

## ВЫЗВАННОЕ РАСПУХАНИЕМ ОХРУПЧИВАНИЕ ОБЛУЧЕННЫХ НЕЙТРОНАМИ АУСТЕНИТНЫХ СТАЛЕЙ

*В.С. Неустроев, В.Н. Голованов, В.К. Шамардин*  
 ФГУП ГНЦ РФ НИИАР, г. Димитровград, Ульяновской области, Россия;  
 E-mail: neustroev@niiar.ru

Приведены результаты механических испытаний кольцевых образцов аустенитных сталей. Проведено сравнение с результатами испытаний плоских образцов с учетом распрямления рабочих сегментов кольцевых образцов.

Исследование аустенитных сталей в обоснование повышенного срока службы материалов внутрикорпусных устройств (ВКУ) реакторов ВВЭР-1000 – важная и актуальная задача. Одно из радиационных явлений, возможных при длительных сроках эксплуатации ВКУ, – радиационное распухание. А распухание приводит к дополнительному охрупчиванию материалов, что может ограничить срок службы изделий из них. В связи с этим исследование основных закономерностей радиационного охрупчивания, вызванного распуханием, также важная составляющая более крупной проблемы обоснования срока службы ВКУ ВВЭР. Основную информацию о таком виде охрупчивания можно почерпнуть из исследований оболочек твэлов и чехлов ТВС реакторов на быстрых нейтронах и в особенности реактора БОР-60 [1-16].

При исследовании твэлов и чехлов ТВС реактора БОР-60 было замечено, что положение зоны максимального охрупчивания совпадает с зоной максимального распухания материала изделий, облучавшихся в различных дозно-температурных условиях и выполненных из разных сталей и сплавов. Было доказано, что зона максимального охрупчивания связана именно с положением зоны максимального распухания, но не с положением зоны максимального флюенса. Например, хрупкая прочность (прочность при нулевой пластичности) для материала чехлов ТВС (сталь 12Х18Н10Т) наблюдалась на уровне на 25...125 мм выше центра активной зоны (рис. 1), т.е. выше того места, где наблюдался максимальный флюенс нейтронов (максимальная повреждающая доза).

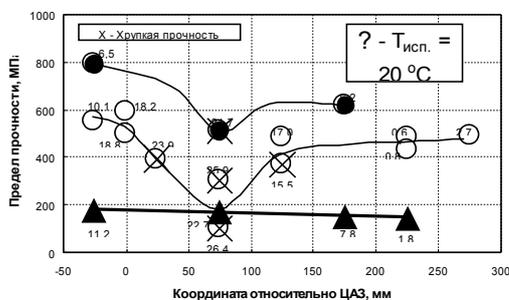


Рис. 1. Зависимости предела прочности стали 12Х18Н10Т, облученной в качестве чехла ТВС реактора БОР-60 до максимальной повреждающей дозы 72 сна, от температуры испытания: ● – 20;

○ – 450...550; ▲ – 800 °С (возле точек указаны значения распухания в процентах)

Из температурной зависимости характеристик механических свойств следует, что с ростом температуры облучения прочность снижается, однако при больших повреждающих дозах и значениях распухания при температурах испытания в интервале 450...550 °С наблюдалось anomalous падение характеристик прочности при нулевой пластичности (рис. 2).

