

ПРОЧНОСТЬ И ПЛАСТИЧНОСТЬ

УДК 621.039.53

ВЛИЯНИЕ РАДИАЦИОННОЙ ПОРИСТОСТИ, ФОРМИРУЮЩЕЙСЯ В АУСТЕНИТНОЙ СТАЛИ ПРИ НЕЙТРОННОМ ОБЛУЧЕНИИ, НА КОНЦЕНТРАЦИЮ СОБСТВЕННЫХ ТОЧЕЧНЫХ ДЕФЕКТОВ

© 2020 г. А. Р. Исинбаев^{а, *}, И. А. Портных^а, А. В. Козлов^а

^аАО “Институт реакторных материалов”, а/я, 29, Свердловская обл., Заречный, 624250 Россия

*e-mail: isinbaev.a.r@gmail.com

Поступила в редакцию 16.05.2019 г.

После доработки 13.08.2019 г.

Принята к публикации 16.08.2019 г.

В рамках модели миграции точечных дефектов исследована зависимость концентрации точечных дефектов в стали ЭК164 от характеристик радиационной пористости при нейтронном облучении. Полученные результаты использованы для анализа данных экспериментального определения характеристик радиационной пористости в образцах из стали ЭК164, облученных при различных дозово-температурных параметрах. Рассчитаны значения критических диаметров вакансионных зародышей пор. Показано, что с ростом интегральной площади поверхности пор концентрация точечных дефектов уменьшается, а размер критического диаметра увеличивается. Это приводит к мультимодальному распределению пор по размерам. Полученные численные оценки границы пика мелких пор удовлетворительно соответствуют экспериментально полученным распределениям пор по размерам.

Ключевые слова: аустенитная сталь, нейтронное облучение, реакторное облучение, распухание, интегральная площадь пор, концентрация точечных дефектов, критический диаметр пор

DOI: 10.31857/S0015323020010076

ВВЕДЕНИЕ

Среди научно-технических проблем, сдерживающих развитие ядерной энергетики, одной из наиболее важных является проблема радиационной стойкости конструкционных материалов активных зон реакторов [1]. Одной из причин нестабильности конструкций, работающих в полях ионизирующих излучений, является возникновение и развитие в материалах радиационной пористости, являющейся причиной распухания материала [2]. Это приводит к ограничению срока службы конструкционных материалов. Изучение механизмов образования и роста пор позволит, на базе описания процесса распухания, прогнозировать длительность эксплуатации тепловыделяющих сборок. Это также может быть использовано для поиска путей повышения стойкости к радиационному распуханию материалов и увеличения ресурса их эксплуатации.

Поскольку распухание является результатом превышения потока вакансий в пору над потоком межузельных атомов, для его описания необходимо определение концентрации точечных дефектов в кристаллической матрице. При решении уравнения баланса точечных дефектов при облу-

чении, чаще всего учитывали исходные стоки (дислокации, границы зерен и пр.), однако сопоставление рассчитанных концентраций с результатами экспериментальных исследований, как правило, не проводили.

Так, в работе [3] в уравнения введены члены, учитывающие поглощение точечных дефектов порами и рекомбинацию на стоках, однако использованные для расчета физические параметры приводят к расчетным значениям (концентрация пор 10^6 м^{-3} , размером 1 нм для никеля), которые экспериментально проверить крайне проблематично. Так что проблема исследования влияния пористости, реально развивающейся в конструкционных материалах, когда поры становятся доминирующим стоком, на концентрацию собственных точечных дефектов является актуальной.

Цель данной работы – описание влияния характеристик радиационной пористости, развивающейся в аустенитных сталях при нейтронном облучении, на концентрацию точечных дефектов, и использование установленных закономерностей для расчета изменений скорости роста пор, обусловленного дисбалансом потока в поры вакансий и межузельных атомов.

Таблица 1. Характеристики исследованных образцов

№ образца	Температура облучения T , К	Скорость набора дозы G , 10^{-6} сна/с	Повреждающая доза, сна
1	717	1.22	72.6
2	755	1.47	87.1
3	787	1.56	92.8
4	817	1.55	92.3

ОБЪЕКТ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Исследована микроструктура оболочек твэлов из аустенитной стали ЭК-164 после облучения в реакторе БН-600, базовый состав которой приведен в работе [4]. Характеристики облучения образцов приведены в табл. 1.

