

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение
высшего образования «Алтайский государственный технический
университет им. И.И. Ползунова»
Филиал «Институт атомной энергии» Республиканского государственного
предприятия «Национальный ядерный центр» Республики Казахстан

на правах рукописи

Коянбаев Ерболат Тайтолеуович

**ЗАКОНОМЕРНОСТИ ИЗМЕНЕНИЯ РАДИАЦИОННО-ИНДУЦИРОВАННОЙ
СТРУКТУРЫ И СВОЙСТВ АУСТЕНИТНОЙ СТАЛИ В РЕЗУЛЬТАТЕ
ДЛИТЕЛЬНОГО ТЕРМИЧЕСКОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ**

1.3.8 – Физика конденсированного состояния

Диссертация

на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Научный руководитель
доктор технических наук, профессор
Ситников Александр Андреевич

Барнаул-Курчатов – 2024

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ	4
1 ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР	12
1.1 Аустенитные стали и радиационные явления при их облучении	12
1.2 Радиационное упрочнение и охрупчивание аустенитных сталей.....	22
1.3 Коррозия облученной аустенитной стали	31
1.4 Выводы по главе 1	35
2 ОБЪЕКТЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ИСПЫТАНИЯ	37
2.1 Объект исследования.....	38
2.2 Моделирование теплового состояния контейнера с топливными сборками реактора БН-350 во время сухого хранения.....	39
2.3 Методика изготовления образцов.....	43
2.4 Структурные исследования.....	45
2.5 Физико-механические испытания	46
2.6 Методика термических испытаний	48
2.7 Выводы по главе 2	50
3 ИЗМЕНЕНИЯ РАДИАЦИОННО ИНДУЦИРОВАННОЙ СТРУКТУРЫ И СВОЙСТВ АУСТЕНИТНОЙ СТАЛИ В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ТЕМПЕРАТУРЫ ОТЖИГА	52
3.1 Характеризация структуры и определение свойств материала после реакторного облучения	52
3.2 Термические испытания облученных и необлученных образцов.....	59
3.3 Характеризация структуры и определение свойств материала после термических испытаний.....	64
3.4 Выводы по главе 3	75
4 ПРОГНОЗИРОВАНИЕ КОРРОЗИОННОГО ПОВРЕЖДЕНИЯ И ИЗМЕНЕНИЯ МЕХАНИЧЕСКИХ СВОЙСТВ.....	77

4.1 Прогнозирование коррозионного повреждения облученных материалов.	77
4.2 Прогнозирование изменения твердости облученного материала в зависимости от длительности и температуры отжига.....	82
4.3 Выводы по главе 4	86
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	88
Условные обозначения, сокращения, основные термины и определения	91
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ.....	92
Приложение А. Устройство для крепления образцов при испытаниях на растяжение.....	103
Приложение Б. Моделирование теплового состояния контейнера с топливными сборками реактора БН-350 для сухого хранения	105
Приложение В. Акт внедрения.....	112

ВВЕДЕНИЕ

Многолетний опыт пострадиационных исследований конструкционных материалов ядерных энергетических установок показывает, что под воздействием реакторного облучения происходят структурно-фазовые превращения, которые приводят к деградации свойств этих материалов. В процессе реакторного облучения материалы подвержены воздействию, помимо нейтронного излучения, градиентам температур и напряжения. Стойкость конструкционных материалов к совокупному воздействию этих факторов в значительной степени определяет срок безопасной работы эксплуатируемых и проектируемых ядерных реакторов.

Роль конструкционных материалов состоит не только в обеспечении их целостности и прочности на весь период эксплуатации, но и в удержании внутри твэла продуктов деления топлива на всем протяжении «мокрого» или «сухого» хранения отработавших ТВС (ОТВС) [1]. По существу, радиационная и коррозионная стойкость конструкционных материалов являются основными в решении ключевых вопросов безопасности реакторной установки.

Знание конкретных механизмов и кинетики, приводящих к изменению свойств конструкционных материалов составляет основу для принятия важных решений относительно ядерных материалов, начиная от продления срока службы, процедур снятия с эксплуатации, а также в обоснование безопасности транспортировки и обращения с отработавшим ядерным топливом (ОЯТ) после окончания срока эксплуатации хранилищ.

Имеющихся в настоящее время экспериментальных данных, включая результаты исследований отработавших элементов реакторных конструкций, ТВС и экранных сборках, облучённых в реакторах БР-10, БОР-60 и БН-600, недостаточно для окончательного прогноза изменения физико-механических свойств и структуры конструкционных материалов незаменимого оборудования во всём интервале дозно-температурных и силовых параметров эксплуатации. Подобная информация необходима, в том числе, в связи с продолжающимся выводом из эксплуатации промышленного реактора на быстрых нейтронах БН-350 и последующим 50-летним сроком сухого хранения ОЯТ. Актуальность работы тем

более возрастает, что результаты исследований на натуральных элементах позволяют повысить степень объективности выводов и рекомендаций по режимам и срокам эксплуатации существующих, строящихся и проектируемых реакторов.

Известно, что для прогнозирования изменения физико-механических свойств конструкционных материалов ядерных реакторов используется информация, получаемая при ускоренном облучении и последующих послереакторных исследований специально изготовленных образцов. На основании этих данных были получены предварительные дозно-температурные зависимости изменений кратковременных механических свойств и радиационного распухания. При этом остаются вопросы, относящиеся к влиянию скорости радиационного повреждения и продолжительного, в течение десятилетий, радиационно-термического воздействия на материал. Очевидно, что решение этих вопросов возможно только при исследовании материала натуральных изделий, фактический срок эксплуатации которых близок или равен времени ресурсной эксплуатации.

Несмотря на то, что в области исследования радиационно-индуцированных изменений в аустенитных сталях достигнуты определенные успехи, практически остается не изученной такая важная проблема, как изменение структурно-фазового состояния и физико-механических свойств конструкционных сталей при интенсивном внешнем тепловом воздействии на облученные материалы. В частности, это касается такой важной проблемы как эволюция радиационно-индуцированной структуры и свойств в результате естественного и термического старения. По данному направлению в открытой печати практически отсутствуют какие-либо данные, хотя такие результаты представляют большой научный и практический интерес, так как конструкционные материалы реакторов на быстрых нейтронах претерпевают стадии термомеханической обработки, не исключаяющей прямое и обратное мартенситное превращения, которые могут влиять на распухание, фазовый наклеп и водородопроницаемость сталей.

Цель исследования. Прогнозирование изменения физико-механических свойств и степени коррозионного разрушения облученной аустенитной стали при длительном термическом воздействии путем установления закономерностей эволюции структурно-фазового состояния.

Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи:

1. Обосновать выбор условий термических испытаний, методов исследования структуры и свойств конструкционных сталей аустенитного класса.
2. Исследовать влияние дозы реакторного облучения на деградацию структуры и прочностных характеристик аустенитных сталей 12X18H10T и 09X16H15M3B.
3. Исследовать влияние температуры и длительности изотермического теплового воздействия на эволюцию структуры и свойств облученной аустенитной стали.
4. Разработать методику прогнозирования изменения свойств аустенитной стали в зависимости от температуры и длительности термического воздействия. Результаты внедрить в производство.

Объект исследования – облученные в интервале повреждающих доз от 12 до 59 сна образцы аустенитных сталей марок 12X18H10T, вырезанных из стенок чехлов ОТВС, и 09X16H15M3B, вырезанных из межканальных вытеснителей РУ БН-350.

Выбор этих сталей обусловлен: в части чехлов ТВС - наличием эффекта радиационного охрупчивания, и как следствие, потери пластичности; в части межканального вытеснителя - близостью его состава к составу оболочки твэла, позиционируемой в качестве первого барьера на пути выхода продуктов деления из реакторной установки в окружающую среду.

Предмет исследования – радиационно-индуцированная структура и свойства аустенитных сталей после различных режимов термических испытаний.

Научная новизна работы:

1. Определены особенности радиационного упрочнения аустенитных сталей, материалов ОТВС РУ БН-350, в условиях среднетемпературного облучения в интервале повреждающих доз от 12 до 59 сна:

- с увеличением дозы облучения плотность вторичных выделений тип $Me_{23}C_6$ падает, а их средние размеры растут;
- обнаружено уменьшение пластичности (менее 2%) и увеличение прочности на 40% при дозе облучения 55,5 сна и температуре облучения 375 °С;
- с ростом дозы облучения глубина межкристаллитного коррозионного повреждения поверхности материала увеличивается по линейному закону.

2. Выявлены особенности изменения структуры сталей 12X18H10T и 09X16H15M3Б после термического воздействия. Установлена кинетика окисления и восстановления механических свойств облученного материала при температурах 300, 400, 550 и 600 °С в среде аргона и воздуха при длительности термического воздействия до 12 000 часов:

- при температуре 450 °С и выдержке длительностью 1 час в структуре материала выявляются полосы скольжения, декорированные карбидными выделениями. Увеличение температуры до 600 °С и длительности выдержки до 5000 часов приводит к их коагуляции и последующей миграции к границам зерен;
- процесс перераспределения компонентов стали сопровождается изменением механических свойств. На ранних стадиях термического воздействия образуются выделения вторичных фаз ($Cr_{23}C_6$) и, как следствие, происходит дополнительное упрочнение материала. После обособления карбидных частиц внутренние напряжения релаксируют, что приводит к разупрочнению материала и возврату прочностных свойств к исходным значениям.

3. Установлено влияние температуры и длительности термического воздействия на коррозионное разрушение и изменение твердости облученных аустенитных сталей:

- экспериментально определены параметры уравнения Аррениуса, описывающего кинетику коррозионного разрушения аустенитной стали в зависимости от температуры и длительности термического воздействия в среде аргона и воздуха;
- экспериментально определены значения коэффициента Холломона-Яффе

для облученной аустенитной стали и получены зависимости, характеризующие изменение твердости от температуры и продолжительности послерадиационного термического воздействия.

Теоретическая и практическая значимость работы:

1. Результаты работы позволят глубже понять физическую природу процессов радиационного повреждения многокомпонентных металлических материалов, обратного термически индуцированного восстановления структуры и свойств, облученных сталей при длительном термическом воздействии.

2. Полученные в работе результаты позволят повысить надежность оценки состояния материалов ОТВС и составить регламент обращения с упаковочного комплекта хранения (УКХ) ОТВС РУ БН-350 после 50 летнего сухого хранения.

3. Разработано устройство крепления мало жестких микрообразцов при испытаниях на растяжение, которая позволила уменьшить размеры исследуемых образцов, снизить дозовые нагрузки на персонал и повысить точность определения механических свойств облученного материала (Патент РК на изобретение № 32350 от 31.08.2017, бюл. №16)

4. Разработана методика длительных термических испытаний, моделирующих тепловое воздействие на конструкционные материалы во время длительного сухого хранения ОЯТ РУ (Исследование облученной стали : методика / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; Е. Т. Коянбаев, Е. Е. Сапатаев.– Курчатов, 19.12.2013.– Инв. № 1422вн/12-230-02.)

5. Результаты диссертации используются в Филиале «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК (№ 01-600-18/1272 от 08/11/2023 г.).

Методология и методы исследования. Для достижения поставленной цели и решения задач применялись изотермические испытания, методы оптической металлографии, электронной микроскопии, энергодисперсионной спектроскопии (ЭДС), просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ), рентгеновской дифрактометрии, механических испытаний на одноосное растяжение и определение твердости по Виккерсу.

Положения, выносимые на защиту:

1. В результате эксплуатации в составе АЗ РУ БН-350, при сравнительно низких температурах (300 – 410 °С), глубина проникновения межкристаллитной коррозии на внутренней поверхности ОТВС выше, чем на наружной поверхности. Установлены зависимости коррозионной повреждаемости поверхностных слоев стенки чехла ОТВС облученных в интервале повреждающих доз от 12 до 59 сна, позволяющие повысить надежность оценки допустимых нагрузок во время обращения с ОТВС, с учетом оставшейся толщины стенки.

2. При температуре 450 °С и выдержке длительностью 1 ч. в структуре облученного материала выявляются полосы скольжения, декорированные предвыделениями вторичных фаз (Cr_{23}C_6), и, как следствие, происходит дополнительное упрочнение материала. Увеличение температуры до 600 °С и длительности выдержки до 5000 часов приводит к их коагуляции и последующей миграции к границам зерен. Обособление карбидных частиц сопровождается релаксацией внутренних напряжений, что приводит к разупрочнению материала.

3. Закономерности изменения твердости и степени коррозионного разрушения в зависимости от температуры и длительности пострadiационного термического воздействия, позволяющие оценивать эволюцию механических свойств исследованных аустенитных сталей во время длительного сухого хранения ОЯТ энергетических реакторов на быстрых нейтронах, и определять стратегию дальнейшего обращения с ними.

Степень достоверности и апробация результатов. Достоверность полученных в диссертации результатов достигается: корректностью и полнотой решаемых задач, использованием современных апробированных методов экспериментальных исследований изменения структуры и прочностных свойств материалов, подвергшихся комплексному радиационному и термическому воздействию; объемом и качеством полученных экспериментальных данных, хорошо согласующихся с имеющимися данными литературных источников; корреляцией полученных экспериментальных данных с прогнозными оценками изменения коррозионных и физико-механических свойств; апробацией

полученных результатов и выводов на международных научных конференциях, а также публикацией в журналах рекомендованных ВАК РФ и изданиях, индексируемых базами данных Web of Science и Scopus.

Результаты диссертационной работы докладывались, обсуждались и получили одобрение на научно-технических семинарах Филиала «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК с 2007 по 2021 годы. Материалы диссертационной работы докладывались на следующих международных научно-технических конференциях: международная конференция «Ядерная энергетика Республики Казахстан (Курчатов, 2008 г.), VIII международный Уральский семинар «Радиационная физика металлов и сплавов», (Снежинск, 2009 г.), Международный молодежный форум «Постиндустриальный мир: наука в диалоге востока и запада» (Усть-Каменогорск, 2011 г.), VIII международная конференция «Ядерная и радиационная физика» (Алматы, 2011г.), Международная конференция «Безопасность исследовательских ядерных установок», (Димитровград, 2014 г.), XXI международная научно-техническая конференция студентов и аспирантов «Радиоэлектроника, электротехника и энергетика» (Москва, 2015 г.), V Международная научно-техническая конференция молодых ученых, аспирантов и студентов «Высокие технологии в современной науке и технике» (Томск, 2016 г.), VIII-й международная научно-практическая конференция «Актуальные проблемы урановой промышленности» (Астана, 2017 г.), Международная конференция «NuMat2018: The Nuclear Materials Conference» (Сиэтл, США, 2018 г.).

Личный вклад автора. В диссертационной работе использовались только те результаты, в получении которых автору принадлежит определяющая роль. В совместных работах, написанных в соавторстве с сотрудниками научной группы, автор принимал непосредственное участие в подготовке и проведении экспериментов, в материаловедческих исследованиях, в выполнении расчетов и в интерпретации полученных результатов.

Публикации. По теме диссертации опубликовано 16 научных работ, в том числе 1 статья в издании, рекомендованной ВАК РФ, 5 статей в изданиях, входящих в перечень Scopus и Web of Science, получен 1 инновационный патент Республики Казахстан.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, 4 глав, заключения, библиографии, приложений. Общий объем диссертации 112 страницы. Работа содержит 5 таблиц, 51 рисунок. Библиография включает 76 наименований.

1 ЛИТЕРАТУРНЫЙ ОБЗОР

1.1 Аустенитные стали и радиационные явления при их облучении

Аустенитные нержавеющие стали благодаря своим уникальным качествам нашли широкое применение во всех отраслях промышленности [2-4]. В ядерной энергетике из сталей аустенитного класса изготавливаются ответственные конструктивные элементы ядерных энергетических установок и его систем жизнеобеспечения. В настоящей главе описывается эволюция изменений структуры и свойств сталей аустенитного класса, подвергнутых воздействию реакторного излучения.

Аустенитные нержавеющие стали, используемые в качестве оболочек ТВЭЛОВ и конструктивных элементов в реакторах различных типов, должны выдерживать исключительно сложные и напряженные условия окружающей среды, даже в отсутствие нейтронного облучения. В зависимости от конкретного типа реактора, температура используемых в них стальных конструктивных элементов может варьироваться от 650 °С до 700 °С. В процессе эксплуатации сталь должна также выдерживать коррозионное воздействие продуктов деления и теплоносителя. В рабочих условиях охлаждающая жидкость может вызывать коррозию стали. Некоторые из этих явлений в рабочей среде синергируются или усиливаются эффектом нейтронного облучения.

В зависимости от природы компонента и продолжительности облучения, на компонент также могут действовать значительные нагрузки. Напряжение не только влияет на растрескивание и коррозию, но также может влиять на стабильность размеров конструктивных элементов из нержавеющей стали, в первую очередь из-за термической и радиационной ползучести, а также из-за влияния напряжения на выделение, фазовую стабильность и рост пустот. Облучение оказывает влияние как на микроструктуру, так и на микрохимию нержавеющих сталей и сплавов с высоким содержанием никеля, с последствиями для физических и механических свойств, стабильности размеров и структурной целостности.

Микроструктурные изменения в аустенитных нержавеющих сталях при нейтронном облучении различаются по температуре облучения, флюенсу и потоку нейтронов, и спектру энергии. При температуре, ниже 300 °С, в микроструктуре материала, в основном, имеются мелкие (<5 нм) дефектные кластеры, так называемые «черные точки» и дефектные дислокационные петли, тогда как большие разорванные петли, сеть дислокаций, полости/пустоты (кластеры вакансий и/или газовые пузыри) и осадки наблюдаются при температуре выше 300 °С [5, 6].

Как указано в [5, 6], металлические карбиды являются основными осадками в аустенитных сталях в условиях их работы в реакторах, хотя радиационно-индуцированные выделения Ni и Si могут приводить к образованию γ' фазы (Ni_3Si) и G-фазы ($\text{M}_6\text{Ni}_{16}\text{Si}_7$).

Кластеры точечных дефектов и осадки действуют как препятствия для движения дислокаций, которые приводят к матричному упрочнению, увеличению прочности на растяжение, уменьшению упругости и разрывных свойств материала [5, 7-10].

В общем, полости (или пустоты) являются сильными барьерами. Большие петли Франка являются средними барьерами, и маленькие петли и пузыри являются слабыми барьерами для движения дислокаций [9]. Для аустенитных сталей максимальный предел текучести достигается при температуре облучения около 300 °С.

Основная движущая сила процесса повреждения возникает, в первую очередь, из-за столкновений нейтронов с атомами в кристаллической металлической матрице. При воздействии смещающего облучения быстрыми нейтронами атомы в металле испытывают передачу энергии, которая, если она превышает несколько десятков эВ, может привести к смещению атома из его кристаллического положения. Смещения могут быть одиночными в результате столкновения нейтрона низкой энергии с одиночным атомом или скользящего столкновения с нейтроном более высокой энергии. Однако чаще «первичное детонационное» столкновение включает в себя более значительную передачу энергии, и возникает

локализованный «каскад» дефектов, возникающих в результате последующих столкновений атома с атомом.

Радиационное повреждение характеризуется либо флюенсом нейтронов в $\text{n}/\text{см}^2$, либо средним числом смещений каждого атома в сна.

Для структурных компонентов различных типов ядерных реакторов принято выражать накопленное повреждение через рассчитанное в среднем количество раз, когда каждый атом был смещен из своего узла решетки. Таким образом, 10 сна. (смещения на атом) означает, что каждый атом был смещен в среднем 10 раз. Дозы порядка 100-200 сна могут накапливаться в течение срока службы некоторых компонентов реактора с высокой плотностью потока нейтронов. Концепция «сна» очень полезна тем, что отделяет процесс повреждения от деталей нейтронного спектра, позволяя сравнивать данные, полученные в различных спектрах, при условии, что механизм повреждения возникает, в основном, из-за смещения, а не из-за трансмутации.

На рисунке 1.1 показано, как хорошо концепция «сна» сжимает/сокращает данные по радиационно-индуцированному упрочнению нержавеющей стали в одну функцию для трех разных спектров нейтронов.

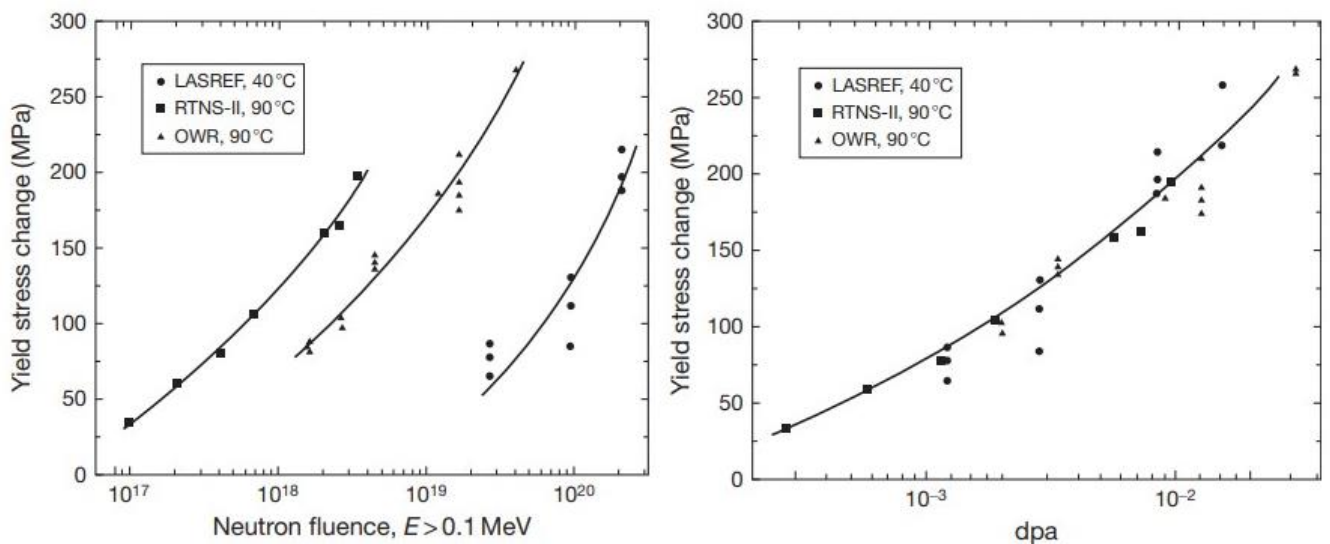


Рисунок 1.1 – Радиационно-индуцированные изменения предела текучести нержавеющей стали типа 316 в зависимости от флюенса нейтронов ($E > 0,1$ МэВ) (слева) и (справа) от смещения на атом [11].

Когда металлы подвергаются вытесняющему облучению, особенно при повышенных температурах, начинается сложная и скоординированная коэволюция микроструктуры и микрохимии, которая зависит, прежде всего, от исходного состояния сплава, дозы облучения в сна и температуры.

В процессе смещения образуются два типа точечных кристаллических дефектов: вакантные кристаллические позиции (вакансии) и смещенные атомы в междоузельных кристаллических позициях (междоузлия). Эти два типа дефектов подвижны, но движутся с разными диффузионными модами и с совершенно разными скоростями, при этом междоузельные частицы диффундируют намного быстрее, чем вакансии. Следовательно, очевидно, что на все процессы, вызванные диффузией, будет сильно влиять излучение. Оба типа дефектов обладают способностью рекомбинировать с противоположным типом (аннигиляция) или образовывать агломерации различного типа и геометрии. Эти агломерации и их последующее развитие изменяют как микроструктуру, так и распределение элементов в сплаве.

Важно отметить, что междоузельные агломерации могут быть только двумерными, в то время как вакансии могут агломерироваться как в двумерной, так и в трехмерной форме. Это пространственное различие является основной причиной явления распухания.

Во время облучения эволюция фаз может быть существенно изменена как по кинетике, так и по идентичности и балансу образующихся фаз [12].

Радиационно-индуцированные изменения микроструктуры и микрохимии происходят из-за возникновения новых движущих сил, которых нет в чисто термических средах. Первой из этих новых движущих сил является наличие очень больших пересыщенных точечных дефектов, особенно при относительно низких температурах облучения (250-550 °C). Мало того, что вакансии присутствуют на нехарактерно высоких уровнях, тем самым ускоряя нормальные процессы диффузии, связанные с вакансиями, но и междоузельные частицы также многочисленны. Растворенные вещества, которые могут связываться с любым типом точечного дефекта, имеют тенденцию стекать вниз по любому

микроструктурному градиенту этого дефекта, обеспечивая новый механизм выделения растворенного вещества, называемый увлечением растворенного вещества. Было высказано предположение, что этот механизм особенно важен для связывания более мелких растворенных атомов, таких как атомы фосфора и кремния, а иногда и никеля, с междоузельными элементами.

Второй новой движущей силой является обратный эффект Киркендалла, в соответствии с которым различия в коэффициенте диффузии элементов за счет обмена вакансиями приводят к выделению самых медленных диффундирующих частиц в нижней части градиентов вакансий. Этот механизм особенно эффективен при разделении никеля в аустенитных сплавах Fe – Cr – Ni на всех стоках, которые поглощают вакансии, что приводит к богатым никелем оболочкам или атмосферам на границах зерен и другим, уже существующим или вызванным излучением микроструктурным стокам. Этот тип сегрегации возникает из-за того, что коэффициенты диффузии элементов в сплавах Fe – Cr – Ni существенно различаются: $D_{Cr} > D_{Fe} > D_{Ni}$ [12].

Третья новая движущая сила возникает в результате действия двух других движущих сил, которые образуются только в условиях облучения. Это междоузельные петли Франка, пузырьки гелия и пустоты, которые могли образоваться из пузырьков гелия. Часто наблюдается образование осадков и их совместное развитие на поверхности таких радиационно-индуцированных стоков.

Примеры типичных радиационно-индуцированных микроструктур в нержавеющей стали показаны на рисунках 1.2 – 1.5. Считается, что эти микроструктурные стоки участвуют в эволюционном пути осадков, и тем самым влияют на микрохимическую эволюцию матрицы [5,13].

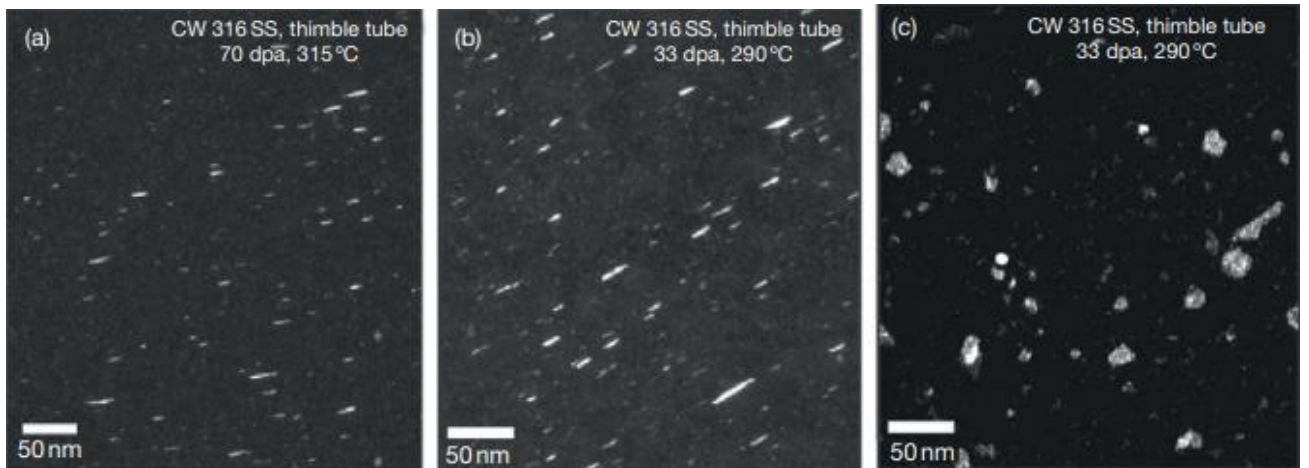


Рисунок 1.2 – Петли Франка, наблюдаемые в флюсовой гильзе из нержавеющей стали 316 от реактора, работающего под давлением: (a) 70 сна, 315 °С и (b) 33 сна, 290 °С. (c) получено из петель Франка, которые слегка наклонены к направлению луча [14]

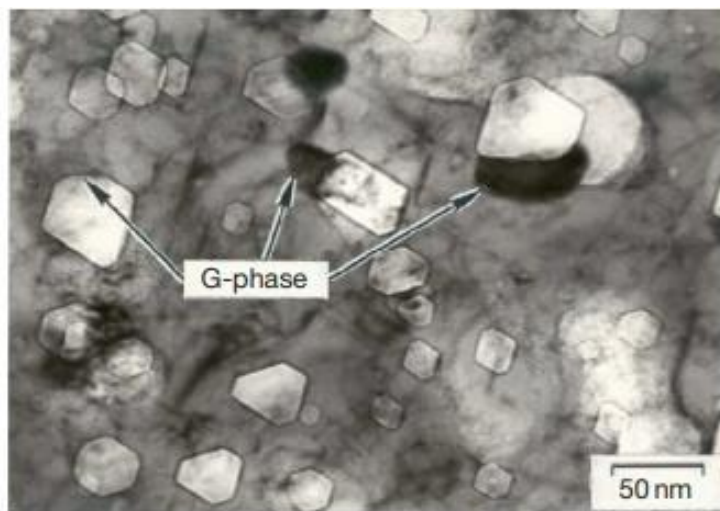


Рисунок 1.3. Радиационно-индуцированные пустоты в отожженной стали, облученной в реакторе при температуре от 500 °С до 11 сна. Самые большие пустоты имеют прикрепленные к ним частицы G-фазы, вызванные излучением, которые богаты Ni, Si и Ti [15]

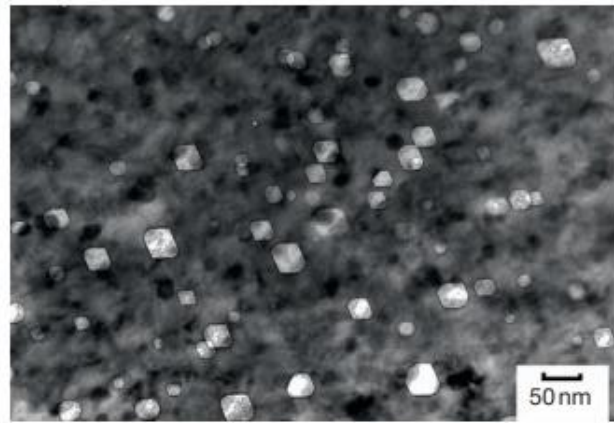


Рисунок 1.4 – Набухание пустот (1 %) и выделение карбида $M_{23}C_6$ в отожженной нержавеющей стали 304 после облучения в зоне отражателя быстрого реактора EBR-II с натриевым теплоносителем при температуре от 380 °C до 21,7 сна [16]

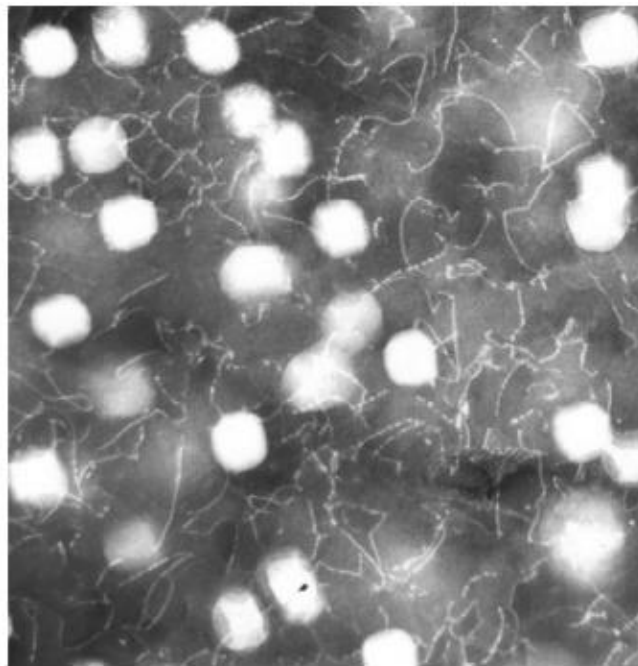


Рисунок 1.5 – Изображение на обратном контрасте, показывающее микроструктуру пустот и линейных дислокаций в модельном сплаве Fe – 10Cr – 30Mn, облученном в быстром реакторе FFTF до 15 сна при 520 °C. Средний размер пустот составляет 40 нм [17]

Радиационно-индуцированная эволюция диффузионных свойств играет важную роль в определении продолжительности переходного процесса перед ускорением распухания. Эта эволюция часто не обязательно протекает только по

одному пути, а может происходить в нескольких взаимодействующих стадиях. Некоторые фазы, такие как фосфиды никеля и карбиды титана, особенно при осаждении в очень мелком масштабе, считаются выгодными для предотвращения образования фаз силицида никеля. Однако, в конечном итоге, продолжающиеся радиационно-индуцированные выделения подавляют эти фазы, удаляя из раствора критические элементы, такие как Ni и Si, вызывая их растворение и замену фазами, богатыми никелем и кремнием, что совпадает с ускоренным распуханием [12].