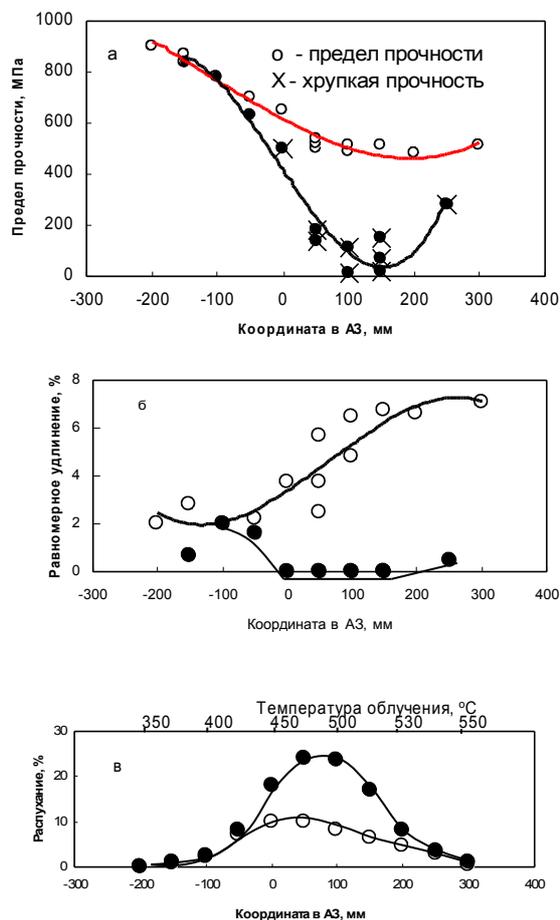


Рис. 2. Зависимость характеристик прочности (а), равномерного удлинения (б) и распухания (в) стали 12Х18Н10Т в аустенизированном состоянии, облученной до максимальной повреждающей дозы 35 (○) и 65 сна (●) по высоте активной зоны при температуре испытания, равной температуре облучения ± 50 °С

Характеристики пластичности снижались до нулевых значений в диапазоне температур 450...550 °С, и затем вновь возрастали при дальнейшем повышении температур облучения до 580 °С.

Испытание образцов при температурах ниже температуры облучения, например при комнатной, показывает тот же характер изменения механических свойств от температуры облучения, однако прочность и пластичность в этом случае несколько выше, чем при испытаниях в интервале температур облучения (см. рис. 1).

Испытание облученных образцов при температуре 800 °С, что значительно выше температур облучения, показывает отсутствие зависимости предела прочности от распухания (см. рис. 1). Равномерное удлинение резко уменьшается при малых значениях распухания, выходя на насыщение (около 1.2 %) выше 10 % распухания [10, 14].

Температурные зависимости предела прочности и относительного равномерного удлинения образцов стали 12Х18Н10Т, облученных до различных повреждающих доз, приведены на рис. 2. Хорошо видно, что для материала шестигранника с максимальной повреждающей дозой 39 сна предел прочности монотонно уменьшается, а равномерное удлинение увеличивается с ростом температуры облучения.

В то же время для шестигранника ТВС, облученного до 72 сна, температурные зависимости прочности и пластичности имеют минимумы, достигающие для прочности 10...100 МПа на уровне 100...150 мм выше центра активной зоны (500...530 °С) и нулевых значений для пластичности при этих же температурах (см. рис. 2).

Из этих данных ясно видна зависимость характеристик механических свойств от флюенса нейтронов и величины распухания. В работах [8, 10, 14, 16] была сделана такая попытка – построить зависимость прочности образцов стали 12Х18Н10Т от величины распухания. В них приведены зависимости прочности и пластичности образцов стали 12Х18Н10Т, вырезанных из различных чехлов ТВС активной зоны (см. рис. 1–2), и обобщенная зависимость прочности стали 12Х18Н10Т в логарифмических координатах от распухания (рис. 3).

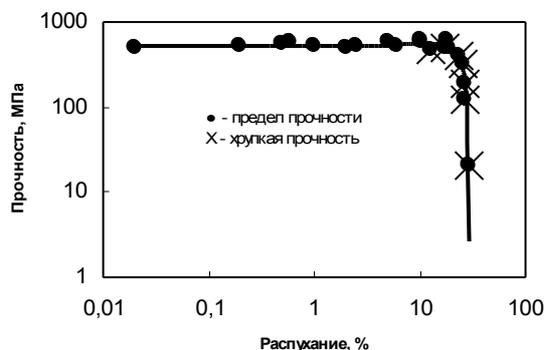


Рис. 3. Зависимость прочностных характеристик от распухания стали 12Х18Н10Т при температурах испытания 400...500 °С

Из этих результатов следует, что при температурах ниже температуры облучения существует критическая величина распухания (около 20 %),

выше которой пластичность отсутствует (нулевая), и хрупкая прочность резко снижается до значений, не характерных для сталей при этих температурах испытаний [14, 16].

Поверхность разрушения образцов с распуханием около 20%, вырезанных из места разрушения чехла ТВС из стали 12Х18Н10Т, характерная и имеет четко выраженные зоны. Зона интеркристаллитного разрушения, расположенная у края образца, имеет глубину около 60 мкм. Межзеренные фасетки содержат мелкие ямки, образованные слиянием пор, имеющих радиационное происхождение. Были обнаружены вторичные трещины (рис. 4), которые проходили как по границам зерен, так и по телу зерна.