Исследования проводили методами просвечивающей электронной микроскопии, основное внимание уделяли определению характеристик радиационной пористости. По результатам измерения диаметров пор строили гистограммы распределения пор по размерам, по которым рассчитывали, в частности, удельную площадь поверхности пор, значения пористости и распухание.

В качестве основного метода анализа использована модель миграции точечных дефектов [5], при этом определены концентрации вакансий и межузельных атомов в исследованных образцах на момент окончания их облучения, а также критический диаметр вакансионных зародышей пор. Эти характеристики впоследствии использовали для анализа экспериментально полученных гистограмм распределения пор по размерам.

РАСЧЕТ КВАЗИРАВНОВЕСНЫХ КОНЦЕНТРАЦИЙ ТОЧЕЧНЫХ ДЕФЕКТОВ

В качестве инструмента для теоретического анализа использовали модель миграции точечных дефектов [6], в которой вероятность перескока дефекта зависит от его энергии в близлежащих положениях.

Вероятность ω_{12} перескока из положения с энергией E_1 в соседнее положение с энергией E_2 выражается в виде

$$\omega_{12} = A \exp\left(\frac{E_1 - E_2}{kT}\right) \exp\left(\frac{-E_m}{kT}\right), \quad (1)$$

где k – постоянная Больцмана; T – температура, К; E_m – энергия миграции точечного дефекта, Дж; A – нормировочный множитель, определяется из условий равенства единице суммы вероятностей перескока во все соседние положения.

Каждый сток создает возле себя поле напряжений, часто анизотропное. Примем приближение, что точечный дефект мигрирует по однородной и изотропной кристаллической матрице, а неоднородность и анизотропия проявляется только возле стока. Каждый вид стоков представляется в виде потенциальной ямы, характеризуемой эффективным радиусом взаимодействия (ширина потенциальной ямы) с точечным дефектом и эффективной энергией связи с ним (глубине потенциальной ямы).

При этом ранее учитывали только стоки, присутствующие в исходном состоянии, что характерно для раннего этапа облучения, включая начало стадии нестационарного распухания. Учитываемыми стоками при этом являются: дислокации, границы зерен, двойники и рекомбинация вакансий с межузельными атомами. Когда образуются поры, их поверхность становится стоком, сила которого по мере их роста увеличивается. Для описания этой стадии в уравнении для определения квазистационарных концентраций надо включить дополнительный член, что приведет их к виду:

$$G_v + G_{\text{term}} = c_v(j_{vd} + j_{vg} + j_{vt} + j_{vv}) + c_v c_i j_{vr}; \quad (2)$$

$$G_v = c_i(j_{id} + j_{ig} + j_{it} + j_{iv}) + c_v c_i j_{vr}, \quad (3)$$

где $c_{v,i}$ – относительная концентрация вакансий и межузлий (доля от количества атомов); $G_{v,i}$ – скорость генерации вакансий и межузлий облучением соответственно; G_{term} – скорость термической генерации вакансий со стоков, включая поверхности пор (термическая генерация межузельных атомов считается пренебрежимо малой); $j_{v, id}, j_{v, ig}, j_{v, iv}, j_{v, vt}, j_{vr}$ – нормированные на концентрацию потоки вакансий (межузлий) на дислокации, границы зерен, границы двойников, поверхность пор, рекомбинацию.

В соответствии с описанием потоков точечных дефектов на стоки, выражение для скорости поступления вакансий в пору диаметра d имеет вид [7]:

$$J_{vv} = 4\pi c_v \left(\frac{d}{a}\right)^2 v \frac{\exp\left(\frac{-E_{mv}}{kT}\right)}{1 + \exp\left(\frac{-(E_v - U)}{kT}\right)}, \quad (4)$$

где E_{mv}, E_v – энергия миграции и образования вакансий; d – диаметр поры; a – параметр кристаллической решетки; $U = a^3\gamma/d$ – увеличение поверхностной энергии поры при поглощении

вакансии; γ – коэффициент поверхностного натяжения.

