

ЭВОЛЮЦИЯ МИКРОСТРУКТУРЫ СТАЛИ ТИПА Cr16–Ni19 ПРИ ОБЛУЧЕНИИ В ЗОНЕ МАЛОГО ОБОГАЩЕНИЯ РЕАКТОРА НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ. ФОРМИРОВАНИЕ И РАЗВИТИЕ РАДИАЦИОННОЙ ПОРИСТОСТИ

© 2025 г. И. А. Портных^{a,*}, В. Л. Панченко^a, А. Е. Устинов^a, А. В. Козлов^{a,b}

^aАО “Институт реакторных материалов”, г. Заречный, а/я 29, Свердловской обл., 624250 Россия

^bИнститут физики металлов УрО РАН, ул. Софы Ковалевской, 18, Екатеринбург, 620108 Россия

*e-mail: portnyh_ia@irmatom.ru

Поступила в редакцию 31.07.2024 г.

После доработки 11.09.2024 г.

Принята к публикации 17.09.2024 г.

Проведены микроструктурные исследования образцов, изготовленных из различных участков оболочек твэлов, после облучения в зоне малого обогащения реактора на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем до повреждающих доз свыше 100 сна. Исследованы характеристики пористости образцов, облучавшихся с различными скоростями генерации атомных смещений, выбранных из участков с различными температурами облучения. Для каждого образца построены гистограммы распределения пор по размерам, которые описаны унимодальными логнормальными распределениями. Выделены три типа пор: “мелкие”, “среднего размера” и “крупные”, прослежены изменения среднего размера и концентрации пор каждого типа в зависимости от температуры облучения и скорости генерации атомных смещений.

Ключевые слова: твэл, нейтронное облучение, пористость, аустенитная сталь типа Cr16–Ni19, микроструктура

DOI: 10.31857/S0015323025010104, **EDN:** BZNWID

ВВЕДЕНИЕ

К основным факторам, лимитирующими длительность работы тепловыделяющей сборки (ТВС) реакторов на быстрых нейтронах, относят возникновение и развитие радиационной пористости и связанное с ней распускание материала [1]. Для повышения эффективности реакторов на быстрых нейтронах планируется увеличение срока эксплуатации твэлов до достижения выгорания топлива более 15% т.а. (тяжелых атомов) и соответственно повреждающей дозы не менее 140 сна. Эта задача решается поэтапно, на данном этапе – за счет усовершенствования технологии изготовления оболочек твэлов из аустенитной стали [2]. В настоящее время в реакторе БН-600 облучены четыре опытные ТВС с оболочками твэлов из аустенитной стали типа Cr16–Ni19, изготовленными по технологии, описанной в [3]. Облучение в различных зонах реактора происходит с различными скоростями набора повреждающей дозы. Для определения предельных ресурсных возможностей твэлов с

оболочками из стали типа Cr16–Ni19 необходимо знание закономерностей протекания в ней процесса распускания при облучении в диапазоне температур и доз, характерных для реакторов на быстрых нейтронах.

Цель работы – получение экспериментальных данных по радиационной пористости аустенитной стали типа Cr16–Ni19 (холоднодеформированной) после облучения в зоне малого обогащения (ЗМО) реактора БН-600 в диапазоне температур от 420°C до 630°C и выявление характерных особенностей процесса образования и эволюции радиационных пор различных типов.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Исследования проводили на образцах оболочек четырех твэлов из холоднодеформированной аустенитной стали типа Cr16–Ni19, прошедших эксплуатацию в реакторе БН-600 в составе ТВС в ЗМО. Образцы вырезали из различных участков по высоте твэлов, облучавшихся с различными скоростями набора повреждающей дозы.

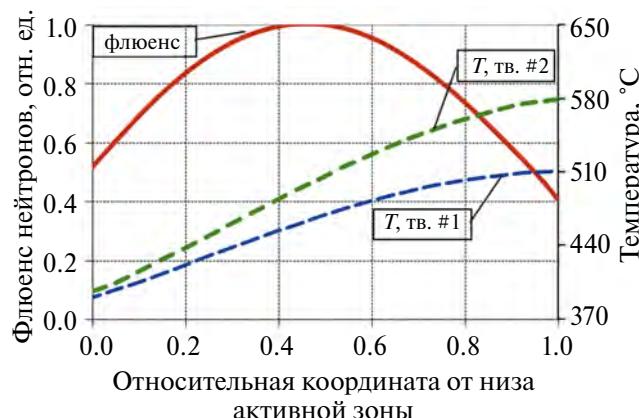


Рис. 1. Типичный вид распределения плотности потока нейтронов и температур оболочек твэлов (#1, #2) по высоте активной зоны.