В сплавах с высоким содержанием никеля, которые обычно образуют фазы γ' и γ'' , процессы выделения, вызванные облучением, существенно не изменяют идентичность или состав фаз, но могут сильно изменить их распределение, растворяя их и размещая эти фазы в пустотах, дислокациях и границах зерен, причем последние часто приводят к сильному охрупчиванию на границах зерен [18].

При более низких температурах, особенно в исследовательских реакторах с водяным охлаждением, микроструктура характеризуется трехмерными кластерами вакансий или тетраэдрами дефектов упаковки и двумерными вакансиями или междуузлиями, которые, вероятно, также являются небольшими дислокационными петлями. Эти «скопления дефектов» при температуре ниже 300 °C обычно слишком малы, чтобы их можно было легко увидеть с помощью обычной просвечивающей электронной микроскопии, и часто характеризуются как «черные точки» либо «черные пятна». Обычно считается, что этими точками являются очень маленькие междуузельные петли Франка.

Вследствие этих различных процессов микроструктура при более высоких дозах часто образует очень высокую плотность кристаллографически ограниченных «полостей», называемых пустотами, которые, как считается, зарождаются на кластерах гелия, образованных в результате трансмутации.

В процессе появления пустот начальный объем металла не сохраняется, и металл начинает «распухать», поскольку микроскопические пустоты в совокупности вносят вклад в макроскопические изменения размеров, иногда увеличивая объем металла.

В работе [19] рассмотрены образование, и эволюция радиационно-индуцированных дефектов в аустенитных сталях при облучении в температурном диапазоне от 77 до 830 К. Было выяснено, что в начале облучения при криогенной и низкой температуре основными видами дефектов являются радиационные кластеры. А при среднетемпературном облучении кластеры диссоциируют раньше, чем на том же месте образуется новый каскад смещений.

Из рисунка 1.6 видно, что при облучении аустенитной стали при температуре кипения жидкого азота время, в течение которого вакансии подвижны ($\sim 2 \cdot 10^{-11}$ с), существенно меньше, чем время, в течение которого подвижны междоузлия ($\sim 5 \cdot 10^{-11}$ с). В результате образуется криогенный радиационный кластер, внутренняя часть которого («ядро») обогащена вакансиями, а наружная («атмосфера») – междоузлиями. За время миграции на стадии термодинамической стабилизации часть междоузлий и вакансий встречаются между собой и рекомбинируют. Доля «выживших» в каскадах точечных дефектов, называемая каскадной эффективностью α , в литературе оценивается с использованием методов молекулярной динамики.

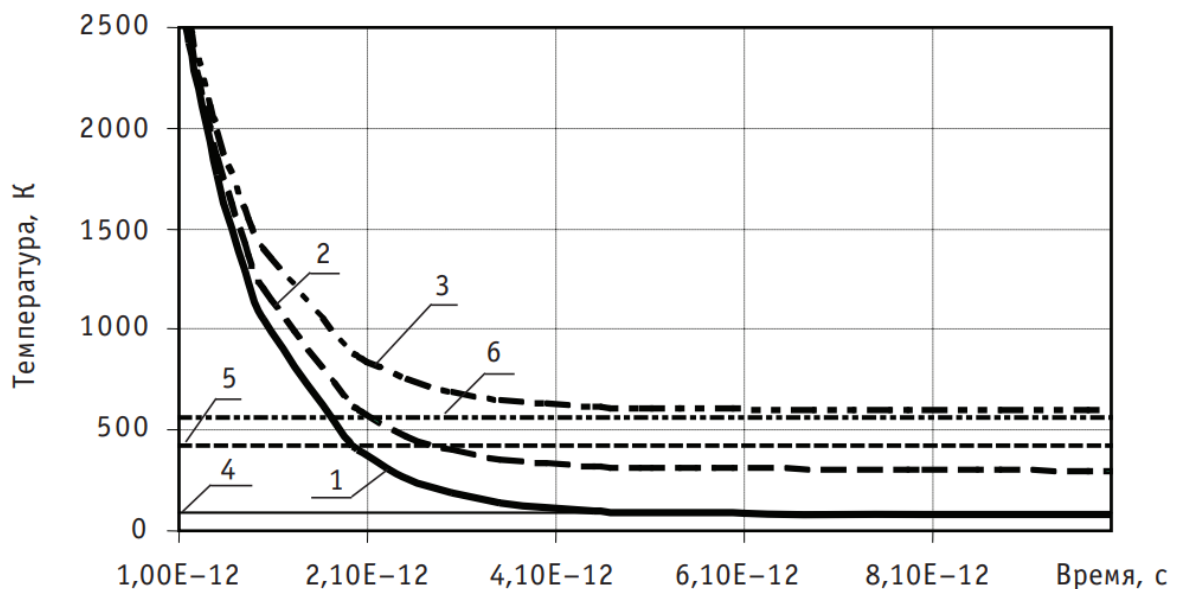


Рисунок 1.6 – Зависимость температуры области радиационных повреждений от времени для различных температур облучения: 1 – $T = 80$ К; 2 – $T = 300$ К; 3 – $T = 600$ К; 4 – T_i ; 5 – T_v ; 6 – диссоциированные кластеры

Исследование радиационных дефектов после криогенного нейтронного облучения дает наиболее полную информацию о характеристиках радиационных дефектов, образующихся к началу стадии термодинамической стабилизации, поскольку в течение этой стадии точечные дефекты не успевают уходить на большие расстояния от области каскада и сохраняют свою индивидуальность [18].

Основным видом радиационных дефектов, формирующихся в аустенитных сталях при среднетемпературном нейтронном облучении, являются поры и дислокационные петли. Определение количественных характеристик дислокационных петель более сложно, чем изучение пор. Основные исследования направлены на изучение пористости, а чаще на определение одной из ее характеристик – величины набухания. Явление набухания приводит к ограниченному ресурсу работы конструкционных материалов, поскольку изменение их геометрических параметров приводит к нарушению режимов работы этих конструкций. Экспериментальные исследования набухания, в частности, определение характеристик пористости проводились в сталях, облученных в реакторе БН-600 при температурах 650-870 К (370-600 °С) до различных доз, вплоть до ~ 90 сна. Установлено, что первые поры образуются на дислокациях, дислокационных петлях и двойниках (рисунок 1.7а). На более поздних стадиях практически все поры связаны с выделениями вторых фаз, в основном, высоко никелевого интерметаллида – G-фазы (рисунок 1.7б).

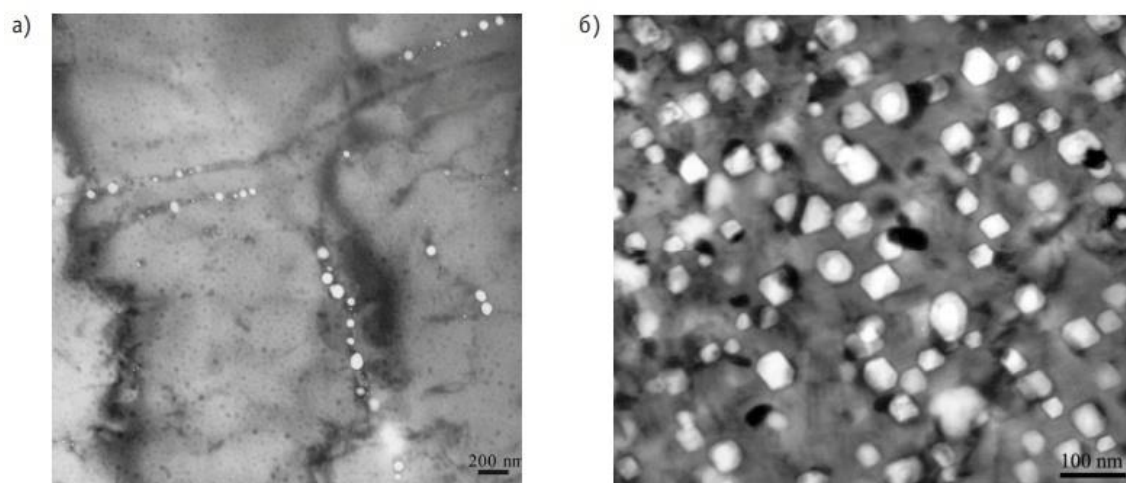


Рисунок 1.7 – Образование пор на дислокациях в высоко никелевой стали ЭП150, облученной в реакторе БН-600 при температуре 565 °С до дозы 7 сна (а) и связь пор с выделениями G-фазы в стали ЧС68, облученной в реакторе БН-600 при температуре 460 °С до дозы 61 сна (б)

Развитие процесса набухания проходит три стадии:

- Инкубационная стадия, при которой набухание настолько мало, что практически им пренебрегают;
- Нестационарная стадия – когда набухание растет с увеличивающейся скоростью;
- Стационарная стадия – когда скорость набухания остается неизменной.

1.2 Радиационное упрочнение и охрупчивание аустенитных сталей

Задолго до того, как наблюдается начало значительной фазовой эволюции или набухания пустот, первое проявление радиационно-индуцированной микроструктурной/микрохимической эволюции проявляется в изменениях механических свойств. Как показано на рисунке 1.8, диаграммы напряжение-деформация нержавеющей сталей начинают значительно меняться даже при очень низких уровнях сна. Прочность сплава увеличивается, относительное удлинение уменьшается, и происходит постепенное уменьшение наклепа. Такое поведение в некоторой степени зависит от температуры испытания, но не очень чувствительно к спектру нейтронов.

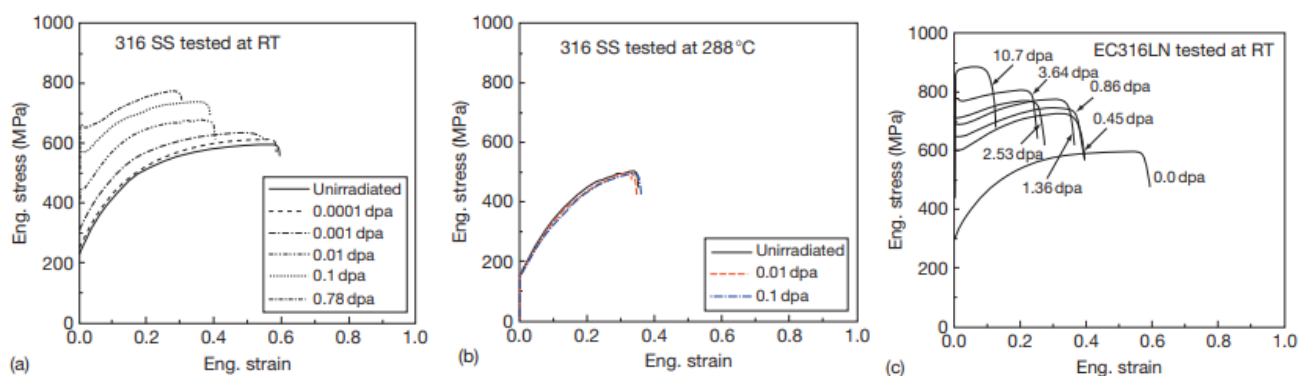


Рисунок 1.8. Инженерные кривые напряжение-деформация для облученных аустенитных нержавеющей сталей:

(а) отожженная нержавеющая сталь 316, облученная в реакторе HFIR со смешанным спектром при 60–100 °С и испытанный при 25 °С, (б) отожженная нержавеющая сталь 316, облученная в HFIR при 350 °С и испытанная при 288 °С, и (с) отожженный EC316LN, облученный в нейтронном и протонном спектрах LANSCE при 60-100 °С и испытано при 25 °С [20].

Движению дислокаций в металлах во время деформации после облучения препятствуют микроструктурные компоненты, создаваемые излучением (дислокации, дислокационные петли, пустоты, пузырьки, выделения), и, следовательно, прочность отожженной стали увеличивается. Увеличение прочности обычно достигает насыщения при относительно низких уровнях облучения (<10 сна), как показано на рисунке 1.9, что отражает аналогичное насыщение микроструктурных плотностей. Поскольку концентрация большинства радиационно-индуцированных микроструктурных компонентов уменьшается с повышением температуры выше 300 °С, можно ожидать, что сила насыщения также будет уменьшаться с повышением температуры, как показано на рисунках 1.9 – 1.12.

Облучение холоднодеформированных сталей также приводит к упрочнению при более низких температурах, а также может происходить размягчение при более высоких температурах, если уровень прочности при насыщении при данной температуре ниже начального значения прочности, как показано на рисунке 1.11. Что наиболее важно, как отожженных, так и холоднодеформированных. стали

сходятся к одному и тому же уровню насыщения при облучении с той же скоростью и температурой, что и на рисунке 1.12.

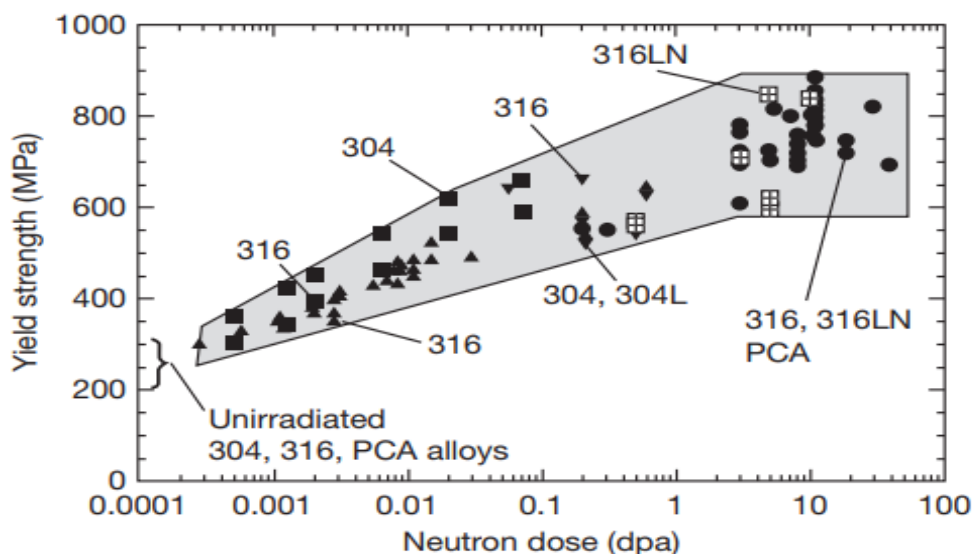


Рисунок 1.9 – Упрочнение различных отожженных нержавеющей сталей серии 300 в зависимости от повреждающей дозы сна в различных реакторах при относительно низких температурах (280–330 °C) [21].

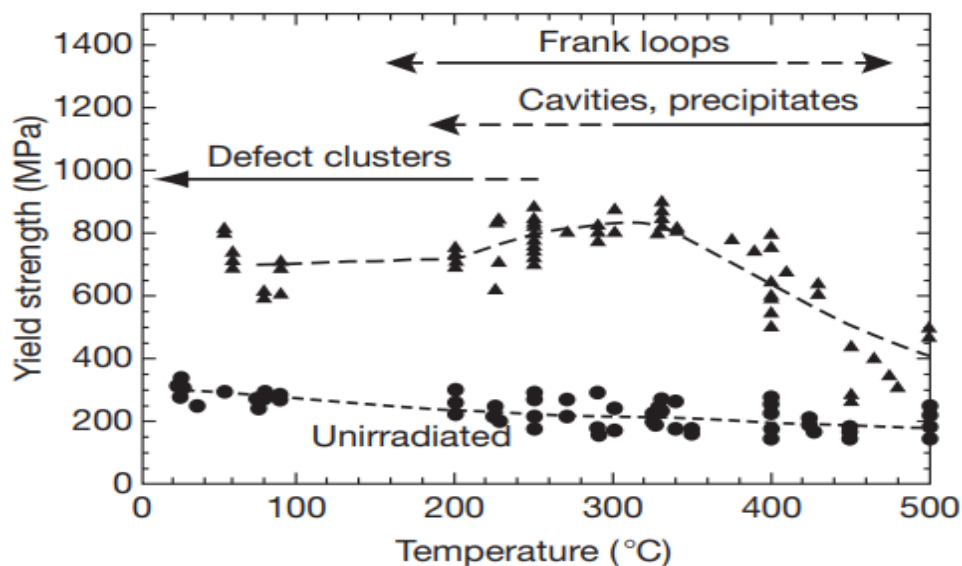


Рисунок 1.10 – Радиационное упрочнение отожженных сталей серии 300 в зависимости от температуры облучения и микроструктурные компоненты, вызывающие упрочнение [20]

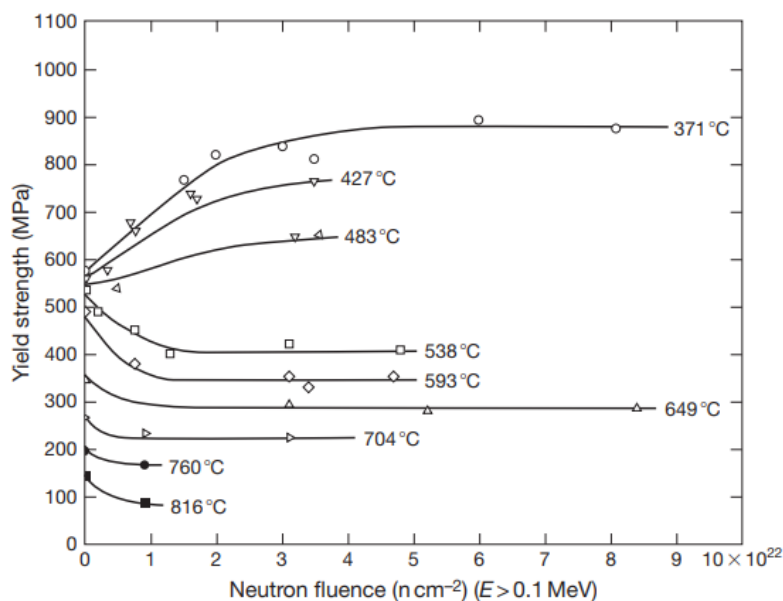


Рисунок 1.11 – Изменение предела текучести 20% обработанной холодной обработкой нержавеющей стали 316, облученной в EBR-II [22]

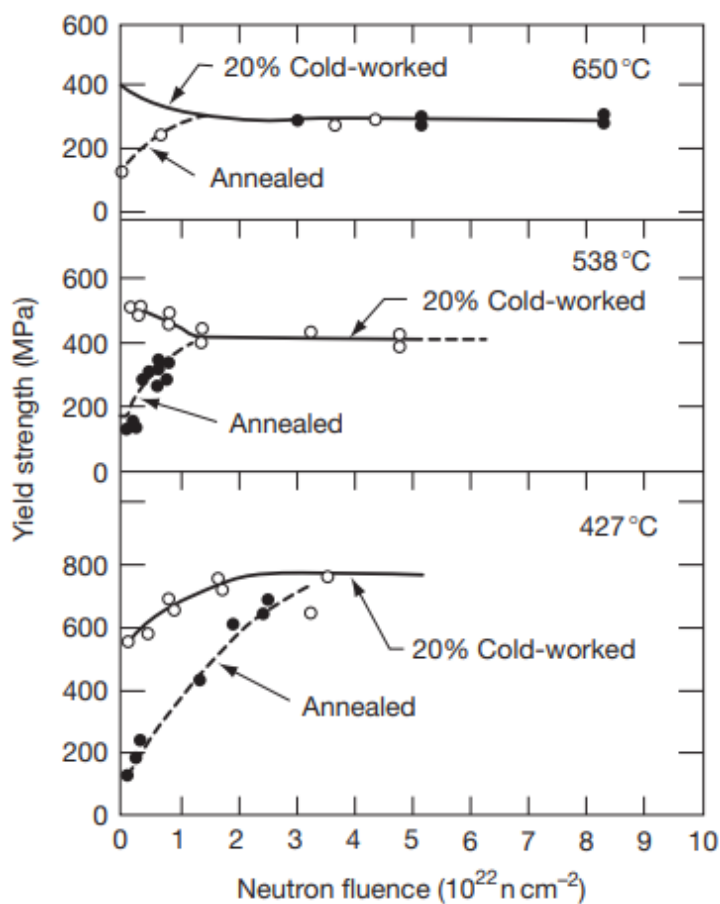


Рисунок 1.12 – Влияние температуры и нейтронного воздействия на эволюцию предела текучести как отожженной (annealed), так и подвергнутой 20% холодной деформации (cold-worked) AISI 316, облученной в EBR-II [21]

В работе [23] были исследованы образцы аустенитной стали 08X18H10T. Образцы были поделены на две группы для облучения при «низкой» температуре $T_{\text{обл}} = 330-340$ °С с дозой 46 сна (далее – НТО) и «высокой» температуре $T_{\text{обл}} = 400-450$ °С с дозой 49 сна (далее – ВТО). Такие условия были выбраны для получения различного уровня распухания образцов. В итоге выяснилось, что распухание образцов при НТО близко к нулю, а после ВТО находится в диапазоне 3-13 %.

Результаты экспериментальных исследований показали, что температурные зависимости $\sigma_{0,2}(T_{\text{исп}})$ $\sigma_B(T_{\text{исп}})$ для металла практически эквидистантны для исходного состояния и после НТО. Тогда как для состояния после ВТО, имеющего значительное распухание, данные зависимости не эквидистантны зависимостям в исходном состоянии и после НТО. Также отмечено сильное падение пластичности материала в состоянии после ВТО по сравнению с исходным состоянием и после НТО.

В работе [24] выдвинуто предположение, что образцы после ВТО претерпевают фазовое $\gamma \rightarrow \alpha$ превращение.

Температурная зависимость механических свойств образцов в состоянии после ВТО типична для материалов, имеющих вязкохрупкий переход.

Вязкохрупкий переход характерен, в первую очередь, при внутризеренном разрушении ОЦК-материалов и при переходе от внутризеренного вязкого разрушения к межзеренному квазихрупкому разрушению. Межзеренное квазихрупкое разрушение в аустенитных сталях можно наблюдать при сильном тепловом старении при температурах выше 450-500 °С, вследствие выпадения σ -фазы или грубых карбидов по границам зерен. Но температура облучения образцов при НТО и ВТО не превышала 450 °С, поэтому маловероятно, что квазихрупкое разрушение произошло из-за теплового старения.

Другой причиной квазихрупкого разрушения может являться наличие δ -феррита или грубых карбидов зерен в исходном состоянии. Квазихрупкое разрушение наблюдается в ферритной фазе или при разрыве связи карбид-матрица при выполнении условия:

$$\sigma_{I+c} \cdot f(\varepsilon_p) \cdot \varphi(T) = \sigma_d, \quad (1.1)$$

где σ_1 – максимальные главные напряжения;

σ_d – прочность ферритной фазы или границы карбид-матрица;

$f(\varepsilon_p)$ – некоторая возрастающая функция пластической деформации;

$\varphi(T)$ – некоторая убывающая функция температуры.

В работе [25] аустенитная сталь марки 316LN, облученная до повреждающей дозы около 3 сна при температуре облучения около 90 °С и 250 °С, была исследована с помощью просвечивающего электронного микроскопа. Облучение в этих температурах вызвало образование дислокационных петель плотностью $3,5 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$ и $5,2 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$ и черных точек плотностью $2,2 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ и $1,1 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ в аустенитной стали. Пустоты не были обнаружены. Эти особенности были коррелированы с изменениями в прочностных свойствах. Был сделан вывод, что дислокационные петли и черные точки вызывают упрочнение и уменьшение в равномерном удлинении в стали 316 LN, облученной при низкой температуре.

Облучение до 3 сна вызывает появление дефектных дислокационных петель. Эти петли были идентифицированы как петли Франка, лежащие на плоскости $\{1\ 1\ 1\}$ с векторами Бюргерса типа $\mathbf{b} = (1/3)\mathbf{a}_0 \langle 1\ 1\ 1 \rangle$. Плотность дислокационных петель при 250 °С немного больше чем при 90 °С. Предыдущие работы показали, что природа и численная плотность дефектов, сформированных в аустенитной стали 316 во время нейтронного облучения, сильно зависят от температуры облучения [24].

При облучении при температурах 90 °С и 250 °С наблюдались, индуцированные облучением частицы с незначительной числовой плотностью, идентифицированных как M_{23}C_6 . Они возникли в матрице, но не на границах зерен.

Связь между микроструктурой и механическими свойствами

Радиационно-индуцированные изменения прочностных характеристик более значительны при 250 °С, чем при 90 °С. Облучение при 90 °С увеличило предел текучести с 285 МПа до 600 МПа и привело к небольшому уменьшению скорости упрочнения и удлинения. Более значительное увеличение предела текучести возникло во время облучения при 250 °С. Кривые нагрузка-удлинение для

контрольных и облученных образцов аустенитной стали 316LN показаны на рисунках 1.13 (а) и (б).

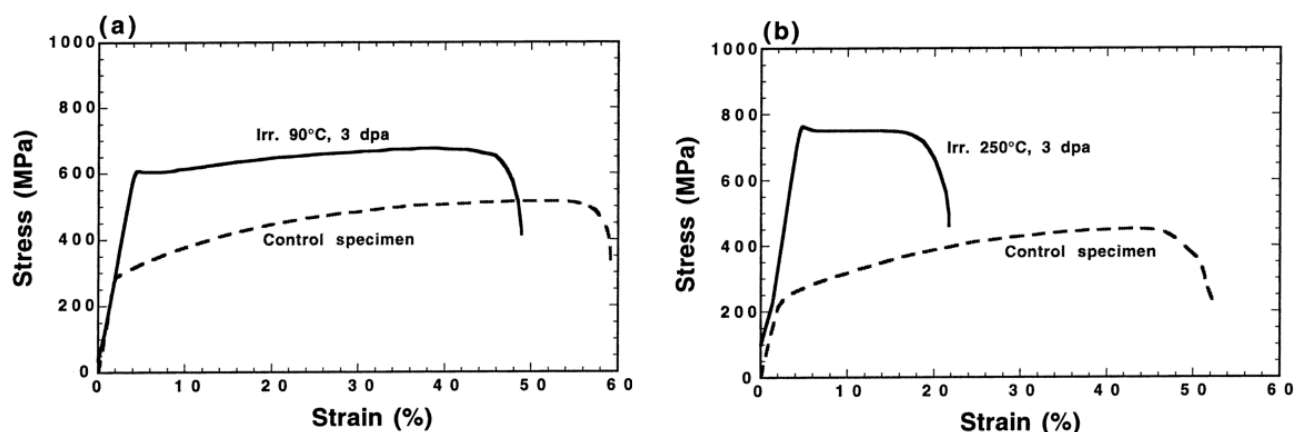


Рисунок 1.13 – Диаграммы нагрузка-деформация для образцов стали 316LN облученных при 90 °С (а) и 250 °С (б)

В соответствии с теорией дисперсного барьерного упрочнения, увеличение предела текучести $\Delta\sigma_y$, относящегося к увеличению в приложенной нагрузке, необходимой для движения дислокации через поле препятствий с прочностью α , определяется следующим соотношением:

$$\Delta\sigma_y = M\alpha\mu b\sqrt{Nd}, \quad (1.2)$$

где M – Фактор Тейлора;

α – коэффициент упрочнения;

μ – модуль сдвига;

b – вектор Бюргерса;

N – плотность (концентрация) препятствий;

d – средний диаметр препятствий.

Согласно работе [24], совершенные петли и осадки не оказывают большого эффекта на увеличение прилагаемой силы из-за их малой плотности, и поэтому они не брались в расчет. Предполагая, что препятствиями являются петли Франка и черные точки, их вклад в упрочнение определяется следующим выражением:

$$(\Delta\sigma_y)^2 = (\Delta\sigma_{\text{петля Франка}})^2 + (\Delta\sigma_{\text{черные точки}})^2. \quad (1.3)$$

Подставляя величины 3,06 для фактора Тэйлора, $58 \cdot 10^3$ МПа для модуля сдвига и $\alpha_{\text{черная точка}} = 0,146$, было получено значение $\alpha_{\text{петля Франка}} = 0,5$ для обеих температур облучения. Авторы работы предполагают, что увеличение прочности, наблюдаемое при 250 °С по сравнению с 90 °С (рисунок 1.14), имеет отношение к дислокационному каналированию и увеличенной числовой плотности петель Франка, развитых при высокой температуре.

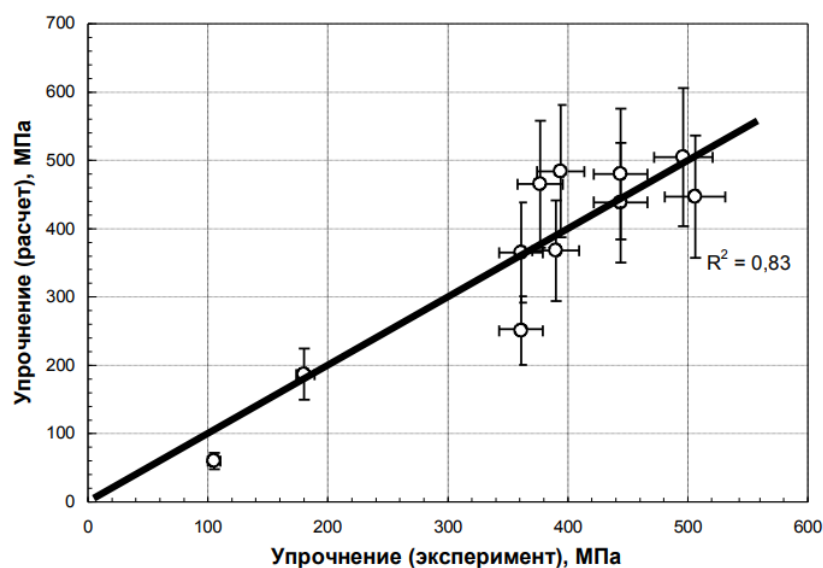


Рисунок 1.14 – Сравнение упрочнения стали 06X18H10T, полученного экспериментально и на основе расчета

В работе [26] по изучению микроструктуры стали X18H10T были исследованы изменения структуры и механических свойств. Образцы стали имели повреждающую дозу от 0,2 до 15 сна при температуре облучения 300 °С. Было определено увеличение предела текучести до 500 МПа при повреждающей дозе 15 сна. Также было замечено, что радиационное упрочнение начинает уменьшаться при высоких температурах, что связано с отжигом образовавшихся при облучении дефектов, таких как кластеры и дислокационные петли Франка. При температуре испытания равной 800 °С прочностные характеристики облученного материала становятся равными характеристикам необлученного.

Снижение пластичности наблюдалась при относительно небольших повреждающих дозах около 5 сна. Такое снижение пластичности классифицируется как низкотемпературное радиационное охрупчивание.

По данным, полученным из электронно-микроскопических исследований, радиационное упрочнение было рассчитано так же, как и в [Ошибка! Залкада не пределена.] - с помощью теории барьерного упрочнения.

Из рисунка 1.14 видно, что расчетные данные хорошо согласуются с экспериментом, и это подтверждает положение о том, что радиационное упрочнение обусловлено, в основном, обнаруженными дислокационными петлями и мелкими скоплениями радиационных дефектов.

В работе [27] приведены данные по облучению стали в реакторе БОР-60, показывающие, что значительное радиационно-индуцированное распухание вызывает серьезное охрупчивание аустенитных нержавеющей сталей, сокращая срок службы конструктивных элементов и вводя ограничения, особенно при работе при низких температурах. Показано, что разрушение на самом деле является формой квазиохрупчивания, возникающей в результате интенсивной локализации потока с высокими уровнями локальной пластичности, включая слияние микропор и растрескивание пустот. Пустоты изначально служат компонентами упрочнения, эффект которых подавляется вызванными пустотами уменьшением модулей сдвига и Юнга при высоких уровнях распухания. Таким образом, создается впечатление, что сплав размягчается, даже когда пластичность падает до нуля на макроскопическом уровне, хотя на месте разрушения микроскопически происходит большая деформация. Таким образом, разрушение лучше охарактеризовать как «квазиохрупчивание», которое представляет собой подавление однородной деформации. Этот случай следует отличать от случая реального охрупчивания, который включает в себя полное подавление способности материала к пластической деформации.

В заключении авторы пишут, что в то время, как пустоты изначально служат для упрочнения матрицы аустенитных сталей, увеличение уровня распухания приводит к сильному снижению модуля упругости, что приводит к снижению

прочности при одноосных испытаниях на растяжение даже когда пластическая деформация приближается к нулю в результате локализации потока. На поверхности разрушения наблюдается большая деформация, которая происходит за счет слияния микропор при достижении некоторого критического уровня набухания. Это, в свою очередь, приводит к возникновению внутренних трещин, которые, в конечном итоге, приводят к разрыву. В некоторых ситуациях во время испытания развиваются неоднородные деформации, так что критический уровень набухания для нулевой пластичности ниже, чем при одноосных испытаниях на растяжение.

1.3 Коррозия облученной аустенитной стали

Устойчивость конструктивных элементов реактора из аустенитной стали к коррозионному повреждению при радиационно-индуцированных изменениях физико-механических свойств и микроструктуры, в основном зависит от повреждающей дозы и химической активности рабочей среды. При определенных сочетаниях таких изменений и условий эксплуатации, а также механических напряжений, действующих одновременно, происходит растрескивание в результате коррозии под напряжением.