Если принять, что диаметр всех пор равен его среднему значению d_a , то скорость поступления вакансий во все поры равна:

$$J_{v\Sigma} = \frac{4c_v}{a^2} Fv \frac{\exp(-E_{mv}/kT)}{1 + \exp(-(E_v - U)/kT)}, \quad (5)$$

где F – интегральная удельная площадь поверхности пор – суммарная площадь поверхности пор в единице объема. В уравнении для изменения концентрации вакансий (2) получаем

$$j_{vv} = aFv \frac{\exp(-E_{mv}/kT)}{1 + \exp(-(E_v - U)/kT)}. \quad (6)$$

Для учета реального распределения пор по размерам используем соотношение

$$\pi n_v d_a^2 = \frac{\pi n_v d_s^2}{k_s^2} = \frac{F}{k_s^2},$$

где $k_s = \frac{d_s}{d_a}$, d_a, d_s – средний и среднеквадратичный диаметры пор, находится по гистограмме.

С учетом этого формула (6) принимает вид:

$$j_{vv} = \frac{aF}{k_s^2} v \frac{\exp(-E_{mv}/kT)}{1 + \exp(-(E_v - U)/kT)}, \quad (7)$$

$$j_{iv} = \frac{aF}{k_s^2} v \frac{\exp(E_{iv}/kT)}{1 + \exp(-(E_i + U)/kT)}. \quad (8)$$

Аналогично получены выражения для образования термических вакансий:

$$G_{term} = \exp\left(-\frac{E_{mv}}{kT}\right) \nu a (j_{vbt} + j_{vdt} + j_{vtt} + j_{vvt}), \quad (9)$$

где

$$j_{vbt} = \frac{6 \exp(-(E_v/kT))}{R_b (1 + \exp(-E_{vb}/kT))}, \quad (10)$$

$$j_{vdt} = \frac{3\pi r_d a \exp(-E_v/kT)}{(1 + 3 \exp(-E_{vd}/kT))}, \quad (11)$$

$$j_{vtt} = \frac{2\delta S_t \exp(-E_v/kT)}{(1 + \exp(-E_{vt}/kT))}, \quad (12)$$

$$j_{vvt} = \frac{F_v \exp(-(E_v - U)/kT)}{(1 + \exp(-(E_v - U)/kT))} \quad (13)$$

потоки (в относительных единицах) термических вакансий с границ зерен, дислокаций, двойников и поверхности пор соответственно; E_{vd}, E_{vb}, E_{vt} – энергия связи вакансий с дислокациями, границами зерен и границами двойников соответственно.

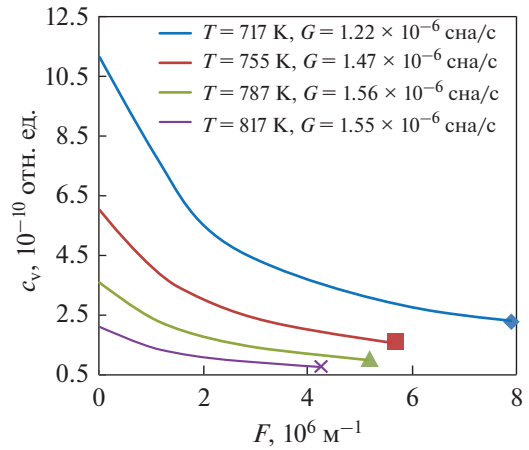


Рис. 1. Расчетная зависимость концентрации вакансий от интегральной площади поверхности пор. Лейблами отмечены точки, соответствующие экспериментально измеренным значениям интегральной площади поверхности пор.