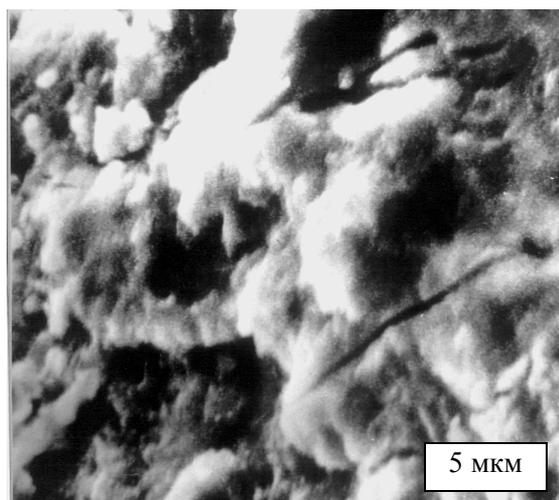


Рис. 4. Транскристаллитные трещины на поверхности разрушения чехла ТВС реактора БОР-60 в месте максимального распухания (распухание – 21.7 %)

Вторая зона – зона транскристаллитного чашечного излома. Разрушение осуществляется по механизму слияния микропор (рис. 5). Гребни отрыва выражены очень слабо, что свидетельствует о низких пластических свойствах материала образца.

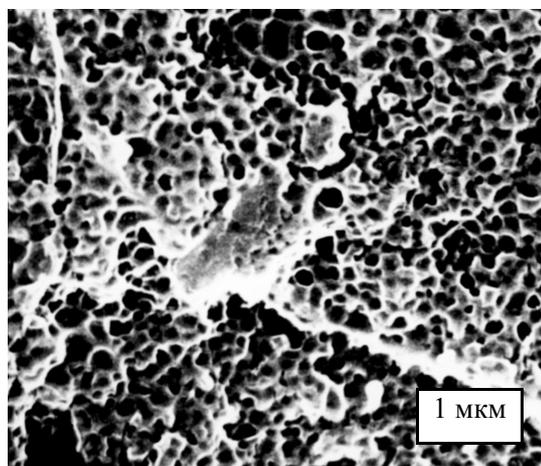


Рис. 5. Характер поверхности разрушения образца стали X18H10T с высоким уровнем распухания (30 %)

При температуре испытания, близкой к температуре максимума распухания (при распухании выше 20 %), весь материал можно представить в первом приближении как однородный, так как значения межчастичного расстояния и ширины зоны обеднения вблизи границ зерен примерно равны (см. рис. 5).

Малое межчастичное расстояние делает материал способным разрушаться квазихрупко: поверхность разрушения почти перпендикулярна оси растяжения образца и проходит транскристаллитно для образцов, вырезанных из облученных в реакторе БОР-60 чехлов ТВС. С увеличением распухания до 20 % угол отрыва увеличивается до 90 градусов (рис. 6).

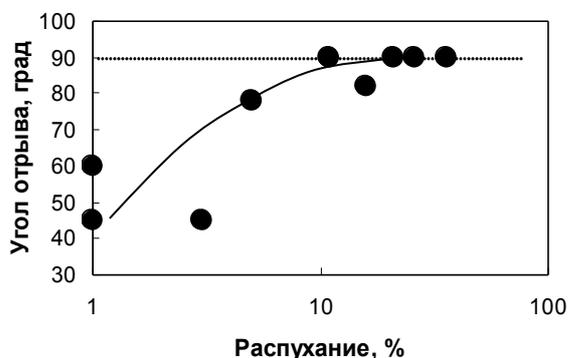


Рис. 6. Зависимость угла поверхности разрушения к оси растяжения образца от распухания для стали 12X18H10T при температурах испытания 20...500 °C

Характеристики механических свойств в этом случае соответствуют полностью охрупченному материалу, не способному к деформационному упрочнению, о чем свидетельствует отношение условного предела текучести к пределу прочности, приближающееся к единице, уже при распухании около 5%.