В аустенитной нержавеющей стали коррозионная стойкость при высокой температуре воды зависит от состава материала, особенно на границах зерен. Выделения на границах зерен, вызванные облучением, могут изменять коррозионную стойкость. При таких выделениях происходит межкристаллитная коррозия, и облучение усиливает этот процесс по мере увеличения флюенса нейтронов [28].

Известно, что при облучении нержавеющей аустенитной стали на границах зерен происходит образование радиационно-индуцированной сегрегации элементов стали и зон обеднения содержания хрома (без образования карбидных выделений), в результате чего и возникает восприимчивость облученной стали к межкристаллитной коррозии [29]. Межкристаллитная коррозия связано с выделением фосфора и кремния на границах зерен. Эти элементы усиливают

зарождение петель междуузельного типа и изменяют выделение основных элементов, как хром и никель, при температурах около 300 °С [30]. Выделение Si является вредным, потому что при всех соответствующих условиях рН потенциала, Si окисляется до SiO₂, который хорошо растворяется в горячей воде. Величина выделений и обеднений зависит от скорости генерации и рекомбинации точечных дефектов (то есть от температуры облучения и скорости дозового повреждения). Радиационно-индуцированные изменения в концентрации Cr и Si на границах зерен для нескольких нержавеющих сталей 300 серии, облученных при температурном интервале 275-290 °С, показаны на рисунке 1.15.

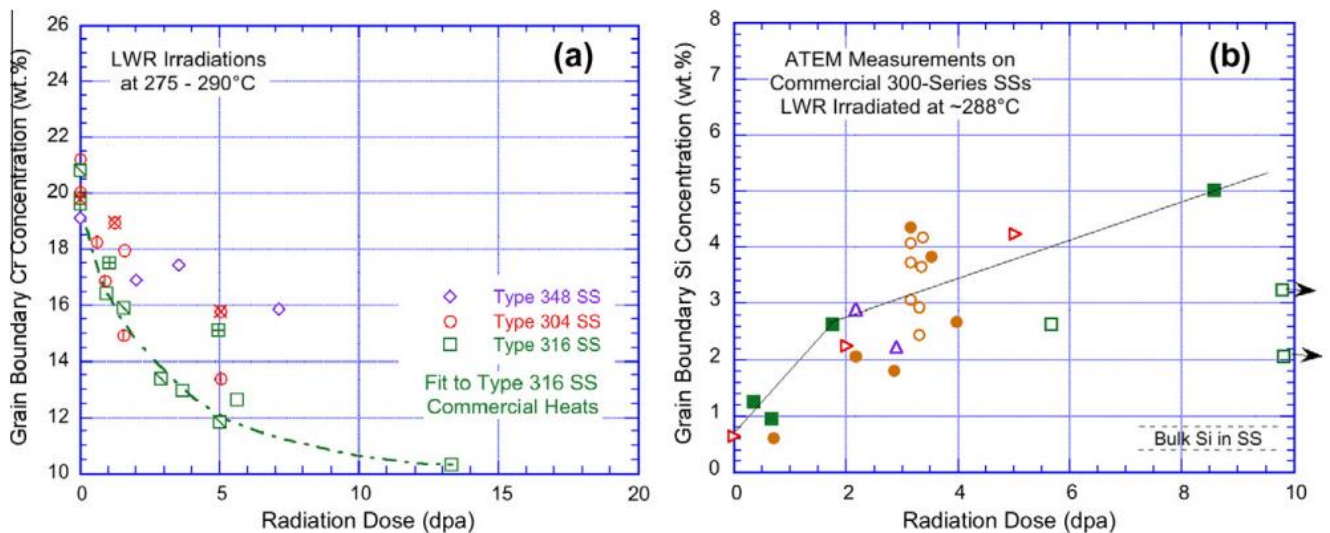


Рисунок 1.15 – Концентрация Cr (a) и Si (b) на границах зерен в облученных нержавеющих сталях [31]

Осадки различных вторичных фаз, такие как карбиды, фазы σ , χ и Лавеса могут возникать в аустенитных сталях, подверженных высоким температурам при термообработке или эксплуатации [32]. Незначительные количества этих фаз могут иметь большое влияние на коррозионную стойкость нержавеющих сталей. Следовательно, знание количества, распределения и типа фаз имеет решающее значение для коррозионных свойств нержавеющих сталей.

В работе [33] проведено испытание на склонность к межкристаллитной коррозии аустенитной стали 12X18H9T. Образцы стали были облучены до

повреждающей дозы 33,1 сн при температуре 350-400 °С. После облучения были обнаружены выделения G-фазы, располагавшиеся внутри зерен и на местах бывших дислокационных стенок. На границах зерен наблюдались цепочки выделений, являющиеся преимущественно частицами G-фазы и частицами карбидов типа $M_{23}C_6$. А на границах зерен обнаружены выделения кремния и титана и снижение концентрации хрома. Наличие зерно-границных выделений и изменение состава стали на границах зерен являются факторами, обуславливающими склонность облученной при вышеуказанных условиях стали 12X18H9T к межкристаллитной коррозии при коррозионных испытаниях. Дальнейший отжиг облученной стали 12X18H9T при температуре 600 °С в течение двух часов приводит к частичному растворению внутризеренных и межзеренных выделений G-фазы, а также к выравниванию концентрации компонентов стали на границах и в теле зерен, что и приводит к повышению ее стойкости к межкристаллитной коррозии.

Коррозионное растрескивание под действием облучения – это еще один процесс разрушения, который влияет на внутренние компоненты реакторов из аустенитной стали, подвергающихся воздействию нейтронного излучения. Факторы, которые влияют на коррозионное растрескивание аустенитных нержавеющей сталей, включают условия нейтронного облучения, такие как флюенс нейтронов, поток и энергетический спектр, холодная обработка, состав материала, потенциал коррозии, чистота воды, температура и условия нагрузки. Восприимчивость к коррозионному растрескиванию увеличивается с увеличением флюенса нейтронов, потенциала коррозии и проводимости воды.

Автор работы [34] представляет межкристаллитное коррозионное растрескивание аустенитных хромоникелевых сталей и сплавов не как разновидность коррозии под напряжением, протекающей транскристаллитно, а как самостоятельный тип коррозионного разрушения. В этой работе проводились автоклавные испытания облученных образцов из стали X16H15M3Б и сплава X20H45M4Б на сопротивляемость коррозионному растрескиванию в водной среде с содержанием хлор-иона ~ 1,8 г/кг Cl.

В заключении автор высказывает предположение о том, что интеркристаллитное коррозионное растрескивание аустенитных хромоникелевых сталей и сплавов, обнаруженное при достаточно высоких температурах в температурно-временном интервале, предшествующем проявлению межкристаллитной коррозии, обусловлено как процессами релаксации, протекающими по границам зерен, так и напряжениями, возникающими на ранних стадиях распада твердых растворов. В таком случае интеркристаллитное коррозионное растрескивание аустенитных сталей и сплавов, интенсифицируемое повышением температуры, агрессивностью среды, нейтронным облучением, представляет собой начальную стадию протекания обычной межкристаллитной коррозии, когда еще не происходит обособление хромсодержащих вторичных фаз, но уже идет процесс перемещения хрома (начало формирования хромистых карбидов) и возникновения при этом значительных структурных напряжений.

Многие факторы, такие как радиационное упрочнение, потеря пластичности, радиационно-индуцированная сегрегация легирующих элементов Cr и Ni и остаточных элементов на границах зерен и радиационно-индуцированная микроструктурная эволюция, по-видимому, влияют на коррозионное растрескивание. Поэтому важно иметь понимание процесса растрескивания, чтобы определить, каков механизм межкристаллитного зарождения трещины и то, как факторы, указанные выше, влияют на возникновение трещин. Для этого в [35] исследовались термо-сенсibilизированные нержавеющие стали 304, облученные до $1,2 \cdot 10^{21}$ н/см² ($E > 1$ МэВ), которые были испытаны на растяжение при низкой скорости деформации и растяжении в воде с температурой 290 °С, содержащей 0,2 ppm растворенного кислорода, с последующим проведением на сканирующем и просвечивающем микроскопе исследований для изучения механизма возникновения коррозионного растрескивания под действием облучения.

Результаты механических испытаний в насыщенной кислородом воде на термо-сенсibilизированных образцах стали 304 показали, что поведение межкристаллитного растрескивания изменяется при граничном флюенсе около $1 \cdot 10^{20}$ н/см².

При превышении порогового флюенса количество и соотношение участков межкристаллитного растрескивания увеличиваются с увеличением плотности потока нейтронов в воде, содержащей всего 0,2 ppm растворенного кислорода. Это указывает на то, что увеличение восприимчивости к коррозионному растрескиванию с увеличением плотности потока нейтронов происходит из-за увеличения количества участков зарождения межкристаллитных трещин. Тем не менее, пороговый флюенс остается неизменным, хотя восприимчивость к коррозионному растрескиванию, по-видимому, возрастает с увеличением растворенного кислорода, поскольку возникновение межкристаллитных трещин вызвано локализацией деформации.

1.4 Выводы по главе 1

1. Аустенитные стали нашли широкое применение в реакторной технике. Из сталей аустенитного класса изготавливаются ответственные конструктивные элементы ядерных энергетических установок. Элементы из этих материалов применяются в исключительно сложных и напряженных условиях, даже в отсутствие нейтронного облучения.

2. В процессе реакторного облучения аустенитные стали подвержены воздействию, помимо нейтронного излучения, градиентам температуры и напряжения. Стойкость таких материалов к воздействию этих факторов в значительной степени определяет срок безопасной работы эксплуатируемых и проектируемых ядерных реакторов.

3. В зависимости от химического состава материала и продолжительности облучения, в материале возникают напряжения. Напряжения влияют на стабильность размеров аустенитной стали из-за термической и радиационной ползучести. При этом напряжения также оказывают влияние на растрескивание, коррозию, фазовую стабильность и рост пустот. Облучение оказывает влияние как на микроструктуру, так и на микрохимию нержавеющей сталей и сплавов с высоким содержанием никеля, с последствиями для физических и механических свойств, стабильности размеров и структурной целостности.

4. Остается слабо изученной такая важная проблема, как эволюция радиационно-индуцированной структуры и свойств в результате естественного и термического старения. Знание конкретных механизмов и кинетики, приводящих к изменению свойств конструкционных материалов составляет основу для принятия важных решений относительно ядерных материалов, начиная от продления срока службы, процедур снятия с эксплуатации, а также в обосновании безопасности транспортировки и обращения с ОЯТ после окончания срока эксплуатации хранилищ.

5. Для прогнозирования изменения физико-механических свойств конструкционных материалов ядерных реакторов, используется информация, получаемая при ускоренном облучении и последующих послереакторных исследований. При этом остаются вопросы, относящиеся к влиянию скорости радиационного повреждения и продолжительного, в течение десятилетий, времени радиационно-термического воздействия на материал. Единственным доступным на сегодняшний день способом прогнозирования поведения конструкционных материалов при длительном сухом хранении остается проведение модельных исследований с облученными материалами и экстраполяция экспериментальных данных.

На основании вышеизложенного сформулированы цель и задачи исследований, представленных в настоящей диссертации.

2 ОБЪЕКТЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ИСПЫТАНИЯ

С целью характеристики изменения структуры и свойств конструкционных материалов после реакторного облучения и последующего изотермического воздействия были выбраны методы материаловедческих исследований и составлен алгоритм выполнения работ (рисунок 2.1) [36].

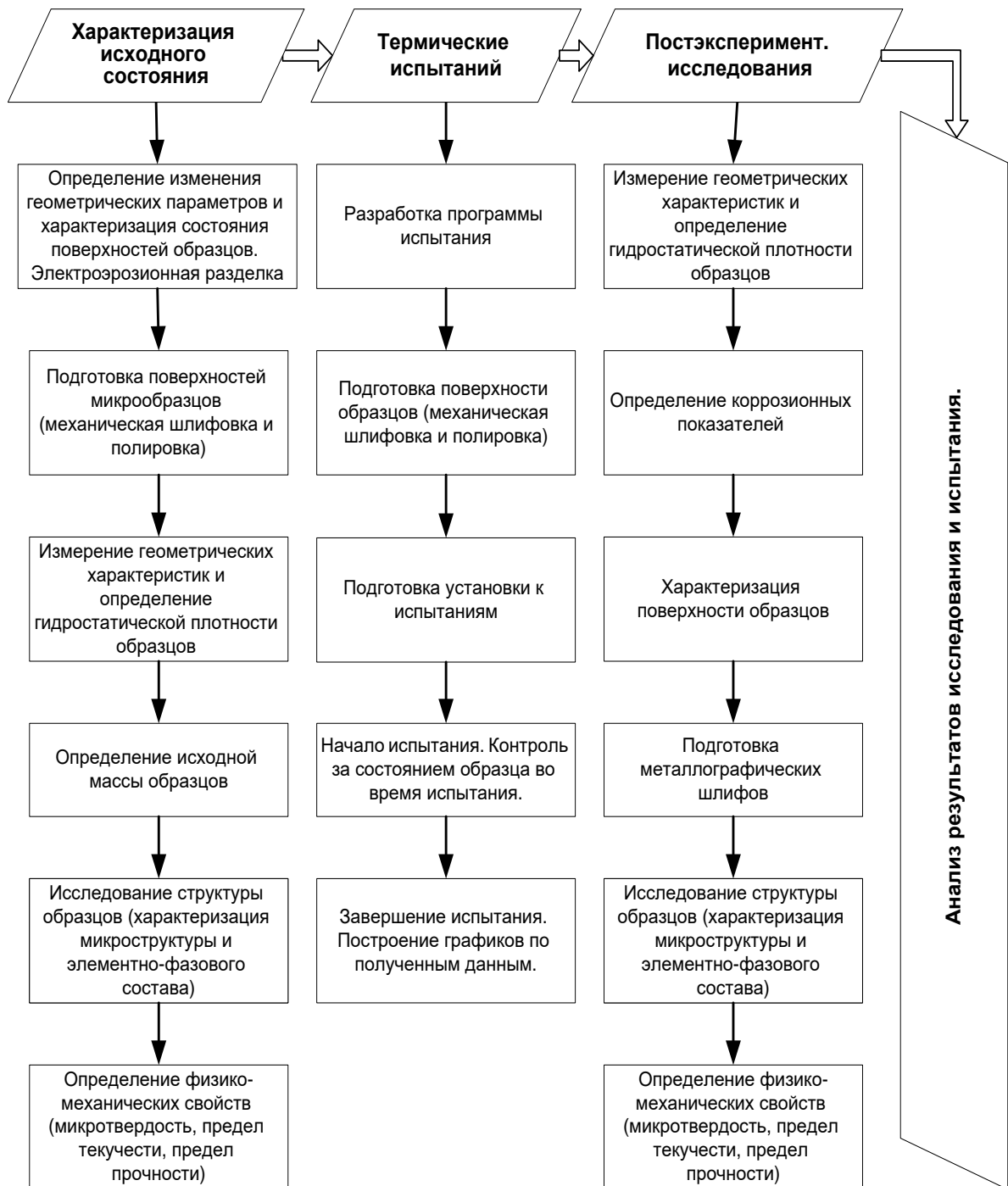


Рисунок 2.1 – Методика исследования и испытания высокооблученных образцов

2.1 Объект исследования

В качестве исследуемого материала в настоящей работе использовали высокооблученные образцы, вырезанные из различных внутрикорпусных элементов РУ БН-350, такие как чехлы ОТВС, изготовленные из аустенитной нержавеющей стали 12Х18Н10Т в состоянии механико-термической обработки, и межканальные вытеснители, изготовленные из стали марки 09Х16Н15МЗБ (аналог материала оболочки твэла). Информация по химическому составу сталей и параметрам облучения исследуемых материалов приведена в таблицах 2.1 и 2.2.

Таблица 2.1. Химический состав выбранных сталей, вес. %

Марка стали	Fe	C	Cr	Ni	Ti	Si	Mn	Mo	Nb	P	S
12Х18Н10Т	Основа	0,12	17,0	10,66	0,5	0,8	1,67	0	0	0,032	0,003
09Х16Н15МЗБ		0,09	16	15	0	0,8	0,8	3,0	0,9	0,035	0,02

Таблица 2.2. Параметры облучения исследуемых образцов

№	Материал	Доза облучения, сна	Скорость набора дозы, 10^{-6} сна/с	Наработка, эфф. суток	Мощность реактора, МВт	Тем-ра облучения, °С
1	12Х18Н10Т (чехол ОТВС)	12,3	0,038	3696,7	750	350
2		17	0,305	643,8	650	350
3		28,7	0,618	537,6	650	350
4		45	1,40	370,9	680	300
5		45,5	1,42	370,9	680	410
6		48,2	1,91	291,8	650	350
7		50	1,56	370,9	680	310
8		50,5	1,58			390
9		55,5	1,73			375
10		58,9	1,84			350
11	09Х16Н15МЗБ (межканальный вытеснитель)	47,7	1,71	323,2	680	320
12		50,5	1,81			350
13		48,0	1,72			375

2.2 Моделирование теплового состояния контейнера с топливными сборками реактора БН-350 во время сухого хранения

В связи с принятой концепцией длительного сухого хранения ОТВС БН-350, хранившиеся в бассейне выдержки ОТВС были упакованы в герметичные чехлы из нержавеющей стали типа 304. После сушки, заполнения аргоном и герметизации чехлы с ОЯТ были установлены в контейнеры двойного назначения ТУК-123, используемые как для транспортировки, так и для хранения.

Комплект транспортный упаковочный ТУК-123 (рисунок 2.2) включает в себя [40] упаковочный комплект для хранения УКХ-123 и защитно-демпфирующий кожух (ЗДК).

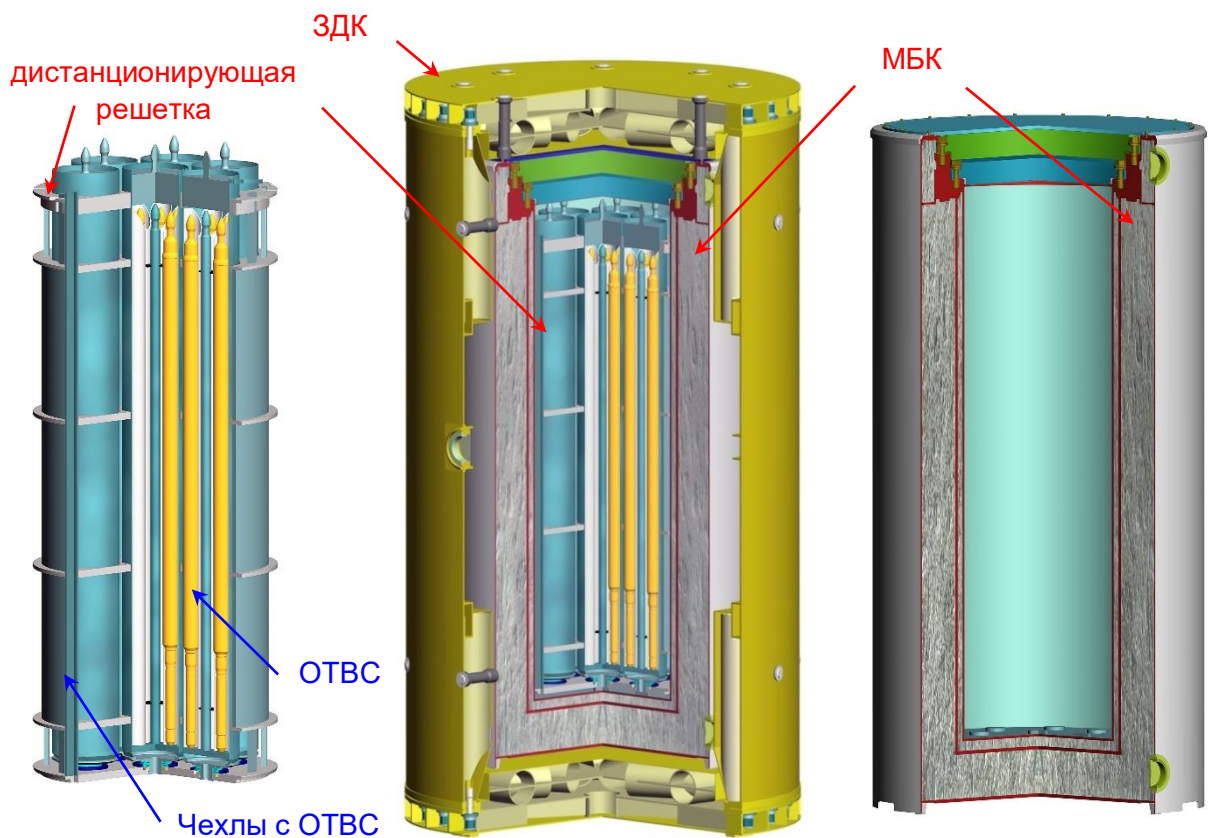


Рисунок 2.2 – Конструктивная схема ТУК-123 [2]

В состав упаковочного комплекта для хранения входят металлобетонный контейнер (МБК) и дистанционирующая решетка.

МБК представляет собой толстостенный цилиндрический корпус, герметично закрываемый внутренней и наружной крышками, а также герметизирующим

листом. МБК имеет клапан для осушения внутренней полости и заполнения ее инертным газом и каналы для контроля герметичности. Дистанционирующая решетка представляет собой сварную металлоконструкцию, образующую 8 гнезд для размещения чехлов с ОТВС.

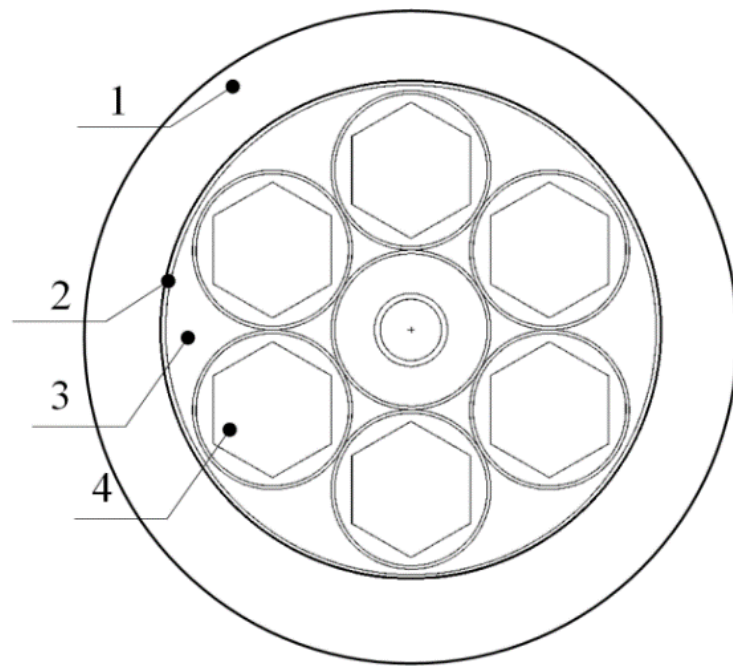
Штатными условиями хранения ТУК-123 считаются: внутренняя среда – аргон; давление среды - 10^5 Па; средняя максимальная температура среды – 215 °С; допустимое количество остаточной воды не более $0,0013$ кг/м³; нейтронный флюенс за время хранения 50 лет – $2 \cdot 10^{12}$ н/см²; средняя температура на оболочке твэла – 331 °С.

В нормальных условиях сухого хранения конструкционные материалы будут испытывать действие весовых нагрузок, внутреннего и внешнего давления, а также тепловых нагрузок за счет тепловыделения ОЯТ.

Общий принцип сухого хранения ОЯТ заключается в том, что отработавшее топливо хранится в герметичных металлических корзинах, а сами корзины располагаются в корпусе защитного контейнера [37-39]. Расположенные внутри контейнеров тепловыделяющие элементы или сборки обычно находятся в среде инертного газа, что защищает материалы от коррозионного воздействия и способствует отводу остаточного тепла.

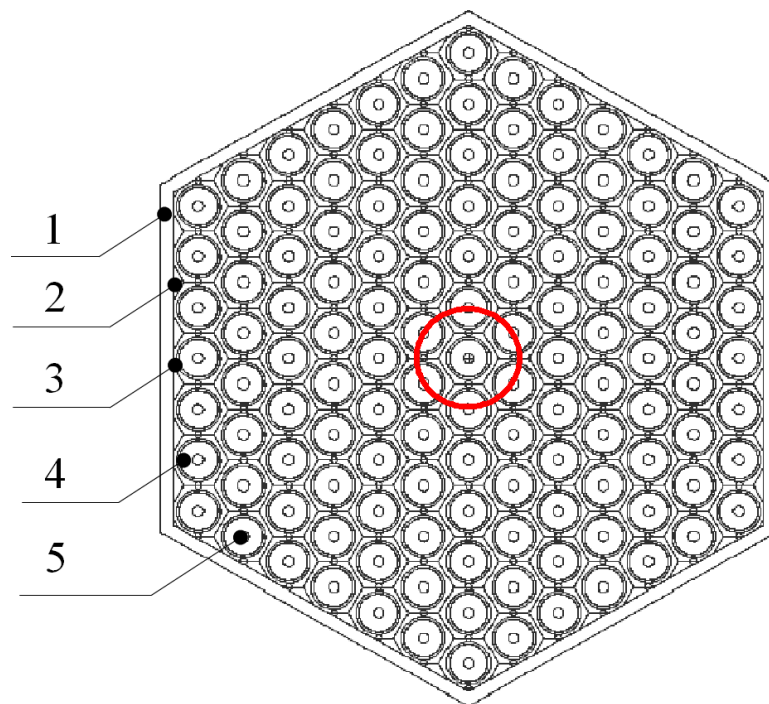
Основной характеристикой для целостности ОЯТ при сухом хранении являются значения температуры топлива и оболочки твэла. Для оценки безопасности длительного хранения отработавших сборок реактора БН 350 в контейнере возникает необходимость проведения тепловых расчетов, связанных с условиями хранения.

Отработавшие топливные сборки реактора БН-350 упакованы в шестиместные контейнеры. На рисунке 2.3 приведена схема размещения топливныхборок в контейнере для сухого хранения [40]. На рисунке 2.4 приведена схема размещения твэлов в ТВС, где область расчета распределения температуры отмечена окружностью в центре ТВС.



1 - бетон; 2 - корпус контейнера (12X18Н10Т); 3 - аргон (воздух); 4 – ТВС.

Рисунок 2.3 – Схема расположения топливных сборок в шестиместном контейнере для сухого хранения



1 - корпус ТВС (12X18Н10Т); 2 - аргон (воздух); 3 - оболочка твэла (0X16Н15МЗБ); 4 - топливо; 5 - аргон (воздух).

Рисунок 2.4 – Схема размещения твэлов в ТВС

Распределение температуры определено в области центрального твэла одной из топливныхборок реактора БН-350 в шестиместном контейнере для сухого хранения.

Расчет проведен при помощи программного комплекса ANSYS, реализующего метод конечных элементов [41, 42], и выполнен для мощности ТВС 120 и 190 Вт. Расчеты профиля распределения температуры проведены для случаев заполнения контейнера аргоном и атмосферным воздухом [43].

Контейнер окружен бетоном толщиной 0,5 или 1 м. Более подробная информация о проведенных расчетах представлена в приложении Б.

В результате расчетных исследований было определено температурное поле в среднем по высоте поперечном сечении контейнера с топливными сборками реактора БН-350 для сухого хранения. Результаты теплового расчета позволяют определить оптимальные условия для хранения, при которых температура конструктивных элементов будет минимальна. Требования безопасности к хранению ОЯТ БН-350 предполагают, что в результате пассивного охлаждения температура оболочки тепловыделяющего элемента не будет превышать 673 К [44].

В результате моделирования установлено что максимальная расчетная температура топлива в среднем сечении контейнера, с учетом погрешности, может достигать 547 °С, а минимальная расчетная температура топлива среди рассмотренных вариантов расчета равна 295 °С

При использовании в качестве наполнителя контейнера воздуха вместо аргона, максимальная температура топлива снизится на ~54 К при мощности ТВС 190 Вт и на ~37 К при мощности ТВС 120 Вт, что объясняется более высокой теплопроводностью воздуха по сравнению с аргоном.

Установлено, что максимальное значение температуры в ТВС смещено к центру контейнера. Температура центрального твэла ниже максимального значения температуры на ~3 К. Если полость контейнера заполнена аргоном, то смещение максимального значения температуры от оси ТВС к центру контейнера

составит ~ 7 мм, если в качестве газовой среды используется воздух, то смещение составит ~ 11 мм.

2.3 Методика изготовления образцов

Принимая во внимание то, что количество образцов из ОТВС ограничено, и к тому же они высокорadioактивны, необходимо было минимизировать размеры образцов и время работы персонала. Дополнительную сложность добавляло искривление образцов после вырезки из грани чехла, которое объясняется релаксацией внутренних напряжений материала. Учитывая активность и ограниченное количество материала, наиболее привлекательным является электроэрозионная резка.

Разделка высокооблученных образцов проводилась на электроэрозионном станке типа 4531. Электроэрозионные станки используются для вырезания изделий из токопроводящих материалов, и являются незаменимым при обработке с высокой твердостью и износостойкостью.

Разделка образцов ОТВС проводилась по схеме, приведенной на рисунке 2.5. Методика разделки включала два основных этапа: разделка образца из грани чехла на прямоугольные заготовки для металлографических и микрообразцов, и изготовление прямоугольных микрообразцов с уменьшенной площадью сечения рабочей части.

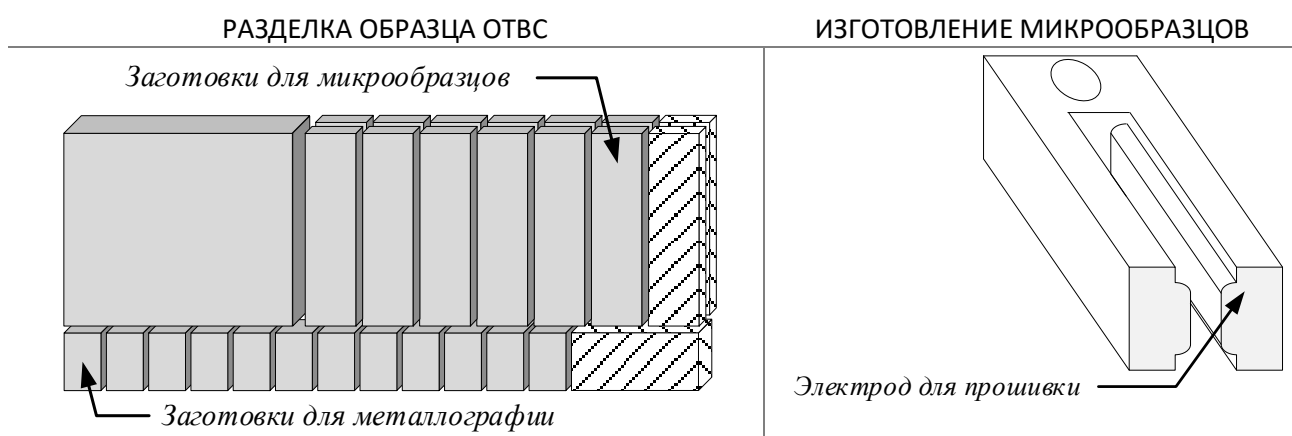


Рисунок 2.5 – Схема разделки облученных образцов

После электроэрозионной резки появляется дефектный оплавленный слой и ухудшается чистота поверхности. Глубина оплавленного подслоя в отдельных случаях может достигать 100 мкм. В качестве примера на рисунке 2.6 приведено сечение образца после электроэрозионной резки, где отчетливо видна зона разрушения образца, толщина которого составляет в среднем 40 мкм.

