Портных Ирина Александровна. Зависимость характеристик ансамбля радиационных пор, образующихся в стали 06Х16Н15М2Г2ТФР, от температуры и повреждающей дозы нейтронного облучения : Дис. ... канд. физ.-мат. наук : 01.04.07 : Екатеринбург, 2004 145 c. РГБ ОД, 61:04-1/1179

**РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК. ОРДЕНА ТРУДОВОГО КРАСНОГО ЗНАМЕНИ ИНСТИТУТ ФИЗИКИ МЕТАЛЛОВ**

**104.20** **0.5** **06985** “

Портных Ирина Александровна

**ЗАВИСИМОСТЬ ХАРАКТЕРИСТИК АНСАМБЛЯ РАДИАЦИОННЫХ ПОР, ОБРАЗУЮЩИХСЯ В СТАЛИ 06Х16Н15М2Г2ТФР, ОТ ТЕМПЕРАТУРЫ И ПОВРЕЖДАЮЩЕЙ ДОЗЫ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ.**

Диссертация На соискание ученой степени Кандидата физико-математических наук



1. **«Физика конденсированного состояния»**

Научный руководитель Доктор технических наук Профессор

**В.В. Сагарадзе**

Екатеринбург

**2004**

**ВВЕДЕНИЕ 5**

[**ГЛАВА 1 Литературный обзор. Радиационное распухание аустенитных сталей при высокодозном нейтронном облучении** 11](#bookmark0)

1. [*Экспериментальные исследования радиационного распухания* **11**](#bookmark1)
2. *Зависимость распухания от повреждающей дозы* **12**

[*1.1.2 Зависимость распухания от температуры облучения* **19**](#bookmark2)

* 1. *Теоретические представления о механизмах образования и эволюции*

*пор* **29**

**ГЛАВА 2 Материалы и методика эксперимента 35**

1. *Исследованные материалы* **35**
2. [*Производство стали и труб* **35**](#bookmark4)
3. [*Условия облучения исследованных материалов* **37**](#bookmark6)
   1. [*Методики, использованные при исследованиях* **39**](#bookmark7)
      1. [*Измерение наруэ/сного диаметра* **39**](#bookmark8)
      2. [*Гидростатическое взвешивание* **40**](#bookmark10)
      3. [*Электронная микроскопия* **41**](#bookmark11)
      4. [*Определение кратковременных механических свойств* **42**](#bookmark12)
      5. [*Металлография* **43**](#bookmark13)

[**ГЛАВА 3 Исследование радиационной пористости стали 06Х16Н15М2Г2ТФР 44**](#bookmark14)

1. *Методика определения количественных характеристик радиационной*

*пористости* **44**

1. [*Влияние шага гистограммы на вид и определяемые параметры распределения* **49**](#bookmark17)
2. [*Критерии выбора шага гистограммы* **53**](#bookmark20)
3. *Результаты лшкроструктурных исследований и характеристики*

*ансамбля пор, образующихся при облучении в стали*

*06Х16Н15М2Г2ТФР в температурном диапазоне 410-600 °С до повреждающих доз 20-90 сна* **62**

1. *Микроструктура стали 06Х16Н15М2Г2ТФР в необлученном*

[*состоянии* **62**](#bookmark27)

1. [*Микроструктура стали, облученной при 370 - 390 °С* **63**](#bookmark28)
2. [*Микроструктура стали, облученной при 410 - 420 °С* **65**](#bookmark29)
3. *Микроструктура стали, облученной при 450 - 480 °С* **67**
4. [*Микроструктура стали, облученной при 500 - 510 °С* **72**](#bookmark30)
5. *Микроструктура стали, облученной при 550 - 560 °С* **78**
6. *Микроструктура стали, облученной при 590 - 600 °С* **81**
7. [*Результаты определения механических свойств*86](#bookmark32)

[*Выводы к главе 3* **89**](#bookmark33)

**ГЛАВА 4 Теоретический анализ образования и эволюции радиационных пор и его применение для интерпретации экспериментальных результатов**

**91**

1. *Статистико-термодинамический анализ условий образования и роста*

*вакансионных пор* **91**

1. *Анализ экспериментальных результатов исследования характеристик*

*пористости с использованием развитых теоретических представлений* **99**

1. [*Классификация пор по механизмам их образования* **99**](#bookmark45)
2. *Зависимость характеристик ансамбля радиационных пор от*