Типичный вид распределения плотности потока нейтронов и температур оболочек твэлов по высоте активной зоны приведен на рис. 1. Параметры распределения зависят от положения твэла в активной зоне и у разных твэлов различаются между собой. Для исследований из разных твэлов выбирали участки, облученные в одинаковых узких диапазонах температур, внутри которых у оболочек различных твэлов различаются скорости атомных смещений.

Все исследованные образцы разбивали на группы, облученные в температурных зонах, соответствующих семи диапазонам: низкотемпературным ($420\text{--}430$) $^{\circ}\text{C}$ – НТ1 и ($445\text{--}455$) $^{\circ}\text{C}$ – НТ2, среднетемпературным ($485\text{--}495$) $^{\circ}\text{C}$ – СТ1 и ($515\text{--}525$) $^{\circ}\text{C}$ – СТ2, высокотемпературным ($540\text{--}550$) $^{\circ}\text{C}$ – ВТ1, ($560\text{--}570$) $^{\circ}\text{C}$ – ВТ2 и ($585\text{--}630$) $^{\circ}\text{C}$ – ВТ3. В каждом температурном диапазоне присутствовали образцы, несколько различающиеся по скорости генерации атомных смещений. Это позволило проводить их сравнение с целью выявления зависимости характеристик пористости от скорости генерации атомных смещений.

Исследования проводили на просвечивающем растром электронном микроскопе высокого разрешения Talos F200X G2, оснащенным спектрометром EELS, позволяющим определять толщину исследуемого участка фольги по относительной интенсивности пика нулевых потерь. При количественной обработке данная информация позволяет получать наиболее корректные характеристики. Способ подготовки образцов приведен в [4]. Съемку для определения параметров пористости проводили на различных участках фольги при увеличении 390 тыс. крат для расчета мелких пор и в зависимости от размеров пор при увеличениях от 14 тыс. до 120 тыс. крат для расчета крупных пор. Расчет параметров пор

проводили по нескольким изображениям, количество фотографий составляло от 5 до 12 штук, статистика составляла от 1000 до 3000 объектов отдельно для мелких и крупных пор с каждого исследованного образца.

Обработку изображений проводили с использованием программы для оцифровки и количественной обработки изображений – цифровая фотолаборатория SIAMS Photolab. По результатам измерений строили гистограммы распределения пор по размерам. Гистограммы представлялись в виде унимодальных логнормальных распределений, соответствующих различным по месту и времени образования типам пор. После чего рассчитывали медианный размер пор каждого типа, их концентрацию, интегральную пористость согласно процедуре, описанной в [5].

РЕЗУЛЬТАТЫ

Низкотемпературные диапазоны

В низкотемпературных диапазонах было исследовано по одному образцу из каждого твэла, скорости генерации атомных смещений у различных образцов составили $(1.0\text{--}1.1)\cdot10^{-6}$ сна/с для НТ1 и $(1.3\text{--}1.4)\cdot10^{-6}$ сна/с для НТ2. В микроструктуре исследованных образцов поры в целом равномерно распределены по объему. Наблюдаются обедненные по порам зоны вдоль некоторых двойников, выделений первичных карбонитридов (рис. 2а), вблизи границ зерен. Вдоль отдельных границ зерен наблюдаются строчки пор (рис. 2б). Прослеживается связь пор с элементами дислокационной структуры, а также с выделениями вторых фаз (рис. 3).

В структуре наблюдаются мелкие поры, расположенные преимущественно на элементах дислокационной структуры, по границам зерен, а также на внутризеренных и зернограницевых выделениях вторых фаз (рис. 3).

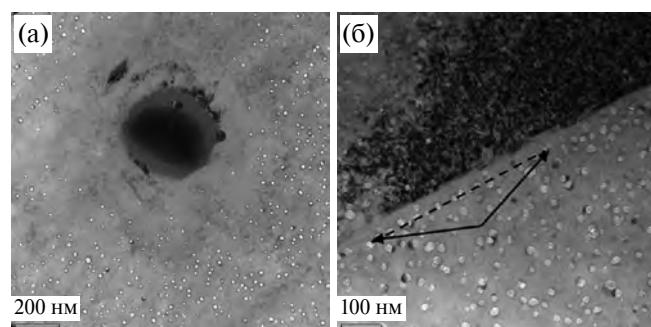


Рис. 2. Микроструктура стали типа Cr16–Ni19, характерная для низкотемпературных диапазонов облучения. (а) – обедненные крупными порами области около выделений первичных карбонитридов; (б) – строчки крупных пор вдоль границы зерна (отмечено стрелками).

