

УДК 538.9

НЕЙТРОНОГРАФИЯ ОБЛУЧЕННЫХ РЕАКТОРНЫХ АУСТЕНИТНЫХ СТАЛЕЙ

© 2021 г. В. И. Воронин^{1,*}¹ Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, Россия

*E-mail: voronin@imp.uran.ru

Поступила в редакцию 01.06.2020 г.

После доработки 07.10.2020 г.

Принята к публикации 20.10.2020 г.

Представлены нейтронно-дифракционные исследования образцов оболочек тепловыделяющих элементов, изготовленных из аустенитных сталей ЭК-164 и ЧС-68 в исходном состоянии и после эксплуатации в зоне реактора на быстрых нейтронах БН-600. Образцы исследованы в широком диапазоне доз быстрых нейтронов и температуры облучения, достигающих ~80 смещений на атом (сна) и температуры до 628°C. Различные микроструктурные характеристики, такие как микронапряжения, плотность дислокаций, кристаллографическая текстура, определены с использованием полно-профильного анализа данных нейтронной дифракции. При высоких дозах, изученных в работе, температура облучения является преобладающим фактором в величине плотности дислокаций. Методика анализа и выявление типов дефектов были предварительно отработаны на специально приготовленных образцах никеля и аустенитных сплавах после облучения в активной зоне реактора ИВВ-2М при температуре около 80°C, что обеспечило низкую тепловую подвижность дефектов решетки. Результаты, представляющие некоторые из первых работ по дифракции, выполненных на образцах после эксплуатации в зоне реактора, демонстрируют, как нейтронные данные могут использоваться для характеристики микроструктуры, вызванной облучением, и, по меньшей мере, оценки механических свойств в облученных материалах без их разрушения и не подвергая работников радиационной опасности.

DOI: 10.31857/S0023476121020120

ОГЛАВЛЕНИЕ

Введение

1. Экспериментальные результаты

1.1. Никель интерметаллические ГЦК-сплавы

1.2. Исходные образцы ТВЭЛ

1.3. Облученные образцы ТВЭЛ

2. Обсуждение экспериментальных результатов

Заключение

ВВЕДЕНИЕ

Интенсивное развитие современной энергетики связано с созданием ядерных реакторов и проектированием термоядерных установок. Однако в процессе эксплуатации ядерных реакторов из-за наличия мощного нейтронного излучения меняется внутреннее состояние материалов, вызывающее развитие достаточно сложных процессов в их объеме, снижающих их технические характеристики и ограничивающих время безопасной эксплуатации. Для увеличения срока эксплуатации реактора необходимы материалы, способные

выдерживать очень высокие дозы (более 120 смещений на атом (сна)) при работе в условиях высокой температуры $\geq 350\text{--}700^\circ\text{C}$ при контакте с охладителем и топливом. В нашей стране используются, например, в реакторе на быстрых нейтронах БН-600, оболочки тепловыделяющих элементов (ТВЭЛ) из аустенитных сталей ЧС-68И и ЭК-164И. Они обладают необходимыми свойствами, включая повышенную стойкость к ползучести и набуханию при нейтронном облучении в дополнение к адекватной высокотемпературной прочности. К настоящему времени на лучших отечественных аустенитных сталях ЧС68-ИД х.д. (холодное деформирование) и ЭК164-ИД х.д. в реакторе БН-600 достигнуты повреждающие дозы до ~90 сна. Поэтому по-прежнему актуальна проблема повышения радиационной стойкости материалов.

Считается, что на величину радиационного набухания аустенитных сталей оказывают влияние несколько основных факторов:

– твердорастворный фактор, определяемый концентрацией легирующих и примесных элементов и их распределением в объеме;

- фазовая нестабильность при облучении;
- дислокационный.

Именно этому способствует предварительная подготовка материалов, например легирование различными элементами и термомеханические обработки, холодная деформация, т.е. преднамеренно вводятся дефекты, такие как мелкодисперсные включения, системы дислокаций и пр. Многочисленную информацию о процессах, происходящих при облучении, дали традиционные методы исследования, такие как электронная микроскопия (ЭМ) и рентгеновская дифракция.

Характеристика и количественная оценка дислокаций в облученных материалах ядерных реакторов традиционно ограничивались анализом с помощью ЭМ, поскольку она позволяет непосредственно визуализировать дефекты линии. В то же время сложно отличить дислокационные петли от других источников контраста в облученных высокими дозами наиболее интересных образцах. Поэтому количественные оценки плотности дислокаций из измерений ЭМ практически отсутствуют, особенно при высоких флюенсах. Однако в настоящее время разработаны методы и программы для оценки плотности дислокаций из дифракционных экспериментов [1–5]. Они начали применяться и для облученных материалов с использованием нейтронной дифракции [6–8]. При этом важно отметить значительно сниженные требования к приготовлению образцов, вплоть до исследования готовых изделий, что значительно снижает дозовую нагрузку на оперативный персонал.

На Урале на базе атомного исследовательского реактора ИВВ-2М Института реакторных материалов в Институте физики металлов УрО РАН функционирует Нейтронный материаловедческий комплекс Института физики металлов УрО РАН [9, 10]. Одной из основных его целей является исследование структурного состояния оболочек ТВЭЛ реактора на быстрых нейтронах БН-600 после эксплуатации. Возможности оборудования, методика выявления и расчета концентрации дефектов, возникающих под облучением, и оценка плотности дислокаций были предварительно отработаны на специально приготовленных сплавах. Далее были исследованы ТВЭЛ, приготовленные из аустенитной стали марки ЧС-68И, отработавшие в реакторе [11, 12]. В работе приведены новые данные, полученные на облученных образцах ТВЭЛ из сплава ЭК-164И.

Целью выполненных исследований было дополнить информацию о явлениях, которые развиваются в материалах реакторов в процессе их эксплуатации, полученных другими методами, и могут быть очень полезными как для разработки перспективных материалов, так и для определе-

ния ожидаемого срока службы существующих изделий.