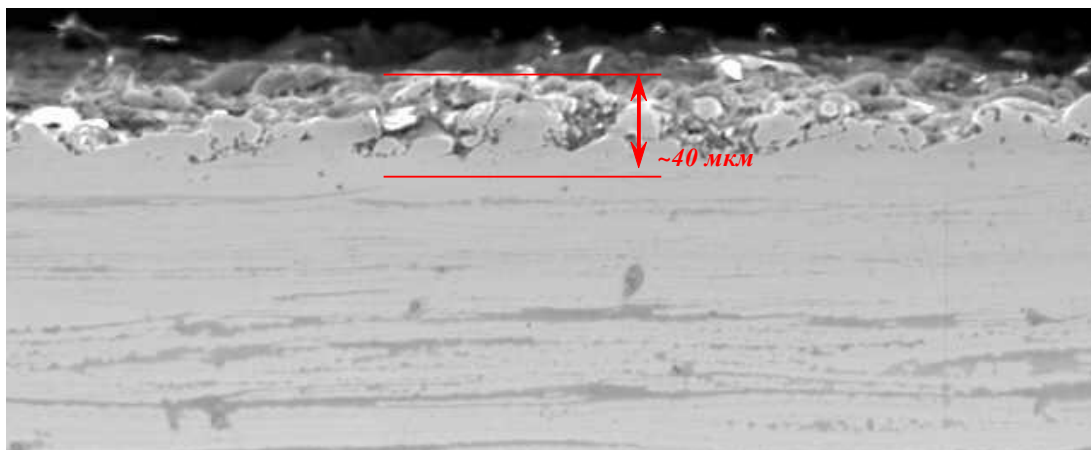


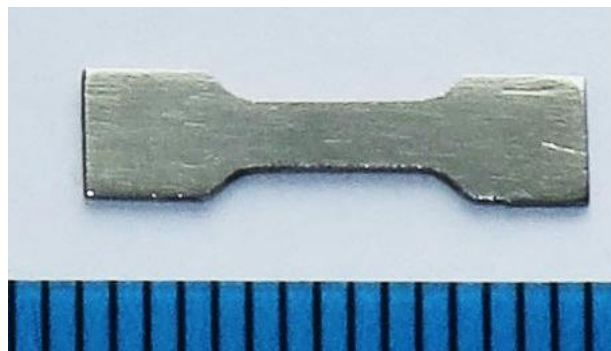
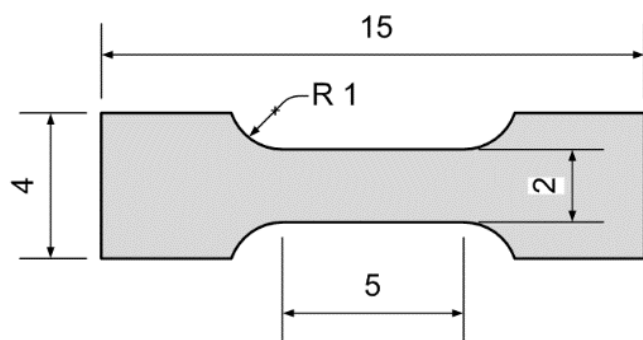
Рисунок 2.6 – Поверхность образца после электроэрозионной резки

Удаление поврежденного слоя и достижение заданной чистоты поверхности осуществляется методом механической шлифовки и полировки.

Для исключения разрушения микрообразцов во время механических испытаний на одноосное растяжение преимущественно у захватов, были разработаны и изготовлены пропорциональные микрообразцы с уменьшенным сечением рабочей части [45]. Для изготовления микрообразцов с уменьшенным сечением рабочей части применялся метод электроэрозионной прошивки. Для реализации предложенного метода был спроектирован и изготовлен электрод-инструмент (рисунок 2.5), позволяющий подготовить идентичные микрообразцы (обеспечить хорошую повторяемость результата), предназначенные для механических и термических испытаний.

Использование таких образцов уменьшает дозовую нагрузку на персонал и позволяет равномерно распределять напряжение по всей длине, что повышает вероятность разрыва образца в рабочей части, следовательно, увеличивает

надежность получаемых экспериментальных данных. Размеры микрообразца и его внешний вид представлены на рисунке 2.7.



а) схема микрообразца

б) готовый микрообразец

Рисунок 2.7 – Микрообразец для механо-термических испытаний

Основными требованиями, предъявляемыми к образцам при проведении термических испытаний, являются одинаковая шероховатость поверхности для всех образцов и отсутствие острых граней. Поэтому все микрообразцы механически шлифовались и полировались до шероховатости поверхности ~ 30 мкм, а грани скруглялись радиусом до 0,5 мм.

2.4 Структурные исследования

Материаловедческие исследования образцов выполняются с целью получения данных о степени изменения структуры и физико-механических свойств конструкционных материалов РУ БН-350 в зависимости от полученной дозы реакторного облучения и последующего термического воздействия.

Шлифы для металлографических исследований изготавливались стандартными способами, включающими в себя механическую шлифовку, механическую и электролитическую полировку, а также конечное электролитическое травление. Предварительно, до проведения полировки и травления, выполняли измерения глубины коррозионного поражения металлографическим методом в соответствии с ГОСТ 9.908 [46].

Металлографические исследования облученных образцов выполнены на оптических микроскопах Метам ЛВ-41 и ICX41M. Электронно-микроскопические исследования фрактографии излома материала проведены на сканирующем электронном микроскопе Tescan Vega 3 LMN в режиме вторичных электронов. Юстировка электронной пушки, контрастность и яркость изображения, фокусировка и астигматизм устанавливались автоматически. Для качественной оценки содержания и распределения элементов применялся метод рентгеноспектрального микроанализа с помощью энергодисперсионного спектрометра Oxford Ins. X-Act.

Изучение тонкой структуры материалов проводилось с помощью просвечивающих электронных микроскопов JEOL JEM-2100 и JEOL 100CX принадлежащих РГП ИЯФ.

Для ПЭМ исследований подготавливались отдельные диски диаметром 3 мм, которые подвергались механической шлифовке и полировке. Окончательная подготовка ПЭМ образцов проводилось электрохимической струйной полировкой в электролите 20 мл HClO_4 + 70 мл $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ + 70 мл $\text{C}_3\text{H}_8\text{O}$.

Съемка дифрактограмм на дифрактометре Empyrean (PANalytical) производилась для всех образцов по единым режимам и условиям рентгенографирования. Условия съемки: излучение медного анода, напряжение и ток 45 кВ / 40 мА. Обработка дифрактограмм и определение фазового состава производились с помощью программы «HighScore».

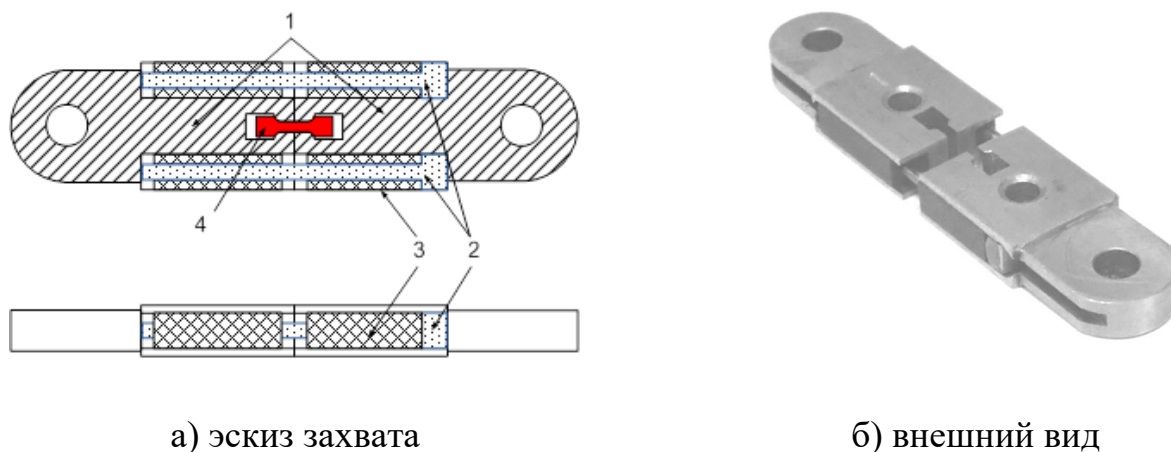
2.5 Физико-механические испытания

Физико-механические испытания образцов включают в себя измерения твердости, а также определение их прочностных характеристик. Определение прочностных характеристик выполнялось методом одноосного растяжения на универсальной испытательной машине Instron 5966.

Испытания проводились при комнатной температуре со скоростью деформации 2,5 мм/мин. Для фиксации микрообразца с головками были

применены разработанные в ИАЭ НЯЦ РК самоцентрирующие захваты (Приложение А) без зажимного типа [47].

Захват состоит из активного и пассивного полузахватов и ячейки для микрообразца. Для исключения поворота и смещения оси микрообразца захват оснащен цилиндрическими направляющими установленными в графитовых втулках (рисунок 2.8).



а) эскиз захвата

б) внешний вид

Рисунок 2.8 – Самоцентрирующийся захват [46]

Захват состоит из верхней и нижней частей (1) и предназначен для закрепления и удержания плоского микрообразца (4) при испытании. Верхние и нижние части изготовлены из прочной нержавеющей стали 30X13. Захваты взаимно перемещаются по оси вдоль направляющих (2), расположенных на боковой стороне. Направляющие предназначены для исключения относительного кручения и осевого сдвига верхних и нижних частей захватов между собой. Для уменьшения трения и исключения закусывания направляющие расположены внутри графитовых втулок (3), которые жестко закреплены в верхней и нижней частях захвата.

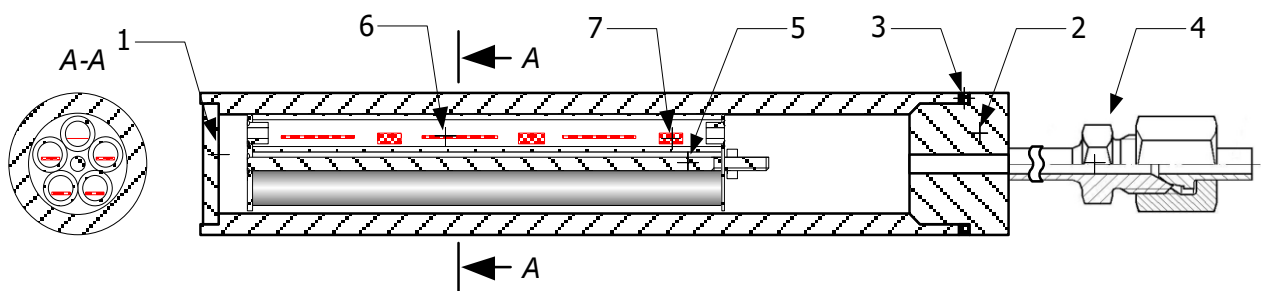
Регистрация значения деформации испытываемого образца производилась видеоэкстензометром AVE-2 (Instron) и перемещением траверсы машины.

Измерение твердости осуществляли на шлифах, приготовленных для металлографических исследований при помощи автоматического микротвердомера Qness Q10A+ по схеме Виккерса при нагрузке на индентор 200 г.

2.6 Методика термических испытаний

Испытания образцов проводились в электрической муфельной печи SNOL-8,2/1100, оснащенной хромель-алюмелевой термопарой, при температурах 300, 400, 550 и 600 °С в среде аргона и воздуха. Поддержание в рабочей камере печи заданной температуры с точностью ± 2 °С осуществлялось встроенным регулятором OMRON E5CN. Печь позволяла достигнуть заданной температуры за время не более 2 минут.

Термические испытания образцов в среде аргона проводилась в ампульных устройствах (рисунок 2.9), изготовленных из фрагмента трубы Ду-20. В этих ампулах с одной стороны в трубу сварена заглушка (1), а с другой - установлена резьбовая пробка (2). Уплотнение полости ампулы осуществляется с помощью отожженной медной прокладки (3). Для подсоединения к газовой системе к пробке ампулы приварен штуцер Ду-4 (4). В каждой ампуле размещены кварцевые тигли (5) с пятью микрообразцами (6) в каждом. Для повышения чувствительности определения положительного привеса за один образец принимались 5 микрообразцов, то есть коррозионные изменения массы такого образца определялось по пяти образцам.



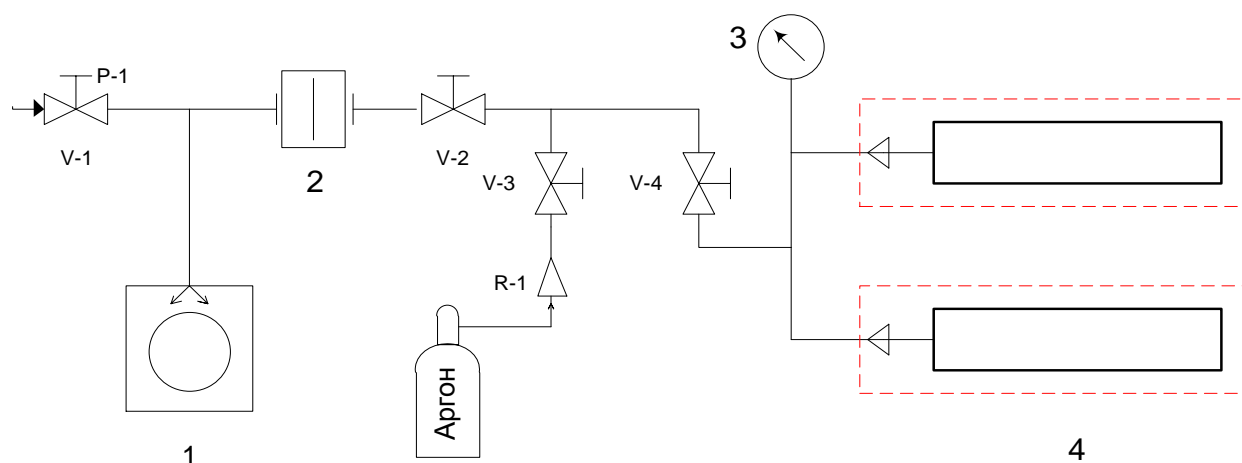
- 1 – заглушка; 2 – крышка с резьбой; 3 – медная прокладка;
 4 – соединение шар-конус; 5 – капсульная сборка; 6 – микрообразцы типа I;
 7 – микрообразцы типа II

Рисунок 2.9 – Эскиз конструкции ампульного устройства

Перед началом испытаний в каждую печь устанавливались по три ампулы с образцами. Одна из ампул после вакуумирования была заполнена аргоном и

герметизирована на все время экспериментов. Вакуумирование, заполнение рабочей средой (аргоном) и постоянное поддержание заданного давления в оставшихся двух ампульных устройствах осуществлялось с помощью газовакуумной системы, которая соединялась со всеми ампулами (рисунок 2.10). При достижении в печах рабочих температур давление в системе поддерживается на уровне 0,275 МПа.

Началом испытания считался момент достижения в рабочей камере печи заданной температуры. Окончанием испытания считался момент выключения печи или выгрузки образцов по истечении срока испытания.



- 1 – форвакуумный насос ВН-50; 2 – азотная ловушка; 3 – мановакуумметр;
4 – ампульные устройства; V-1 – вентиль напуска атмосферы; V-2 – вакуумный вентиль; V-3 – вентиль напуска аргона; V-4 – вентиль отсечения ампул;
R-1 – редуктор

Рисунок 2.10 – Принципиальная схема газовакуумной системы

Для определения кинетики коррозии материала проводилась периодическая выгрузка образцов из муфельной печи для их взвешивания и определения привеса. Измерения массы образцов проводили дискретно, через определенный промежуток времени. Взвешивание образцов до и после термического старения проводили на весах ВЛР-20 с точностью 0,005 мг.

2.7 Выводы по главе 2

1. Проведено моделирование теплового состояния контейнера с топливными сборками реактора БН-350 во время сухого хранения. В результате моделирования установлено, что максимальная расчетная температура топлива равная 745 К для случая заполнения контейнера аргоном при толщине бетона 1 м и мощности ТВС 190 Вт. Минимальная температура топлива среди рассмотренных вариантов расчета равна 516 К для случая заполнения контейнера воздухом, при толщине бетона 0,5 м и мощности ТВС 120 Вт. При заполнения контейнера воздухом, максимальная температура топлива снизилась на ~54 К при мощности ТВС 190 Вт и на ~37 К при мощности ТВС 120 Вт, что объясняется более высокой теплопроводностью воздуха по сравнению с аргоном. Максимальное значение температуры в ТВС смещено к центру контейнера.

Расчет выполнялся с помощью программного комплекса ANSYS, методом конечных элементов.

2. Предложен комплекс оборудования и методов исследований, который позволяет установить закономерности изменения радиационно-индуцированной структуры и свойств аустенитной стали в результате длительного термического воздействия.

3. Предложена методика резки образцов из ОТВС. Сложность заключается в том, материал является высокорadioактивным, и необходимо минимизировать размеры образцов и время работы персонала. Резка образцов проводится под углом (α) 50° к плоскости образца с постоянным шагом 1,5 мм. Использование таких образцов уменьшает дозовую нагрузку на персонал и позволяет равномерно распределять напряжение по всей длине, что повышает вероятность разрыва образца в рабочей части, следовательно, увеличит надежность получаемых экспериментальных данных.

4. Для исследования прочностных характеристик материала разработаны и изготовлены специальные самоцентрирующие захваты (Патент РК № 32350) без зажимного типа. Захваты состоят из активного и пассивного полузахватов и ячейки для микрообразца. Для исключения поворота и смещения оси микрообразца захваты

оснащены цилиндрическими направляющими установленными в графитовых втулках.

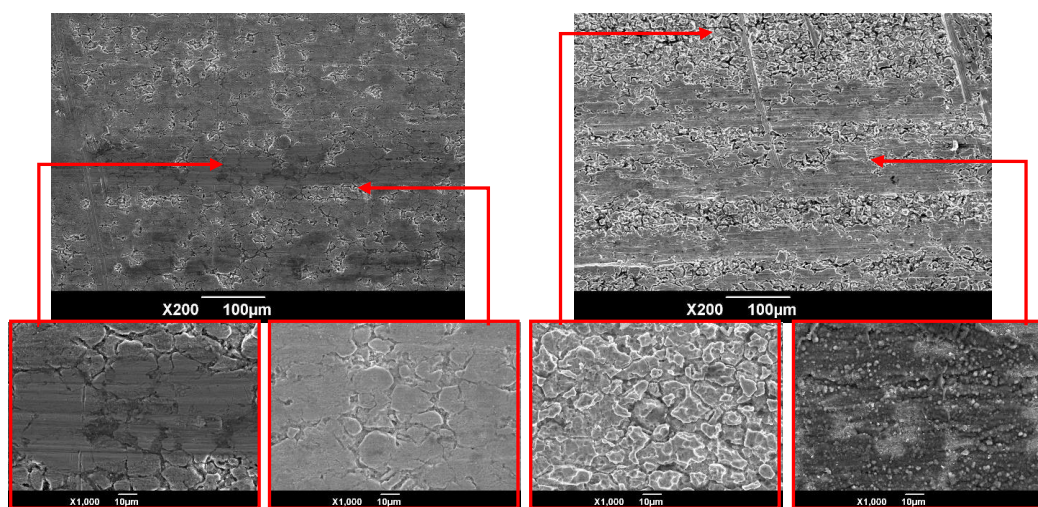
5. Для реализации методики термических испытаний разработана конструкция и изготовлены ампульные устройства, которые позволяют создавать необходимую рабочую среды. Вакуумирование, заполнение рабочей среды (аргон) и постоянное поддержание заданного давления осуществляется с помощью газовакуумной системы, которая соединялась со всеми ампулами.

3 ИЗМЕНЕНИЯ РАДИАЦИОННО ИНДУЦИРОВАННОЙ СТРУКТУРЫ И СВОЙСТВ АУСТЕНИТНОЙ СТАЛИ В ЗАВИСИМОСТИ ОТ ТЕМПЕРАТУРЫ ОТЖИГА

3.1 Характеризация структуры и определение свойств материала после реакторного облучения

С целью характеризации изменения структуры и свойств материала ОТВС после реакторного облучения и последующего изотермического испытания образцы были подвергнуты комплексным материаловедческим исследованиям. Материаловедческие исследования образцов состояли из металлографических, электронно-микроскопических исследований и физико-механических испытаний. Исследования проводятся в соответствии со специально разработанной методикой [48].

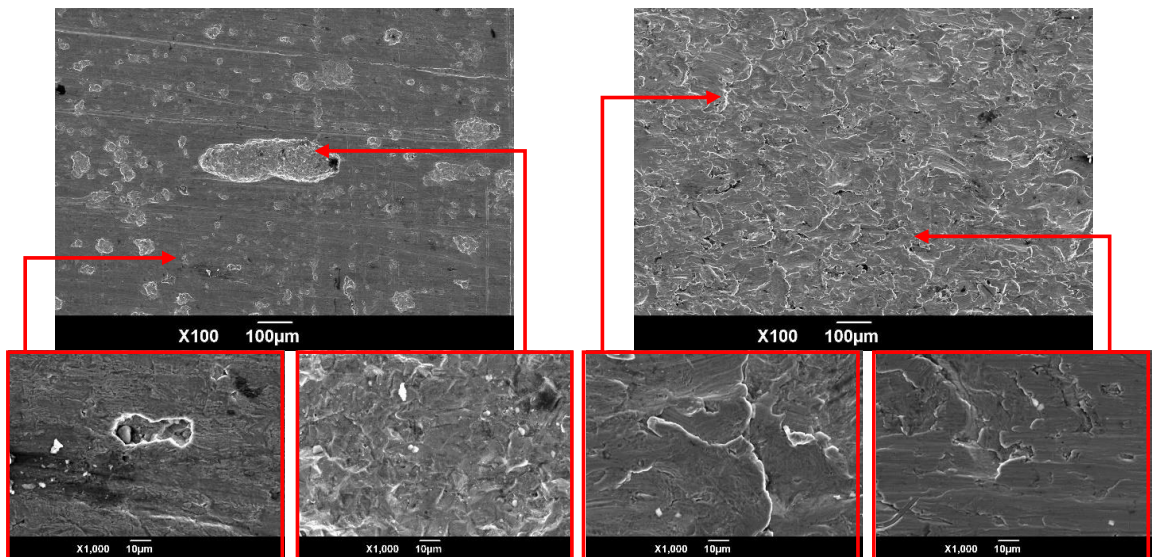
За время эксплуатации в составе АЗ реактора БН-350 материалы чехлов ОТВС имеют различные повреждения на внутренних и внешних поверхностях. Изучение структуры поверхностей образцов методом сканирующей электронной микроскопии показало, что на наружных и внутренних поверхностях образцов обнаружены следы межкристаллитной коррозии и питтинговой коррозии (рисунки 3.1, 3.2).



а) внешняя поверхность

б) внутренняя поверхность

Рисунок 3.1 – Структура поверхности материала получившего повреждающую дозу 12,3 сна



а) внешняя поверхность

б) внутренняя поверхность

Рисунок 3.2 – Структура поверхности материала получившего повреждающую дозу 48,2 сна

Образование микротрещин, увеличенное изображение которых приведено на рисунке 3.3, можно объяснить процессами релаксации внутренних термических напряжений, зародившихся в материале в результате перегрузки ТВС из активной зоны ($T \sim 350 \text{ }^\circ\text{C}$) в воду бассейна-хранилища ($T \sim 20 \text{ }^\circ\text{C}$). Очевидно, что внутри поликристалла эти напряжения будут максимальны на границах зерен. Их действие может привести к $\gamma \rightarrow \alpha$ -переходу и к образованию в приграничных зонах ферритной (мартенситной) α -фазы, которая корродирует значительно интенсивнее, чем γ -фаза.

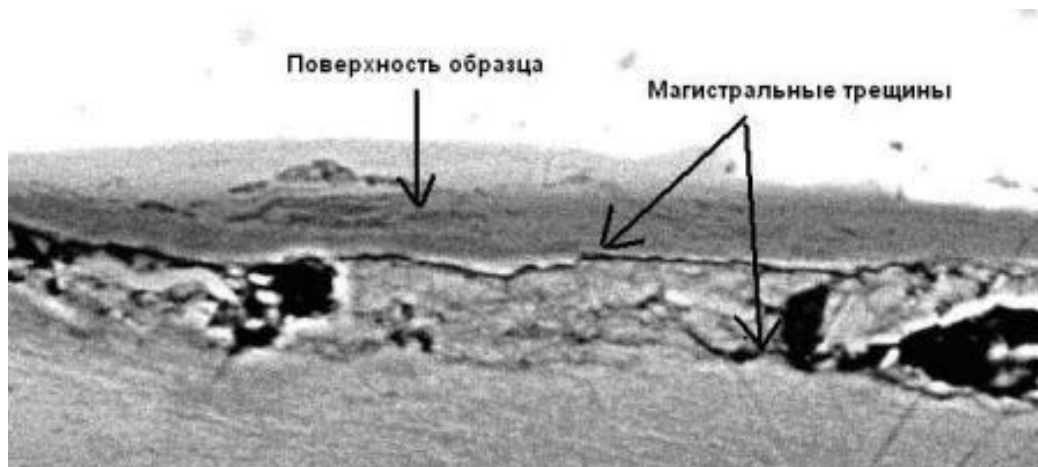


Рисунок 3.3 – Структура приповерхностного слоя образца (58,9 сна)

Установлено, что глубина проникновения межкристаллитной коррозии на внутренней поверхности стенки выше, чем на наружной поверхности стенки чехла и возрастает с увеличением значения повреждающей дозы (рисунок 3.4). В результате анализа полученных экспериментальных данных установлены зависимости коррозионного разрушения поверхности материала от дозы облучения (рисунок 3.4).

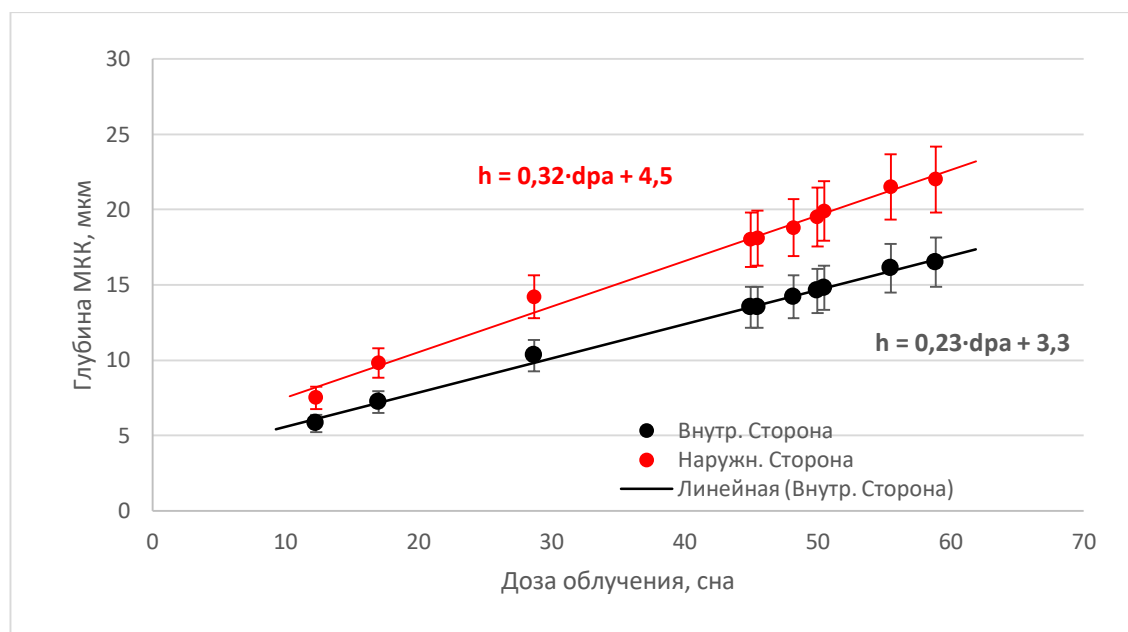


Рисунок 3.4 – Глубина проникновения межкристаллитной коррозии в зависимости от повреждающих доз

В основном, структура всех высокооблученных образцов стали 12X18H10T однородна, имеет полиэдральное строение аустенита (см. рисунок 3.5). В структуре образцов имеется большое количество мелкодисперсных включений с размерами около 1 мкм, которые расположены как по границам зерен, так и в теле зерна. Мелкие включения это, вероятно, дисперсные карбиды типа $Me_{23}C_6$. Наибольшее число дисперсных включений обнаружено при дозе облучения 58,9 сна, а самое незначительное содержание дисперсных выделений обнаружены на образцах, облученных до повреждающих доз 12,3 сна.

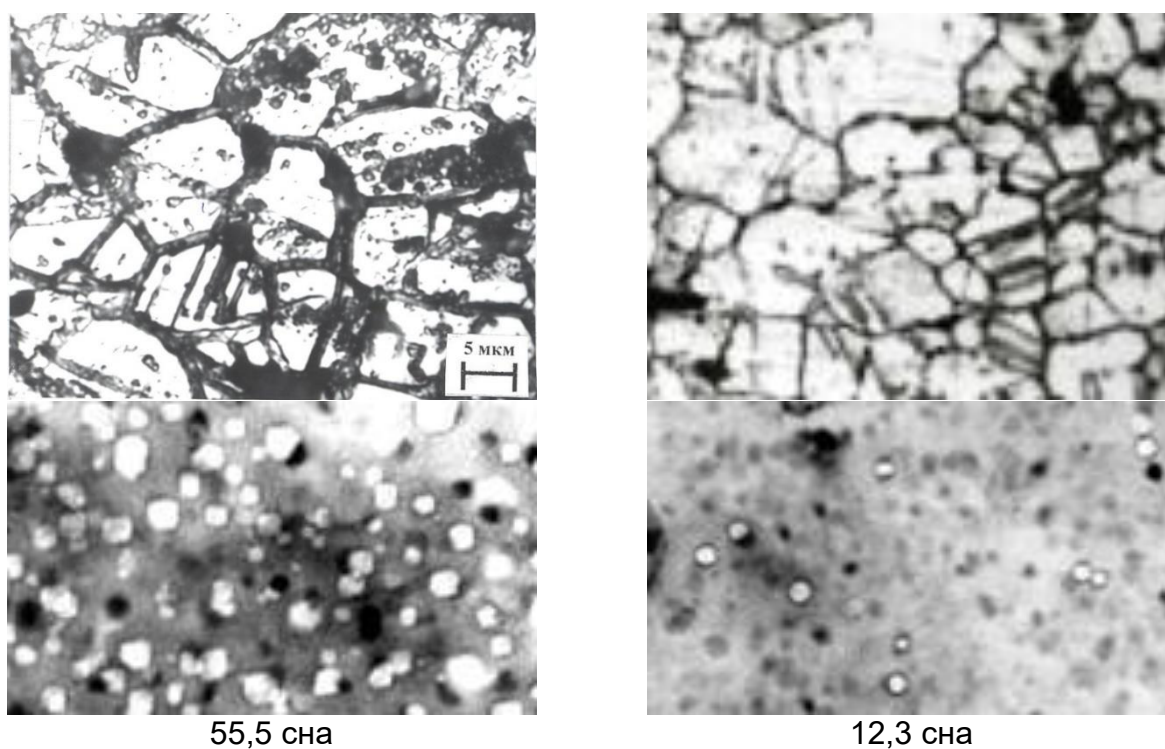


Рисунок 3.5 – Структура высокооблученных образцов

С целью идентификации мелкодисперсных включений была проведена съемка поверхности шлифа с применением ЭДС анализатора. Распределение элементов на участке шлифа приведено на рисунке 3.6. Изображение было получено на шлифе после механической полировки. В результате ЭДС-картирования были зафиксированы включения размерами не более 2 мкм, которые состояли, в основном, из хрома и углерода, что позволяет идентифицировать их как $M_{23}C_6$).

В результате металлографических исследований выявлено, что структура облученного материала в целом схожа со структурой необлученного, но наблюдается тенденция увеличения количества вторичных фаз. С ростом дозы облучения в структуре увеличивается количество мелкодисперсных включений. Полученные данные согласуются с результатами аналогичных исследований отечественных и зарубежных ученых [49,50], которыми было практически доказано, что микроструктура нержавеющей аустенитной стали после облучения характеризуется высокой концентрацией дислокационных петель, мелких дефектных петель Франка вакансионной и межузельной природы, а также наличием карбидов $M_{23}C$ и TiC , образующихся в теле и по границам зерен.