При испытании на разрыв, основном методе исследования явления среднетемпературного охрупчивания, процесс разрушения проходит, как и в других материалах, через зарождение и рост разрушающей трещины. В случае испытания кольцевых образцов на полукруглых опорах зарождение трещины происходит с внутренней стороны оболочки твэла, и поэтому состояние внутренней поверхности во многом определяет процесс зарождения трещины. Как правило, в твэлах ТВС реактора БОР-60 в области максимума распухания не наблюдается таких изменений в поверхностном слое, которые могли бы принципиально изменить количественные характеристики механических свойств материалов. Однако известны случаи, когда изменение состояния поверхности, например вследствие покрытия, может повлиять на механические свойства материала оболочки. Рассмотрим два из них [10].

На части твэлов одной из ТВС реактора БОР-60 на внутреннюю поверхность оболочек было нанесено покрытие из пиролитического хрома. Затем эта ТВС была облучена до максимального флюенса нейтронов  $4.4 \cdot 10^{26} \text{ м}^{-2}$  ( $E > 0.1 \text{ МэВ}$ ). Известно, что покрытие из хрома быстро упрочняется и, следовательно, теряет пластичность в процессе облучения, поэтому оболочку с подобным покрытием можно представить как относительно мягкую матрицу с тонким прочным внутренним покрытием. При испытании на растяжение в момент выпрямления кольца это покрытие разрушается в первую очередь. Таким образом, такое испытание на разрыв можно представить как испытание с предварительно нанесенной трещиной длиной в толщину покрытия. Были построены температурные зависимости общего удлинения и предела прочности образцов стали 0X16H15M3BP, вырезанных из оболочек, имеющих практически равные величины распухания и отличающихся наличием покрытия. Получен вывод о том, что наличие покрытия (предварительно созданная трещина) снижает общее удлинение во всем интервале температур испытания, при этом прочность образцов стали с покрытием снижается незначительно.

В другом подобном примере были также построены температурные зависимости механических свойств образцов стали 0X16H15M3B в аустенизированном состоянии, облученных до гораздо более высокого, чем в первом примере, максимального флюенса быстрых нейтронов ( $9.4 \cdot 10^{26} \text{ м}^{-2}$ ). При таком флюенсе нейтронов в этой стали максимальное распухание достаточно велико (около 5 %) и статистически не отличается для оболочек с покрытием и без него. В образцах без покрытия пластичность наблюдали при всех температурах испытания, а в образцах, вырезанных из оболочек твэлов с покрытием, были обнаружены и «нулевая» пластичность, и уменьшение прочности в зоне максимального распухания. В этом примере наличие покрытия (предварительно созданная трещина) привело к снижению пластичности уже до нулевых значений и снижению прочности в зоне максимального распухания.

Оба этих примера позволяют сделать выводы, во-первых, о влиянии условий испытания (предварительно созданной трещины) на механические свойства аустенитных сталей, во-вторых, о более значительном влиянии созданной трещины на механические свойства с ростом величины распухания стали и, в-третьих, о возможности выделения вклада образованной в покрытии трещины при испытании или при облучении, в снижении работы, необходимой для зарождения и роста разрушающей трещины.

Сравнение результатов, приведенных во втором примере, с результатами исследований средне-температурного радиационного охрупчивания на подобной стали, облученной до более высокой повреждающей дозы и большего распухания, позволяет сделать следующий более общий вывод: созданная трещина в материале с порами приводит к такой же деградации характеристик механических свойств, как и дополнительное распухание (выше критического).

И в случае с предварительно созданной трещиной, и в случае более высоких значений распухания мы имеем дело с повышенными уровнями концентрации напряжений, что позволяет считать повышенную пористость причиной возникновения микротрещин и соответствующего резкого уменьшения работы по зарождению разрушающей трещины.

Такой вывод можно достаточно четко продемонстрировать при построении зависимости прочности от распухания в аустенизированных сталях 0X16H15M3B и X18H10T (рис. 7).

На этом рисунке представлены результаты исследований кольцевых образцов с хрупким внутренним покрытием и без него, а также плоских образцов из стали 12X18H10T. Очевидно, что выпрямление колец на первой стадии испытания в хрупком материале приводит к появлению трещин и рабочая толщина кольца уменьшается. Возникающая при таком разгибании трещина является сильным концентратором напряжений (как и вакансионные поры) и влияет на механические свойства сильнее, чем простое уменьшение толщины образца.