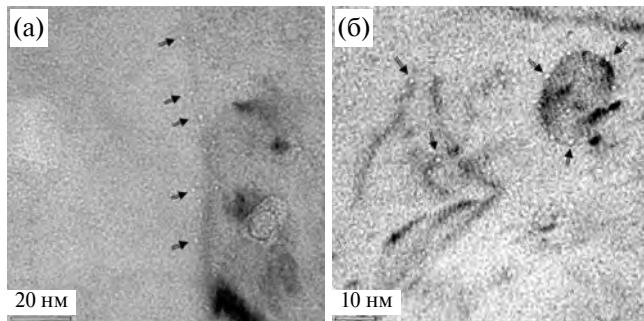


Рис. 3. Мелкие поры в структуре стали типа Cr16–Ni19: (а) – на границе зерна; (б) – на внутризеренных выделениях.

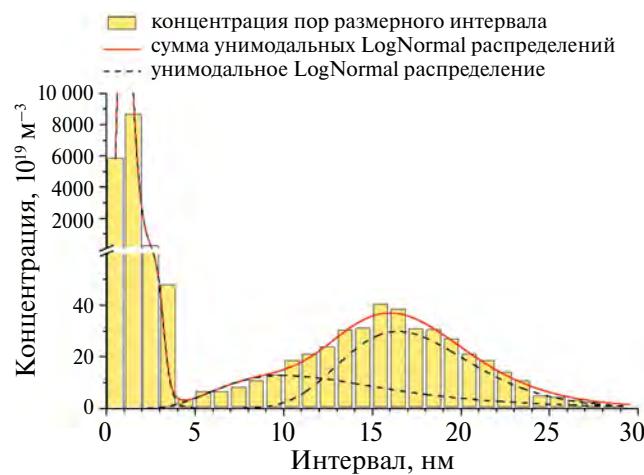


Рис. 4. Типичная гистограмма распределения пор по размерам в образцах НТ1 оболочек твэлов из стали типа Cr16–Ni19 (скорость генерации атомных смещений $1.1 \cdot 10^{-6}$ сна/с).

Максимальный размер пор в образцах НТ1 не превышает 30 нм, а в НТ2 – 50 нм. Типичная гистограмма распределения пор по размерам приведена на рис. 4, математически корректно она описывается тремя унимодальными логнормальными распределениями, соответствующими трем типам пор: мелкие, среднего размера и крупные.

На графиках (рис. 5) средние диаметры пор каждого типа обозначены заполненными символами и сплошными линиями, а концентрации – не заполненными символами и штриховыми линиями. Средний размер мелких пор (рис. 5а) в исследованных образцах обоих температурных диапазонов составил ~ 1 нм.

Концентрация мелких пор в НТ1 с ростом скорости генерации атомных смещений имеет тенденцию к снижению от $2.5 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ до $0.6 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$, а в НТ2 зависимости от скорости генерации атомных смещений не прослеживается, при этом наблюдается разброс значений от $0.8 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ до $1.7 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ (рис. 5а).