1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

1.1. Никель и интерметаллические ГЦК-сплавы

Аустенитные стали ЧС68-ИД и ЭК164-ИД – это многокомпонентные сплавы. Повышение ресурса данных материалов для тепловыделяющих сборок достигается оптимизацией состава и микроструктуры при их выплавке и последующем трубном переделе. В процессе прокатки при изготовлении оболочек ТВЭЛ в их объеме реализовывалась система дислокаций, возникала преимущественная ориентировка зерен (текстура). В литературе довольно мало информации о дефектах, возникающих в облученном материале, полученной именно с помощью нейтронной дифракции. Поэтому первая цель данной работы заключалась в отработке методики и анализа экспериментальных нейтрограмм и сравнении результатов с известными, полученными ранее другими традиционными методами, такими как ЭМ, рентген и др.

Поскольку при облучении быстрыми нейтронами материалы сильно активируются и требуется достаточно большое время высвечивания для возможности работы с ними, методические вопросы были отработаны на реакторе меньшей мощности и при невысоких уровнях облучения. Была выбрана достаточно невысокая температура облучения, что обеспечило низкую тепловую подвижность атомов. Образцы облучали быстрыми нейтронами в реакторе ИВВ-2М при температуре $\sim 80^\circ\text{C}$ в “мокром” облучательном канале в зоне с плотностью потока быстрых нейтронов энергией $E_n \geq 0.1$ МэВ, равной $2.23 \times 10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$. Для исследования кристаллической структуры облученных материалов использовали нейтронную дифракцию. Нейтрограммы получены на нейтронном дифрактометре высокого разрешения Д7а [9, 10]. Обработка экспериментальных данных и анализ структурного состояния выполнены с помощью программы FullProf [11] методом полнопрофильного анализа Ритвельда [12].

Основными, начальными эффектами при облучении быстрыми нейтронами являются первично выбитый атом и возникновение дефектов Френкеля [13]. Дальнейшее развитие событий зависит уже от многого: от химического состава и предыстории получения образцов, т.е. структурного состояния, плотности потока нейтронов, суммарной дозы и температуры облучения. Поэтому для исключения влияния части параметров предварительно были проведены тестовые эксперименты на более простых системах с ГЦК-решеткой в условиях постоянной плотности потока быстрых нейтронов и температуры облучения.

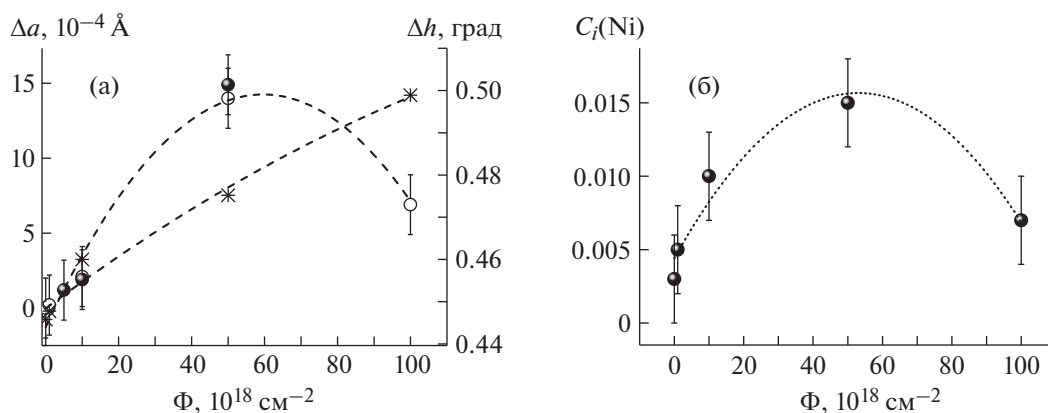


Рис. 1. Зависимость изменений параметра решетки (Δa), полуширины рефлекса (Δh) (а) и концентрации межузельных атомов $C_i(\text{Ni})$ (б) в образце никеля от флюенса быстрых нейтронов.

На примере облучения никеля с использованием анализа экспериментальных данных нейтронной дифракции путем построения карт ядерной плотности и моделирования картины дифракции рассчитаны места локализации смещенных атомов никеля и их концентрация [14]. Найдена корреляция между количеством дефектов (внедренных в междоузлия атомов никеля) и параметром решетки (рис. 1).

Показано, что уменьшение параметра решетки после достижения максимума при увеличении флюенса вызвано образованием небольших кластеров атомов из-за уменьшения концентрации отдельных межузельных атомов и вклада вакансий. Такие процессы отражаются на нейтронограммах, уширяя рефлексы (рис. 1а) и меняя их форму.

Более сложные процессы реализуются при облучении сплава состава $\text{Fe}_{62}\text{Ni}_{35}\text{Ti}_3$, состаренного при 650°C в течение получаса [15]. Как показали нейтронографические исследования [16], в матрице этого образца образовалось небольшое количество мелкодисперсной γ' -фазы Ni_3Ti с размером частиц $\sim 130 \text{ \AA}$. В потоке быстрых нейтронов наблюдался индуцированный облучением рост размеров частиц γ' -фазы Ni_3Ti до $\sim 160 \text{ \AA}$ и их количества. Это сопровождалось увеличением микронапряжений в объеме матрицы. Из-за смещения больших атомов титана из законных узлов твердого раствора не только в междоузлия, но и их частичного перераспределения в область фазы Ni_3Ti параметр решетки уменьшился. Это связано с преобладающим вкладом атомов титана в уменьшение параметра решетки при их смещении из твердого раствора матрицы в объем частиц Ni_3Ti , а не в междоузлия. Под действием температуры (изохронный отжиг) частицы γ' -фазы Ni_3Ti растворяются, и восстанавливается исходное состояние решетки.

При облучении сплава H26X5T3 ($26\text{Ni}-5\text{Cr}-3\text{Ti}$), состаренного при двух температурах $T = 600^\circ\text{C}$ и $T = 700^\circ\text{C}$ в течение 1, 6, 12 ч [17, 18], обнаружено два конкурирующих процесса. В сплавах с небольшим количеством выпавшей γ' -фазы Ni_3Ti ($T = 600^\circ\text{C}$) при облучении продолжился рост объема этой фазы без изменения размера частиц ($\sim 35 \text{ \AA}$). В то же время в образцах после старения при $T = 700^\circ\text{C}$ наблюдали уменьшение больших по размеру частиц γ' -фазы Ni_3Ti ($\sim 160 \text{ \AA}$) до $\sim 100 \text{ \AA}$. Общий объем данной фазы в матрице при этом увеличился. Подобные процессы наблюдали в облученных образцах 40X4Г18Ф2 с карбидным типом старения [19].