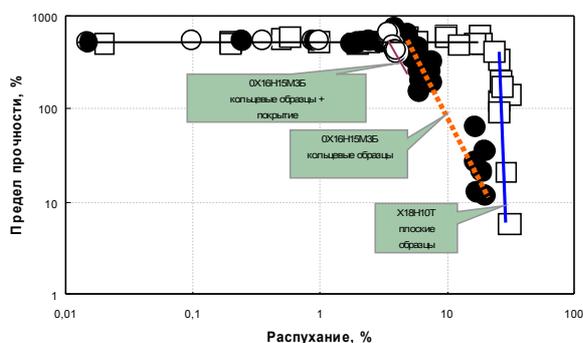


Рис. 7. Зависимости от распухания предела прочности аустенизированных аустенитных сталей, облученных в реакторе БОР-60 при температуре, близкой к температуре максимума распухания: сталь 0X16H15M3B - кольцевые образцы с покрытием (о), кольцевые образцы без покрытия (●); сталь X18H10T – плоские образцы (□)

Деформирование оболочек твэлов при эксплуатации в реакторах на быстрых нейтронах на стадии, когда развиваются распухание и ползучесть, наблюдается оваллизация твэлов, также может приводить к образованию трещин на внутренней поверхности оболочки твэла.

В случае испытания пластичного материала очевидно, что внутренние слои оболочки будут деформироваться до начала испытания. Исходя из критерия неизменности объема деформированного материала, для необлученной оболочки ( $\varnothing 6,9 \cdot 0,4$  мм) была сделана оценка величины дополнительной деформации внутренних слоев (при разбиении на 4 слоя) – она (деформация) может достигать 9,7 %.

Градиент распухания по толщине оболочки, направленный в разные стороны, или постоянная величина распухания будет приводить к тому, что максимальная деформация при разгибании кольца в процессе испытания на разрыв пластичного матери-

ала может изменяться от 6,6 до 12,6 %. При упрочнении материала и соответственном снижении пластичности до величин, меньших этих указанных значений, в кольцах вместе с некоторой деформацией будут образовываться трещины. Таким образом, испытания таких колец на стадии уже «выпрямленных» рабочих частей можно представить как испытания колец с предварительно созданной трещиной.

Трещины могут образовываться и в процессе эксплуатации твэлов в реакторе. Градиент температур в сечении оболочки приводит к различному распуханию внутренних и внешних слоев оболочки в зависимости от сечения твэла и температуры облучения. Существует интервал температур облучения, в котором распухание внутреннего слоя оболочки меньше, чем внешнего и среднего. Это приводит к появлению растягивающих напряжений во внутреннем слое и появлению трещин, как правило, по границам зерен на внутренней поверхности оболочки твэла [12,15].

Итак, трещины в кольцевых образцах могут сформироваться при эксплуатации в реакторе вследствие температурных градиентов, или при распрямлении колец с низкой деформационной способностью в результате оваллизации твэлов, либо при растрескивании хрупкого внутреннего покрытия или слоя на оболочке. Могут быть также и другие причины возникновения трещин, не связанные с распуханием материала оболочки, например физико-химическое взаимодействие материала оболочки твэла с продуктами деления топлива.

В работах [1-3,6-16] приводятся результаты исследований распухания и механических свойств распухающих аустенитных сталей. Эти данные суммированы в таблице, где показаны температуры максимума распухания, минимума пластических свойств и начала резкого снижения прочностных характеристик разных сталей. Хорошо видна корреляция температур экстремумов этих зависимостей. Кроме того, приведены повреждающие дозы и значения распухания (при температуре максимума распухания), при которых происходит резкое снижение характеристик прочности для различных сталей, т.е. наблюдается хрупкое разрушение без макропластичности (пластичность равна нулю).

Несмотря на различие в дозах, критические значения распухания для кольцевых образцов, вырезанных из оболочек твэлов, изготовленных из различных сталей, примерно одинаковы и все лежат в интервале от 5 до 10% распухания. Это позволяет говорить об определяющей роли распухания в процессах разрушения таких образцов. В плоских образцах из аустенизированной стали 12X18H10T значение распухания, при котором начинается резкое снижение прочности – 15...20%, больше, чем для кольцевых образцов, вырезанных из оболочек твэлов.