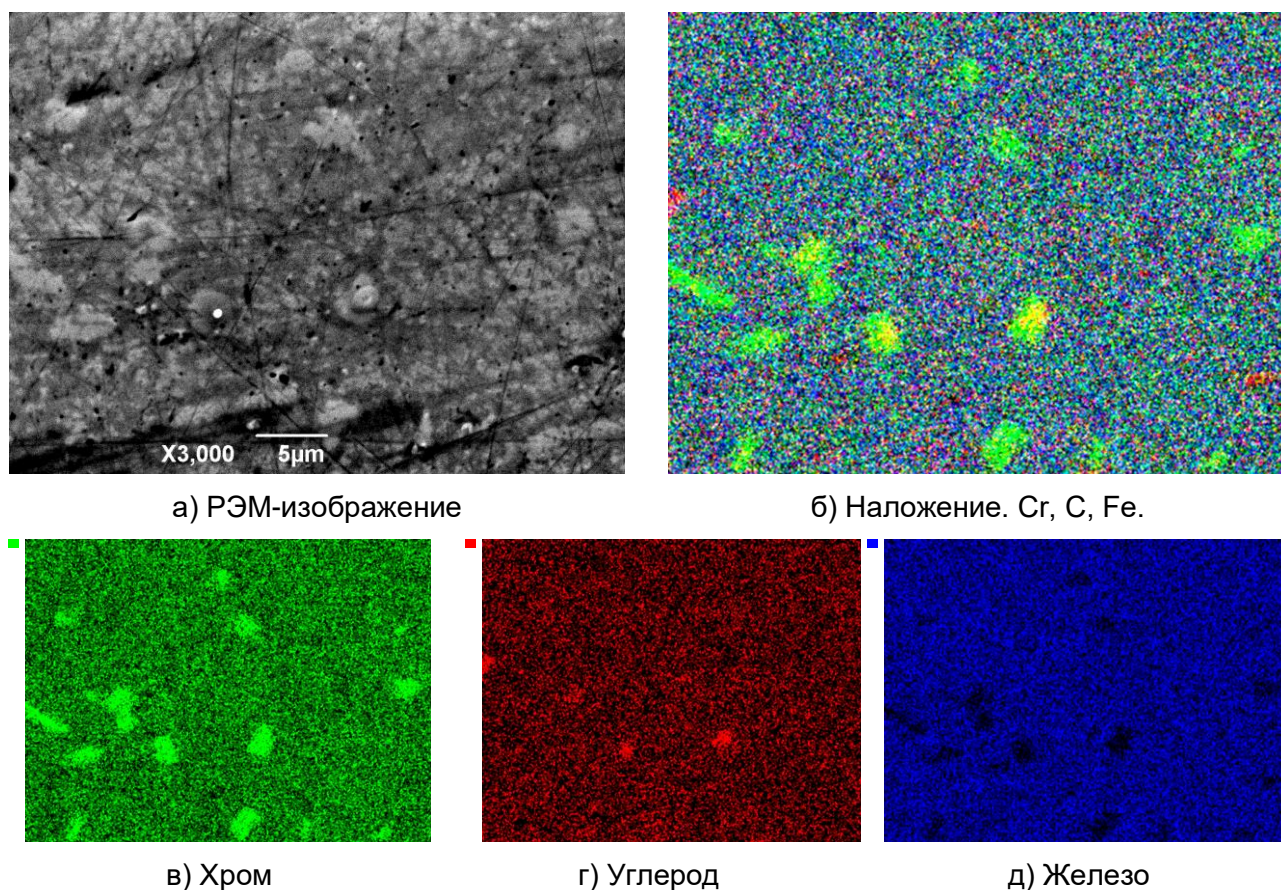


Рисунок 3.6 – Пространственное распределение элементов на поверхности облученного образца

Оценка степени набухания материала стенки чехла ОТВС выполнялась посредством определения плотности материала методом прецизионного гидростатического взвешивания. Взвешивание проводилась не на исходных, массивных образцах, на поверхностях которых имеются продукты коррозии, а на микрообразцах, вырезанных из массивного образца - преимущественно из внутренних и наружных поверхностей. Результаты определения плотности материала стенки чехла ОТВС различных типов представлены на рисунке 3.7.

Структура стали 09X16H15M3Б после реакторного облучения характеризуется равноосными зёрнами аустенита (γ -железо) с крупными и мелкими включениями (рисунок 3.8). При дозах облучения до 48 сна зёрна аустенита имеют прямые края, и характерные двойники. При дозе облучения 50,5

сна зерна аустенита имеют закругленные края, без двойников. В структуре присутствует множество неметаллических включений примесных элементов.

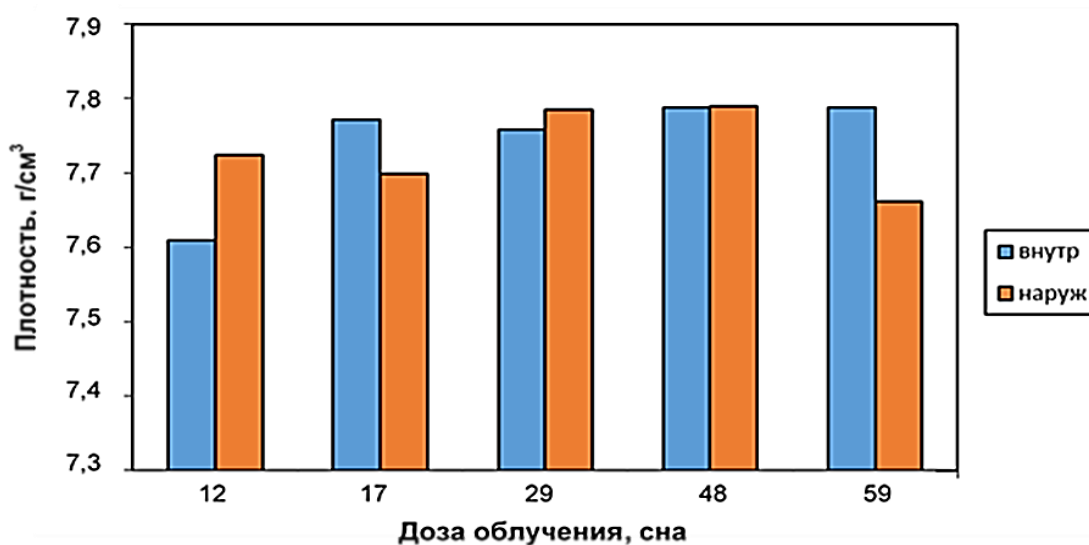


Рисунок 3.7 – Значение плотности образцов внутренней и наружной стенки чехла ОТВС различных типов

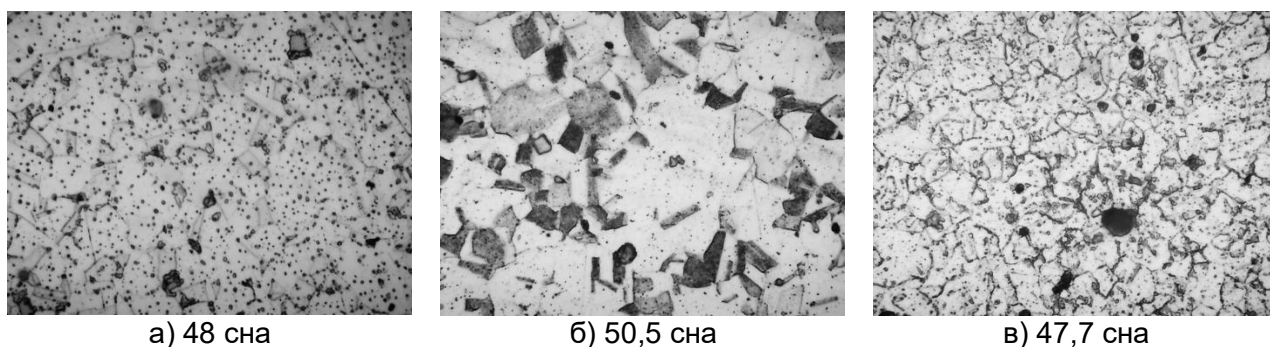


Рисунок 3.8 – Микроструктура поперечного сечения облученных образцов стали 09X16N15M3Б. Увеличение 1000×

В продольном сечении присутствует слегка полосчатое расположение крупных неметаллических включений, а ориентированность зерен аустенита не наблюдается (рисунок 3.9).

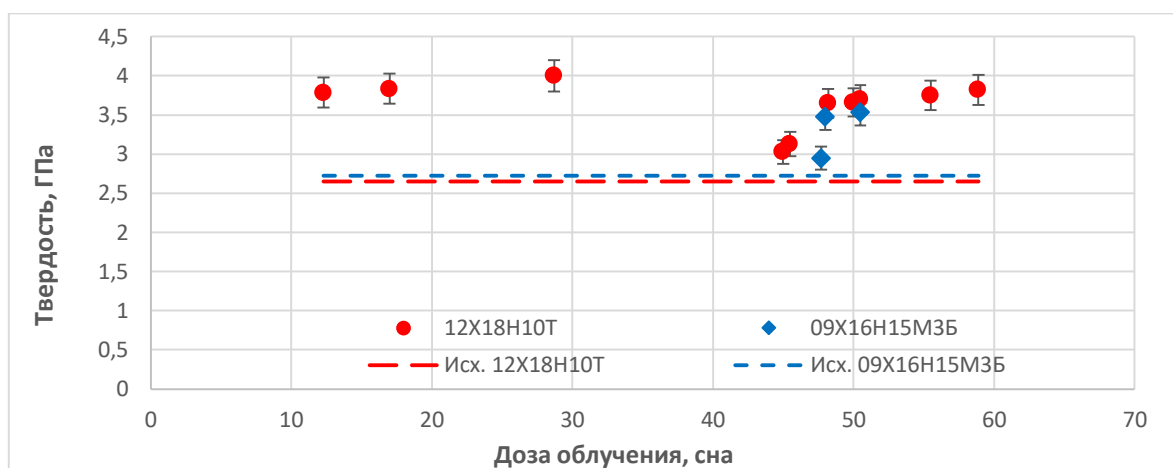


Рисунок 3.10 – Изменения механических свойств в зависимости от повреждающих доз

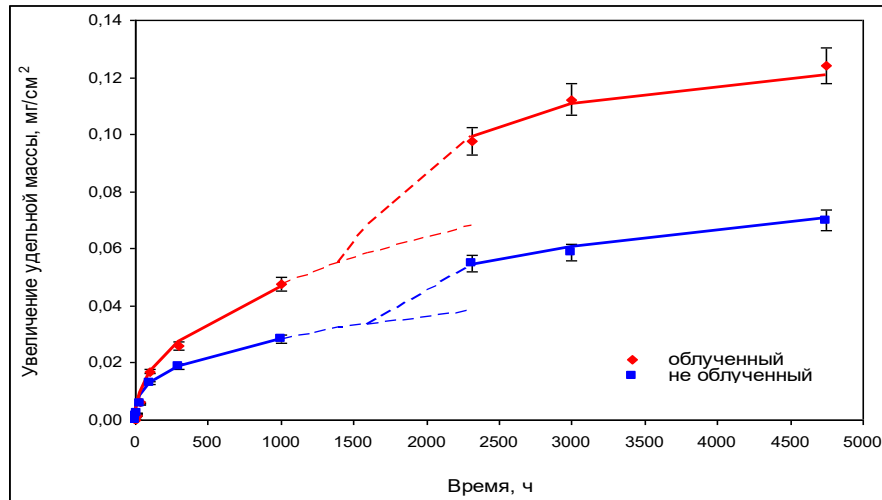
Согласно результатам измерений, после облучения стальные образцы имели повышенную поверхностную твердость, обусловленную наличием в структуре радиационных дефектов [48, 61, 70, 52, 53]. Измерения выявили незначительное различие величин микротвердости для образцов с дозами облучения, изменяющимися в интервале 12 – 58.9 сна. Это согласуется с известными литературными данными и объясняется эффектом насыщения радиационного упрочнения стали после преодоления условного порогового значения дозы облучения в 2 – 5 сна [54]. Максимальное значение прочности ($\sigma_b = 1256$ МПа) соответствует дозе облучения 58,9 сна, а самое низкое значение остаточной пластичности (менее 1 %) получено при дозе облучения 47,7 сна.

3.2 Термические испытания облученных и необлученных образцов

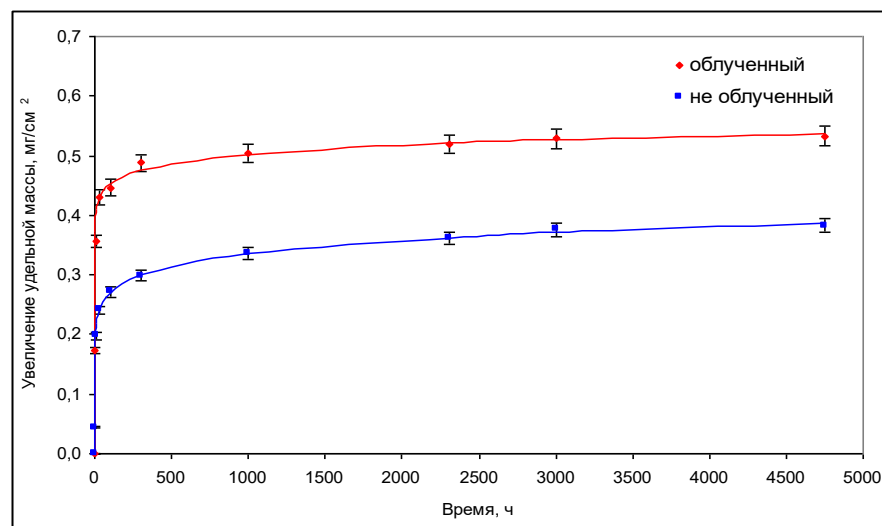
Термические испытания облученных и необлученных образцов на воздухе (моделирование аварийного режима сухого хранения) проводилось в муфельной печи при температурах 300, 400, 550 и 600 °С. Суммарное время старения для каждой температуры составило 4750 ч. Зависимость изменения массы образцов от времени при температурах 400 и 600 °С представлена на рисунке 3.11.

Как видно из рисунка 3.11, скорость коррозии у облученных образцов приблизительно в 1,5 раза выше, чем у необлученных образцов. При 400 °С во

временном интервале от 1000 до 2500 ч наблюдается резкое увеличение массы. Вероятнее всего, это связано с разрушением оксидной пленки и диффузией кислорода в глубь металла, вследствие чего образуется новый коррозионный слой.



а



б

Рисунок 3.11 – Кинетика изменения массы образцов при температурах 400 °С (а) и 600 °С (б)

Термические испытания в среде аргона проводилось при температурах 300, 400 и 550 °С. Суммарное время старения для каждой температуры составило около 7000 ч. Зависимость изменения массы образцов от времени при температурах 300, 400 и 550 °С представлена на рисунке 3.12.

Как видно из рисунка 3.12, при всех температурах испытаний в среде аргона увеличение удельной массы у необлученных образцов больше, чем облученных. Это противоречит результатам, полученным при испытаниях на воздухе [54]. Можно видеть, что в начале эксперимента наблюдается потеря массы, которая с уменьшением температуры увеличивается во времени. Максимальная потеря массы обнаружена при температуре 400 °С и составляет около 0,03 % от массы исходного образца. По-видимому, это явление следует объяснить дегазацией образцов и (или) старением материала.

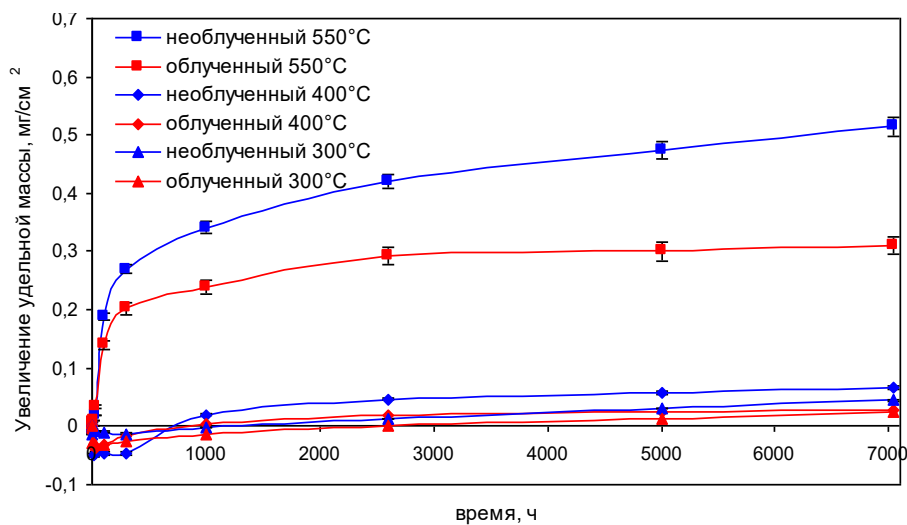


Рисунок 3.12 – Кинетика окисления образцов при температурах 300, 400 и 550 °С в аргоне [55]

Высокотемпературный отжиг образцов приводит к их термическому старению, в результате которого происходит изменение структуры, которое приводит к изменению плотности. Если предположить, что изменения объема в результате роста оксидной пленки в первые часы отжига незначительны, то уменьшения массы объясняется уменьшением плотности, следовательно, процессом термического старения.

Анализ экспериментальных данных по термическим испытаниям облученных и необлученных материалов реактора БН-350 показывает, что в аварийных условиях (в воздухе) облученные образцы корродируют значительно, чем необлученные. Экспериментальные зависимости изменения массы от времени,

полученные в среде аргона, являются результирующими двух процессов – термического старения и коррозии.

С целью характеристики окисного слоя, образовавшегося после длительных отжигов на воздухе, были проведены электронно-микроскопические исследования окисленных образцов. На рисунке 3.13 приведена структура окисного слоя необлученного образца стали 12Х18Н10Т. Хорошо различимы два подслоя. Видно, что верхний слой представляет собой отдельные кристаллиты, связанные между собой тонкими окисными прослойками. Верхний рыхлый слой может быть отделен от нижнего слоя даже при незначительном усилии. В то же время второй тонкий слой представляется более плотным и хорошо сцепленным с матрицей.

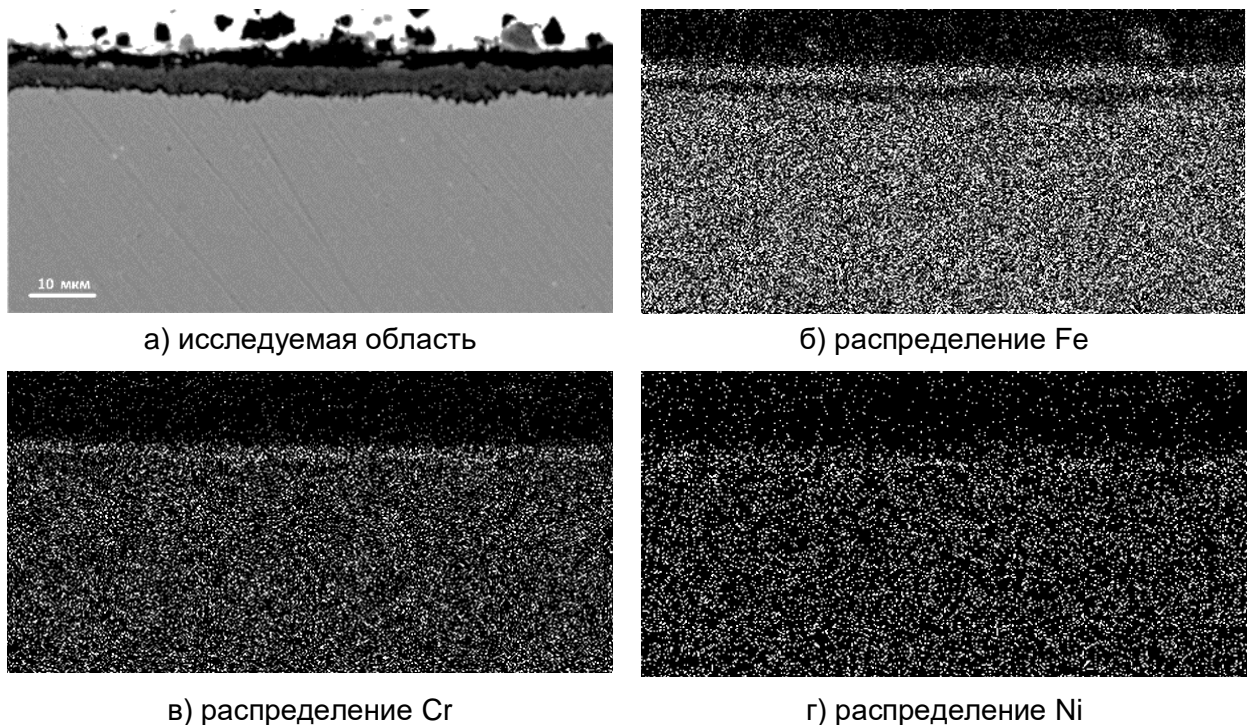
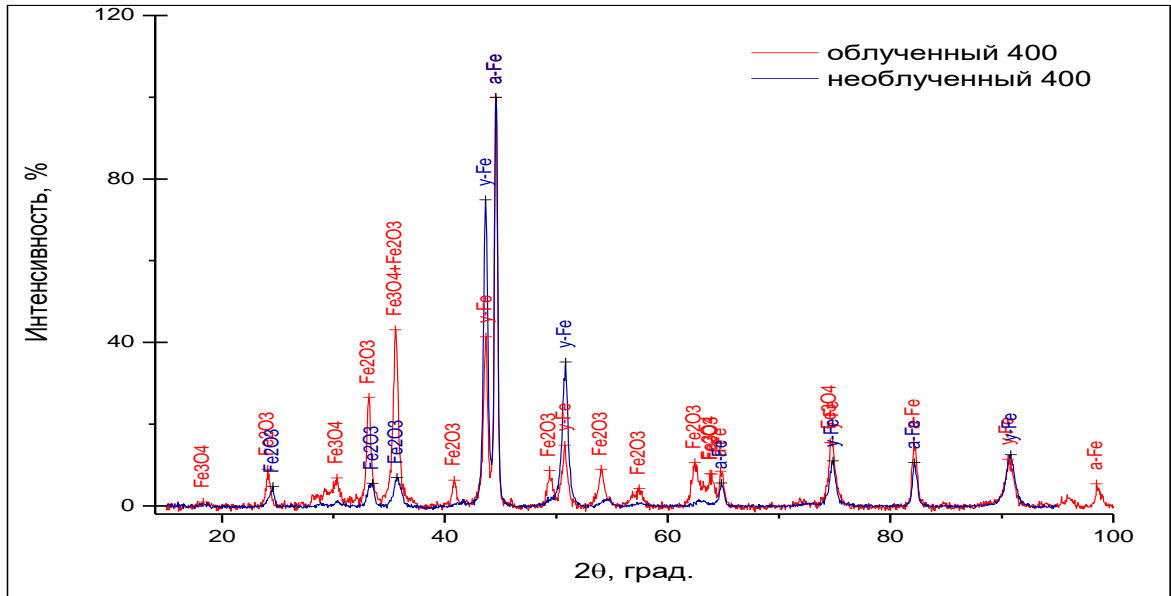


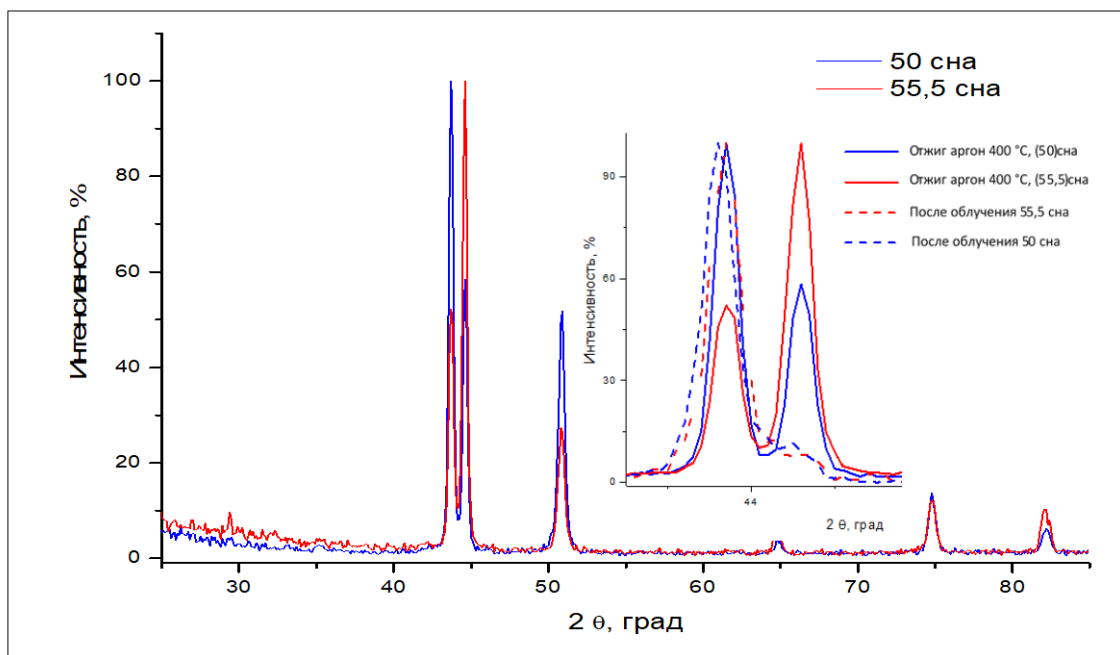
Рисунок 3.13 – Структура окарины, образовавшейся после длительного отжига при температуре 600 °С

Анализ химического состава слоев показал, что верхний слой состоит, в основном, из окислов железа, тогда как нижний – из окислов хрома и никеля.

На рисунке 3.14 представлены дифрактограммы поверхности образцов облученных образцов стали 12Х18Н10Т до и после термических испытаний в среде аргона и воздуха.



а)



б)

Рисунок 3.14 — Дифрактограммы поверхностей образцов до и после длительного испытания при температуре 400 °С: а) в среде воздуха; б) в среде аргона

Идентификация пиков отражения показала присутствие окислов железа типа Fe_3O_4 (магнетит) и Fe_2O_3 (гематит). Относительное процентное соотношение объемных долей окислов железа Fe_3O_4 к Fe_2O_3 для облученных и необлученных

образцов после отжига при температуре 400 °С составило приблизительно по 50 %, а при температуре 600 °С - около 20 и 80 % соответственно. На дифрактограммах, наряду с линиями окислов железа, наблюдаются линии α -Fe с увеличенными параметрами решетки, которая, вероятнее всего, является ОЦК-решеткой железа с растворенным кислородом. При этом γ - α -превращения железа обусловлены старением материала.

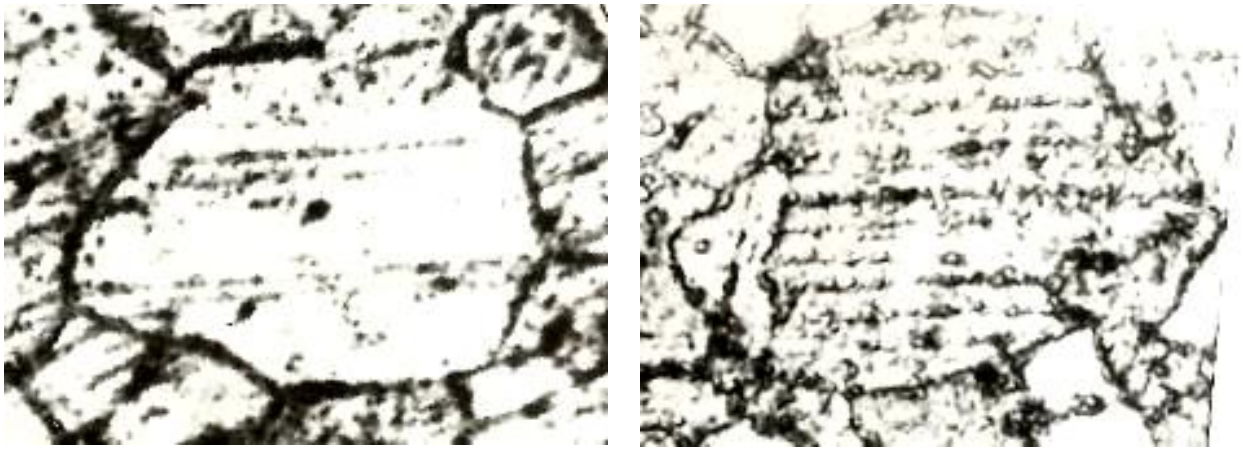
В результате идентификации пиков отражения установлено, что на поверхности образца (рисунок 3.14б) отсутствуют линии оксидов железа. В структуре приповерхностного слоя преобладают α и γ -фазы железа. В образце, облученном до повреждающей дозы 47,7 сна, наблюдается большое количество α -Fe с растворенным кислородом, что свидетельствует о структурно-фазовых изменениях в приповерхностном слое образца. В то же время, фазовый анализ исходных облученных образцов показал незначительное содержание α -Fe. Это объясняется образованием α -мартенсита как в процессе механо-термической обработки чехлов ТВС во время изготовления, так и в процессе реакторного облучения.

3.3 Характеризация структуры и определение свойств материала после термических испытаний

Материаловедческие исследования состояния облученных образцов после термических испытаний заключались в исследовании микроструктуры, определении гидростатической плотности, микротвердости и прочностных характеристик. Результаты исследований сравнивались с данными для исходного материала, после реакторного облучения.

Из результатов коррозионных испытаний облученных и необлученных образцов чехла ТВС, представленных на рисунке 3.15, установлено, что в начале эксперимента наблюдается потеря массы образцов, одним из объяснений которой может быть термическое старение материала. Для подтверждения протекания

процессов старения был проведен кратковременный отжиг (в течение 1 ч) при температуре 450 °С облученного образца чехла ТВС.



а

б

Рисунок 3.15 – Микроструктура стали 12X18H10T после облучения нейтронами при 370 °С до 53,4 сна (а) и после облучения и отжига при температуре 450 °С в течение 1 ч (б)

Микроструктура образца, выявленная методами металлографии, характеризуется отчетливо видимыми полосами скольжения, на которых в отдельных местах наблюдаются выделения карбидных частиц размером порядка двух-трех микрометров (рисунок 3.15 а).

В металлографической структуре стали после отжига выявилось множество полос скольжения, декорированных карбидными частицами. Отдельные выделения наблюдали также на границах зерен (рисунок 3.15 б). Образование большого числа обособленных карбидных фаз приводит к уменьшению микротвердости и изменению плотности материала.

На рисунке 3.16 представлены изображения изменения микроструктуры материала ОТВС центрального типа ЦЦ-15Т в зависимости от продолжительности изотермического испытания. Изображения микроструктуры были получены на оптическом микроскопе в отраженном свете в режиме светлого поля при увеличении $\times 50$ - $\times 1000$ крат.

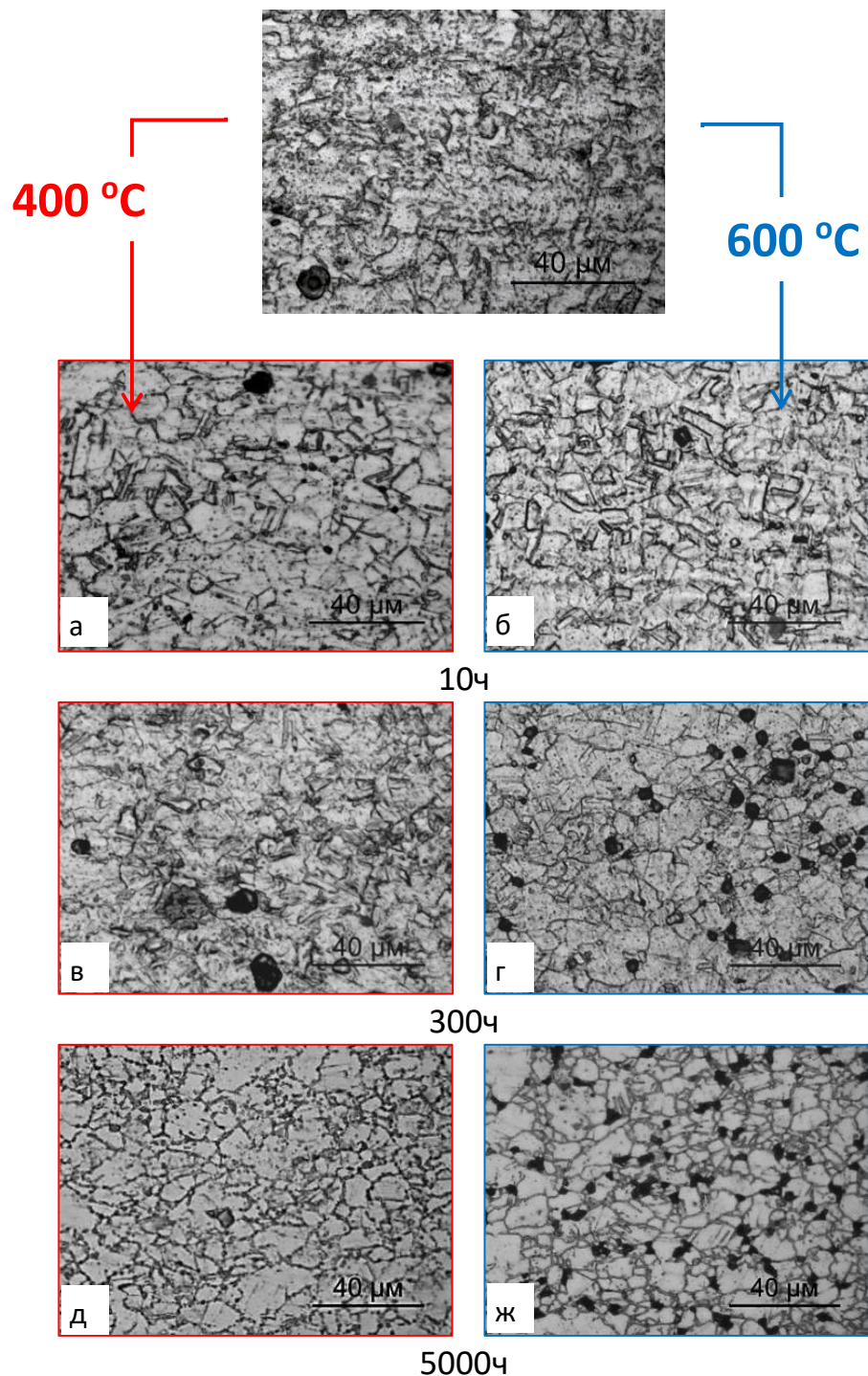


Рисунок 3.16 – Эволюция микроструктуры стали 12X18H10T при изотермическом пострadiационном отжиге

После кратковременного (10 ч) изотермического отжига при температурах 400 °C и 600 °C существенных изменений в структуре материала чехла ОТВС не наблюдалось. Сохранение структуры материала ОТВС из аустенитной стали 12X18H10T при кратковременных (изотермических) отжигах при температурах вплоть до 650 °C отмечается также в работе [56]. Из полученных данных следует,

что до и после кратковременного отжига образцы имеют минимальный размер зерна – (4-6) мкм, соответствующий 12-13 баллу. По границам зерен облученной стали 12Х18Н10Т были обнаружены карбиды типа $Me_{23}C_6$ и большая концентрация вторичных выделений в матрице зерен. Так же в теле зерна наблюдалось содержание крупных включений правильной геометрической формы, предположительно, карбонитридов титана.