На специально приготовленных образцах из сплава состава X16H15M3T1 , предварительно деформированных, методом нейтронографии была исследована микроструктура после облучения быстрыми нейтронами. Анализ нейтронограмм выполнили с использованием методики с применением “модифицированного” уравнения Уильямсона–Холла (**MWH**, *modified* Williamson–Hall plot) [1–5] для расчета плотности дислокаций, отработанной на “эталонном” образце меди, деформированной методом равноканального углового прессования, предоставленного профессором Р.З. Валиевым [8]. Было выявлено, что облучение быстрыми нейтронами понижает плотность дислокаций, причем более существенно в образцах с исходной большей степенью деформации. При этом изменяется тип дислокаций. Винтовые дислокации замещаются краевыми.

Как показано выше, имеющийся в распоряжении математический аппарат позволяет определить одновременно комплекс дефектов (наличие точечных дефектов, выделений, дислокаций) в облученных материалах из экспериментов по рассеянию тепловых нейтронов. Это позволило перейти к изучению реальных реакторных материалов оболочек ТВЭЛ из аустенитной стали.

Таблица 1. Параметр решетки исходных образцов ТВЭЛ

a , Å (ЭК-164)	3.5844(1)	3.5854(2)	3.5842(1)
a , Å (ЧС-68)	3.5896(2)	3.5893(2)	3.5881(2)

Таблица 2. Численные коэффициенты текстуры в исходных образцах ТВЭЛ из стали ЭК-164 и ЧС-68

	ЭК-164			ЧС-68		
$T_{C_{111}}$	0.28	0.39	0.45	0.26	0.14	0.43
$T_{C_{200}}$	1.36	0.97	0.87	1.16	0.65	1.28
$T_{C_{220}}$	2.22	2.45	2.39	2.67	1.63	2.37

1.2. Исходные образцы ТВЭЛ

В качестве штатного материала оболочек ТВЭЛ реактора БН-600 используются стали аустенитного класса ЧС-68И и ЭК-164 в х.д.-состоянии. Одним из важных требований к оболочкам ТВЭЛ быстрых реакторов на этапе изготовления является обеспечение стабильности и однородности микроструктуры и высоких характеристик прочности и пластичности. Предпосылкой для такого подхода являлось то, что повышенная стабильность исходной дислокационной структуры и замедленные процессы эволюции фаз коррелируют с повышенной радиационной стойкостью материала. Поэтому было проведено исследование однородности структурного состояния образцов ТВЭЛ до загрузки в реактор БН-600 методом нейтронографии. Контрольные образцы были вырезаны из

оболочечных труб ТВЭЛ различных партий, по три образца из одной стали.

Выявлено, что все исходные образцы являются твердыми растворами с ГЦК-решеткой. Параметры решетки близки друг другу для одной стали, чуть выше в образцах ЭК-164 (табл. 1).

Существенно различаются интенсивности рефлексов на нейтронограммах образцов из-за присутствия текстуры в объеме материала (рис. 2, табл. 2). Этот вывод может быть важен, так как известно о влиянии анизотропии на физические (жаропрочность и механические) свойства сталей. На рис. 2 и из табл. 2 хорошо видно, что состояние материалов образцов ТВЭЛ достаточно неоднородно, в большей степени из стали ЧС-68, и с точки зрения текстуры зависит от партии изготовления.

В процессе изготовления изделий в объем вносятся и другие типы искажений, которые отражаются на нейтронограммах и влияют на физические свойства и процессы при облучении быстрыми нейтронами. Так, рефлексы на нейтронограммах всех образцов уширены по сравнению с эталоном (рис. 3).

Усредненные по объему величины микронапряжений приведены в табл. 3. Уширение рефлексов носит анизотропный характер, что видно на рис. 4, где представлена зависимость ширины ΔK от волнового вектора K ($K = 2 \sin \theta / \lambda$, $\Delta K = 2 \cos \theta (\Delta \theta) / \lambda$; $\Delta \theta$, θ и λ – физическое уширение, дифракционный угол, длина волны нейтронов соответственно) для ТВЭЛ из стали ЧС-68.

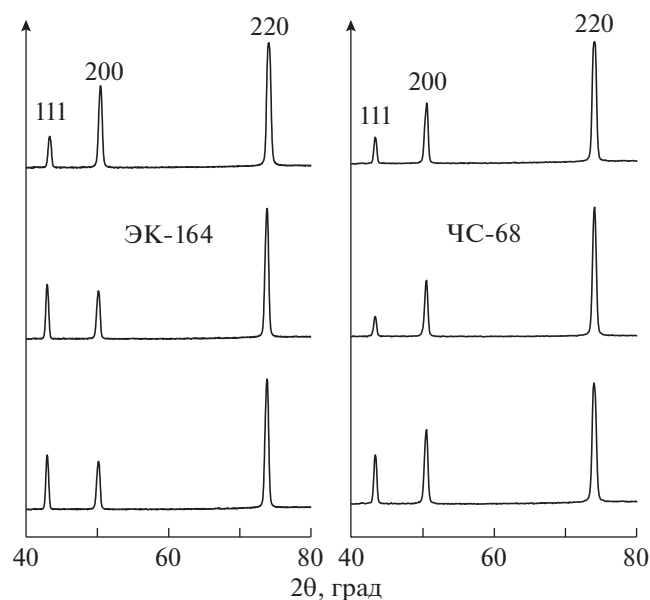
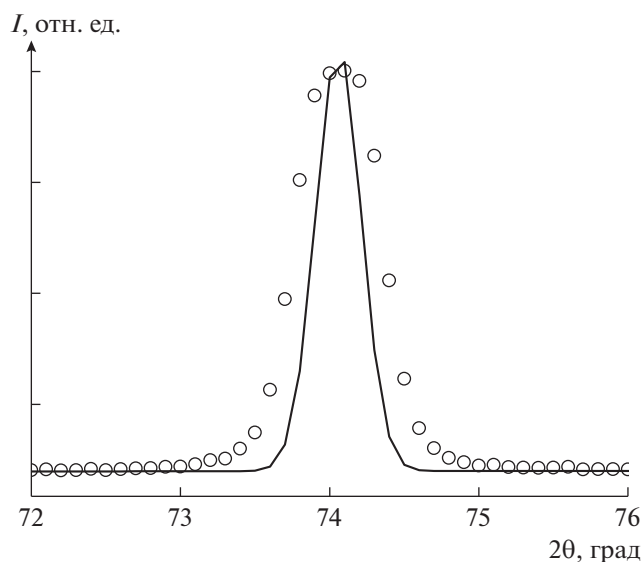
**Рис. 2.** Фрагменты экспериментальных нейтронограмм исходных образцов ТВЭЛ из стали ЭК-164 и ЧС-68.**Рис. 3.** Экспериментальный (кружки) и эталонный (сплошная линия) рефлекс (220) образца ТВЭЛ из стали ЧС-68.