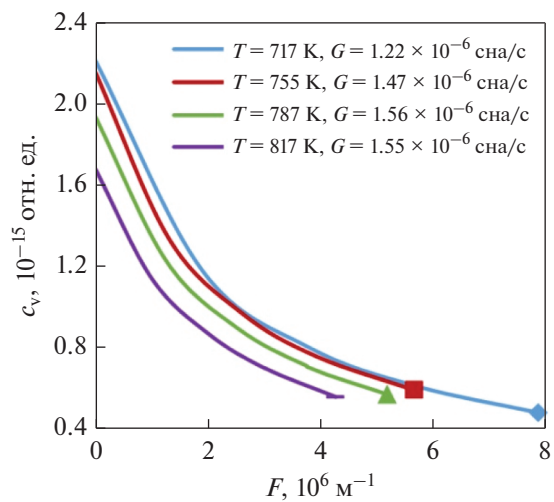


Рис. 2. Расчетная зависимость концентрации междоузельных атомов от интегральной площади поверхности пор. Лейблами отмечены точки, соответствующие экспериментально измеренным значениям интегральной площади поверхности пор.

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

Для температур и скоростей атомных смещений, при которых испытывали образцы (табл. 1), были рассчитаны концентрации точечных дефектов и построены их зависимости от интегральной площади поверхности пор, рис. 1, 2. Аналогичные зависимости получены для критического диаметра вакансионных зародышей пор, рис. 3.

Основные константы, используемые в уравнение для расчетов, приведены в табл. 2, где η – радиус спонтанной рекомбинации, выраженный в параметрах решетки; a – параметр кристаллической решетки; ν – частота Дебая; R_g – средний

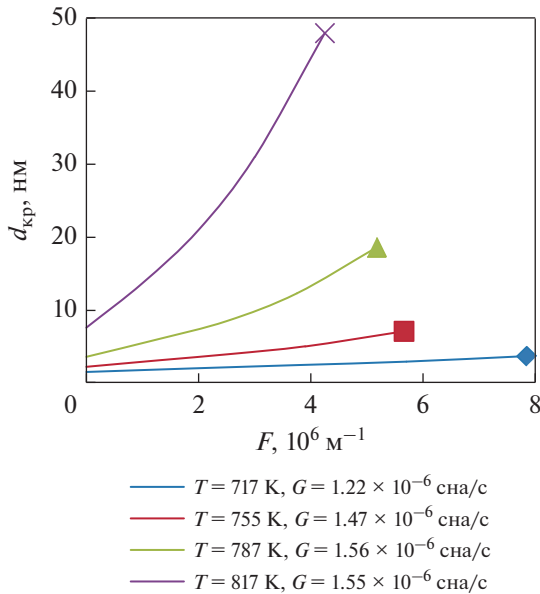


Рис. 3. Теоретически полученные значения критического диаметра при разных значениях интегральной площади пор. Лейблами отмечены точки, соответствующие экспериментально измеренным значениям интегральной площади поверхности пор.

размер зерна; ρ_d — плотность дислокаций; δv — доля поступивших в матрицу вакансий от общего количества генерированных облучением; $\Delta\delta$ — разность относительного количества вакансий и междоузлий поступающих в кристаллическую матрицу при облучении.

Анализ результатов исследования радиационной пористости, образующейся при нейтронном облучении в стали ЭК164, выполненный с использованием разработанных фрагментов статистической модели набухания, позволил установить следующее.

С увеличением площади поверхности пор концентрация обоих типов точечных дефектов асимптотически уменьшается, стремясь к некоторому постоянному значению. У вакансий относительное уменьшение концентрации более значительное, чем у междоузельных атомов. Следствием этого является увеличение критического диаметра зародышей пор с ростом площади поверхности пор, что в конечном счете блокирует переход зародышей пор в поры, так что концентрация пор перестает возрастать. Более того, она уменьшается из-за коалесценции.

С увеличением температуры от 717 до 817 К этот эффект проявляется сильнее, рис. 3.

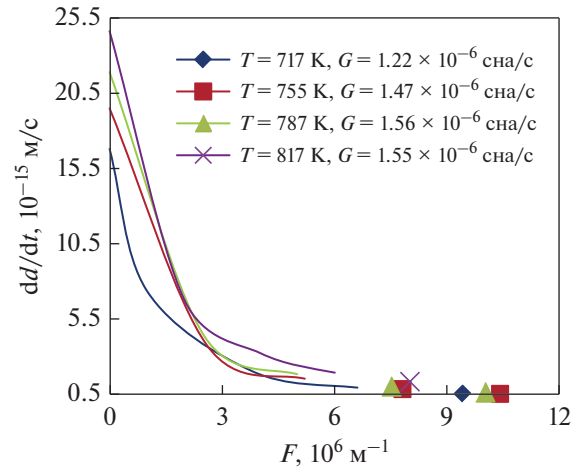


Рис. 4. Теоретически полученные значения изменения скорости роста диаметра пор при разных значениях интегральной площади поверхности пор.

