP782. – P. 207–219
163. Bibilashvili, U. K. 12 % chromium steels working characteristics with reference to the conditions of operating the core elements of reactors using lead and lead-bismuth coolants / U. K. Bibilashvili, A. G. Ioltukhovskiy, Y. I. Kazennov [et al.] // Proceedings of the International Conference on Heavy Liquid Metal Coolants in Nuclear Technology (HLMC 99), Obninsk, 1999. – P. 737–745
164. Ivanov, A. A. Structure and mechanical properties EP-823 steel, 12Cr-Mo-Nb and development type 12 % Cr containing steels after irradiation in reactor BN-350 / A. A. Ivanov, C. V. Shulepin, A. M. Dvoryashin [et al.] // in materials 9 Russian Conference from reactor materials science, Dimitrovgrad, 2009. – P. 60–74 (in Russian)
165. Блохин, Д. А. Ядерно-физические свойства ферритно-мартенситных сталей ЭК-181 И ЭП-823 при нейтронном облучении в реакторе БРЕСТ-ОД-300 / Д. А. Блохин, В. М. Чернов, А. И. Блохин // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. – 2015. – №3. – С. 110–127
- 166 Pyshmintsev, I. Yu. Effect of bainite crystallographic texture on failure of pipe steel sheets made by controlled thermomechanical treatment / I. Yu. Pyshmintsev, A. O. Struin, A. M. Gervasyev [et al.] // Metallurgist. – 2016. – V.60. – P. 405–412
167. Sandusky, D. W. Influence of long-term sodium exposure on the composition and microstructure of austenitic alloys / D. W. Sandusky, J. S. Armijo, W. J. Wagner // Journal of Nuclear Materials. – 1973. – V.46. – P. 225–243
168. Ganesan, V. Corrosion of annealed AISI 316 stainless steel in sodium environment / V. Ganesan, V. Ganesan // Journal of Nuclear Materials. – 1998. – V.256. – P. 69–77
169. Ganesan, V. Authors's reply to 'Generation of surface degraded layer on austenitic stainless steel piping exposed to flowing sodium in a loop: inter comparison of long term exposure

data', by S. Rajendran Pillai / V. Ganesan, V. Ganesan, H. U. Borgstedt // *Journal of Nuclear Materials*. – 2004. – V.334. – P. 217-221

170. Bharasi, N. S. Effect of flowing sodium on corrosion and tensile properties of AISI type 316LN stainless steel at 823 K / N. S. Bharasi, K. Thyagarajan, H. Shaikh [et al.] // *Journal of Nuclear Materials*. – 2008. – V.377. – P. 378–384

171. Кинев, Е.А. Жидкометаллическая коррозия оболочечных сталей в натриевом теплоносителе / Е. А. Кинев, В. И. Пастухов, Н. В. Глушкова // *Вопросы атомной науки и техники: Ядерно-реакторные константы*. – 2017. – В.3. – С. 80–88

172. Brager, H. H. Stress-affected microstructural development and creep-swelling interrelationship / H. R. Brager, F. A. Garner, E. R. Gilbert [et al.] // *Conference on radiation effects in breeder reactor structural materials*, Scottsdale, 1977. – P. 48

173. Woodford, D. A. Distribution of boron in an austenitic steel inferred from the observation of helium gas bubbles after neutron irradiation / D. A. Woodford, J. P. Smith, J. Moteff // *Journal of Nuclear Materials*. – 1967. – V.24. – P. 118–120

174. Vela, P. The behavior of elemental boron particles in copper during Neutron irradiation / P. Vela, J. Hardy, B. Russell // *Journal of Nuclear Materials*. – 1967. – V.26. – P. 129–131

175. Woodford, D. A. Effect of helium gas bubbles on the creep ductility of an austenitic alloy / D. A. Woodford, J. P. Smith, J. Moteff // *Journal of Nuclear Materials*. – 1968. – V.29. – P. 103–110

176. Rau, R. C. Radiation damage in vanadium / R. C. Rau, R. L. Ladd // *Journal of Nuclear Materials*. – 1969. – V.30. – P. 297–302

177. Gelles, D. S. An experimental method to determine the role of helium in neutron-induced microstructural evolution / D. S. Gelles, F. A. Garner // *Journal of Nuclear Materials*. – 1979. – V.85&86. – P. 689-693

178. Garner, F. A. Helium deposition profiles from self-shielded alpha sources / F. A. Garner // *Radiation Effects*. – 1982. – V.66. – P. 211–216

179. Kumar, A. Transmutation-induced deposition profiles in halos surrounding spherical precipitates / A. Kumar, F. A. Garner // *Radiation Effects*. – 1984. – V.82. – P. 61–72

180. Yang, W. J. S. The lithium shell effect and its impact on microscopy determinations of swelling behavior / W. J. S. Yang, F. A. Garner, A. Kumar // *Journal of Nuclear Materials*. – 1984. – V.122&123. – P. 659–663