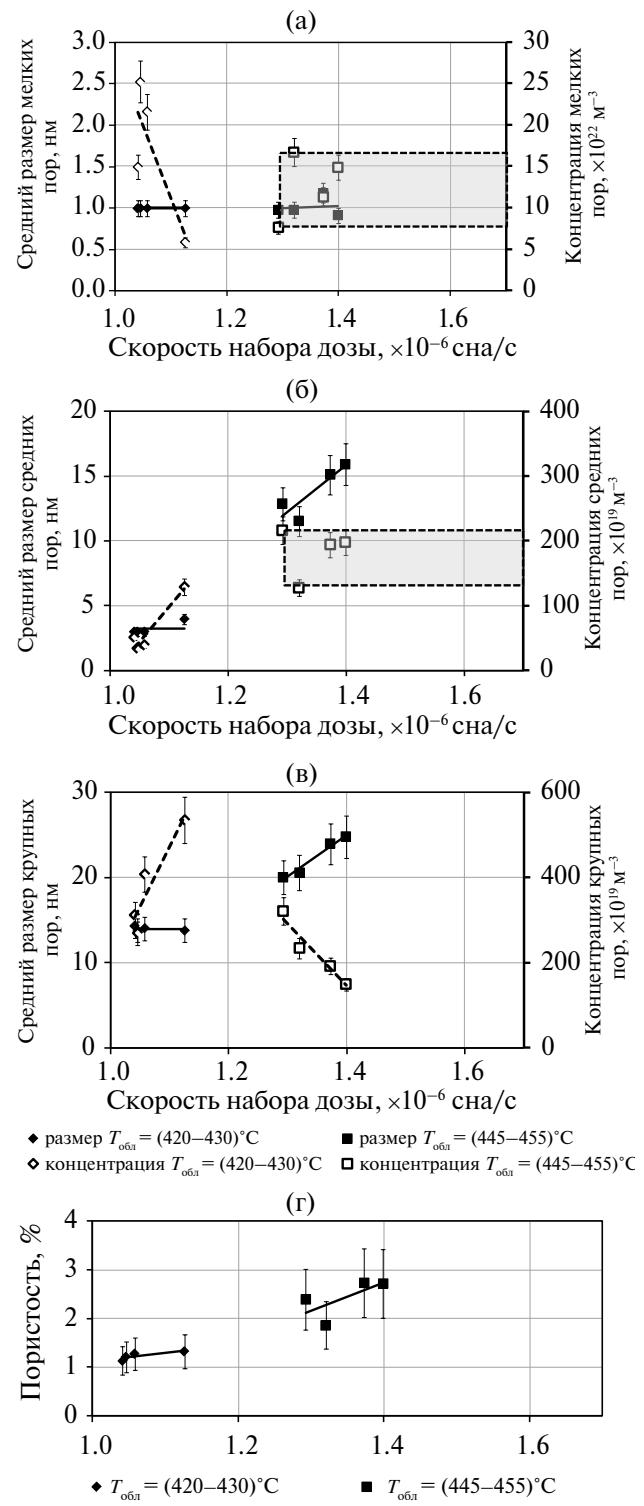


Рис. 5. Характеристики мелких (а), среднего размера (б) и крупных (в) пор в образцах стали типа Cr16–Ni19 из низкотемпературных диапазонов облучения и интегральная пористость образцов (г).

Диаметр пор среднего и крупного размеров (рис. 5б, в) в образцах НТ1 не зависит от скорости генерации атомных смещений в пределах

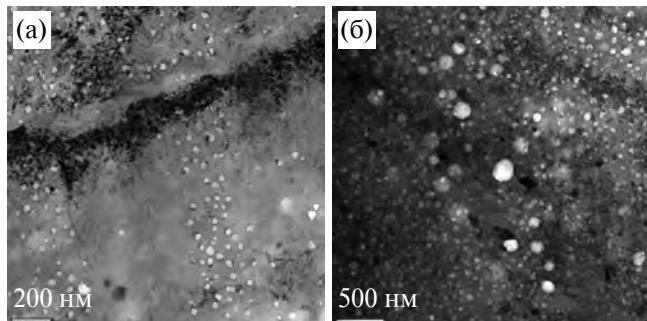


Рис. 6. Микроструктура стали типа Cr16–Ni19, характерная для среднетемпературных диапазонов облучения со скоростью генерации атомных смещений $1.6 \cdot 10^{-6}$ сна/с: (а) – области свободные от крупных пор; (б) – наиболее крупные поры на границах двойников.

погрешности его определения и составил ~ 3.2 нм и ~ 14 нм соответственно. При этом концентрация пор обоих размеров увеличивается от $0.3 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ до $1.3 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ у пор среднего размера и от $2.7 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ до $5.4 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ у крупных пор.

В температурном диапазоне НТ2 диаметр пор с увеличением скорости генерации атомных смещений растет: пор среднего размера с ~ 11 до ~ 15 нм, а крупных пор с ~ 20 до ~ 25 нм (рис. 5б, в). Концентрация пор среднего размера не проявляет зависимости от скорости генерации атомных смещений, при этом наблюдается разброс значений от $1.3 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ до $2.2 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$. Концентрация крупных пор снижается с ростом скорости генерации атомных смещений от $3.2 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$ до $1.5 \cdot 10^{21} \text{ м}^{-3}$.