*температуры и повреждающей дозы нейтронного облучения!02 Выводы к главе 4* **108**

[**ГЛАВА 5 Применение описания эволюции радиационных пор для практических приложений** 110](#bookmark53)

1. [*Вклад радиационных пор разного типа в распухание* **110**](#bookmark54)
2. [*Вклад радиационных пор разного типа в разупрочнение* **113**](#bookmark56)
3. *Сопоставление рассчитанных в рамках модели значений предела прочности с экспериментальными данными* **118**
4. [*Анализ полученных результатов* **119**](#bookmark60)

[*Выводы к главе 5* **130**](#bookmark61)

[**ВЫВОДЫ 132**](#bookmark62)

[**Библиографический список 134**](#bookmark63)

*Актуальность работы*

В настоящее время в качестве конструкционных материалов элементов активных зон реакторов на быстрых нейтронах широко используются стали аустенитного класса. Ресурс их эксплуатации определяется радиационным распуханием, протекающим при действии высокодозного нейтронного облучения. Ограничения связаны с распуханием не только, как с геометрическим фактором, вызывающим механическое взаимодействие с другими элементами активной зоны (АЗ) и возникновение механических напряжений, но и как с явлением, оказывающим существенное влияние на механические свойства материалов [1-6]. Выявление закономерностей распухания и его связи с другими свойствами, является важной для атомной энергетики задачей.

Прогнозирование зависимости распухания от времени и условий облучения и поиск путей повышения стойкости к нему сталей этого класса требует создания количественных моделей, в рамках которых возможно адекватное описание этого процесса. Не смотря на многолетние исследования в этом направлении, на сегодняшний день такого описания не создано. При рассмотрении физических процессов, вызывающих образование радиационных пор, используется, как правило, качественный подход, а попытки количественного описания распухания, в основном, пока имеют феноменологический характер и не обладают удовлетворительной предсказательной силой. Это связано как с тем, что распухание стали зависит от большого числа параметров, так pi с недостаточностью объема количественной информации о развитии радиационной пористости и ее связи с характеристиками нейтронного облучения, такими как повреждающая доза, скорость генерации радиационных дефектов, температура нейтронного облучения.

Исследования зависимости характеристик радиационных пор от параметров нейтронного облучения являются актуальными для создания количественных моделей образования и роста пор. Результаты таких исследований могут быть использованы для поиска зависимостей характеристик распухания от условий облучения и его связи со свойствами аустенитных сталей, что имеет важное прикладное значение.

*Цель работы*

Целью настоящей работы являлось установление механизмов образования и закономерностей эволюции радиационных пор в широко используемой в России стали 06Х16Н15М2Г2ТФР, облученной в широком диапазоне температур и повреждающих доз, и выявление количественной связи между радиационной пористостью и снижением прочностных характеристик стали.

Для достижения этой цели в работе решались *следующие задачи*:

1. Разработка методики, включающей процедуру описания гистограммы распределения пор по размерам в виде суммы унимодальных распределений, оптимальный выбор шага гистограммы, определение объема минимально необходимой статистической выборки, для определения количественных характеристик радиационной пористости.
2. Классификация радиационных пор по способу и последовательности их образования, построенная на базе теоретического анализа статистически обобщенных экспериментальных данных по связи пор с элементами микроструктуры (дислокациями, границами двойников, выделениями вторых фаз и пр.).
3. Нахождение параметров распределения по размерам пор каждого типа в зависимости от температуры и повреждающей дозы нейтронного облучения. Построение экспериментальных зависимостей концентрации и среднего размера пор каждого типа от температуры и дозы нейтронного облучения.
4. Экспериментальное и теоретическое исследование условий образования и роста радиационных пор, объяснения трех стадий распухания, построение полуфеноменологического уравнения зависимости распухания от повреждающей дозы для различных температур облучения.
5. Выявление вклада пор каждого типа в радиационное распухание.
6. Построение количественной модели влияния пористости на разупрочнение материала. Расчет влияния экспериментально определенных характеристик пористости на предел прочности облученной исследованной стали.
7. Экспериментальное определение предела прочности образцов из стали 06Х16Н15М2Г2ТФР, облученной при температурах 410-600 °С до повреждающих доз ~20-90 сна. Сопоставление расчетных и экспериментальных значений предела прочности, выявление других факторов, влияющих на прочность образцов, изготовленных из облученных оболочек твэлов.