Таблица 3. Экспериментальные плотности дислокаций образцов ТВЭЛ

	ЭК-164			ЧС-68		
$\rho, 10^{10} \text{ см}^{-2}$	1.14	0.88	0.71	1.04	0.69	1.05
$\langle \Delta d/d \rangle, 10^{-4}$	35.2(3)	32.1(4)	29.3(3)	33.1(4)	30.1(5)	34.8(5)

Подобные эффекты присущи всем исследованным образцам. Такая анизотропия уширения рефлексов на нейтронограммах вызвана развитой дислокационной структурой, созданной в процессе изготовления труб холодной прокаткой [20, 21]. В [8, 22, 23] была отработана методика расчетов плотности дислокаций из данных нейтронной дифракции, основанной на использовании формулы МВН [1–5] анизотропного уширения рефлексов. С помощью программы FullProf [11], позволяющей анализировать полный профиль нейтронограммы с учетом анизотропии уширения рефлексов, были построены зависимости ширины рефлексов для всех исследованных образцов ТВЭЛ из обоих типов стали ЧС-68 и ЭК-164. Экспериментальные плотности дислокаций, полученные из этих зависимостей, приведены в табл. 3.

Видно, что дислокации и микронапряжения присутствуют в ТВЭЛ, изготовленных из обоих видов стали ЧС-68 и ЭК-164. Однако как величина текстуры, так и данные характеристики различаются в разных партиях изготовленных ТВЭЛ. В [21] описан метод повышения радиационной стойкости оболочечных труб из стали ЧС-68 в ре-

акторе БН-600 путем оптимизации химического состава и структуры исходного материала. Полученные результаты показывают, что возможен отбор готовых оболочечных труб при дополнительном тестировании структурного состояния методом нейтронографии.

1.3. Облученные образцы ТВЭЛ

Далее были исследованы радиоактивные образцы оболочки ТВЭЛ, извлеченные из реактора БН-600 после отработки ими нескольких циклов. На рис. 5 представлена примерная схема распределения температуры и потока нейтронов в оболочке ТВЭЛ по высоте активной зоны БН-600. Образцы были выбраны из разных частей ТВЭЛ по высоте и поэтому при одинаковом времени эксплуатации были облучены различной дозой при разных температурах.

Таким образом, исследование реальных ТВЭЛ представляет определенные трудности с точки зрения получения зависимостей структурных данных. Нет однозначного параметра, от которого можно строить зависимости. Рисунок 5 показывает, что в любом месте по длине ТВЭЛ у материала разная температура, и он подвергается воздействию быстрыми нейтронами потоком разной плотности. Поэтому можно условно выделить три

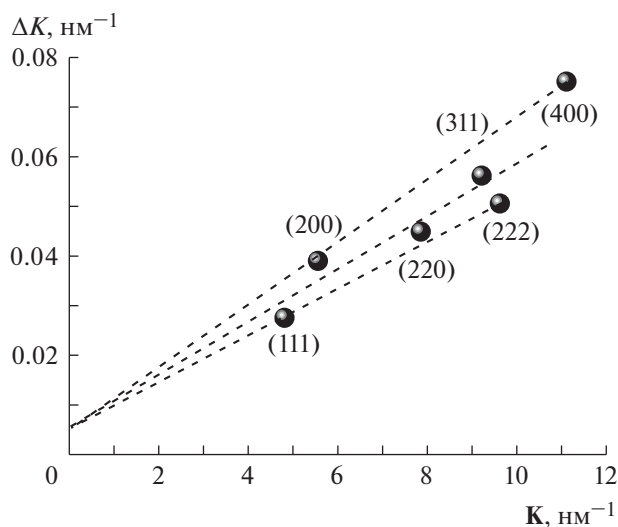


Рис. 4. Зависимость ширины рефлексов (ΔK) от волнового вектора (K) для ТВЭЛ из стали ЧС-68.

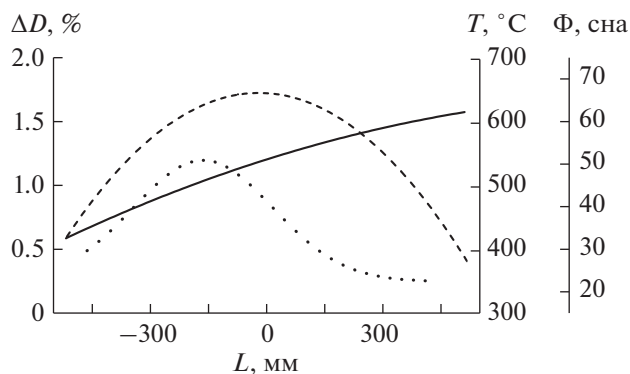


Рис. 5. Условная схема величины распухания (ΔD – эффективное изменение диаметра ТВЭЛ, точки), температуры (T , сплошная линия) и повреждающей дозы (Φ , штриховая) от расстояния от центра активной зоны (L).