Пористость исследованных образцов оболочек различных твэлов температурного диапазона НТ1 практически одинакова и составляет от 1.1% до 1.3%, а в температурном диапазоне НТ2 значения пористости в образцах разных твэлов находятся в диапазоне от 1.8% до 2.7% (рис. 5г).

Среднетемпературные диапазоны

В диапазонах облучения СТ1 и СТ2 со скоростями генерации атомных смещений $(1.5–1.6) \cdot 10^{-6}$ сна/с исследовали по одному образцу из различных твэлов. Повышение температуры облучения приводит к увеличению максимального размера пор до 55–70 нм в диапазоне СТ1 и до 90–120 нм в диапазоне СТ2 в различных образцах. Распределение пор диаметра более 20 нм по объему материала становится менее однородным. Наблюдаются локальные области, где крупные поры практически отсутствуют, в температурном диапазоне СТ1 – до 5% объема образцов, и до 8% в диапазоне СТ2.

Области свободные от крупных пор чаще расположены в полосах деформации либо не связаны со структурными особенностями (рис. 6а).

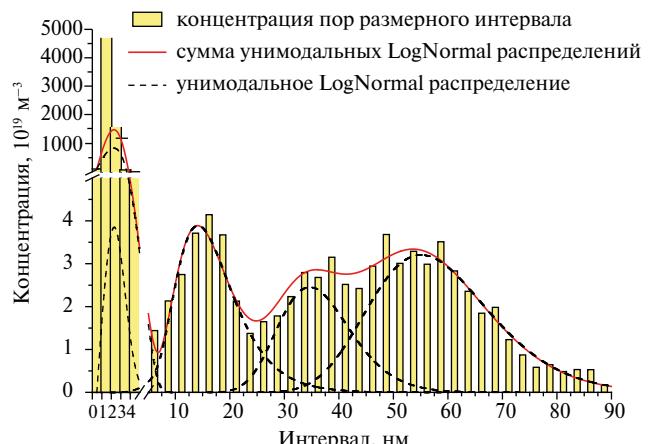


Рис. 7. Типичная гистограмма распределения пор по размерам в образцах оболочек твэлов из стали типа Cr16–Ni19 из диапазона облучения СТ2 (скорость генерации атомных смещений $1.6 \cdot 10^{-6}$ сна/с).

На границах двойников наблюдаются наиболее крупные поры (более 120 нм), образующие иногда цепочки (рис. 6б). Наблюдаются неширокие обедненные крупными порами зоны вдоль границ зерен, а также выстраивание вдоль них пор в строчки.

В стали в среднетемпературных областях также, как и в низкотемпературных, наблюдается высокая концентрация мелких пор размером до 5 нм, расположенных на межфазных границах выделений вторых фаз различного типа (*G*-фаза, сложные ГЦК-карбиды) как внутризеренных, так и зернограничных, в том числе фосфидов, образовавшихся при облучении в этих температурных диапазонах [4]. Мелкие поры также расположены по границам зерен, на дислокациях, в полосах деформации.

Типичная гистограмма распределения пор по размерам приведена на рис. 7, в образцах различных твэлов гистограммы математически корректно описываются тремя (в ряде случаев четырьмя или пятью) унимодальными логнормальными распределениями. В исследованных образцах, помимо мелких пор, визуально отчетливо выделяется две системы более крупных пор: средние (центральный пик в диапазоне размеров 5–25 нм) и крупные (сумма последующих пиков). Таким образом, в среднетемпературных диапазонах облучения также рассматривались характеристики трех систем пор: мелкие, среднего размера и крупные.

Средний диаметр мелких пор в исследованных образцах обоих температурных диапазонов СТ1 и СТ2 составил ~ 1.3 нм, зависимости концентрации этих пор от скорости генерации атомных смещений не прослеживается, значения