Металлографические изображения поверхности отожженных образцов при температуре 400 °С и времени отжига 300 ч показала, незначительный рост среднего размера зерен. Рост содержания мелких выделений в зерне наиболее ярко выражен после 300 ч отжига. После изотермического отжига 5000 ч (400 °С) характерной чертой структуры образца является большое число карбидов металлов (хрома), расположенных по границам зерен (рисунок 3.16 д) и уменьшение концентрации вторичных выделений в матрице зерна. Так же зафиксирован рост среднего размера зерен до 14 мкм, что соответствует 10-11 баллу.

Длительное старение при 600 °С до 300ч привело к увеличению концентрации и размера выделений карбидов (типа $Me_{23}C_6$), которые преимущественно расположены по границам зерен. Необходимо отметить что, слабыми местами скопления карбидов являются тройные стыки зерен как видно из рисунка 3.16 г.

Значительные изменения в структуре материала (увеличение размера зерен) наблюдается при продолжительности испытаний 5000 ч. Исследования показали рост среднего размера зерен в результате увеличения времени отжига. После испытаний с выдержкой 5000 ч образцы имеют минимальный размер зерна – (18-20) мкм, соответствующий 7-8 баллу. Замечено, что при длительном воздействии высоких температур происходит растворение мелких включений в теле зерна, которые уже встречаются эпизодически. Так же выявлено большое количество мелких зерен с рекристаллизованной микроструктурой, не содержащих вторичных выделений.

Авторы работы [57] получали схожие результаты, при температурах испытания от 650 °С до 1050 °С с выдержкой от 10 мин до 1 ч. Таким образом, можно предположить, что схожие изменения в микроструктуре: размер зерна,

концентрация вторичных выделений, вытеснение карбидов на границы зерен и скопление их на тройных стыках, происходит не только при увеличении температуры испытания в кратковременных промежутках (650 °С-1050 °С изохорный отжиг), но и при длительном воздействии высоких температур (5000 ч, 400 °С, 600 °С, изотермически отжиг).

После испытаний (5000 ч, 600 °С) зафиксирована коагуляция карбидов типа $Me_{23}C_6$, расположенных по границам зерен, на более крупные, которые уже практически полностью вытеснены на тройные стыки зерен (рисунок 3.17 в), при этом на границах зерен зафиксировано обеднение Cr, что хорошо наблюдается при картировании поверхности образцов (рисунок 3.17 е). Интересен и тот факт, что обеднение Cr на границах зерен не наблюдается при времени старении 300 ч, хотя уже при этих условиях наблюдалось образование карбидов на тройных стыках. Можно предположить, что с увеличением времени старения при температуре 600 °С, хром на границах зерен затрачен на коагуляцию крупных карбидов типа $Me_{23}C_6$ на тройных стыках.

При проведении картирования на образце ОТВС после 5000 ч (600 °С) испытаний на местах образования крупных карбидов типа $Me_{23}C_6$ зафиксировано высокое содержание магния (рисунок 3.17 г). Так же были выявлены выделения размерами 2-3 мкм с высоким содержанием титана и никеля (рисунок 3.17 д, е).

По результатам рентгеноструктурного анализа, фазовый состав образцов представлен основной фазой раствора γ -(Fe, Cr, Ni, ...) с ГЦК решеткой (аустенит). Кроме линий основной фазы, на дифрактограммах практически всех образцов выявлены линии фазы α -(Fe, Cr, Ni, ...) с ОЦК или ОЦТ решеткой (феррит или мартенсит, рисунок 3.18). Интенсивность линий фазы различна как для разных образцов, так и для двух сторон каждого образца и имеет повышенные значения для образцов, прошедших испытания при 5000 ч без явно выявленной зависимости от температуры.

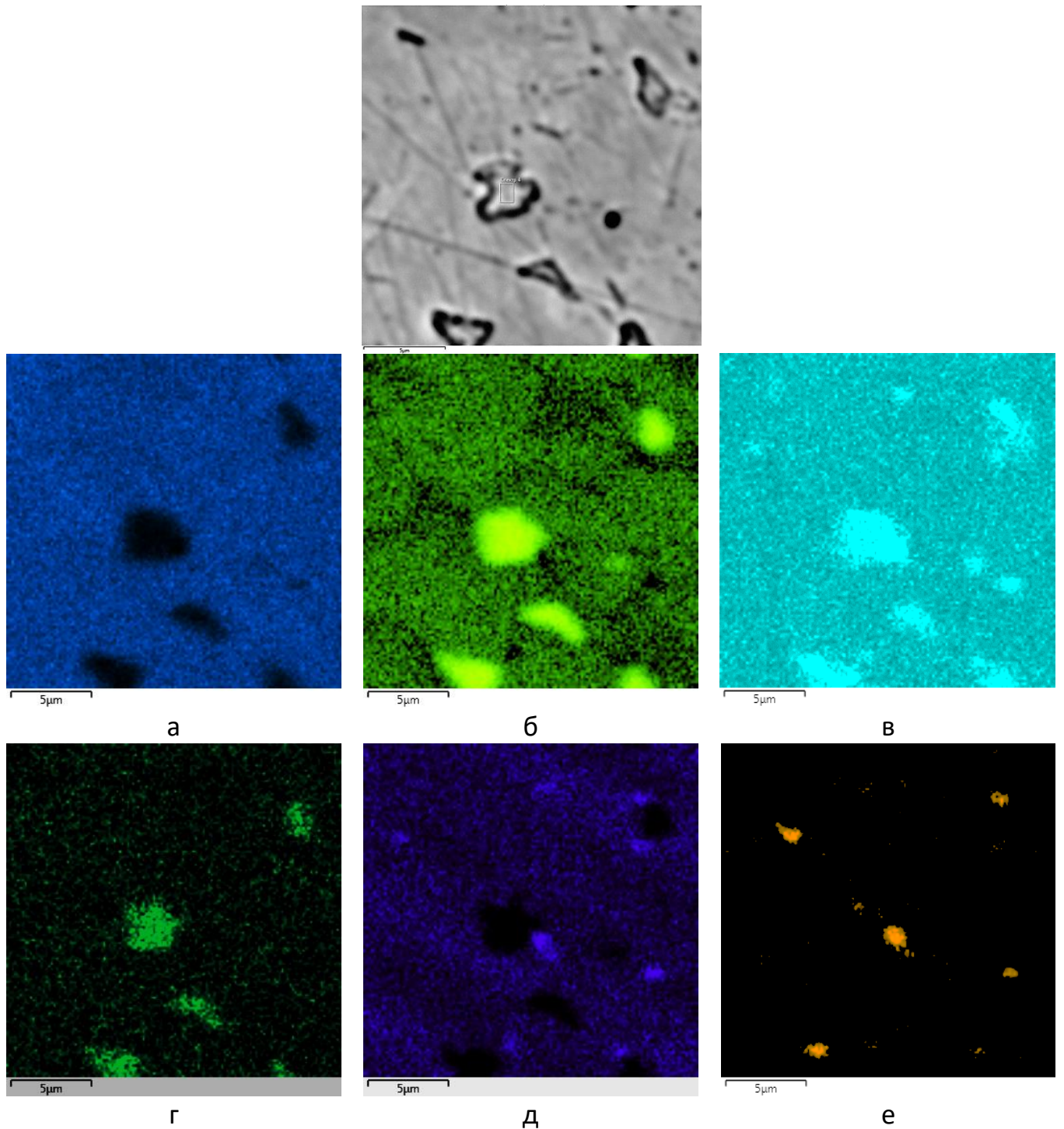


Рисунок 3.17 – Результаты исследований пространственного распределения элементов в образце чехла ОТВС экранного типа ЦЦ-15Т после длительного старения (5000 ч ,600 °С, изотермический отжиг) а) Fe б) Cr в) С г) Mn д) Ni е) Ti

Следует заключить, что увеличение длительности отжига при 400 °С не приводит к значительной релаксации деформационных дефектов упаковки, но может привести к изменениям параметров решетки аустенитной фазы в случае

продолжения распада аустенита с образованием ферритной фазы в приповерхностных слоях материала.

Увеличение длительности отжига при 600 °С на воздухе должно привести к увеличению слоя окислов на поверхности образцов, окончательному исчезновению ферритной фазы и более полной релаксации деформационных дефектов упаковки в зернах аустенита, которое должно привести к снижению эффективного значения параметра решетки.

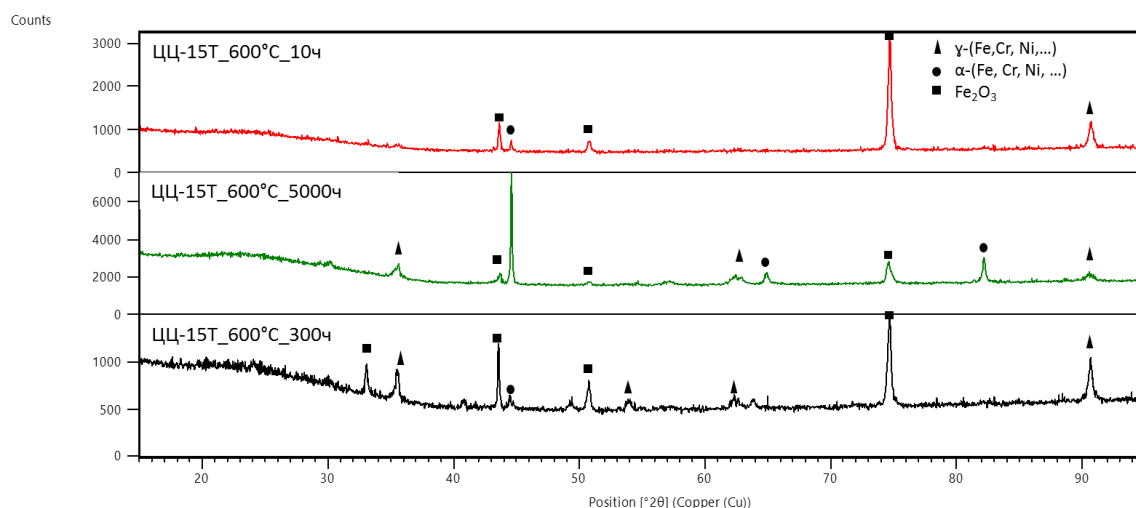


Рисунок 3.18 – Дифрактограммы образцов после испытаний в среде воздуха:

Выявить и зафиксировать распределение α -фазы в облученных образцах, после испытаний, с помощью оптического и сканирующего электронного микроскопа не представлялось возможным, так как по литературным данным трудность визуальной регистрации α -фазы, объясняется очень высокой хрупкостью данной фазы, вследствие чего относительно тонкие пластины α -фазы при приготовлении микрошлифов выкрашиваются [58]. Для детального рассмотрения образования и выявления формы его распределение в образцах ОТВС при длительном старении, необходимо пересмотреть методы и подходы пробоподготовки.

Изображения ПЭМ облученной стали 12Х18Н10Т с последующим старением при 550 °С в течение 2600 ч (рисунок 3.19) отражают наиболее заметные микроструктурные характеристики материала. Установлено, что средний размер пустот составляет ~ 30 нм с объемной долей пустот ~ 10 %. Наблюдаемая плотность

дислокаций относительно невелика, что более типично для термически состаренных материалов. Наблюдалось, что в матрице случайным образом распределены крупные (~ 130 нм) и мелкие (до 30 нм) сферические включения, которые в основном состояли из первичных и вторичных карбидов титана. Сферические или эллиптические частицы были также расположены на границах зерен. Облученная сталь характеризовалась наличием оголенных зон на границах зерен.

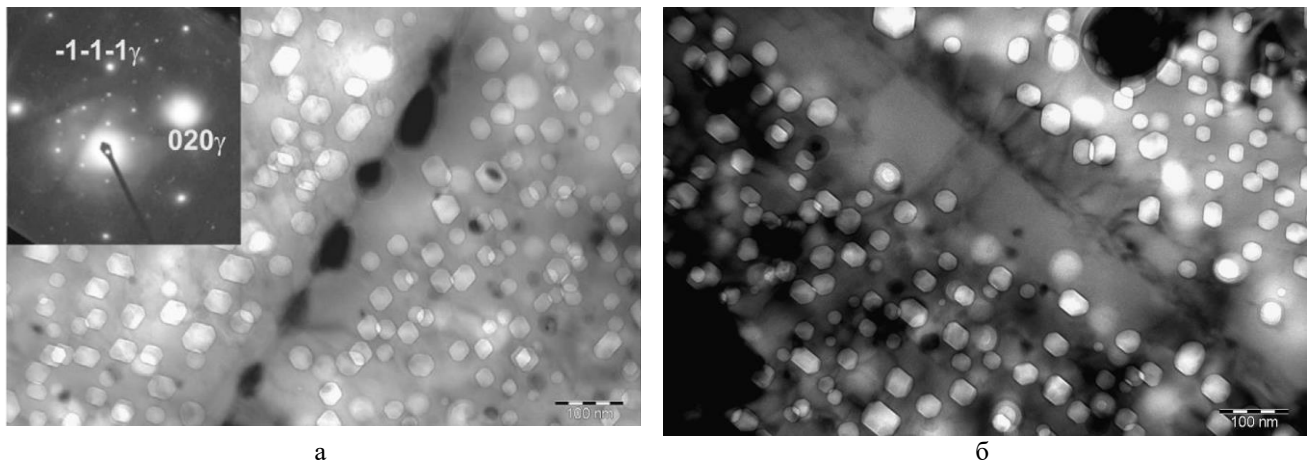


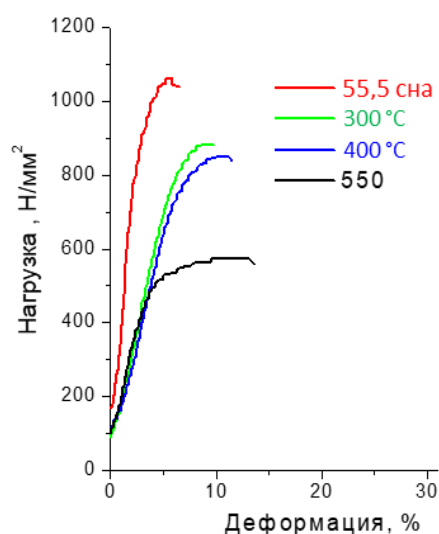
Рисунок 3.19 – ПЭМ-изображения и дифракционные картины облученной стали после старения при 550 ° С в течение 2600 часов в аргоне: а) включения $Me_{23}C_6$ на границе зерна; б) оголенные зоны на границе зерна

Характерной особенностью наблюдаемых включений является сложная морфология, которая часто дает ошибочное впечатление от одной частицы. Одним из примеров является сегрегация первичного TiC , окруженного экраном вторичного $Cr_{23}C_6$ (рисунок 3.19а), наблюдаемого на границах зерен и в матрице.

Комплексная морфология включений была дополнительно подтверждена картированием EDS распределения элементов на границах зерен стали 12X18H10T, облученной нейтронами. Полученные данные показывают, что накопление легирующих элементов наблюдается на границах зерен, а крупные включения характеризуются повышенной концентрацией Ti в центральной части включения, а периферия окружена Cr и Ni .

Долговременный отжиг при 550 °С в течение 2600 часов привел к росту значения плотности (7,44 г/см²), что тем не менее ниже этой величины для исходной стали (7,86 г/см²). Поскольку плотность облученного материала даже после долговременного отжига при 550 °С остается ниже, чем у исходной стали, при более высоких температурах, сопоставимых с температурой рекристаллизации, следует ожидать возврата плотности к исходным значениям (7,86 г/см²) и соответствующего изменения линейных размеров объектов.

Длительные термические испытания, выполненные при температуре 300-550° С, иллюстрируют некоторое снижение прочностных характеристик испытываемых материалов. На представленных зависимостях (рисунок 3.20) видно, что повышение температуры испытаний облученной стали от комнатной до 550 °С привело к снижению механических свойств, что согласуется с общепринятым представлениями о том, что с увеличением температуры испытаний характеристики прочности снижаются. Пластичность, характеризуемая относительным удлинением δ , с повышением температуры испытаний возрастет. Эффективность восстановления критической температуры хрупкости при отжиге материалов при температуре 550°С значительно выше, чем образцов которые отжигались при 300 и 400°С. Соответственно, при повышении температуры отжига процесс восстановления исходных характеристик идет эффективнее.



	$\sigma_{в}$, МПа	σ_{02} , МПа
Без отжига	1063	703
Отжиг 300 °С	882	680
Отжиг 400 °С	848	630
Отжиг 550 °С	573	380

Рисунок 3.20 – Диаграмма растяжения образцов после термических испытаний

Эффект разупрочнения облученных образцов стали после термических испытания подтверждают также результаты определения твердости (рисунок 3.21). Как видно из результатов, в зависимости от температуры термического воздействия происходит сближение значений пределов текучести и временного сопротивления образцов. Согласно полученным результатам, даже при условии нахождения результатов измерения в пределах погрешности, можно отметить следующий интересный момент: результаты измерения твердости образцов, вырезанных из сборок центрального чехла (48 и 59 сна), сгруппированы и находятся на нижней границе предела погрешности, тогда как результаты для образцов, вырезанных из сборок экранных чехлов 12,17 и 29 сна, сгруппированы и находятся на верхней границе предела погрешности.

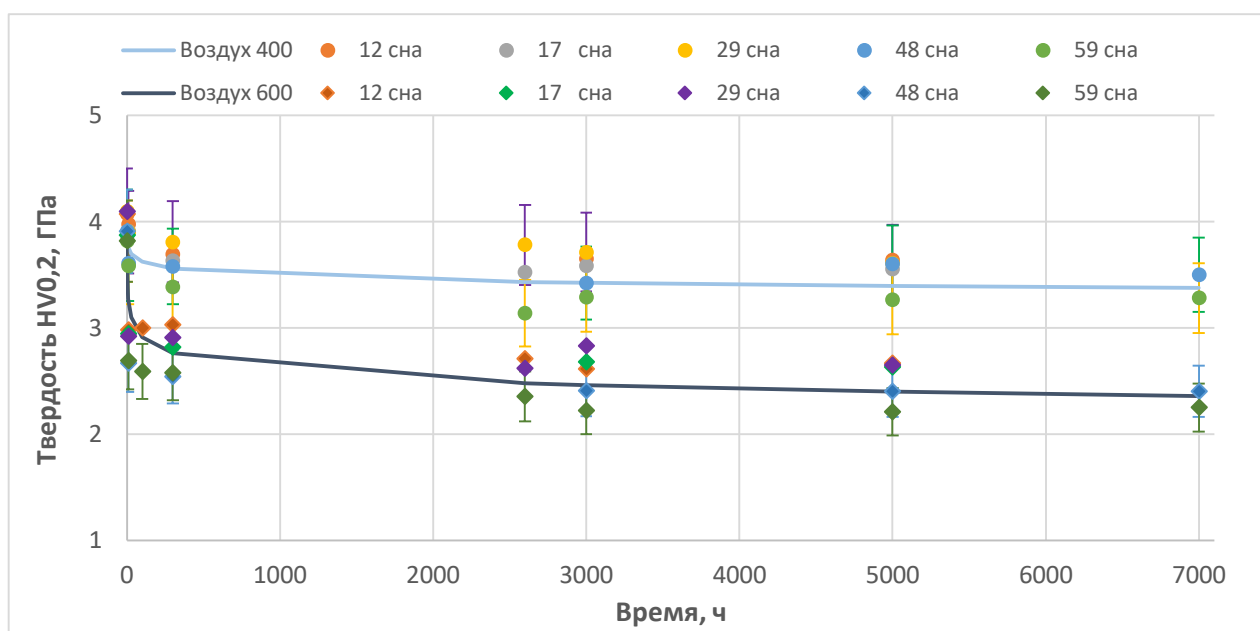


Рисунок 3.21 – Изменение твердости образцов в зависимости от длительности испытаний

Кривая изменения твердости облученного стального образца материала чехла ОТВС экранного типа представлена на рисунке 3.22. На графике совмещены результаты измерений, полученных для образцов после изотермического отжига при температуре 400 °C и 600 °C с длительностью до 5000 ч.

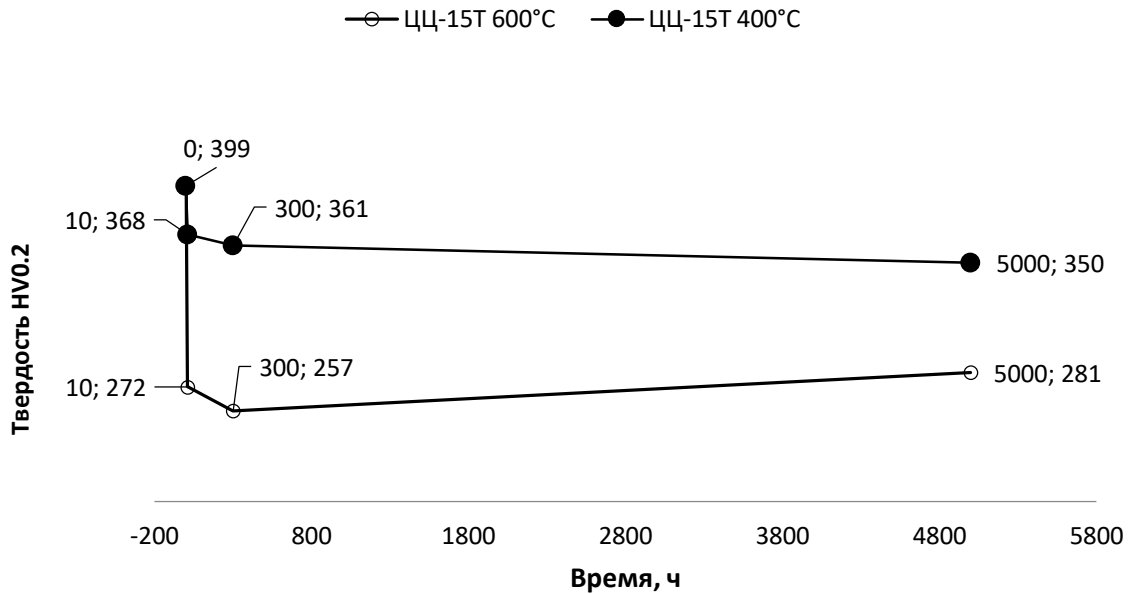


Рисунок 3.22 – Влияние пострadiационного изотермического отжига на микротвердость облученной стали

При температуре 400 °C изотермического отжига с ростом длительности времени старения зафиксирована уменьшение микротвердости до 14 %. После 300 ч отжига наблюдается некоторое замедление снижения микротвердости, возможно связанное с образованием когерентных мелкодисперсных выделений и карбидов, которые образовались при длительном изотермическом отжиге.

При температуре 600 °C изотермического отжига видно, что падение прироста микротвердости на 68 % произошло уже при выдержке 10 ч. Необходимо отметить тот факт, что падение микротвердости до 68 % происходит не при выдержке 10 ч, а уже при нагреве и охлаждении материала (без выдержки). Данный факт был зарегистрирован авторами работ [56]. Последующая выдержка образцов в течении 300 ч приводит к уменьшению значений микротвердости. После увеличения времени выдержки до 5000 ч имеет место небольшое увеличение микротвердости.

Авторы работ [8] при изохронных отжиге (при температуре 1050 °C) получали схожую кривую зависимости микротвердости и предполагали, что основной вклад в упрочнение при повышении температуры вносят строчечные глобулярные карбиды титана и пластинчатые карбиды $Me_{23}C_6$, частично когерентные с аустенитной матрицей. Можно предположить, что данное

упрочнение происходит не только с увеличением температуры, но и при увеличении времени выдержки до 5000 ч при постоянной (600 °С) температуре отжига.

Длительные эксперименты по термическому старению, выполненные между 300 – 550 °С, иллюстрируют некоторое снижение прочностных характеристик состаренных материалов. Старение в течение 2600 ч и 7000 ч, как ожидалось, привело к уменьшению микротвердости по сравнению с исходными значениями. Средний размер зерна материала, отожженного в течение 2600 ч, незначительно увеличился от 12 мкм (300 °С) до 15 мкм (550 °С). Аналогичная скорость роста зерна наблюдалась для образцов, отожженных в течение 7000 ч, что характеризует стабильность микроструктуры зерна в этой стали при данных температурах.

3.4 Выводы по главе 3

1. За время эксплуатации в составе активной зоны реактора БН-350 материалы получили различные повреждения на внутренних и внешних поверхностях. При исследовании структуры поверхности обнаружены следы межкристаллитной и питтинговой коррозии. Установлено, что с ростом дозы облучения глубина межкристаллитного коррозионного повреждения поверхности материала увеличивается по линейному закону.

2. Особенностью высокодозного облучения в условиях БН-350 является начало массового образования вторичных фаз еще до достижения «видимого» порога распухания. С ростом температуры облучения плотность вторичных выделений падает, а их средний размер растет.

3. Результаты исследований механических свойств образцов подтвердили известные данные об упрочнении и снижении пластичности при облучении материала аустенитного класса. При этом различия величин твердости для образцов с дозами облучения от 12 до 58.9 сна незначительны и объясняются эффектом насыщения после преодоления условного порогового значения дозы облучения в 2 – 5 сна. Максимальные значения твердости обнаружены при дозе

облучения 28 сна ($HV_{0,2} = 4$ ГПа). Максимальное значение прочности ($\sigma_b = 1256$ МПа) соответствует дозе облучения 58,9 сна. Минимальное значение остаточной пластичности (менее 1 %) обнаружено при дозе облучения 55,5 сна.

4. В результате изотермического воздействия на поверхности образцов образуются продукты коррозии, толщина которых зависит от температуры и длительности воздействия. При температурах 300 и 400 °С в среде аргона на поверхности материала образуется тонкий налет, толщиной менее 1 мкм, представляющий твердый раствор кислорода в решетке α -Fe.

5. В структуре стали после кратковременного термического воздействия выявилось множество полос скольжения, декорированных карбидными частицами. Увеличение длительности термических испытаний приводит к их коагуляции и последующей миграции к границам зерен. В структуре материала образуются пустоты со средним размером ~ 30 нм. В матрице обнаружены крупные (~ 130 нм) и мелкие (до 30 нм) сферические включения, которые, в основном, состоят из первичных и вторичных карбидов титана.

6. В результате пострадиационного термического воздействия происходит миграция атомов никеля и хрома, что приводит к расслоению твердого раствора с образованием концентрационных неоднородностей. Процесс перераспределения атомов сопровождается изменением механических свойств. При нагреве образуются выделения вторичных фаз ($Cr_{23}C_6$), в результате чего наблюдается увеличение внутренних напряжений и, как следствие, происходит дополнительное упрочнение материала. После обособления карбидных частиц внутренние напряжения релаксируют, что и приводит к разупрочнению материала и восстановлению прочностных свойств.

7. Установлено, что процесс разупрочнения облученного материала зависит от условий облучения и температуры нагрева. При этом среда нагрева вносит вклад в разупрочнение только в первые 10 часов. При температуре 550 °С и дозе облучения 47,7 сна наблюдается снижение (55%) предела прочности материала, снижение твердости на 12%, и увеличение пластичности до 8%.

4 ПРОГНОЗИРОВАНИЕ КОРРОЗИОННОГО ПОВРЕЖДЕНИЯ И ИЗМЕНЕНИЯ МЕХАНИЧЕСКИХ СВОЙСТВ

4.1 Прогнозирование коррозионного повреждения облученных материалов.

При оценке коррозионной устойчивости металлов наиболее распространён гравиметрический метод [59]. Он применяется в двух вариантах: определение увеличения удельной массы образца вследствие образования продуктов коррозии на его поверхности (положительный показатель) и определение потерь массы после удаления продуктов коррозии (отрицательный показатель). Положительный показатель изменения массы является основным, используемым для определения кинетики коррозионного процесса, и вычисляется по формуле:

$$K_m^+ = \Delta m / S \cdot \tau, \quad (4.1)$$

где S – суммарная площадь поверхностей образца;

τ – время испытаний;

Δm – разность масс образца до и после испытаний.

Если известен химический состав образующейся окалины, то по положительному показателю изменения массы K_m^+ рассчитывают отрицательный показатель изменения массы K_m^- :

$$K_m^- = K_m^+ \cdot \frac{n_{ок} A_{Me}}{n_{Me} A_{ок}}, \quad (4.2)$$

где A_{Me} – атомная масса металла;

$A_{ок}$ – атомная масса окислителя;

n_{me} – валентность метала;

$n_{ок}$ – валентность окислителя.

От отрицательного показателя изменения массы K_m^- к глубинному показателю K_{II} можно перейти по формуле:

$$K_{II} = \frac{K_m^- \cdot 8.76}{\rho_{Me}}, \quad (4.3)$$

где ρ_{Me} – плотность металла.

При обработке опытных данных широко применяют графические методы, которые служат как для получения наглядного представления о взаимной зависимости исследуемых величин (например, зависимости увеличения массы металла от времени коррозии $\Delta m = f(\tau)$), так и для проведения ряда измерительных и вычислительных операций. Если некоторую зависимость $y = f(x)$ изображать графически, применяя сначала равномерную сетку, а затем различные функциональные сетки, то, очевидно, форма кривой во всех случаях будет не одинаковой. Этим пользуются на практике, выбирая функциональные шкалы на осях координат такого вида, при котором данная кривая получает наиболее простую форму, например, преобразуется в прямую линию. Так, логарифмическая $\lg y = f(\lg x)$ и полулогарифмическая $y = f(\lg x)$ сетки дают возможность преобразовывать ряд кривых в прямые линии или спрямлять кривые (Таблица 4.1).

Таблица 4.1. Типы функциональных сеток для прямолинейного преобразования [60]

Уравнение	Функциональная сетка для прямолинейного преобразования
$y^n = \alpha \cdot x$	$\lg y = f(\lg x)$
$y = \alpha \lg x + b$	$y = f(\lg x)$
$y^2 + \alpha \cdot y = bx$	$\frac{x}{y} = f(y)$
$y = ae^{-\frac{b}{x}}$	$\lg y = f\left(\frac{1}{x}\right)$

Для прогнозирования коррозионного поведения материала необходимо определить зависимость удельного увеличения массы образца от времени испытаний. В связи с этим имеющиеся экспериментальные зависимости изменения массы образцов от времени, представленные на рисунке 3.5, были перестроены в логарифмических координатах. Оказалось, что скорость коррозии этих образцов

хорошо описывается степенной зависимостью, и экспериментальные точки удовлетворительно укладываются на прямой в логарифмических координатах. Были найдены эмпирические формулы, удовлетворительно описывающие увеличение удельной массы материала в зависимости от времени термического старения (Таблица 4.2).

Таблица 4.2. Результаты обработки экспериментальных кривых кинетики окисления

Температура отжига	Среда отжига	Образец	Эмпирическая формула
600 °С	Воздух	облученный чехол ТВС	$G = 0,371 \cdot \tau^{0,044}$ (4.4)
		необлученный чехол ТВС	$G = 0,176 \cdot \tau^{0,0934}$ (4.5)
облученный чехол ТВС		$G = 0,009 \cdot \tau^{0,318}$ (4.6)	
необлученный чехол ТВС		$G = 0,004 \cdot \tau^{0,3393}$ (4.7)	
400 °С	Аргон	облученный чехол ТВС	$G = 0,087 \cdot \tau^{0,15}$ (4.8)
		необлученный чехол ТВС	$G = 0,069 \cdot \tau^{0,23}$ (4.9)
облученный чехол ТВС		$G = 0,001 \cdot \tau^{0,51}$ (4.10)	
необлученный чехол ТВС		$G = 0,003 \cdot \tau^{0,35}$ (4.11)	
550 °С		облученный чехол ТВС	$G = 0,016 \cdot \text{Lg}(\tau) - 0,03$ (4.12)
		необлученный чехол ТВС	$G = 0,055 \cdot \text{Lg}(\tau) - 0,17$ (4.13)
400 °С			
300 °С			

Из полученных выражений определяется удельное количество продуктов коррозии G за любое время испытаний τ и средняя скорость коррозии K . Кроме того, пользуясь уравнениями (4.4) – (4.13) таблицы 4.2 можно построить кривую кинетики окисления и рассчитать скорость коррозии облученных и необлученных образцов за 50 лет.

Для проверки достоверности прогнозирования коррозионного поведения был продолжен отжиг образцов чехла ТВС при температуре 400 °С до 12000 ч. Результаты эксперимента (рисунок 4.1) показали, что экспериментальные данные (точки) удовлетворительно совпадают с расчетными значениями (кривые).