Зная концентрации вакансий и междоузельных атомов, можно рассчитать скорость увеличения диаметра поры [8]:

$$\frac{dd}{dt} = j_{vv} 2a. \quad (14)$$

Построенные зависимости скорости роста диаметра поры от интегральной площади поверхности пор F приведены на рис. 4. Видно, что с увеличением F скорость роста диаметра уменьшается и стремится практически к одинаковому значению для всех температур облучения исследованного диапазона.

Анализ показывает, что рост интегральной площадью поверхности пор должен приводить к замедлению скорости роста набухания, что, в конечном счете, стабилизирует скорость роста набухания и способствует переходу к стадии стационарного набухания.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

По результатам электронно-микроскопических исследований были построены гистограммы распределения пор по размерам, рис. 5–8, и по ним определены характеристики радиационной пористости, в частности, интегральная площадь поверхности пор и значения набухания, табл. 3.

Сопоставление результатов расчетов, рис. 3, с гистограммами, показывает, что в интервале диаметров пор, близких к расчетному критическому

Таблица 2. Набор параметров, использованных при вычислениях

η	$E_v, \text{ эВ}$	$E_{mv}, \text{ эВ}$	$E_{mi}, \text{ эВ}$	$a, \text{ нм}$	$v, \text{ с}^{-1}$	$R_g, \text{ мкм}$	$\rho_d, \text{ м}^{-2}$	δ_v	$\Delta\delta$
2.5	1.8	1.09–1.1	0.27	0.36	10^{13}	12	2.5×10^{14}	0.136	0.01

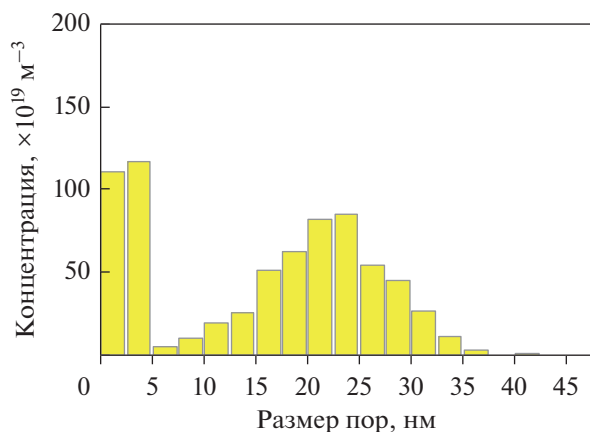


Рис. 5. Экспериментально полученное распределение пор по размерам в образце, с параметрами облучения: $T_{\text{обл}} = 717 \text{ К}$, $G = 1.22 \times 10^{-6} \text{ сна/с}$, $D = 72.6 \text{ сна}$, критический диаметр зародыша пор $d_{\text{кр}} = 5\text{--}7 \text{ нм}$ (расчетное значение $d_{\text{кр}} = 3.7 \text{ нм}$).

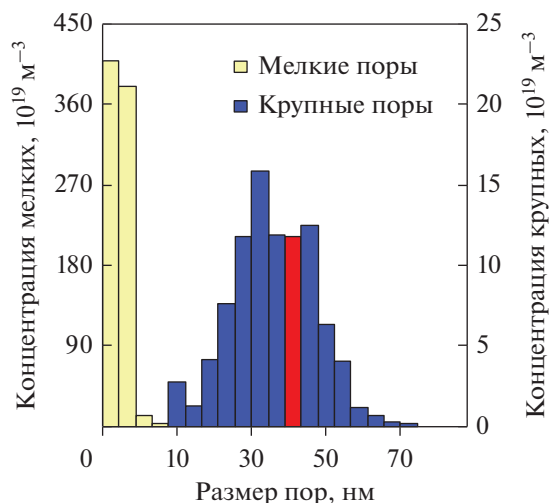


Рис. 6. Экспериментально полученное распределение пор по размерам в образце, с параметрами облучения: $T_{\text{обл}} = 755 \text{ К}$, $G = 1.47 \times 10^{-6} \text{ сна/с}$, $D = 86.1 \text{ сна}$, $d_{\text{кр}} = 15\text{--}20 \text{ нм}$ (расчетное $d_{\text{кр}} = 7.1 \text{ нм}$).