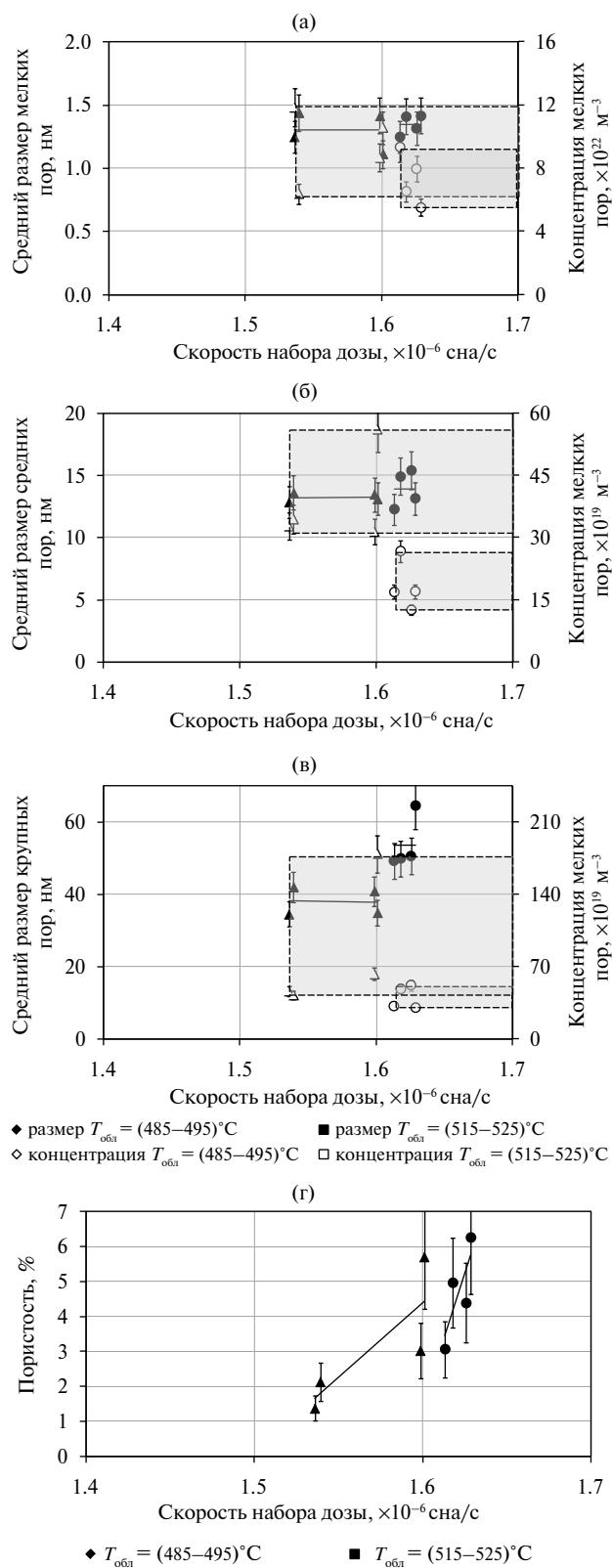


Рис. 8. Характеристики мелких (а), среднего размера (б) и крупных (в) пор в образцах стали типа Cr16–Ni19 из среднетемпературных диапазонов облучения и интегральная пористость образцов (г).

варьируются от $6.4 \cdot 10^{22}$ м⁻³ до $11.8 \cdot 10^{22}$ м⁻³ в температурном диапазоне СТ1, и от $5.5 \cdot 10^{22}$ м⁻³ до $9.3 \cdot 10^{22}$ м⁻³ в температурном диапазоне СТ2 (рис. 8а).

Средний диаметр пор среднего размера в образцах из диапазонов СТ1 и СТ2 в пределах погрешности его определения не зависит от скорости генерации атомных смещений и составляет ~ 14 нм (рис. 8б). Концентрация пор среднего размера в образцах из обоих температурных диапазонов не зависит от скорости генерации атомных смещений, и имеет разбросы от $3.1 \cdot 10^{20}$ м⁻³ до $5.6 \cdot 10^{20}$ м⁻³ в СТ1 и от $1.3 \cdot 10^{20}$ м⁻³ до $2.7 \cdot 10^{20}$ м⁻³ в СТ2 (рис. 8б).

Зависимость среднего диаметра крупных пор в образцах из обоих среднетемпературных диапазонов от скорости генерации атомных смещений не проявляется. В пределах погрешности определения его значение составило ~ 38 нм в СТ1 и ~ 54 нм в СТ2 (рис. 8в). Концентрация крупных пор в образцах из обоих среднетемпературных диапазонов не зависит от скорости генерации атомных смещений, и имеет разбросы от $4.2 \cdot 10^{20}$ м⁻³ до $17.9 \cdot 10^{20}$ м⁻³ в СТ1 и от $3.0 \cdot 10^{20}$ м⁻³ до $5.2 \cdot 10^{20}$ м⁻³ в СТ2 (рис. 8в).