Таблица 4. Повреждающая доза и температура облучения ТВЭЛ из стали ЭК-164

Доза, сна	$T_{\text{обл}}, ^\circ\text{C}$
49.1	628
72.3	528
70.8	463
48.0	419
32.8	407
14.5	389
0.6	370

Примечание. Жирным шрифтом выделены образцы первой партии.

зоны: нижняя с температурой $<450^\circ\text{C}$ и небольшой плотностью потока нейтронов, средняя — $450 < T < 550^\circ\text{C}$ со средним уровнем потока нейтронов и высокая с $T > 550^\circ\text{C}$ с высоким уровнем потока.

Полученные новые данные о поведении ТВЭЛ из стали ЭК-164 сопоставлены с данными для стали ЧС-68 [22, 23]. Были изучены образцы двух партий, условия облучения приведены в табл. 4.

На нейтронограммах практически всех образцов обнаружена однофазная ГЦК-структура, качественный вид картин не изменился (в том числе соотношение пиковых интенсивностей), несмотря на достаточно большие дозы быстрых нейтронов. Материал успешно сохранил свою ГЦК-структуру, однако существенно изменились ширина и форма пиков.

На рис. 6 показаны дифракционные пики (111) и (200), полученные от образцов, облученных быстрыми нейтронами флюенсами 14.5 сна при $T = 389^\circ\text{C}$ и 72.3 сна при $T = 528^\circ\text{C}$ (рис. 6). Кроме того, показан тот же самый пик для исходного ТВЭЛ до облучения, чтобы сравнить влияние облучения и деформации на профиль дифракционной линии. Отметим, что угловое положение и высота пиков нормированы, чтобы четко иллюстрировать уширение при разных флюенсах.

Рефлексы уширяются дополнительно при облучении 14.5 сна. Но вот при 72.5 сна ширина рефлекса (111) почти не изменилась, тогда как для (200) явно видно уменьшение его ширины.

Поведение полуширин рефлексов для двух партий ТВЭЛ из стали ЭК-164 в широком интервале флюенсов и температур показано на рис. 7. Видно, что максимальное уширение рефлексов наблюдается при относительно низких температурах облучения, ниже 400°C , и дозах менее 15 сна. Эти результаты хорошо согласуются с представлениями об образовании в этих условиях большого количества межзельных дислокационных петель и небольших вакансионных пустот и о плохой релаксационной способности, связанной с низкой подвижностью атомов замещения при этих температурах. Также видно (рис. 7а), что с увеличением флюенса до 14.5 сна быстрее увеличивается ширина рефлексов $h(111)$, чем $h(200)$. При более высоких флюенсах $h(111)$ практически не меняется, тогда как $h(200)$ слегка уменьшается. Отчетливое влияние температуры демонстрируют выпавшие из зависимости точки, соответствующие наивысшей температуре облучения 628°C . Влияние температуры еще лучше отражено на

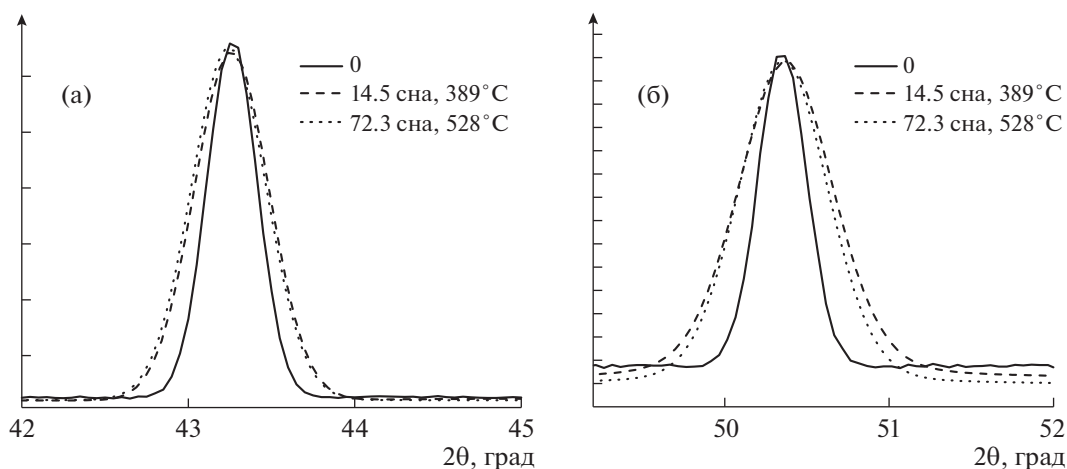


Рис. 6. Рефлексы (111) (а) и (200) (б) при различном состоянии, деформации и облучения.

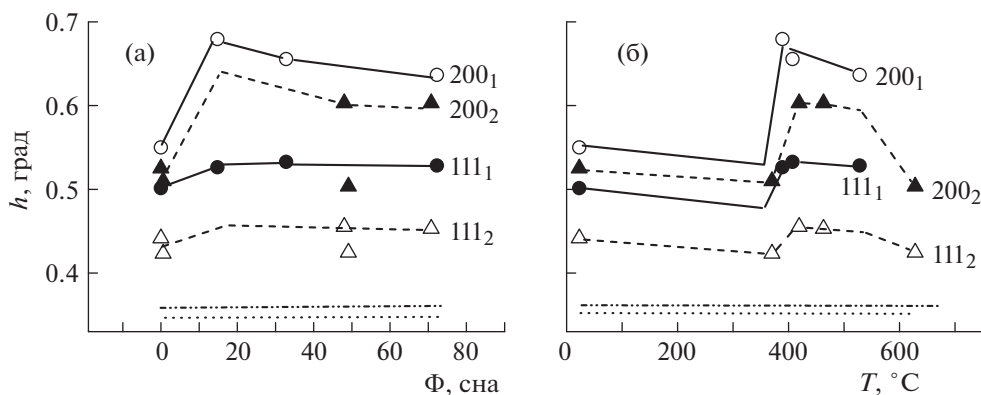


Рис. 7. Зависимости полуширин пиков (111) и (200) образцов от флюенса быстрых нейтронов (а) и от температуры облучения (б) для двух партий ТВЭЛ из стали ЭК-164. Нижние пунктирные линии соответствуют эталонной ширине рефлексов.