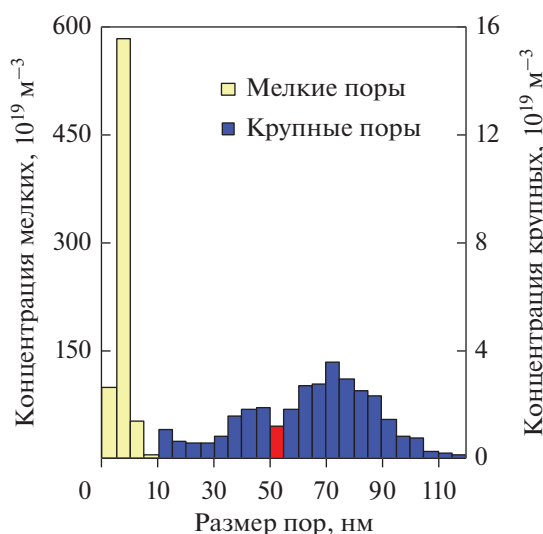


Рис. 7. Экспериментально полученное распределение пор по размерам в образце, с параметрами облучения: $T_{\text{обл}} = 787 \text{ К}$, $G = 1.56 \times 10^{-6} \text{ сна/с}$, $D = 92.8 \text{ сна}$, $d_{\text{кр}} = 20\text{--}25 \text{ нм}$ (расчетное $d_{\text{кр}} = 18.6 \text{ нм}$).

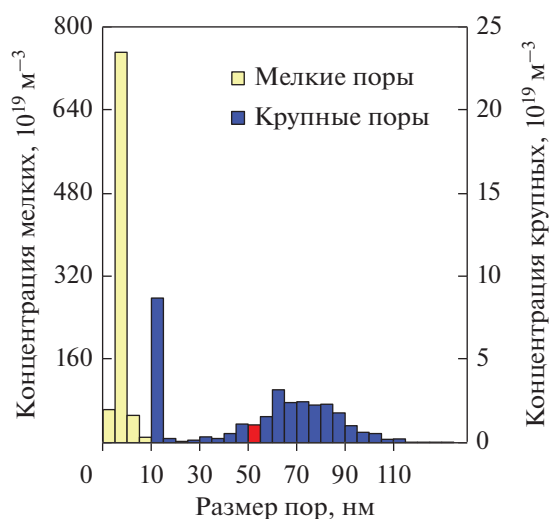


Рис. 8. Экспериментально полученное распределение пор по размерам в образце, с параметрами облучения: $T_{\text{обл}} = 817 \text{ К}$, $G = 1.55 \times 10^{-6} \text{ сна/с}$, $D = 92.3 \text{ сна}$, $d_{\text{кр}} = 20\text{--}25 \text{ нм}$ (расчетное $d_{\text{кр}} = 48 \text{ нм}$).

диаметру зародышей пор, наблюдается минимум на гистограммах.

При температуре 717 К расчетное значение 3.7 нм, на гистограмме минимум в области выше 5 нм, отделяющий первый пик малых пор, большинство из которых зародыши пор докритического размера, рис. 5.

Для температуры 755 К в области малых пор наблюдается два пика. Они могут отделяться значениями критического диаметра на разных стадиях роста площади поверхности пор.

Расчетное значение критического диаметра зародыша пор 7.1 нм несколько ниже, чем отделяющий второй пик минимум, рис. 6.

Похожая картина наблюдается на рис. 7, где приведена гистограмма распределения пор по размерам для температуры облучения 787 К, где расчетное значение критического диаметра 18.7 нм, а минимум, отделяющий второй пик, находится в интервале 20–25 нм.