Попробуем разобраться в причинах различия критических величин распухания, когда пластичность равна нулю и начинается хрупкое разрушение, для плоских и кольцевых образцов аустенит-

ных сталей. Среднее удлинение (при разбиении оболочки твэла на четыре слоя по толщине) при выпрямлении сегмента кольцевого необлученного образца перед испытанием можно оценить в 4,5...5,0%, а облученного – в 3...6% в зависимости от температуры облучения и градиента температуры и распухания по толщине оболочки твэла.

Одна третья часть критической величины распухания равна для кольцевого образца  $(5...10\%)/3 \sim 2...3\%$ , а для плоского –  $(15...20\%)/3 \sim 5...7\%$ . Разность между ними 3...4% и ее (эту разность) можно связать с деформацией при распрямлении кольцевого облученного образца (3...6%).

**Взаимосвязь характеристик механических свойств и распухания образцов аустенитных сталей, вырезанных из оболочек твэлов и чехлов ТВС реакторов на быстрых нейтронах БОР-60 и БН-600 [1-3,6-16]**

Маркировка стали и ее термообработка	Термообработка	Температура максимума распухания, °С	Температура минимума прочности, °С	Температура минимума пластичности, °С	Доза начала резкого снижения прочности, сна	Распухание, соответствующее снижению прочности, %
0X16H15M3Б	Ауст.*	500...520	500...550	400...650	35...40	8...10
0X16H15M3БР	Ауст.	500...520	500...530	450...600	55...60	8...10
0X16H15M3БР + РЗМ + У	Ауст.	500...520	500...530	500...530	65...70	8...10
0X16H15M3Б	Ауст.	480	440...550	400...590	30...40	6...10
0X16H15M3Б	ХД	445	430...570	430...570	55...60	5...8
0X16H15M3Б	ХД	450	450...480	450...480	50	5...7
0X16H15M3БР	ХД	450	500	450...480	60...65	5...9
X16H15M2Г2ТФР	ХД	480	440...500	400...500	60...70	5...10
12X18H10Т	Ауст.	500-520	480...530	450...550	35...40	15...20

\*Ауст. – аустенизация, ХД – холодная деформация.

Таким образом, результаты механических испытаний кольцевых образцов с распуханием выше 5...10% хорошо совпадают с результатами испытаний плоских образцов с учетом распрямления рабочих сегментов кольцевых образцов. При высоких уровнях распухания (выше 25%) значения хрупкой прочности для кольцевых образцов и плоских образцов сталей сближаются (см. рис. 7), что подтверждает вывод о действии пористости и трещин как концентраторов напряжений.

В заключение можно отметить, что радиационное охрупчивание, вызванное распуханием, характерно для всех аустенитных сталей на стадии их распухания, и часто этот вид охрупчивания становится явлением в основном ограничивающим срок службы изделий из аустенитных сталей.

### ЛИТЕРАТУРА

1. В.С. Неустроев, В.Н. Голованов, А.В. Повстанко, В.К. Шамардин. *Изменение механических свойств стали 0X16H15M3Б в температурном интервале радиационного распухания*. Препринт. НИИАР - 30 (711). М.: «ЦНИИАтоминформ», 1986.
2. В.С. Неустроев, В.Н. Голованов, В.К. Шамардин. Радиационное охрупчивание материалов оболочек твэлов и чехлов ТВС в температурном интервале максимума распухания // *Атомная энергия*. 1990, т. 69, в. 4, с. 223–226.
3. В.С. Неустроев, В.Н. Голованов, В.К. Шамардин, А.В. Повстанко. Влияние величины радиационного распухания на характеристики прочности аустенитной стали X16H15M3Б // *Радиационная повреждаемость и работоспособность материалов ядерных*

*энергетических установок*. Л.: Изд. ЛПИ, 1990, с. 29–32.