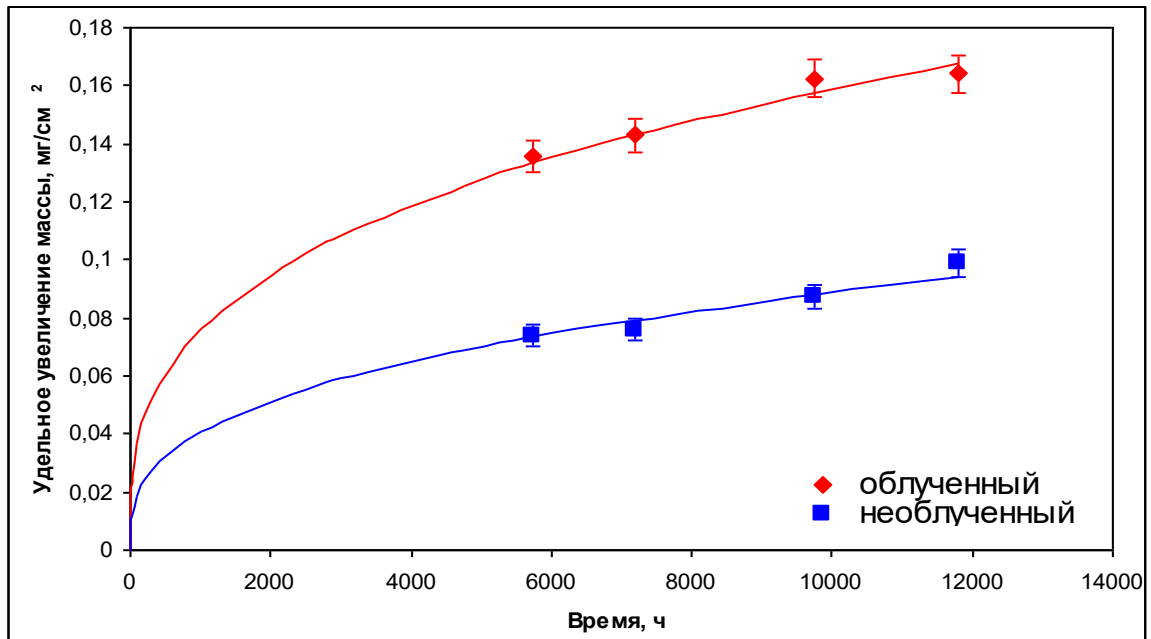


Рисунок 4.1 – Кинетика изменения массы образцов при температуре 400 °С
линия – расчётные данные; точки – экспериментальные результаты

Имея большой массив экспериментальных данных, получив зависимость увеличения удельной массы образцов от длительности, вплоть до 12 000 часов воздействия в рамках настоящей работы, была поставлена задача определения зависимости скорости коррозии не только от длительности, но и от температуры воздействия. Как известно из литературных источников [45, 56], характер влияния температуры на скорость окисления металлов определяется температурной зависимостью константы скорости химической реакции, которая выражается одним и тем же экспоненциальным законом - уравнением Аррениуса:

$$K_m^+ = A e^{-Q/RT} \quad (4.14)$$

где: K_m^+ – положительный показатель изменения массы, г/(м² ч);

A – постоянная, равная K_m^+ при $1/T=0$ или $T=\infty$;

e – основание натуральных логарифмов;

Q – кажущаяся энергия активации химической реакции, Дж/моль;

R – универсальная газовая постоянная (8,314 Дж/(моль·К));

T – абсолютная температура, К.

Положительный показатель изменения массы описывается зависимостью:

$$K_m^+ = G/\tau \quad (4.15)$$

где: τ – длительность испытания, ч

G – удельное увеличение массы, г/м².

Объединяя уравнения $K_m^+ = Ae^{-Q/RT}$ (4.14) и $K_m^+ = G/\tau$

(4.15), получаем зависимость удельного увеличения массы образцов от времени и температуры испытаний:

$$G = A \cdot \tau \cdot e^{-Q/RT} \quad (4.16)$$

Экспериментально определенные при температурах от 300 до 600 °С и длительности испытаний 5000 часов значения скоростей коррозии описываются линейной зависимостью в координатах $Lg(K) - 1/T$ (Рисунок 4.2), следовательно, коррозия подчиняется уравнению Аррениуса.

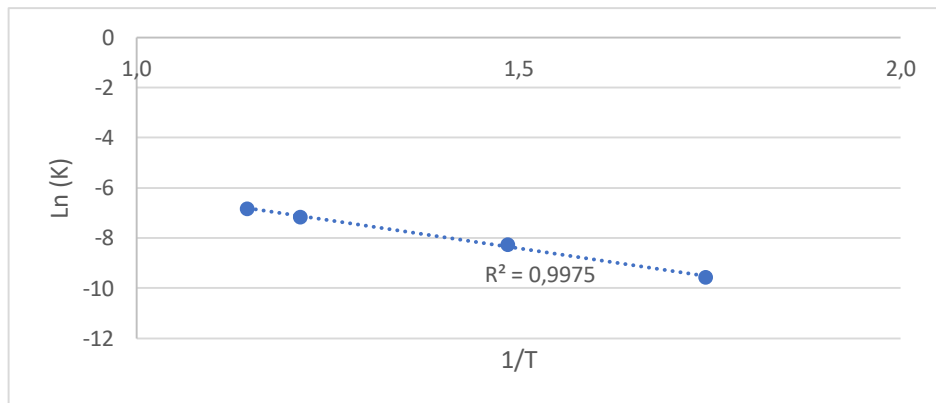


Рисунок 4.2 – Температурная зависимость константы окисления облученной стали при длительности испытания 5000 часов в среде воздуха

Из рисунка 4.2 следует, что в диапазоне температуры от 300 до 600 °С значения энергии активации (Q) и предэкспоненциального множителя (A) постоянны, и их можно определить, если известны константы скорости (K_1 и K_2) при двух различных температурах (T_1 и T_2).

$$Q = \frac{T_1 T_2 R}{T_1 - T_2} \ln(k_1/k_2) \quad (4.17)$$

$$A = K_m^+ / (e^{-Q/RT}) \quad (4.18)$$

В результате подстановки представленных выше констант в уравнение (4.16) получены уравнения, описывающие зависимость удельного увеличения массы образцов от длительности и температуры испытания (таблица 4.3).

Таблица 4.3. Зависимости удельного увеличения массы от длительности и температуры испытаний

Среда испытания	Образец	Эмпирическая формула
Воздух	облученный чехол ТВС	$G = 0,029 \cdot \tau \cdot e^{-4542/T}$ (4.19)
	необлученный чехол ТВС	$G = 0,042 \cdot \tau \cdot e^{-5035/T}$ (4.20)
Аргон	облученный чехол ТВС	$G = 0,023 \cdot \tau \cdot e^{-4527/T}$ (4.21)
	необлученный чехол ТВС	$G = 0,054 \cdot \tau \cdot e^{-5040/T}$ (4.22)

Таким образом, результаты прогнозирования коррозионного повреждения в течение 50 летнего сухого хранения свидетельствуют об отсутствии опасности коррозионного разрушения материала при штатном режиме хранения. Проведенные оценки показали, что за все время сухого хранения глубина разрушения аустенитной стали 12X18H10T не превысит 4 мкм. Однако в условиях аварийного сухого хранения (в среде атмосферы воздуха) топливных сборок глубина коррозионного слоя может достигнуть 50 мкм, что повышает вероятность коррозионного растрескивания барьерных материалов.

4.2 Прогнозирование изменения твердости облученного материала в зависимости от длительности и температуры отжига

Как известно, по мере накопления радиационного повреждения изменяется структурно-фазовое состояние конструкционных сталей, развиваются радиационные эффекты распухания, ползучести, охрупчивания, приводящие к ухудшению механических характеристик материалов и сокращению срока их эксплуатации. Длительный отжиг позволяет восстановить механические свойства

сталей посредством термически-индуцированного удаления продуктов радиационного повреждения [61-71].

Для выбора режимов необходимой термообработки требуется проведение широкого спектра предварительных исследований по влиянию отжига на изменение микроструктуры и свойств аустенитных сталей, в течение длительного времени облучавшихся в условиях атомных энергетических установок [72].

В металлургии, общепринятой практикой является описание поведения и прогнозирование свойств металлических материалов при различных температурных и временных режимах с применением параметра Холломона–Яффе [73, 74]. Влияние температуры отпуска и времени выдержки на свойства стали рассмотрено в [75], а оценка длительной прочности коррозионностойкой стали выполнена в [73]. Применение параметра Холломона-Яффе к конструкционным сталям после эксплуатации в реакторе, структура и свойства которых изменялись в зависимости от температуры, времени, повреждающих доз и его скорости возможно при условии экспериментального определения параметров уравнения.

Для оценки возможности прогноза долговременных свойств облученного материала использовалось уравнение Холломона-Яффе, описывающее связь между температурой испытания и временем выдержки, которая позволяет прогнозировать кинетику изменения микротвердости образцов материала чехла ОТВС при различных температурно-временных параметрах:

$$TP = T (C + \log t), \quad (4.23)$$

где TP - параметр Холломона-Яффе,

T - температура (К),

t - время выдержки (ч),

C - постоянная, зависящая от свойств материала.

Согласно данной формуле, при одном и том же параметре Холломона-Яффе свойства исследуемого материала, полученного при разных режимах температурно-временного режима, совпадают, т.е. в последующем необходимые свойства могут быть получены путем варьирования температуры и времени выдержки в соответствии с соотношением (4.23). Чтобы оценить влияние

параметров процесса на свойства материала, необходимо знать значение константы C . Согласно [76], значение C для конструкционных сталей принято считать равной 20. Однако в нашем случае, в исходном состоянии рассматривались образцы стали 12Х18Н10Т, вырезанные из штатных ОТВС, которые за время эксплуатации получили повреждающие дозы в интервале от 12 сна до 59 сна. Поэтому параметр C был определен из экспериментальных данных по формуле:

$$C = \frac{T_2 \log t_2 - T_1 \log t_1}{T_1 - T_2}, \quad (4.24)$$

где произведения $T_2 \log t_2$ и $T_1 \log t_1$ соответствуют двум температурно-временным режимам, обеспечивающие одинаковые свойства материала, так как равенство значений твердости образцов, подвергнутых двум разным температурно-временным обработкам, указывает на равенство параметра Холломона-Яффе.

Таким образом, для определения значения температурно-временных параметров производилось аппроксимирование данных, полученных при термических испытаниях длительностью до 5000 ч, представленных на рисунке 4.3.

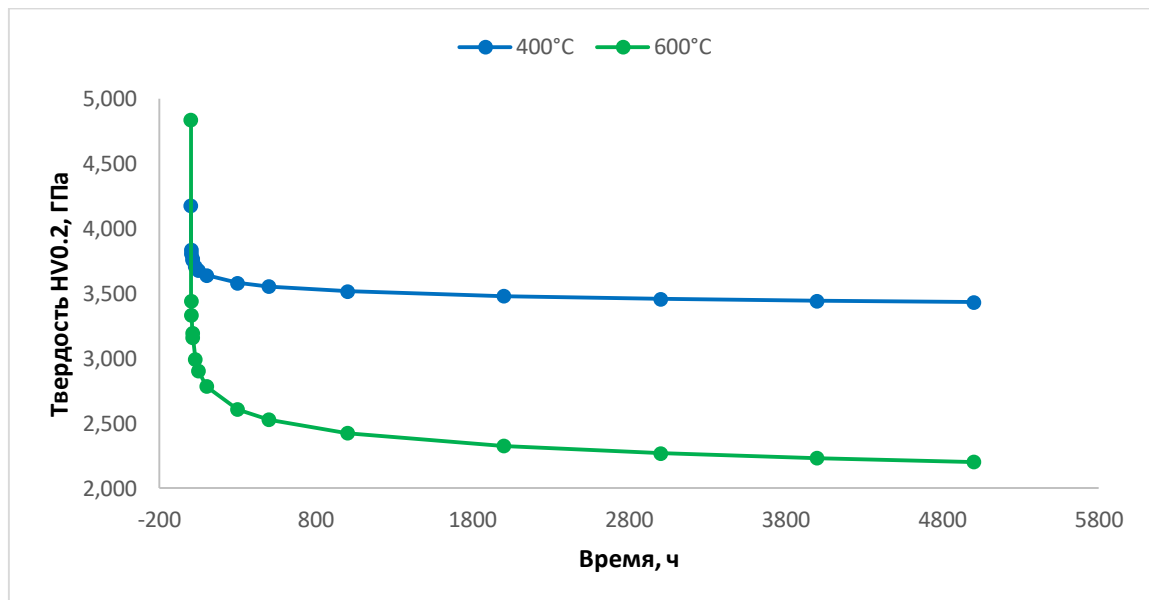
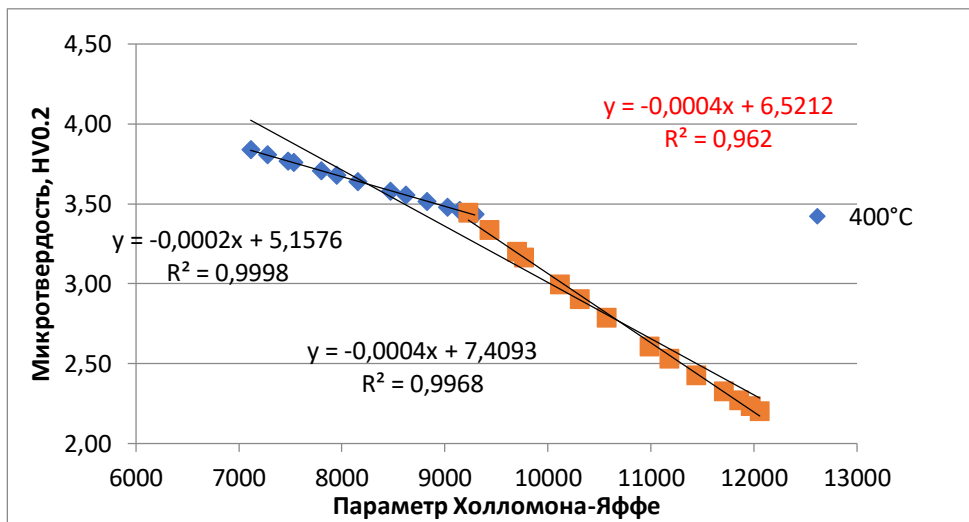


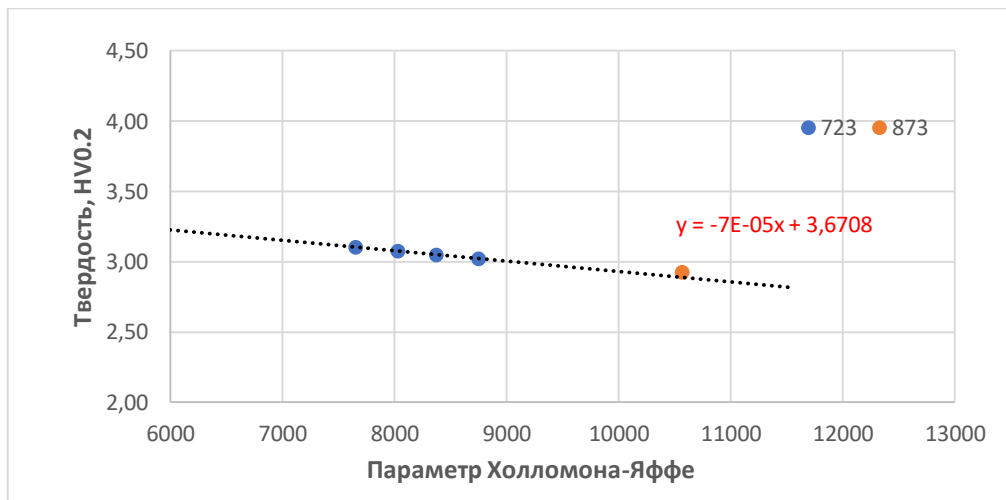
Рисунок 4.3 – Влияние длительности изотермического испытания на твердость образцов

После 3-часового отжига при 600°C микротвердость КС составляет 3,44 ГПа. Согласно графику, такая же твердость достигается после 4000-часового отжига при

400°C (рисунок 4.4). Таким образом, равенство значений твердости образцов, подвергнутых двум разным температурно-временным обработкам, указывает на равенство параметра Холломона–Яффе. Что позволяет определить значение константы C , решив уравнение (2). Для $T_1 = 600^\circ\text{C}$, $t_1 = 3$ ч и $T_2 = 400^\circ\text{C}$, $t_2 = 400$ ч, где значение C равно 10.



а) сталь 12X18H10T



б) Сталь 09X16H15M3Б

Рисунок 4.4 – График зависимости микротвердости образцов чехла ОТВС от параметра Холломона-Яффе при изотермических испытаниях

Получив значения для T_2 , t_2 из графической зависимости была выполнена проверка значения $C = 10$ на соответствие с помощью известных экспериментальных данных, полученных с помощью прямых измерения, которые

проводились при выгрузке образцов в контрольных точках. Полученные результаты, представленные на рисунке 5.4а, достаточно хорошо совпали по значениям микротвердости: отклонение от значения полученных при длительностях испытаний 10 и 5000 ч, составило менее 4 %.

Аналогичным способом была определена зависимость изменения твердости облученных образцов хромоникелевой стали марки 09X16H15M3Б (Рисунок 5.4б)

Таким образом, зависимость изменения радиационно-индуцированной твердости от температуры и длительности испытания имеет следующий вид:

$$\text{для стали 12X18H10T} - HV = 6,52 - 0,0004 \cdot (T \cdot (10 + \log(\tau))); \quad (4.25)$$

$$\text{для стали 09X16H15M3Б} - HV = 3,57 - 0,00006 \cdot (T \cdot (10 + \log(\tau))). \quad (4.26)$$

Полученные выражения показывают возможность применения параметра Холломона–Яффе для прогнозирования изменения твердости аустенитной хромоникелевой стали при различных температурно-временных параметрах воздействия. В отношении прогнозирования поведения барьерных материалов в условиях длительного, 50 летнего сухого хранения ожидается возврат радиационно-индуцированной твердости к исходным значениям при средней температуре 330 °С.

4.3 Выводы по главе 4

Установлена зависимость скорости коррозионного разрушения облученного материала от длительности термического отжига, которая описывается степенной зависимостью. Определена глубина прогнозируемого коррозионного разрушения стенки чехла ОТВС РУ-БН-350 в результате 50 летнего сухого хранения.

Определена зависимость изменения твердости радиационно-упрочненного материала от температуры и длительности отжига. Установлено, что процесс разупрочнения облученного материала зависит от условия облучения и температуры отжига. При этом, среда отжига вносит вклад в разупрочнение только в начальное время отжига.

Выработан подход к прогнозированию свойств облученной аустенитной хромоникелевой стали в условиях длительных температурных воздействиях с применением параметра Холломона–Яффе. Экспериментально определен коэффициент «С» параметра Холломона-Яффе для облученной хромоникелевой стали с повреждающими дозами в интервале 12-59 сна. Сравнение с данными измерений значения твердости подтвердило корректность определения коэффициента для исследуемых образцов. В результате установлены зависимости, описывающие изменение твердости хромоникелевой стали от температуры и длительности пострadiационного термического воздействия, позволяющее прогнозировать эволюцию механических свойств, барьерных материалов во время длительного сухого хранения ОЯТ энергетических реакторов.

Результаты исследований будут использованы при прогнозировании параметров ОТВС РУ БН-350 при длительном хранении и определении стратегии дальнейшего обращения с ними.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе реализации поставленных задач обоснованы режимы и проведены термические испытания облученных образцов аустанитных сталей 12X18H10T и 09X16H15M3Б. Выбраны методики и проведены исследования структуры и свойств облученных материалов до и после термического воздействия. На завершающем этапе работы проведен комплексный анализ полученных данных, установлены основные закономерности поведения исследуемого материала. Предложены методики прогнозирования изменения коррозионной стойкости и механических свойств конструкционных материалов.

В рамках диссертационного исследования получены следующие основные результаты:

1. За время эксплуатации в составе активной зоны реактора БН-350 материалы получили различные повреждения на внутренних и внешних поверхностях. При исследовании структуры обнаружены следы межкристаллитной и питтинговой коррозии. Установлено, что с ростом дозы облучения глубина межкристаллитного коррозионного повреждения поверхности материала увеличивается по линейному закону.

2. Особенностью высокодозного облучения в условиях БН-350 является начало массового образования вторичных фаз еще до достижения порога «видимого» набухания. С ростом температуры облучения плотность вторичных выделений падает, а их средний размер растет.

3. Экспериментально установлен факт радиационного упрочнения материала. При этом различия величин твердости для образцов с дозами облучения от 12 до 58,9 сна незначительны и объясняются эффектом насыщения после преодоления условного порогового значения дозы облучения в 2 – 5 сна. Максимальные значения твердости обнаружены при дозе облучения 28 сна ($HV_{0,2} = 4$ ГПа), максимальное значение прочности ($\sigma_b = 1256$ МПа) соответствует дозе облучения 58,9 сна, минимальное значение остаточной пластичности (менее 1 %) обнаружено при дозе облучения 55,5 сна.

4. В результате изотермического воздействия на поверхности образцов образуются продукты коррозии, толщина которых зависит от температуры и длительности воздействия. При температурах 300 и 400 °С в среде аргона на поверхности материала образуется тонкий слой толщиной менее 1 мкм, представляющий твердый раствор кислорода в решетке α -Fe.

5. В структуре стали после кратковременного термического воздействия выявилось множество полос скольжения, декорированных карбидными частицами. Увеличение длительности термических испытаний приводит к их коагуляции и последующей миграции к границам зерен. В структуре материала образуются пустоты со средним размером ~ 30 нм. В матрице обнаружены крупные (~ 130 нм) и мелкие (до 30 нм) сферические включения, которые в основном состоят из первичных и вторичных карбидов титана.

6. В результате пострадиационного термического воздействия происходит миграция атомов никеля и хрома, что приводит к расслоению твердого раствора с образованием концентрационных неоднородностей. Процесс перераспределения атомов сопровождается изменением механических свойств. При нагреве образуются выделения вторичных фаз (Cr_{23}C_6), в результате чего наблюдается увеличение внутренних напряжений и, как следствие, происходит дополнительное упрочнение материала. После обособления карбидных частиц внутренние напряжения релаксируют, что и приводит к разупрочнению материала и восстановлению прочностных свойств.

7. Установлено, что процесс разупрочнения облученного материала зависит от условий облучения и температуры нагрева. При этом среда нагрева вносит вклад в разупрочнение только в первые 10 часов. При температуре 550°С и дозе облучения 47,7 сна наблюдается снижение (55%) предела прочности материала, снижение твердости на 12%, и увеличение пластичности до 8%.

8. Для описания кинетики коррозионного разрушения аустенитной стали в зависимости от температуры и длительности термического воздействия в средах аргона и воздуха экспериментально определены параметры уравнения Аррениуса.

9. Показана возможность применения параметра Холломона–Яффе для прогнозирования свойств облученной аустенитной хромоникелевой стали. Экспериментально определен коэффициент Холломона-Яффе и получены зависимости, характеризующие изменение твердости стали от температуры и продолжительности послерадиационного термического воздействия (Акт внедрения методики № 01-600-18/1272 от 08/11/2023 г.).

Условные обозначения, сокращения, основные термины и определения

ОЯТ – отработавшее ядерное топливо

ЯУ – ядерная установка;

РУ – реакторная установка;

БН-350 – энергетический реактор на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем;

БР – реактор на быстрых нейтронах;

БОР-60 – быстрый опытный реактор, 60 МВт;

УКХ-123 – упаковочный комплект для хранения ОЯТ. Входит в состав ТУК-123

ТВЭЛ – тепловыделяющий элемент

ТВС – тепловыделяющая сборка;

ОТВС – отработавшая тепловыделяющая сборка;

СЭМ – сканирующая электронная микроскопия;

ПЭМ – просвечивающая электронная микроскопия;

ЭДС – энергодисперсионная спектрометрия;

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Прогнозирование изменений структуры и свойств конструкционных материалов реактора БН-350 во время длительного сухого хранения ОЯТ / Е. Т. Коянбаев, А. А. Ситников, М. К. Скаков [и др.] // Ползуновский вестник. – 2016. – Вып. 4, т. 2. – С. 207–211.
2. Материаловедение. Технология конструкционных материалов. Радиационное материаловедение : учеб. пособие для вузов / А. М. Паршин, Ю. С. Васильев, В. Б. Звягин [и др.] ; под ред. А. М. Паршина и В. Б. Звягина. – 2-е изд., доп. и перераб. – Санкт-Петербург : СПбПУ : СЗТУ, 2011. – 348 с. – ISBN 978-5-7422-2920-9.
3. Технология упрочнения машиностроительных материалов : учеб. пособие-справ. / В. Д. Евдокимов, Л. П. Клименко, А. Н. Евдокимова ; под ред. В. Д. Евдокимова. – Одесса ; Николаев : Изд-во НГГУ им. Петра Могилы, 2005. – 352 с. – ISBN 966-336-029-1.
4. Геллер, Ю. А. Материаловедение : [учеб. пособие для вузов] / Ю. А. Геллер, А. Г. Рахштадт ; под ред. А. Г. Рахштадта. – 6-е изд., перераб. и доп. – Москва : Металлургия, 1989. – 454, [1] с. : ил. – ISBN 5-229-00228-X.
5. Maziasz, P. J. Overview of microstructural evolution in neutron-irradiated austenitic stainless steels / P. J. Maziasz // Journal of Nuclear Materials. – 1993. – Vol. 205. – P. 118–145. – DOI [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(93\)90077-C](https://doi.org/10.1016/0022-3115(93)90077-C).
6. 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. – Vol. 206, Is. 2/3. – P. 266-286. – 266–286. – DOI [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(93\)90128-L](https://doi.org/10.1016/0022-3115(93)90128-L).
7. Odette, G. R. The effects of intermediate temperature irradiation on the mechanical behavior of 300-series austenitic stainless steels / G. R. Odette, G. E. Lucas // Journal of Nuclear Materials. – 1991. – Vol. 179/181, Part 1. – P. 572–576. – DOI [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(91\)90152-W](https://doi.org/10.1016/0022-3115(91)90152-W).

8. Odette, G. R. Deformation and fracture in irradiated austenitic stainless steels / G. R. Odette, G. E. Lucas // *Journal of Nuclear Materials*. – 1992. – Vol. 191/194, Part A. – P. 50–57. DOI [https://doi.org/10.1016/S0022-3115\(09\)80010-X](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(09)80010-X).

9. Lucas, G. E. The evolution of mechanical property change in irradiated austenitic stainless steels / G. E. Lucas // *Journal of Nuclear Materials*. – 1993. – Vol. 206, Is. 2/3. – P. 287–305. – DOI [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(93\)90129-M](https://doi.org/10.1016/0022-3115(93)90129-M).

10. Mills, W. J. Fracture toughness of type 304 and 316 stainless steels and their welds // *International Materials Reviews*. – 1997. – Vol. 42, Is. 2. – P. 45–82. – DOI [10.1179/imr.1997.42.2.45](https://doi.org/10.1179/imr.1997.42.2.45).

11. Greenwood, L. R. Neutron interactions and atomic recoil spectra / L. R. Greenwood // *Journal of Nuclear Materials*. – 1994. – Vol. 216. – P. 29–44. – DOI [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(94\)90004-3](https://doi.org/10.1016/0022-3115(94)90004-3).

12. Garner, F. A. Radiation Damage in Austenitic Steels / F. A. Garner // *Comprehensive Nuclear Materials* / Ed. R. J. M. Konings. – [S. l], 2012. – Vol. 4. – P. 33–95.

13. Control of helium effects in irradiated materials based on theory and experiment / L. K. Mansur, E. H. Lee, P. J. Maziasz, A. P. Rowcliffe // *Journal of Nuclear Materials*. – 1986. – Vol. 141/143, Part 2. – P. 633–646. – DOI [https://doi.org/10.1016/00223115\(86\)90066-8](https://doi.org/10.1016/00223115(86)90066-8).

14. Nano-cavities observed in a 316SS PWR flux thimble tube irradiated to 33 and 70dpa / D.J. Edwards, F.A. Garner, S.M. Bruemmer, Pål Efsing // *Journal of Nuclear Materials*. – 2009. – Vol. 384, Is. 3. – P. 249–255. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2008.11.025>.

15. Maziasz, P. J. Formation and stability of radiation-induced phases in neutron-irradiated austenitic and ferritic steels / P. J. Maziasz // *Journal of Nuclear Materials*. – 1989. – Vol. 169. – P. 95–115. – DOI [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(89\)90525-4](https://doi.org/10.1016/0022-3115(89)90525-4).

16. Recent Developments Concerning Potential Void Swelling of PWR Internals Constructed from Austenitic Stainless Steels / F. A. Garner, D. J. Edwards, S. M. Bruemmeret [et al.] // *Societe Francaise d'Energie Nucleaire – SFEN : Fontevraud 5*

International symposium, Fontevraud - Royal Abbey (France), 23-27 Sep 2002. – Paris, 2002. – P. 393–404.

17. Brager, H. R.; Garner, F. A.; Gelles, D. S.; Hamilton, M. L. *Journal of Nuclear Materials*. 1985, 133–134, 907–911

18. Yang, W. J. S. Grain boundary segregation in solution-treated Nimonic PE16 during neutron irradiation / W.J.S. Yang // *Journal of Nuclear Materials*. 1982. – Vol. 108/109. – P. 339–346. – DOI [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(82\)90503-7](https://doi.org/10.1016/0022-3115(82)90503-7).

19. Козлов, А. В. Радиационные дефекты в аустенитных сталях при нейтронном облучении и их влияние на физико-механические свойства / А. В. Козлов // *Известия высших учебных заведений. Ядерная энергетика*. – 2011. – № 1. – С.196–210.

20. Kim J. W. Analysis of tensile deformation and failure in austenitic stainless steels: Part II – Irradiation dose dependence / J. W. Kim, T. S. Byun // *Journal of Nuclear Materials*. – 2010. – Vol. 396, Is. 1. – P. 10–19. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2009.08.009>.

21. Temperature Dependence of the Deformation Behavior of Type 316 Stainless still after Low Temperature Neutron Irradiation / J. P. Robertson, I. Ioda, A. F. Rowcliffe [et al.] // *Effects of Radiation on Materials : 18th International Symposium* / ed.: Randy K. Nanstadt [et al.] ; ASTM. – USA, 1999. – STP 1325. – P. 671–688.

22. The microstructural origins of yield strength changes in aisi 316 during fission or fusion irradiation / F. A. Garner, M. L. Hamilton, N. . Panayotou, G. D. Johnson // *Journal of Nuclear Materials*. – 1981. – Vol. 103/104. – P. 803–807. – DOI [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(82\)90698-5](https://doi.org/10.1016/0022-3115(82)90698-5).

23. 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.

24. 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.

25. Hashimoto, N. Relationship between hardening and damage structure in austenitic stainless steel 316LN irradiated at low temperature in the HFIR / N. Hashimoto, E. Wakai, J. P. Robertson // Journal of Nuclear Materials. – 1999. – Vol. 273, Is. 1. – P. 95–101.

26. Неустроев, В. С. Эволюция микроструктуры стали типа X18H10T при низкотемпературном облучении нейтронами как основной фактор упрочнения / В. С. Неустроев, З. Е. Островский, С. В. Белозеров // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. – 2007. – № 6 (91). – С. 78–81.

27. Neustroev, V. S. Severe embrittlement of neutron irradiated austenitic steels arising from high void swelling / V. S. Neustroev, F. A. Garner // Journal of Nuclear Materials. – 2009. – V. 386/388. – P. 157–160. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2008.12.077>.

28. Хофман, А. Влияние облучения на коррозию и коррозионное растрескивание под напряжением в аустенитных нержавеющей сталях / А. Хофман, А. Ю. Дидык, В. К. Семина. – Дубна : ОИЯИ, 2013. – 19, [1] с. : ил. – (Препринт).

29. Ashworth, M. A. Radiation-induced segregation in Fe-20Cr-25Ni-Nb based austenitic stainless steels / M. A. Ashworth, D. I. R. Norris, I. P. Jones // Journal of Nuclear Materials. – 1992. – Vol. 189, Is. 3. – P. 289–302. – DOI [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(92\)90383-V](https://doi.org/10.1016/0022-3115(92)90383-V).

30. Stress Corrosion Cracking and Intergranular Corrosion of Neutron Irradiated Austenitic Stainless Steels / K. Fukuya, S. Shima, H. Kayano, M. Narui // Journal of Nuclear Materials. – 1992. – V. 191/194, Part 2. – P. 1007–1011. – DOI [https://doi.org/10.1016/0022-3115\(92\)90626-V..](https://doi.org/10.1016/0022-3115(92)90626-V..)

31. Chopra, O. K. A review of irradiation effects on LWR core internal materials – IASCC susceptibility and crack growth rates of austenitic stainless steels / O. K. Chopra,

A. S. Rao // *Journal of Nuclear Materials*. – 2011. – V. 409, Is. 3. – P. 235–256. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2010.12.001>.