*Научная новизна*

1. Разработана методика определения количественных характеристик радиационной пористости, основанная на построении гистограммы распределения пор по размерам, с определением оптимального шага гистограммы и объема минимально необходимой статистической выборки, pi описания гистограммы в виде суммы унимодальных логнормальных распределений.
2. На основании статистически обработанных экспериментальных данных предложена классификация радиационных пор, в последствие использованная для изучения их образования и эволюции.
3. Впервые получены количественные характеристики распределений по размерам пор, образующихся в стали 06Х16Н15М2Г2ТФР, при облучении нейтронами до повреждающих доз ~20-90 сна в температурном диапазоне 410- 600 °С.
4. Проведено экспериментальное и теоретическое исследование, позволившее сформулировать условие образования и роста радиационных пор и построить полуфеноменологическое уравнение зависимости распухания от повреждающей дозы для различных температур облучения.
5. Впервые выявлен вклад пор каждого типа в радиационное распухание, в зависимости от температуры и дозы нейтронного облучения.
6. Построена количественная модель влияния пористости на разупрочнение материала. В рамках этой модели на основании экспериментально полученных количественных характеристик радиационных пор рассчитаны значения предела прочности образцов стали 06Х16Н15М2Г2ТФР, облученной при температурах 410-600 °С до повреждающих доз -20-90 сна. Результаты расчета сопоставлены с экспериментальными данными, полученными при кратковременных механических испытаниях.

*Научная и практическая значимость работы*

1. Разработанная методика определения количественных характеристик радиационной пористости позволяет корректно с известной точностью определить характеристики ансамбля пор, что позволяет получить объективные данные для изучения процесса радиационного распухания.
2. Предложенная классификация пор по способу и последовательности их образования имеет важное теоретическое и прикладное значение, поскольку позволяет систематизировать полученные в работе и имеющиеся в литературе экспериментальные данные. Это может быть использовано для получения зависимостей изменения концентрации и размеров пор, в зависимости от температуры и дозы нейтронного облучения. На базе этих систематизированных данных возможно выявление механизмов образования и роста пор, реализующихся в каждом конкретном случае, и прогнозирование изменения концентрации и размеров пор с накоплением повреждающей дозы.
3. Выявление вклада пор каждого типа в радиационное распухание позволяет установить доминирующие факторы, влияющие на распухание в конкретных условиях нейтронного облучения, что будет полезным при поиске оптимальных способов подавления распухания.
4. Предложенная количественная модель влияния пористости на разупрочнение материала позволяет прогнозировать величину предела прочности облученных сталей, подверженных значительному распуханию.

Сопоставление расчетных результатов с экспериментальными данными может быть использовано для выявления других факторов, влияющих на

разупрочнение материала.

*На защиту выносятся следующие положения:*

1. Метод построения гистограммы распределения пор по размерам,

образованных в аустенитной стали при высокодозном нейтронном облучении, и ее разложения на сумму унимодальных логнормальных распределений.

1. Классификация пор по способу их образования. В изученной стали наблюдаемые поры разделены на три основных типа: а-типа — образующиеся на дислокациях и границах двойников, 6-типа - образующиеся в стали

06Х16Н15М2Г2ТФР вместе с выделениями G-фазы, с-типа - на случайно сформировавшихся газо-вакансионных комплексах в кристаллической матрице.

1. Найденные по экспериментальным данным зависимости концентрации и среднего размера пор различных типов, образующихся в стали

06Х16Н15М2Г2ТФР при нейтронном облучении в температурном диапазоне 410-600 °С, от повреждающей дозы.

1. Выявленный вклад в радиационное распухание пор каждого типа, в зависимости от температуры и дозы нейтронного облучения.
2. Полученные кратковременные механические свойства при испытаниях образцов из стали 06Х16Н15М2Г2ТФР, изготовленных из участков оболочек твэлов, облученных при температурах 410-600 °С до повреждающих доз -20-90 сна.
3. Предложенная количественная модель влияния радиационной пористости на разупрочнение материала и результаты выполненных с ее использованием расчетов предела прочности облученных образцов с измеренными характеристиками пористости.