Для температуры облучения 817 К, рис. 8, рассчитанный критический диаметр $d_{\text{кр}} = 48 \text{ нм}$ превышает значение, соответствующее второму ми-

Таблица 3. Характеристика исследованных образцов

№ образца	Температура облучения T , К	Интегральная площадь поверхности пор F , 10^6 м^{-1}	Распухание S , %
1	717	7.85	3.3
2	755	5.66	4.4
3	787	5.17	6.5
4	817	4.25	5.1

нимуму на гистограмме. В то же время, тенденция увеличения критического диаметра зародышей пор с ростом температуры на гистограммах прослеживается.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Получены зависимости концентрации точечных дефектов от интегральной удельной площади поверхности пор для образцов стали ЭК164, облученных при температурах из диапазона 717–817 К со скоростью генерации атомных смещений от 1.22×10^{-6} до 1.56×10^{-6} сна/с.

Для более точной интерпретации, вероятно, нужно рассчитывать критический диаметр не вакансионного, а гелий-вакансионного зародыша пор, как это делается в работе [9].

Показано, что с увеличением площади поверхности пор концентрация обоих типов точечных дефектов асимптотически уменьшается, стремясь к некоторому постоянному значению, причем у вакансий относительное уменьшение концентрации более значительное, чем у межузельных атомов.

Для температур облучения 717, 755, 787, 717 К рассчитаны зависимости критического диаметра вакансионного зародыша поры от интегральной удельной площади поверхности пор, согласно которым критический диаметр увеличивается с ростом площади поверхности пор.

По результатам ПЭМ исследований построены гистограммы распределения пор по размерам. Наличие двух максимумов на гистограммах для пор малых размеров при температурах облучения 755 К и выше, связано с ростом критического диаметра зародыша пор.

Для разных температур облучения рассчитаны зависимости скорости изменения диаметра от площади поверхности пор. Показано, что с ее увеличением скорость роста диаметра уменьшается и стремится, практически к одинаковому значению для всех температур облучения из исследованного диапазона.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Козманов Е.А. О радиационном распухании сталей в нейтронном поле быстрого реактора // Изв. вузов. Ядерная энергетика. 2005. № 1. С. 127–132.
2. Марголин Б.З., Курсевич И.П., Сорокин А.А., Васина Н.К., Неустров В.С. К вопросу о радиационном распухании и радиационном охрупчивании аустенитных сталей. Часть II. Физические и механические закономерности охрупчивания // Вопр. металловедения. 2009. № 2(58). С. 99–111.
3. Корнилов Д.А., Косенков В.М., Силантьев П.П. Влияние исходной дислокационной структуры на кинетику точечных и макроскопических дефектов при облучении // Вестник Самарского ун-та. Естественнонаучная серия. 2016. № 1–2. С. 69–84.
4. Блохин Д.А., Чернов В.М., Митрофанова Н.М., Целищев А.В., Блохин А.И. Ядерно-физические свойства аустенитных сталей ЧС68 и ЭК164 в условиях длительного нейтронного облучения в реакторе БН-600 // ВНИИНМ им. Академика А.А. Бочвара. 2015. № 3. С. 23–37.
5. Козлов А.В. Зависимость концентрации точечных дефектов в аустенитной стали ЧС-68 от скорости их генерации и температуры при нейтронном облучении // ФММ. 2009. № 6. С. 574–581.
6. Козлов А.В., Портных И.А. Зависимость скорости стационарного распухания оболочек твэлов из стали ЧС68 от характеристик нейтронного облучения // ФММ. 2016. № 8. С. 871–874.
7. Глушкова Н.В., Портных И.А., Козлов А.В. Механизм влияния трансмутационного гелия, нарабатываемого в оболочках твэлов из аустенитной стали ЧС-8 при нейтронном облучении, на образование пор // ФММ. 2009. № 3. С. 276–282.
8. Портных И.А., Козлов А.В. Рост вакансионных пор на начальной стадии нестационарного распухания // ФММ. 2018. № 6. С. 636–644.
9. Козлов А.В., Портных И.А., Блохин А.И., Блохин Д.А., Демин Н.А. Зависимость критического диаметра пор в аустенитной стали ЧС-68 от температуры нейтронного облучения в модели образования гелий-вакансионных пузырьков // Физика и химия обр. материалов, 2012. № 1. С. 16–22.