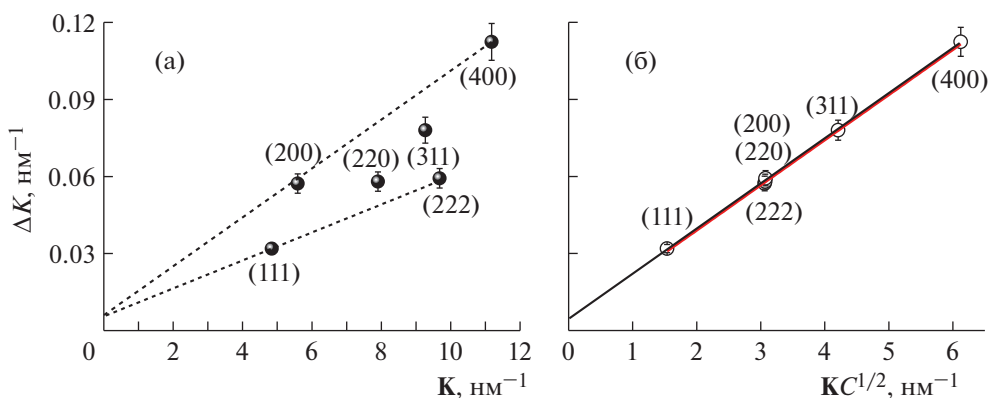


Рис. 8. Стандартная (а) и модифицированная (б) Уильямсона–Холла (WH) зависимости полуширины рефлексов ΔK от волнового вектора K для образца, облученного флюенсом 14.5 сна при $T = 389^\circ\text{C}$.

рис. 7б, где показаны ширины пиков при разной температуре облучения.

На рис. 8а показан стандартный график Уильямсона–Холла (WH) зависимости полуширины рефлексов ΔK от волнового вектора K для образца ЭК-164, облученного флюенсом 14.5 сна при $T = 389^\circ\text{C}$. Уширение пиков зависит от K , что указывает на то, что оно обусловлено прежде всего увеличением плотности дислокаций. Это результат явления анизотропии деформации, который можно интерпретировать с помощью дислокационных контрастных факторов [3, 5]. На рис. 8б показан модифицированный график WH, скорректированный с использованием коэффициентов контрастности дислокаций. После коррекции все данные легли на прямую. Для всех облученных материалов получены аналогичные зависимости. Это дало дополнительную уверенность в предпо-

ложении, что уширение связано с увеличением плотности дислокаций.

На рис. 9 показаны плотности дислокаций, определенные из экспериментальных данных нейтронной дифракции для всех образцов в зависимости от флюенса и температуры. Для сравнения нанесены данные для стали ЧС-68 [22, 23].

Видно, что плотность дислокаций быстро нарастает с ростом флюенса до $\Phi = 32.8$ сна, выше которого немного падает (рис. 9а). Отчетливое влияние температуры демонстрирует выпавшая из зависимости точка, соответствующая наивысшей температуре облучения 628°C . Влияние температуры еще лучше отражено на рис. 9б, где показана плотность дислокаций при разной температуре облучения, т.е. плотность дислокаций, по-видимому, контролируется температурой облучения.

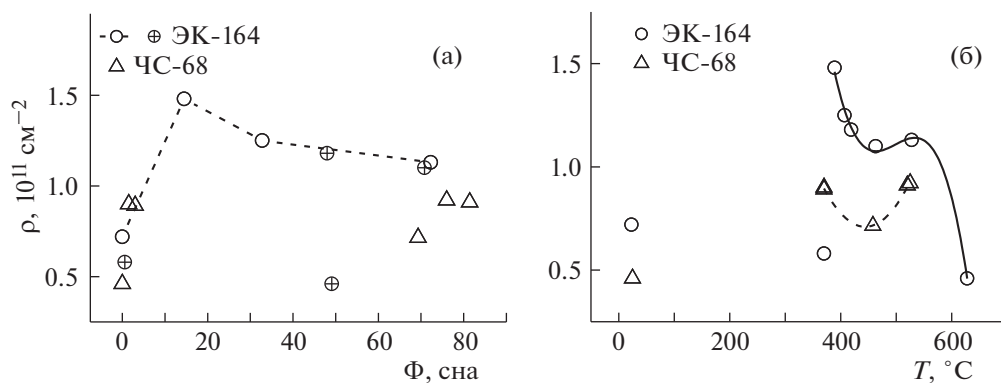


Рис. 9. Дислокационная плотность (ρ) как функция флюенса быстрых нейтронов (а) или температуры облучения (б) ТВЭЛ из стали ЭК-164 (○, ⊕—первая и вторая партия) и ЧС-68 (Δ).

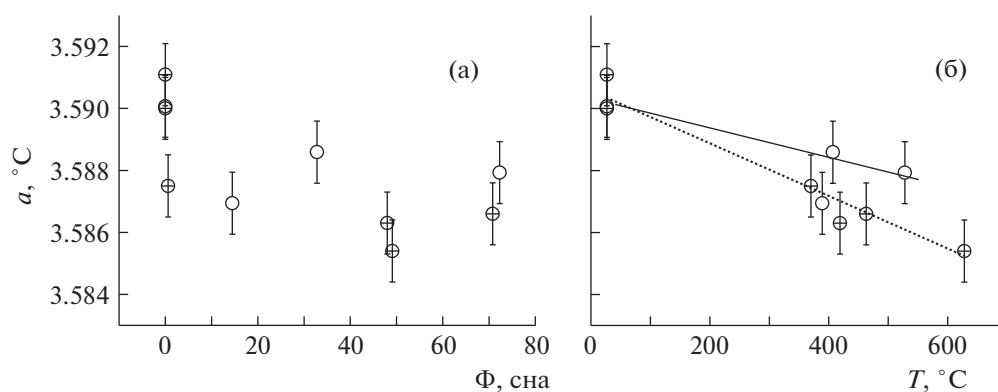


Рис. 10. Зависимость параметра решетки ЭК-164 от флюенса (а) и температуры (б). Открытые и закрытые кружки — первая и вторая партия образцов соответственно.