181. Kawanishi, H. Microstructural investigation of helium and lithium effects in V-Ti alloys irradiated in FFTF by means of  $^{10}\text{B}$ -doping / H. Kawanishi, Y. Arai, S. Ishino // *Journal of Nuclear Materials*. – 1992. – V.191-194. – P. 933–937

182. Klimenkov, M. New method for detection of Li inside He bubbles formed in B<sup>10</sup>-alloyed steel after neutron irradiation / M. Klimenkov, A. Möslang, E. Materna-Morris // *Micron*. – 2013. – V.46. – P. 51–56
183. Klimenkov, M. Helium bubble morphology of boron alloyed EUROFER97 after neutron irradiation / M. Klimenkov, A. Möslang, E. Materna-Morris, H.-C. Schneider // *Journal of Nuclear Materials*. – 2013. – V.442. – P. S52-S57
184. Невзоров, Б. А. Коррозия конструкционных материалов в жидких щелочных металлах. / Б. А. Невзоров, В. В. Зотов, В. А. Иванов [и др.]. – М. : Атомиздат, 1977. – 263 с.
185. Орлова, Е. А. Защита конструкционных материалов от коррозии в жидких металлах / Е. А. Орлова, А. В. Орлов // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерно-реакторные константы*. – 2016. – В.4. – С. 200–214
186. Нолфи, Ф. В. Фазовые превращения при облучении / Ф. В. Нолфи. – пер. с англ. – Ч. : Metallurgia, Челябинское отделение, 1989. – 312 с.
187. Porter, D. L. Interaction of Void-Induced Phase Instability and Subsequent Void Growth in AISI 304 Stainless Steel / D. L. Porter, F. A. Garner, G. M. Bond // *Effects of Radiation on Materials: 19th International Symposium, ASTM STP 1366*. – M. L. Hamilton, A. S. Kumar, S. T. Rosinski, and M. L. Grossbeck, Eds., West Conshohocken, PA, 2000. – P. 884-893
188. Марголин, Б. З. К вопросу о радиационном распухании и радиационном охрупчивании аустенитных сталей. Часть I. Экспериментальные результаты / Б. З. Марголин, И. П. Курсевич, А. А. Сорокин [и др.] // *Вопросы материаловедения*. – 2009. – №2 (58). – С. 89–98
189. Марголин, Б. З. К вопросу о радиационном распухании и радиационном охрупчивании аустенитных сталей. Часть II. Физические и механические закономерности охрупчивания / Б. З. Марголин, И. П. Курсевич, А. А. Сорокин [и др.] // *Вопросы материаловедения*. – 2009. – №2 (58). – С. 99-111
190. Gusev, M. N. Anomalously large deformation of 12Cr18Ni10Ti austenitic steel irradiated to 55 dpa at 310 °C in the BN-350 reactor / M. N. Gusev, O. P. Maksimkin, I. S. Osipov, F.A. Garner // *Journal of Nuclear Materials*. – 2009. – V.386-388. – P. 273–276
191. Gusev, M. N. Peculiarities of plastic flow involving “deformation waves” observed during low-temperature tensile tests of highly irradiated 12Cr18Ni10Ti and 08Cr16Ni11Mo3 steels / M. N. Gusev, O. P. Maksimkin, F. A. Garner // *Journal of Nuclear Materials*. – 2010. – V.403. – P. 121–125
192. Sorokin, A. A. Effect of neutron irradiation on tensile properties of materials for pressure vessel internals of WWER type reactors / A. A. Sorokin, B. Z. Margolin, I. P. Kursevich, A.J. Minkin, V.S. Neustroev // *Journal of Nuclear Materials*. – 2014. – V.444. – P. 373–384
193. Margolin, B. The radiation swelling effect on fracture properties and fracture mechanisms of irradiated austenitic steels. Part II. Fatigue crack growth rate / B. Margolin, A. Sorokin, V.

Shvetsova, A. Minkin, A. Potapova, V. Smirnov // Journal of Nuclear Materials. – 2016. – V.480. – P. 15–24

194. Maksimkin, O. P. The Phase Transformation Wave and Conditions of Its Realization in Deformable Austenitic Steels Irradiated in a BN-350 Reactor / O. P. Maksimkin // Technical Physics Letter. – 2018. – V.44. – №7. – P. 609–611

195. Gushev, M. N. Phase instability and martensitic transformation as a potential degradation mode of nuclear plant internal components / M. N. Gushev , J. T. Busby , F. A. Garner // Proceedings of the 17th International Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, Ottawa, Ontario, Canada, 2015. – P. 1–10

196. Mao, K. S. Grain orientation dependence of nanoindentation and deformation-induced martensitic phase transformation in neutron irradiated AISI 304L stainless steel / K. S. Mao, C. Sun, Y. Huang [et al.] // Materialia. – 2019. – V.5. – 100208

197. Счастливец, В. М. Физические основы металловедения / В. М. Счастливец, В. И. Зельдович // Е.: ООО «Издательство УМЦ УПИ», 2015. – 224 с.