4. F.A. Garner. Irradiation Performance of Cladding and Structural Steels in Liquid Metal Reactors // *Materials Science and Technology: A Comprehensive Treatment*. VCH Publishers, 1994, v. 10A, p. 419–543.
5. A. Fissolo, R. Cauvin, J.-P. Hugot, V. Levy. Influence of Swelling on Irradiated CW Titanium Modified 316 Embrittlement // *Effects of Radiation on Materials: 14<sup>th</sup> International Symposium, ASTM STP 1046*. American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1990, v. 2, p. 700–713.
6. С.А. Аверин, В.А. Сафонов, М.И. Солонин. Физические аспекты разрушения оболочек твэлов ядерных реакторов. // *ВАНТ. Серия ФПП и РМ*. 1990, в. 3(54), с. 62–68.
7. А.Н. Воробьев, В.Д. Дмитриев, А.Г. Вахтин и др. Исследование механических свойств аустенитных сталей 0X16H15M3Б, 0X16H15M3БР, 0X16H15M2Г2ТР и ферритомартенситной стали 1X13M2БФР, облученных в реакторе БН-350 // *Радиационное материаловедение: Труды Международной конференции по радиационному материаловедению, Алушта, 22-25 мая 1990 г.* Харьков, 1990, т. 3, с. 110–118.
8. В.С. Неустроев, В.К. Шамардин. О связи микроструктуры и характера разрушения стали X18H10Т, облученной нейтронами до 70 сна // *Атомная энергия*. 1991, т. 71, в. 4, с. 345–348.
9. В.С. Неустроев, А.В. Повстанко, В.К. Шамардин. Микроструктурные аспекты охрупчивания облученных аустенитных сталей и сплавов // *ВАНТ. Серия «Материаловедение и новые материалы»*. 1992, в. 2(26), с. 58–64.
10. В.С. Неустроев, Т.М. Буланова, А.В. Повстанко, В.К. Шамардин. Вызванное распуханием охрупчива-

- ние облученных аустенитных сталей и сплавов //Сб. докл. III Межотраслевой конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 27-30 октября 1992 г. Димитровград: НИИАР, 1994, т. 2, с. 31–55.
11. В.В. Чуев, В.Н. Ланских, А.Н. Огородов и др. Работоспособность ТВС быстрых реакторов //Исследование конструкционных материалов элементов активной зоны быстрых натриевых реакторов. Екатеринбург: УрО РАН, 1994, с. 85–140.
  12. С.А. Аверин, Е.А. Кинев, В.И. Барсанов, В.Л. Панченко. К вопросу о разупрочнении холлоднодеформированных аустенитных сталей после высокодозного облучения //Сб. докл. III Межотраслевой конференции по реакторному материаловедению. Димитровград: НИИАР, 1994, т. 2, с. 5–30.
  13. В.С. Неустроев. К вопросу о механизмах охрупчивания облученных аустенитных сталей и сплавов //Сборник докладов IV Межотраслевой конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 15-20 мая 1995 г. Димитровград, ГНЦ НИИАР, 1996, т. 3, с. 98–109.
  14. В.С. Неустроев, В.К. Шамардин. Среднетемпературное радиационное охрупчивание аустенитных сталей и сплавов, облученных в реакторах на быстрых нейтронах //ФММ. 1997, т. 83, №5, с. 134–142.
  15. С.А. Аверин, А.В. Козлов, Е.Н. Щербаков. Влияние высокодозного облучения на структуру и разрушение стали 0X16H15M3B //Influence of High dose Irradiation on Core Structural and Fuel Materials in Advanced Reactors. IAEA-TECDOC-1039, VIENNA, 1998, p. 168-178.
  16. В.С. Неустроев, З.Е. Островский, В.К. Шамардин, В.В. Яковлев. Экспериментальное исследование разрушения облученных шестигранных чехлов ТВС реактора БОР-60 //Сборник докладов V Межотраслевой конференции по реакторному материаловедению. Димитровград, 1998, т. 2, ч. 2, с. 42–66.

## **ВИКЛИКАНЕ РОЗПУХАННЯМ ОКРИХЧУВАННЯ ОПРОМІНЕНИХ НЕЙТРОНАМИ АУСТЕНІТНИХ СТАЛЕЙ**

*В.С. Неустроев, В.М. Голованов, В.К. Шамардин*

Наведено результати механічних випробувань кільцевих зразків аустенітних сталей. Проведено порівняння з результатами випробувань плоских зразків з урахуванням розпрямлення робочих сегментів кільцевих зразків.

## **THE EMBRITTLEMENT INDUCED BY SWELLING OF NEUTRON IRRADIATED AUSTENITIC STAINLESS STEELS**

*V.S. Neustroev, V.N. Golovanov, V.K. Shamardin*

Results of mechanical tests of ring samples austenitic stainless steels are resulted. Comparison with results of tests of flat samples is carried out in view of straightening working segments of ring samples.