Отметим, что плотность дислокаций выше в образцах, где изначально более высокая степень текстуры ТС_{200} (сравните табл. 2 и 3). Эта тенденция сохраняется во всем диапазоне флюенсов, а сама величина текстуры не изменяется.

Также одним из основных факторов является стабильность твердого раствора, т.е. концентрация легирующего и примесных элементов в твердом растворе матрицы. Информативной характеристикой, отражающей состояние твердого раствора, является параметр кристаллической решетки. На рис. 10 показаны значения параметров решетки твердого раствора аустенитной стали ЭК-164 после облучения.

2. ОБСУЖДЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Считается, что основными факторами, оказывающими влияние на величину механических

свойств и набухания аустенитных нержавеющих сталей, являются твердорастворный фактор, определяемый концентрацией легирующих и примесных элементов; фактор фазовой неустойчивости, проявляющийся в образовании мелкодисперсных выделений; дислокационный фактор. На рис. 10 наблюдается изменение параметра решетки в зависимости от температуры облучения. Величина изменения зависит также от партии образцов. Такие изменения, как показано в предварительных исследованиях [14, 15, 19], обусловлены возникновением межузельных атомов и вакансий, образованием кластеров небольших размеров. Все это также приводит к возникновению внутренних микронапряжений и отражается на увеличении прочности материала. Наиболее чувствительным параметром к таким процессам является ширина рефлексов, которая определяется величиной микронапряжений. Зависимость микронапряжений от флюенса быст-

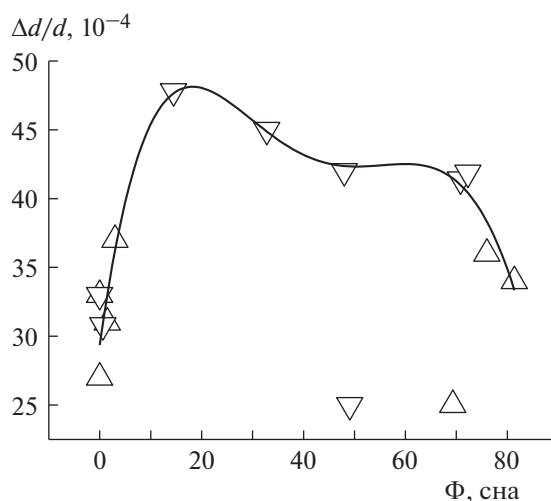


Рис. 11. Зависимость средних по направлениям величин микродеформаций образцов стали ЧС-68 (Δ) и ЭК164 (▽) от дозы облучения. Линия приведена для наглядности.

рых нейтронов показана на рис. 11 для обеих сталей ЧС-68 [22, 23].

Видно, что при увеличении флюенса до 14.5 сна наблюдается быстрый рост микронапряжений до максимума (рис. 11), который также коррелирует с быстрым увеличением плотности дислокаций (рис. 9). В [24] были собраны экспериментальные данные о дефектах при облучении и обсуждалось влияние температуры и величины дозы на микроструктуру. Утверждается, что установлены механизмы влияния многих типов радиационных дефектов (дислокационные петли, выделения, вакансионные кластеры, дислокации и пр.) на движение дислокаций и получены выражения, связывающие параметры дефектной структуры с величиной радиационного упрочнения, или с соответствующей зависимостью механических свойств. Аналогичный вывод был получен в [7] — изменение плотности дислокаций является движущей силой эволюции механической прочности. Было использовано выражение для уравнения Тейлера [25], связывающее напряжения пластического течения с квадратным корнем от плотности дислокаций:

$$\sigma = \sigma_0 + M\alpha Gb\sqrt{\rho},$$

где σ — напряжение, коэффициент Тейлера M равен 3, G — напряжение сдвига стали, b — длина вектора Бюргера для системы скольжения $\langle 111 \rangle \{110\}$, ρ — плотность дислокаций, α — коэффициент, описывающий силу препятствий, которые должна преодолевать движущаяся дислока-

ция во время пластической деформации; для металлов значение α обычно составляет 0.3. Была получена линейная зависимость предела смещения текучести на образцах облученной стали НТ-9 от квадратного корня от плотности дислокаций. Плотность дислокаций преимущественно контролируется температурой облучения, по крайней мере при высоких дозах. Это согласуется с полученными результатами для сталей ЧС-68 и ЭК-164 (рис. 96). Следовательно, при больших дозах порядка 14.5 сна количество повреждений “насыщено”, а плотность дислокаций контролируется подвижностью дефектов, которая увеличивается с увеличением температуры.

При этом во всем интервале флюенсов и температур наблюдается эволюция других дефектов. Так, при облучении ЧС-68 на нейтронограммах отчетливо наблюдается дополнительный широкий пик на подошве основного [23]. Эволюцию этих выделений в исследовании ЧС-68 и ЭК-164 контролировали расчетом микродеформаций. Например, роль температуры облучения отчетливо прослеживается при повреждающей дозе 48–49 сна (рис. 11): при повышении температуры от 419 до 628°C значения $\langle \Delta d/d \rangle$ снижаются с 40 до 25, т.е. в 1.6 раза. Это указывает на конкурирующие процессы, происходящие при облучении материала быстрыми нейтронами и нагреве. При низких температурах атомы примеси не могут интенсивно покидать твердый раствор. Образование межузельных дислокационных петель приводит к росту микронапряжений. Повышение температуры интенсифицирует процессы миграции

как межузельных примесных атомов, так и атомов замещения по вакансиям, концентрация которых намного выше термически равновесной концентрации, что приводит к выходу концентраторов напряжений из решетки и образованию вторичных фаз. В результате микронапряжения в решетке уменьшаются, что регистрируется в нейтронографических экспериментах.