*Апробация работы*

Результаты, полученные в диссертации, докладывались на:

* Международных симпозиумах по влиянию облучения на материалы (ASTM - Symposiums on the Effect of Radiation on Materials) (20-я - Вильямсбург, Верджиния, США, 2000; 21-я - Туссон, Аризона, США, 2002).

м 10-й международной конференции по материалам термоядерных реакторов (10th International Conference on Fusion Reactor Materials - ICFRM-10) (Баден- Баден, Германия, 2001).

* Международных Уральских Семинарах по радиационной физике металлов и сплавов (4-й - «Березки», Челябинская обл., 2001; 5-й - «Дальняя Дача», Челябинская обл., 2003).
* VI Всероссийской конференции «Структура и свойства аустенитных сталей и сплавов» к 100-летию со дня рождения К.А. Малышева (г. Екатеринбург, 2001).
* Школе-конференции молодых ученых «Современные проблемы радиационной физики твердого тела» (Томский Политехнический Университет, г. Томск, 2001).
* Научно-технической конференции «Свердловскому ядерному научному центру - 35 лет» (СФ НИКИЭТ-35, г. Заречный, Свердловской обл., 2001).
* IX Международном семинаре «Дислокационная структура и механические свойства металлов и сплавов» (ДСМСМС-2002, г. Екатеринбург, 2002).

**Публикации.** Основное содержание диссертации опубликовано в шести

работах.

выводы

1. Разработана методика количественных исследований распределения по размерам радиационных пор, образующихся в аустенитных сталях при высокодозном нейтроном облучении. Установлены критерии выбора шага гистограмм и объема статистической выборки при построении распределения радиационных пор по размерам.
2. Введена и обоснована классификация радиационных пор по способу их образования. Наиболее крупные поры - a-типа связаны с дислокациями и границами двойников. Образование пор 6-типа преимущественно связано с радиационно-индуцированными фазами. Поры *с-* и с/-типов образуются на случайно образованных газо-вакансионных комплексах.
3. Экспериментально определены количественные характеристики пористости стали 06Х16Н15М2Г2ТФР после нейтронного облучения при температурах 410-600 °С до повреждающих доз ~20 - 90 сна. Для различных температур в исследованном диапазоне впервые построены графические зависимости изменения концентрации и среднего размера пор каждого типа от дозы нейтронного облучения.
4. В рамках разработанной количественной модели получено выражение, связывающее необходимую для роста пор концентрацию вакансий, с критическим размером зародышей пор. Установлено, что для каждого типа пор инкубационная доза имеет свое значение, зависящее от температуры облучения, хим. ’состава и исходной структуры стали. С использованием разработанной модели образования и роста радиационных пор получена полуэмпирическая зависимость распухания от повреждающей дозы при температурах 410-600 °С. В результате теоретического анализа и экспериментальных данных установлено, что средний размер пор всех типов растет с увеличением дозы, причем скорость роста крупных пор больше, чем мелких.
5. Выявлен вклад пор каждого типа в радиационное распухание стали 06Х16Н15М2Г2ТФР, при нейтронном облучении при температурах 410- 600 °С до повреждающих доз ~20- 90 сна. Установлено, что наибольший вклад вносят поры *а-* и 6-типов, причем с ростом повреждающей дозы увеличивается вклад пор 6-типа. Вклад в распухание пор с-типа при температуре облучения выше 500°С пренебрежимо мал.
6. Предложена модель разрушения пористых материалов, учитывающая создаваемые порами и другими дефектами механические напряжения и выстраивание пор вдоль поверхности, на которой реализуются условия разрушения. С использованием данных количественной обработки результатов электронно-микроскопических исследований рассчитан предел прочности аустенитной стали 06Х16Н15М2Г2ТФР, облученной до высоких повреждающих доз.
7. Определены «кратковременные» механические свойства стали 06Х16Н15М2Г2ТФР после указанных выше режимов облучения. Установлено, что при пористости выше 7 *%* общее относительное удлинение материала твэльной оболочечной трубы из этой стали, при комнатной температуре, не превышает 0,2 %. При этом предел прочности снижается до 50...250 МПа. В случае, когда пористость составляет от 0,5% до 8%, результаты теоретических расчетов удовлетворительно совпадают с экспериментальными данными. При пористости больше 8 *%* при температурах облучения выше 480 °С существенное влияние на потерю прочности оболочки оказывают коррозионно-механические трещины, образовавшиеся при взаимодействии оболочки с внутритвэльной средой. Выявлен вклад в разупрочнение пор каждого типа. Установлено, что при температурах облучения 410-560 °С наибольшее разупрочнение вызывают поры *а-* и 6-типов. Показано, что преимущественное выстраивание пор вдоль двойников, благоприятным образом ориентированных относительно действия растягивающих напряжений, ускоряет разупрочнение стали.