32. Padilha, A. F. Decomposition of Austenite in Austenitic Stainless Steels / A. F. Padilha, P. R. Rios // *ISIJ International*. – 2002. – Vol. 42, Is. 4. – P. 325–327. – DOI <https://doi.org/10.2355/isijinternational.42.325>.

33. Влияние высокодозного нейтронного облучения на склонность к межкристаллитной коррозии аустенитной нержавеющей стали 12Х18Н9Т / С. Н. Иванов, С. И. Поролло, А. М. Дворяшин // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы*. – 2006. – № 2 (67). – С. 222–228.

34. Кикичев, Р. Н. Коррозионное растрескивание аустенитных хромоникелевых сталей и сплавов / Р. Н. Кикичев // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение*. – 2003. – № 3 (83). – С. 96–100.

35. Mechanism of irradiation assisted stress corrosion crack initiation in thermally sensitized 304 stainless steel / T. Onchi, K. Dohi, N. Soneda [et al.] // *Journal of Nuclear Materials*. – 2005. – Vol. 340, Is. 2/3. – P. 219–236. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2004.11.012>.

36. Рахатова, Г. М. Исследование изменений структурно-фазового состояния и физико-механических характеристик аустенитной стали X18H10 в результате реакторного облучения и термического воздействия : магист. дис. / Г. М. Рахатова ; науч. рук. Е. Т. Коянбаев ; ТПУ. – Томск, 2016. – URL: <http://earchive.tpu.ru/handle/11683/29828> (дата обращения: 04.04.2018). – Режим доступа: Электронный научный архив ТПУ.

37. Development of the Safety Case for a Spent Fuel Dry Storage Facility in Kazakhstan, A Case Study / D. N. Olsen, J. D. B. Lambert, H. P. Planchon [et al.] // *International Conference on Nuclear Engineering (ICONE), Nice, Acropolis (France), 8-12 Apr 2001*. – URL: <http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/Public/33/020/33020132.-pdf> on 2017-05-26.

38. Thermal analysis of CASTOR RBMK-1500 casks during long-term storage of spent nuclear fuel / R. Poškas, V. Šimonis, P. Poškas, A. Sirvydas // *Annals of Nuclear*

Energy. – 2017. – Vol. 99. – P. 40–46. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2016.09.031>.

39. Alyokhina, S. Thermal analysis of certain accident conditions of dry spent nuclear fuel storage / S. Alyokhina // Nuclear Engineering and Technology. – 2018. – Vol. 50, Is. 5. – P. 717–723.

40. Комплект транспортный упаковочный для транспортирования и хранения отработавшего ядерного топлива реактора БН-350. Анализ основных проектных параметров чехлов с ОЯТ реактора БН-350, используемых в ТУК-123: технический отчет / ОАО КАТЭП, ОАО КБСМ.– 2004.

41. ANSYS release 14.5. Documentation for ANSYS WORKBENCH. ANSYS Inc.– 2014.

42. Bathe, K. J. Finite Element Procedures. – 2nd ed. – USA : Prentice Hall, 2014. – 1065 p. – ISBN 978-0-9790049-5-7.

43. Simulation of the Thermal Conditions of Cask with Fuel Assemblies of BN-350 Reactor for Dry Storage / Ye. T. Koyanbayev, M. K. Skakov, A. A. Sitnikov [et al.]. – DOI <https://doi.org/10.1155/2019/3045897> // Science and Technology of Nuclear Installations. – 2019. – Vol. 2019. – Article ID 3045897. – URL: <https://www.hindawi.com/journals/stni/2019/3045897>.

44. Spent Nuclear Fuel Management of the BN-350 reactor. Safety Analysis and Justification at the Packaging Stage. Final Report. v2 / RSE NNC RK; S. M. Koltyshev, V. M. Tsyngayev [et all.].– Kurchatov, 2001.– P. 175.

45. Исследование изменений структурно-фазового состояния и коррозионной стойкости конструкционных материалов ОТВС РУ БН-350 в результате реакторного облучения и последующего термического и механо-термического старения / Е. Т. Коянбаев, М. К. Скаков, В. В. Бакланов [и др.] // Исследования в поддержку развития атомной энергетики в Республике Казахстан : [в 2 т.] . – Курчатov : НЯЦ РК, 2018. – Т. 2. – С. 116–167.

46. ГОСТ 9.908-85. Единая система защиты от коррозии и старения. Металлы и сплавы. Методы определения показателей коррозии и коррозионной стойкости :

межгосударственный стандарт : введен впервые : дата введения 1987-01-01. – Москва : Изд-во стандартов, 1985. – 34 с.

47. Патент N 32350 Республика Казахстан, МПК G01N 3/04 (2006.01). Захват для крепления микрообразцов при испытании на растяжение : N 2016/0205.1 : заявл. 26.02.2016 : опубл. 31.08.2017 / А. Д. Даулеткелдыев, Э. Г. Батырбеков, М. К. Скаков, Е. Е. Сапатаев, Е. Т. Коянбаев, В. В. Бакланов, Ш. Р. Курбанбеков. – 3 с.

48. Исследование облученной стали: методика / филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК ; Е. Т. Коянбаев, Е. Е. Сапатаев. – Курчатов, 19.12.2013. – Инв. № 1422вн/12-230-02. – Неопубл. материалы.

49. Цай, К. В. Влияние облучения и пост-радиационной термообработки на микроструктуру и свойства стал 12X18H10T, облученной в исследовательском реакторе ВВР-К до 5 сна / К. В. Цай, О. П. Максимкин, Л. Г. Турубарова // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. – 2008. – № 2. – С. 100–107.

50. Radiation-induced segregation in desensitized type 304 austenitic stainless steel / Parag Ahmedabadi, V. Kain, K. Arora [et al.]. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2011.06.024> // Journal of Nuclear Materials. – 2011. – Vol. 416, Is. 3. – P. 335–344. – URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0022311511005861?via%3Dihub>.

51. Распухание и радиационная ползучесть аустенитной коррозионно-стойкой стали, облученной нейтронами в широком диапазоне дозы и температуры / Поролло С. И., Шулепин С. В., Иванов А. А. [и др.] // Атомная энергия. – 2011. – Т. 110, вып. 4. – С. 207–214.

52. Busby, J. T. The relationship between hardness and yield stress in irradiated austenitic and ferritic steels / J. T. Busby, M. C. Hash, G. S. Was // Journal of Nuclear Materials. – 2005. – V. 336, Is. 2/3. – P. 267–278. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2004.09.024>.

53. Кислицын, С. Б. Формоизменения чехлов отработанных тепловыделяющих сборок реактора на быстрых нейтронах БН-350 / С. Б. Кислицын

// Взаимодействие излучений с твердым телом : материалы 8-ой междунар. конф. (23–25 сент. 2009, Минск). – Минск : БГУ, 2009. – С. 89–91.

54. Garner, F. A. Radiation Damage in Austenitic Steels // Comprehensive Nuclear Materials. – 2012. – V. 4. – P. 33–95.

55. Коянбаев, Е. Т. Изучение поведения отработавших топливных сборок ядерных реакторов при их длительном сухом хранении / Е. Т. Коянбаев, О. П. Максимкин, А. С. Азимханов // Экспериментальные исследования в области безопасности атомной энергии : в 2 ч. – Курчатов : НЯЦ РК, 2010. – Ч. 1. – С. 331–348.

56. Коянбаев, Е. Т. Исследование изменений структуры и физико-механических характеристик аустенитной стали 12X18H10T в результате реакторного облучения и последующего термического воздействия // Е. Т. Коянбаев, М. К. Скаков, В. В. Бакланов, // Вестник Государственного университета имени Шакарима города Семей. – 2015. – № 4 (72). – С. 49–53.

57. Исследование чехла экранной сборки Э-26 после 22-летней эксплуатации в реакторе БОР-60 / В. К. Шамардин, З. Е. Островский, А. М. Печерин [и др.] // Сборник докладов V Межотраслевой конференции по реакторному материаловедению (Димитровград, 8-12 сент. 1997 г.) : в 2 т. – Димитровград, 1998. – Т. 2, ч. 2. – С. 25–40. – ISBN 5-85165-361-2.

58. Исследования микроструктуры и механических свойств стали 08X18H10T после облучения в активной зоне реактора ВВЭР-1000 / В. С. Неустроев, В. Г. Дворецкий, З. Е. Островский [и др.] // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. – 2003. – № 3. – С. 73-78.

59. Рачев, Х. Справочник по коррозии / Х. Рачев, С. Стефанова ; пер. С. И. Нейкоского. – Москва : Металлургия, 1982. – 519 с.

60. Лабораторные работы по коррозии и защите металлов : учеб. пособие для студентов металлург. специальностей вузов / Н. Д. Томашев, Н. П. Жук, В. А. Титов, М. А. Веденева. – Москва : Металлургия, 1971. – 239 с.

61. Скаков, М. К. Радиационно-инициированные превращения интерметаллидов / В. Д. Мелихов, М. К. Скаков ; М-во науки, Акад. наук РК, ФТИ. – Алматы : Гылым, 1996. – Т. 44, №6. – С. 5–71.

62. Максимкин, О. П. Фазово-структурные процессы и их роль в упрочнении и охрупчивании облученных металлических материалов : спец. 01.04.07 «Физика конденсированного состояния» : автореф. дис. ... д-ра физ.-мат. наук / Максимкин Олег Прокофьевич. – Алматы, 1996. – 47 с.

63. Cole, J. I. Microstructural changes induced by post-irradiation annealing of neutron-irradiated austenitic stainless steels / J. I. Cole, T. R. Allen // *Journal of Nuclear Materials*. – 2000. – V. 283/287, Is. 1. – P. 329–333. – DOI [https://doi.org/10.1016/S0022-3115\(00\)00072-6](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(00)00072-6).

64. Мицкевич, А. В. Разработка интегрального варианта нейтронного спектрального анализа для оценки содержания делящихся элементов в отработавших топливных сборках / А. В. Мицкевич, Ю. А. Коровин, А. А. Догов // *Вестник Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ»*. – 2014. – Т. 3, № 1. – С. 91–96. – DOI [10.1134/S2304487X14010167](https://doi.org/10.1134/S2304487X14010167).

65. Разработка интегрального варианта нейтронного спектрального анализа для оценки содержания делящихся элементов в отработавших топливных сборках / А. В. Мицкевич, Ю. А. Коровин, А. А. Догов // *Вестник НИЯУ МИФИ*. – 2014. – Т. 3, №1. – С. 91–96.

66. Подгорнов, В. А. Внедрение автоматизированных систем технологического контроля при обращении с ОЯТ / В. А. Подгорнов // *Вестник Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ»*. – 2014. – Т. 3, № 5. – С. 532–537. – DOI [10.1134/S2304487X14040166](https://doi.org/10.1134/S2304487X14040166).

67. Dikov, A. S. Influence of the Test Temperature on the Creep Rate of 0.12C18Cr10NiTi Structural Steel Irradiated in the BN-350 Reactor / A. S. Dikov, I. I. Chernov, S. B. Kislitsin. – DOI <https://doi.org/10.1134/S2075113318030127> // *Inorganic Materials: Applied Research*. – 2018. – V. 9. – P. 357–360. – URL: <https://link.springer.com/article/10.1134/S2075113318030127>.

68. Structural features ensuring the increase of service characteristics of high-nickel steels for pressure vessels of prospective energy-generation reactors / E. A. Kuleshova, I. V. Fedotov, D. A. Maltsev [et al.]. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.ijpvp.2022.104845> // International Journal of Pressure Vessels and Piping. – 2022. – V. 200. – № 104845. – URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0308016122002307?via%3Dihub>.

69. Determination of the residual content of fissile materials in fuel from spent fuel assemblies with high initial enrichment by the active neutron method / A. V. Bushuev, A. F. Kozhin, E. M. Glagovsky [et al.] // Atomic Energy. – 2013. – V. 114. – P. 428–432. – DOI <https://doi.org/10.1007/s10512-013-9734-7>.

70. A setup for active neutron analysis of the fissile material content in fuel assemblies of nuclear reactors / A. V. Bushuev, A. F. Kozhin, T. B. Aleeva [et al.] // Physics of Atomic Nuclei. – 2016. – V. 79. – P. 1362–1366. – DOI <https://doi.org/10.1134/S1063778816080056>.

71. Изменение микроструктуры и свойств, облученной нейтронами аустенитной стали 12X18H10T в результате пост-радиационных отжигов / О. П. Максимкин, К. В. Цай, Л. Г. Турубарова [и др.] // Вестник НЯЦ РК. – 2008. – Вып. 4. – С. 99–104.

72. Characterisation and modelling of tempering during multi-pass welding / Y. Sun, G. Obasi, C. Hamelin [et al.]. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2019.02.015> // Journal of Materials Processing Technology. – 2019. – V. 270. – P. 118–131. – URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0924013619300615?via%3Dihub>.

73. Effect of Postweld Heat Treatment on the Sulfide Stress Cracking of Dissimilar Welds of Nickel-Based Alloy 625 on Steels/ T. Dai, R. Thodla, W. Kovacs [et al.] // Corrosion. – 2019. – V. 75, Is. 6. – P. 641–656. – DOI <https://doi.org/10.5006/3081>.

74. Microstructural evolution of dissimilar welded joints between reduced-activation ferritic-martensitic steel and 316L stainless steel during the post weld heat treatment / G. Liu, S. Yang, W. Han [et al.]. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.msea.2018.03.035> // Materials Science and Engineering: A. – 2018. – V. 722. – P.

182–196. – URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0921509-318303708?via%3Dihub>


75. Predicting Deformation Limits of Dual-Phase Steels Under Complex Loading Paths / G. Cheng, K. S. Choi, X. Hu, X. Sun // JOM. – 2017. – V. 69. – P. 1046–1051. – DOI <https://doi.org/10.1007/s11837-017-2333-7>.

76. Исследование чехла экранной сборки Э-26 после 22-летней эксплуатации в реакторе БОР-60 / В. К. Шамардин, З. Е. Островский, А. М. Печерин, В. М. Косенков, В. В. Яковлев, Ф. В. Рисованая // Сб. докладов V Межотраслевой конференции по реакторному материаловедению. – Димитровград, 1998. – Т. 2, ч. 2. – С. 25–40.

Приложение А.

Устройство для крепления образцов при испытаниях на растяжение.

Патент РК на изобретение № 32350



(19) ҚАЗАҚСТАН РЕСПУБЛИКАСЫ ӘДІЛЕТ МИНИСТРЛІГІ

ӨНЕРТАБЫСҚА

(11) № 32350

(12) ПАТЕНТ

(54) АТАУЫ: Созуға сынау кезіндегі микроұлгілерді бекітуге арналған қармау


(73) ПАТЕНТ ИЕЛЕНУШІСІ: Қазақстан Республикасы Энергетика министрлігінің «Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы» шаруашылық жүргізу құқығындағы республикалық мемлекеттік кәсіпорны (KZ)

(72) АВТОР (АВТОРЛАР): Бакланов Виктор Владимирович (KZ); Коянбаев Ерболат Тайтолеуович (KZ); Скаков Мажын Канапинович (KZ); Батырбеков Эрлан Гадлетович (KZ); Сапатаев Ержан Ернатулы (KZ); Курбанбеков Шерзод Рустамбекович (KZ); Даулеткелдыев Арнур Даулеткелдыевич (KZ)

(21) Өтінім № 2016/0205.1 (22) Өтінім берілген күн: 26.02.2016
31.07.2017 Қазақстан Республикасы Өнертабыстардың мемлекеттік тізілімінде тіркелді.

Патентті күшінде ұстау ақысы уақытылы төленген жағдайда, патенттің күші Қазақстан Республикасының бүкіл аумағында қолданылады.

Қазақстан Республикасы
Әділет министрінің орынбасары

 Э. Әзімова

Өзгерістер енгізу туралы мәліметтер осы патентке қосымша түрінде жеке парақта келтіріледі

003093



(19) **МИНИСТЕРСТВО ЮСТИЦИИ РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН**

(12) **ПАТЕНТ**

(11) **№ 32350**

НА ИЗОБРЕТЕНИЕ

(54) **НАЗВАНИЕ:** Захват для крепления микрообразцов при испытании на растяжение

(73) **ПАТЕНТООБЛАДАТЕЛЬ:** Республиканское государственное предприятие на праве хозяйственного ведения «Национальный ядерный центр Республики Казахстан» Министерства энергетики Республики Казахстан (KZ)

(72) **АВТОР (АВТОРЫ):** Бакланов Виктор Владимирович (KZ); Кожыбаев Ерболат Тайтолеусович (KZ); Скаков Мажан Канашинвич (KZ); Батырбеков Эрлан Гадлетович (KZ); Сапатаев Ержан Ернатулы (KZ); Курбанбеков Шерод Рустамбекович (KZ); Даулеткелдыев Артур Даулеткелдыевич (KZ)

(21) Заявка № 2016/0205.1 (22) Дата подачи заявки: 26.02.2016

Зарегистрирован в Государственном реестре изобретений Республики Казахстан 31.07.2017.

Действие патента распространяется на всю территорию Республики Казахстан при условии своевременной оплаты поддержания патента в силе.

Заместитель министра юстиции
Республики Казахстан



Э. Азимова

Сведения о внесении изменений приводятся на отдельном листе в виде приложения к настоящему патенту

Приложение Б.

Моделирование теплового состояния контейнера с топливными сборками реактора БН-350 для сухого хранения

Исходные данные для теплового расчета.

Распределение температуры определено в области центрального твэла одной из топливныхборок реактора БН-350 в шестиместном контейнере для сухого хранения. Материалы и геометрические размеры элементов контейнера и топливныхборок приведены ниже.

Контейнер: материал – аустенитная нержавеющая сталь 12X18H10T; внешний диаметр – 406,4 мм; внутренний диаметр – 396,4 мм; высота – 3854 мм.

Внутренняя корзина (шестиместная): материал – аустенитная нержавеющая сталь 12X18H10T; внешний диаметр ячейки – 130 мм; внутренний диаметр ячейки – 129 мм.

Шестигранная труба: материал – аустенитная нержавеющая сталь 12X18H10T; размер под ключ - 96 мм; толщина шестигранной трубы – 2,175 мм; высота – 1050 мм.

Твэлы: количество твэлов в ТВС – 127 шт; материал оболочки твэлов – аустенитная нержавеющая сталь 0X16H15M3Б; внешний диаметр – 6,9 мм; внутренний диаметр – 6,1 мм; высота – 1060 мм; зазор между твэлами – 1,05 мм.

Топливо: материал - смесь диоксида плутония и диоксида урана; диаметр таблеток топлива – 6 мм с центральным отверстием $\varnothing 1.7$ мм.

Расчет.

Расчет выполнен для мощности ТВС 120 и 190 Вт. Расчеты профиля распределения температуры проведены для случаев заполнения контейнера аргоном и атмосферным воздухом. Контейнер окружен бетоном толщиной 0,5 или 1 м.

Расчет проведен при помощи программного комплекса ANSYS, реализующей метод конечных элементов [1, 2].

Для проведения расчета использована двумерная модель. Сетка конечно-элементной модели состоит из 572143 единиц и 464000 элементов, более высокое разрешение сетки сконцентрировано в области ТВС.

Температура внешней поверхности бетона принята равной 293 К. Расчет стационарного распределения температуры в среднем по высоте поперечном сечении шестиместного контейнера (как наиболее теплонапряженного сечения) проведен для двух значений остаточного энерговыделения в топливе: $\sim 54,3$ кВт/м³ - соответствует мощности ТВС равной 190 Вт; $\sim 34,3$ кВт/м³, что соответствует мощности ТВС равной 120 Вт.

Значения энерговыделения определялись по следующей формуле

$$Q_v = \frac{N}{n \times V}, \quad (1)$$

где N – мощность ТВС (120 и 190 Вт); n – количество твэлов в ТВС ($n = 127$ шт); V – объем твэла ($V = 2,756 \times 10^{-5}$ м³).

Предполагается, что энерговыделение в топливе постоянно по высоте и радиусу ТВС, а энерговыделение в материалах конструкции ТВС и контейнера равно нулю.

Тепловой поток от торцевых поверхностей контейнера принят равным нулю.

Перенос тепла от твэлов к остальной части модели осуществляется посредством теплопроводности и естественного конвективного теплообмена [3].

$$\lambda_{\text{эк}} = \varepsilon_k \cdot \lambda, \quad (2)$$

где ε_k – коэффициент конвекции; λ – коэффициент теплопроводности среды (аргон, воздух), Вт/(м·К).

Коэффициент конвекции определяется по следующей формуле

$$\varepsilon_k = \alpha \cdot (Gr \cdot Pr)^b, \quad (3)$$

где Gr – число Грасгофа; Pr – число Прандтля.

При $10^6 < Gr \cdot Pr < 10^{10}$ $\alpha = 0,4$, $b = 0,2$; при $10^3 < Gr \cdot Pr < 10^6$ $\alpha = 0,105$, $b = 0,3$.

Число Грасгофа равно

$$Gr = \frac{\beta \cdot g \cdot d^3 \cdot (t_{max} - t_{min})}{\nu^2}, \quad (4)$$

где β – температурный коэффициент объёмного расширения наполнителя, 1/К; g – ускорение свободного падения, м/с²; d – определяющий размер, м (гидравлический диаметр, для контейнера равен 0,191 м, для ТВС равен 0,0033 м); t_{max} – максимальная температура среды, К; t_{min} – минимальная температура среды, К; ν – кинематический коэффициент вязкости среды, м²/с.

Число Прандтля

$$Pr = \frac{\mu \cdot C_p}{\lambda}, \quad (5)$$

где μ – динамический коэффициент вязкости среды, Па×с; C_p – удельная теплоемкость среды при постоянном давлении, Дж/(кг×К).

Среднее расчетное значение коэффициента конвекции при заполнении полости контейнера аргоном при мощности ТВС 120 Вт составляет $\varepsilon_k = 11,3$ и $\varepsilon_k = 1$ для аргона, заполняющего полость ТВС. Таким образом, в полости ТВС теплообмен осуществляется только за счет теплопроводности. Это объясняется тем, что значение числа Релея для аргона в полости ТВС меньше 10^3 (составляет 6,8); в этом случае коэффициент конвекции принимается равным единице.

Для учета влияния естественной конвекции по приведенной выше методике требуется итеративное решение. В нулевом приближении производится расчет модели со справочными значениями теплопроводности среды. Затем рассчитываются коэффициенты конвекции для среды, заполняющей полость контейнера. Производится повторный расчет модели. Процесс повторяется до тех пор, пока разница между расчетными значениями температуры модели двух последовательных итераций не станет ниже 0,1 К.

Теплофизические свойства материалов, используемые при проведении расчета, представлены в таблицах 1, 2 и 3 [4, 5].

Таблица 1 – Теплофизические свойства конструкционных материалов

Параметр	Температура, К				
	300	400	500	600	800
Нержавеющая сталь 12Х18Н10Т					
Теплопроводность, Вт/(м×°С)	14,5	16,5	17,5	18,5	21,5
Плотность, кг/м ³	7900	7895	7889	7871	7860
Удельная теплоемкость, Дж/(кг×°С)	505	520	535	550	600
Топливо					
Теплопроводность, Вт/(м×°С)	11,3	10,1	9,2	8,1	6,1
Плотность, кг/м ³	10697	10687	10674	10661	10627
Удельная теплоемкость, Дж/(кг×°С)	245	264	281	292	318
Бетон					
Теплопроводность, Вт/(м×°С)	1,28				
Плотность, кг/м ³	2300				
Удельная теплоемкость, Дж/(кг×°С)	1130				

Таблица 2 – Теплофизические свойства воздуха

Параметр	Температура, К				
	300	400	500	600	800
Теплопроводность, Вт/(м×°С)	0,026	0,0336	0,04	0,04354	0,58
Плотность, кг/м ³	1,16	0,871	0,696	0,580	0,435
Удельная теплоемкость, Дж/(кг×°С)	1000	1000	1000	1000	1000

Таблица 3 – Теплофизические свойства аргона

Параметр	Температура, К				
	273	373	473	573	773
Теплопроводность, Вт/(м×°С)	0,0165	0,0212	0,0256	0,0299	0,0379
Плотность, кг/м ³	1,784	1,305	1,030	0,850	0,627
Удельная теплоемкость, Дж/(кг×°С)	519	519	519	519	519

Согласно экспериментальным данным, погрешность расчета в ANSYS составляет от 5 до 10%.

Результаты моделирования.

На рисунках 1-3 показано расчетное температурное поле в среднем по высоте поперечном сечении контейнера заполненного аргоном при мощности ТВС

120 Вт, при этом толщина бетона составляет 0,5 м. Из рисунков видно, что максимальная температура топлива не превысит 553 К.

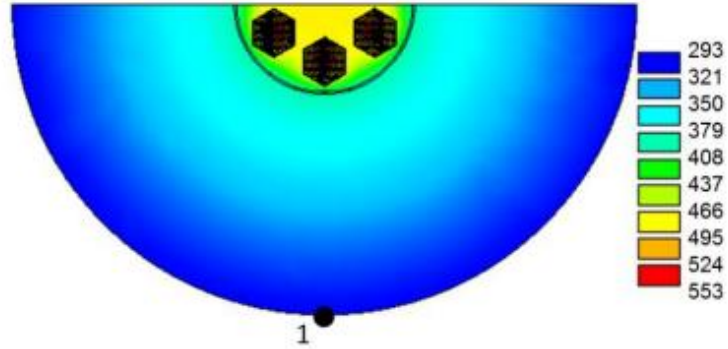


Рисунок 1 – Температурное поле контейнера и окружающего его бетона

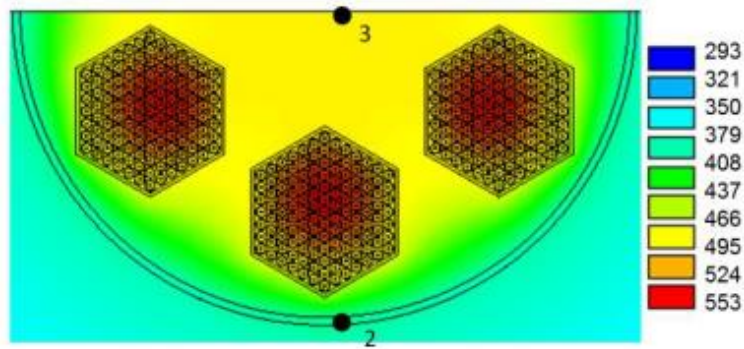


Рисунок 2 – Температурное поле контейнера

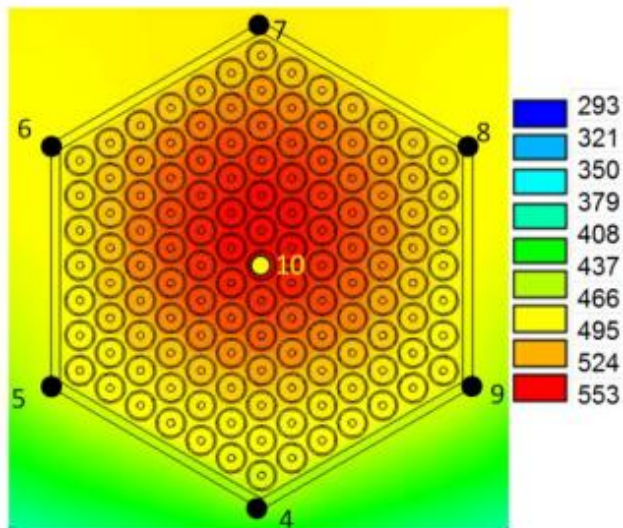


Рисунок 3 – Температурное поле ТВС

В таблице 4 приведены расчетные значения температуры, определенные в позициях, указанных на рисунках 3-5 для восьми вариантов расчета. В качестве наполнителя контейнера и тепловыделяющих сборок использовались аргон и воздух. Толщина теплоизоляции контейнера бетоном составляет 0,5 и 1 м.

Таблица 4 - Значения температуры в расчетных точках модели

Заполнитель	Толщина бетона, м	Мощность ТВС, Вт	Макс. температура ТВС, К	Значение температуры в точках, К									
				1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
аргон	0,5	120	553	293	396	501	450	466	493	503	493	466	552
	0,5	190	682	293	460	613	538	562	601	615	601	562	679
	1,0	120	594	293	440	546	496	512	538	547	538	512	593
	1,0	190	745	293	531	682	610	633	670	684	670	633	743
воздух	0,5	120	516	293	395	481	434	449	473	482	473	449	513
	0,5	190	627	293	455	582	513	534	571	584	571	534	624
	1,0	120	557	293	440	525	480	493	518	527	518	493	554
	1,0	190	692	293	527	651	585	606	640	653	640	606	689

В результате расчетных исследований было определено температурное поле в среднем по высоте поперечном сечении контейнера с топливными сборками реактора БН-350 для сухого хранения.

Литература

- 1 ANSYS release 14.5 Documentation for ANSYS WORKBENCH. ANSYS Inc., 2014 г.
- 2 K.J.Bathe, Finite Element Procedures, USA: Prentice Hall, Pearson Education, Inc., 2016. -1065 p.
- 3 Михеев, М. А. Основы теплопередачи : учеб. пособие для вузов / М. А. Михеев, И. М.Михеева. - 3-е изд., репринт. - М.: БАСТЕТ, 2010, 344 с.
- 4 Теплофизические свойства материалов ядерной техники / Росэнергоатом ; под общ. ред. П. Л. Кириллова. - 2-е изд., испр. и доп. - Москва : ИздАТ, 2007, 194 с.
- 5 Теплофизические свойства рабочих веществ теплоэнергетики : справочник / А. А. Александров, К. А. Орлов, В. Ф. Очков. - М. : ИД МЭИ, 2009, 223 с.

Приложение В.

Акт внедрения

КАЗАКСТАН РЕСПУБЛИКАСЫ
ЭНЕРГЕТИКА МИНИСТРЛІГІ
«КАЗАКСТАН РЕСПУБЛИКАСЫНЫҢ
ҰЛТТЫҚ ЯДРОЛЫҚ ОРТАЛЫҒЫ»
шаруашылық жүргізу құқығындағы
Республикалық мемлекеттік кәсіпорнының
«АТОМ ЭНЕРГИЯСЫ ИНСТИТУТЫ» филиалы



Филиал «ИНСТИТУТ АТОМНОЙ ЭНЕРГИИ»
Республиканского государственного
предприятия на праве хозяйственного ведения
«НАЦИОНАЛЬНЫЙ ЯДЕРНЫЙ ЦЕНТР
РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН»
МИНИСТЕРСТВА ЭНЕРГЕТИКИ
РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН

071100, Қазақстан Республикасы, Абай облысы, Курчатов қаласы,
Бейбіт атом көшесі, 10
Тел.: 8 (722-51) 3-32-02, тел./факс: 8 (722-51) 3-31-25,
коммутатор: 8 (722-51) 3-35-49, e-mail: iae@nnc.kz

071100, Республика Казахстан, область Абай, город Курчатов,
улица Бейбит атом, 10
Тел.: 8 (722-51) 3-32-02, тел./факс: 8 (722-51) 3-31-25,
коммутатор: 8 (722-51) 3-35-49, e-mail: iae@nnc.kz

09.11.2023 № 01600-Н/1272



«УТВЕРЖДАЮ»

Первый заместитель директора

В.В. Бакланов

2023 г.

АКТ ВНЕДРЕНИЯ

результатов диссертационной работы Коянбаева Е.Т.
«Закономерности изменения радиационно-индуцированной структуры и свойств
аустенитной стали в результате длительного термического воздействия»
в филиале ИАЭ РГП НЯЦ РК

Мы, нижеподписавшиеся, представители филиала «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, заместитель директора по испытаниям, Гныря В.С., главный инженер, PhD, Коровиков А.Г., начальник отдела материаловедческих испытаний, Бакланова Ю.Ю., начальник лаборатории радиационного материаловедения, PhD, Сапатаев Е.Е., и ученый секретарь, PhD, Ерыгина Л.А. составили настоящий акт о том, что в ходе реализации Республиканской научно-технической программы «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» использованы следующие результаты диссертационной работы Коянбаева Ерболат Таytoлеуовича:

1. Захват для крепления микрообразцов при испытаниях на растяжение, который позволил уменьшить размеры исследуемых образцов, снизить дозовые нагрузки на персонал и повысить точность определения механических свойств облученного материала (Патент РК на изобретение № 32350 от 31.08.2017, бюл. №16)
2. Методика длительных термических испытаний, моделирующих тепловое воздействие на конструкционные материалы во время длительного сухого хранения ОЯТ РУ БН-350 (Методика, Инв. № 1422вн/12-230-02 от 19.12.2013).
3. Методика прогнозирования изменения коррозионной стойкости и твердости облученных аустенитных сталей в зависимости от температуры и длительности пострadiационного термического воздействия (Методика, Инв. № 1745вн/12-230-02 от 19.09.2022).

В.С. Гныря

А.Г. Коровиков

Ю.Ю. Бакланова

Е.Е. Сапатаев

Л.А. Ерыгина