Основная проблема использования оболочек ТВЭЛ из аустенитных сталей – склонность материала к набуханию. Интересно, что максимальное набухание ТВЭЛ в реакторе БН-600 наблюдается в области температур 400–450°C [26]. Максимальная плотность дислокаций, определенная из измерений дифракции нейтронов, соответствует именно этому диапазону (рис. 9). Также данные плотности дислокаций согласуются с выводом [27], где показано, что механические свойства стали ЭК-164 выше, чем ЧС-68.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С помощью нейтронной дифракции изучены микроструктуры образцов ТВЭЛ из аустенитных сталей ЧС-68 и ЭК-164 после облучения быстрыми нейтронами в широком интервале флюенсов и температур. Полнопрофильный анализ Ритвельда использовался для получения данных о ширине и форме рефлексов, текстуре, параметре решетки и микровыделений. Модифицированный метод Вильямса–Холла применен для вычисления плотности дислокаций.

Показано, что плотность дислокаций в облученных образцах преимущественно контролируется температурой облучения и коррелирует с механическими свойствами и набуханием образцов. При этом плотность дислокаций выше в стали ЭК-164 по сравнению с ЧС-68, что согласуется с литературными данными. Дополнительный вклад вносят микродеформации из-за радиационных дефектов и микровыделений.

Нейтроннографический анализ показал, что различия в структурном состоянии оболочек ТВЭЛ наблюдаются на стадии изготовления даже в тех трубках, которые соответствуют техническим требованиям.

Это показывает, что анализ профиля дифракционной линии нейтронной дифракции может использоваться в качестве альтернативного, неразрушающего метода, по меньшей мере, для оценки индуцированного облучением упрочнения в образцах и характеристики механических свойств. Также может способствовать отбору ТВЭЛ перед началом эксплуатации на стадии изготовления.

Исследования дифракции нейтронов способствуют пониманию явлений, которые развиваются в материалах реакторов в процессе их эксплуатации, и могут быть очень полезными как для разработки перспективных материалов, так и для определения ожидаемого срока службы существующих изделий.

Работа выполнена с использованием УНУ “Нейтронный материаловедческий комплекс Института физики металлов УрО РАН” в рамках государственного задания Минобрнауки России по теме “Нейтрон” (№ АААА-А19-119112590082-1).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Williamson G.K., Hall W.H.* // Acta Metall. 1953. V. 1. P. 22.
2. *Wilkins M.* // Phys. Status Solidi. A. 1970. V. 2. № 2. P. 359.
3. *Ungar T., Dragomir I., Revesz A., Borbely A.* // J. Appl. Cryst. 1999. V. 32. P. 992.
4. *Kimmel G., Dayan D.* // Proceedings in International Conference, X-ray Powder Diffraction Anal. Real Str. Matter, Bull. Czech and Slovak Cryst. Assoc. August. 1995. P. 23.
5. *Ungar T., Borbely A.* // Appl. Phys. Lett. 1996. V. 69. № 21. P. 3173.
6. *Balogh L., Brown D.W., Mosbrucker P. et al.* // Acta Mater. 2012. V. 60. № 5. P. 5567.
7. *Mosbrucker P.L., Brown D.W., Anderoglu O. et al.* // J. Nucl. Mater. 2013. V. 443. № 1. P. 522.
8. *Voronin V.I., Valiev E.Z., Berger I.F. et al.* // J. Nucl. Mater. 2015. V. 459. P. 97.
9. *Goshchitskii B., Menshikov A.* // Neutron News. 1996. V. 7. № 8. P. 12.
10. Уникальная научная установка “Нейтронный материаловедческий комплекс ИФМ УрО РАН на реакторе ИВВ-2М”, Екатеринбург 2017. <http://imp.uran.ru/?q=ru/content/neytronnyy-materialovedcheskiy-kompleksinstituta-fiziki-metallov-uran-na>.
11. *Rodriguez-Carvajal J.* // Physica B. 1993. V. 192. P. 55.
12. *Rietveld H.M.* // J. Appl. Cryst. 1969. V. 2. № 2. P. 65.
13. *Gary S. Was* Fundamentals of Radiation Materials Science, Metals and Alloys. New York: Springer Science+Business Media, 2017. 1002 p.
14. *Воронин В.И., Бергер И.Ф., Проскурнина Н.В., Гощицкий Б.Н.* // Физика металлов и металловедение. 2016. Т. 117. № 4. С. 362.
15. *Воронин В.И., Бергер И.Ф., Гощицкий Б.Н.* // Физика металлов и металловедение. 2012. Т. 113. № 9. С. 925.
16. *Алябьев В.М., Вологин В.Г., Дубинин С.Ф. и др.* // Физика металлов и металловедение. 1990. Т. 8. С. 142.

17. Сагарадзе В.В., Воронин В.И., Бергер И.Ф. и др. // Физика металлов и металловедение. 2011. Т. 112. Вып. 5. С. 543.
18. Воронин В.И., Бергер И.Ф., Сагарадзе В.В., Гощицкий Б.Н. // Изв. вузов. Физика. 2011. № 1/2. С. 153.
19. Сагарадзе В.В., Гощицкий Б.Н., Волкова Е.Г. // Физика металлов и металловедение. 2011. Т. 111. № 1. С. 82.
20. Неклюдов И.М., Воеводин В.Н. // Изв. вузов. Физика. 2008. № 4. С. 62.
21. Баканов М.В., Чуев В.В., Крюков О.В. и др. // Изв. вузов. Ядерная энергетика. 2005. № 1. С. 139.
22. Воронин В.И., Валиев Э.З., Гощицкий Б.Н. и др. // Физика металлов и металловедение. 2017. Т. 118. № 2. С. 209.
23. Voronin V.I., Berger I.F., Proskurnina N.V., Goshchitskii B.N. // J. Nucl. Mater. 2018. V. 509. P. 218.
24. Пархоменко А.А., Неклюдов И.М., Азаренков Н.А., Литовченко С.В. // Структурные аспекты радиационного упрочнения и охрупчивания материалов. Харьков: Министерство образования и науки Украины, 2008. 34 с.
25. Taylor G.I. // J. Inst. Mater. 1938. V. 62. P. 307.
26. Чуев В.В., Росляков В.Ф., Мальцев В.В. // Изв. вузов. Ядерная энергетика. 2005. № 1. С. 113.
27. Барсанова С.В., Козлов А.В., Шило О.Б. // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы. 2018. Т. 5(96). С. 4.