**Библиографический список**

1. Неустроев B.C., Шамардин В.К. О связи микроструктуры и характера разрушения стали Х18Н10Т, облученной нейтронами до 70 сна. // Атомная энергия. — 1991. - Т. 71. - вып. 4 (октябрь). - С. 345-348.
2. Щербак В.И., Дмитриев В.Д. Структурные особенности при деформации облученных нейтронами аустенитных сталей // ФММ. — 1987. - Т. 64. - С. 591-595.
3. Hamilton M.L., Huang F.-H., Yang WJ.S. Gamer 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: 13th 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.
4. Fish R.L., Straalsund J.L., Hunter C.W., Holmes J.J. Swelling and tensile property evolutions of high-fluence EBR-II thimbles. // Proceedings of, the Symposium on Effects of Radiation on Substructure and Mechanical Properties of Materials and Alloys, ASTM STP 529 / American Society for Testing and Materials, Philadelphia. - 1973. - P. 149-164.
5. Fissolo A., Cauvin R., Hugot J.-P., Levy V. Influence of swelling on irradiated СW titanium modified 316 embrittlement. // Effects of Radiation on Materials: 14th International Symposium, ASTM STP 1046 / Eds. N.H. Packan, R.E. Stoller and A.S. Kumar. American Society for Testing and Materials, Philadelphia. - 1990.-V. II. - P. 700-713.
6. Yoshitake Т., Donomae Т., Mizuta S., Tsai H., Strain R.V., Allen T.R., Cole J.I. Tensile properties of 12% cold-worked type 316 stainless steel irradiated in EBR- II under lower-dose-rate conditions to high fluence. // Effects of Radiation on Materials: 20th International Symposium, ASTM STP 1405 / Eds. S.T. Rosinski, M.L. Grossbeck, T.R. Allen, and A.S. Kumar. American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA. — 2001. - P. 469-486.
7. Bloom E.E. Nucleation and Growth of Voids in Stainless Steels During Fast- Neutron Irradiation. // Radiation-Induced Voids in Metals. Proceedings of the 1971 International Conference held at Albany New York, June 9-11 1971 / Eds J.W. Corbett, L.C. Ianniello. USAEC Technical Information Center, Oak Ridge, Tennessee. - April 1972. - P. 1-30
8. Чуев B.B., Огородов A.H., Шейкман А.Г., Ланских В.Н. Служебные свойства конструкционных материалов тепловыделяющих сборок реактора БН-600 при высоких повреждающих дозах. // ФММ. — 1996. - Т. 81. - вып. 3.-

С. 133-141.

1. Огородов А.Н., Асташов С.Е., Козманов Е.А., Чуев В.В., Шейкман А.Г., Коростин О.С., Забудько Л.М. Формоизменение оболочек твэлов из стали ЧС-68 в холоднодеформированном состоянии при повреждающих дозах 60- 93 сна. // Сборник докладов четвертой межотраслевой конференции по реакторному материаловедению, Димитровград, 15-19 мая 1995г. В 4-х томах. Димитровград. - 1996. - Т. 3. - С. 84-98.
2. Величко В.В., Воробьев А.Н., Гришенков Ф.С., Пороло С.И., Шулепин С.В. Работоспособность твэлов с оболочками из аустенитных нержавеющих сталей, облученных в реакторе БН-600 до высоких выгораний // Сборник докладов четвертой межотраслевой конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 15-19 мая 1995г. В 4-х томах. Т. 3, Димитровград. - 1996. - С. 110-121.