Пористость исследованных образцов оболочек различных твэлов составляет от 1.4% до 5.7% для СТ1 (различается в ~ 4 раза), а для температурного диапазона СТ2 различие пористости образцов разных твэлов варьируется от 3.0% до 6.2% – в ~ 2 раза (рис. 8г).

Высокотемпературные диапазоны

В высокотемпературных диапазонах облучения ВТ1 – (540–550)°С и ВТ2 – (560–570)°С было исследовано по одному образцу различных твэлов. С ростом температуры облучения неравномерность распределения крупных пор в объеме образцов увеличивается (рис. 9), доля областей, свободных от крупных пор, увеличивается от 9–21% в температурном диапазоне ВТ1 до 67–93% в температурном диапазоне ВТ2.

В образцах из температурного диапазона ВТ3 – (585–630)°С статистически значимого количества крупных пор не наблюдалось за исключением образца, облученного со скоростью генерации атомных смещений $1.4 \cdot 10^{-6}$ сна/с, где свободный от крупных пор объем составил 88%.

Как и в предыдущих температурных диапазонах облучения отчетливо выделяется система мелких пор, равномерно распределенных по объему материала исследованных образцов и расположенных как на элементах дислокационной структуры, по границам зерен, так и на внутризеренных и зернограницевых выделениях вторых фаз различного типа (*G*-фаза, сложные ГЦК-карбиды, фаза Лавеса, фосфиды) [4].

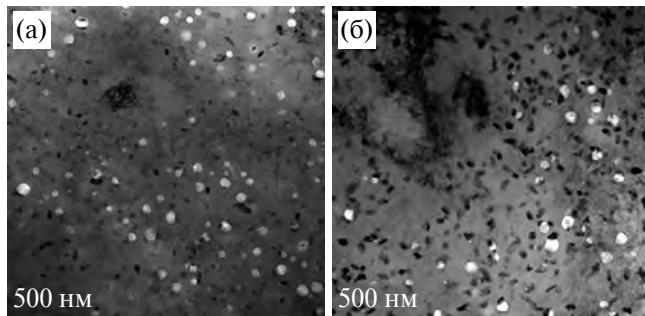


Рис. 9. Микроструктура стали типа Cr16–Ni19, характерная для высокотемпературных диапазонов облучения BT1, BT2: (а) температурный диапазон (540–550)°C, скорость генерации атомных смещений $1.6 \cdot 10^{-6}$ сна/с; (б) температурный диапазон (560–570)°C, скорость генерации атомных смещений $1.5 \cdot 10^{-6}$ сна/с.

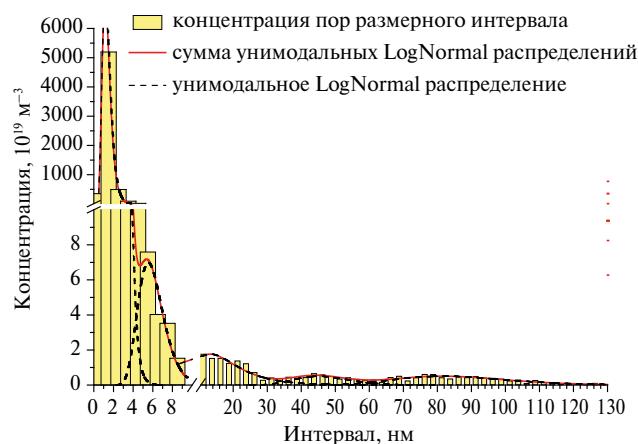


Рис. 10. Типичная гистограмма распределения пор по размерам в образцах оболочек твэлов из стали типа Cr16–Ni19 из высокотемпературного диапазона облучения BT1 (скорость генерации атомных смещений $1.6 \cdot 10^{-6}$ сна/с).

Гистограммы распределения пор по размерам в образцах оболочек твэлов из температурных диапазонов BT1 и BT2 описывались количеством пиков от трех до пяти (рис. 10), как и в случае среднетемпературного диапазона, рассматривались характеристики трех систем пор. Максимальный размер пор с ростом температуры облучения увеличился до 140 нм в температурном диапазоне BT1 и до 350 нм в BT2.

Зависимости концентрации мелких пор от скорости генерации атомных смещений не наблюдается во всех высокотемпературных диапазонах, значения варьируются от $2.8 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$ до $6.3 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$ в диапазоне BT1, от $2.3 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$ до $6.1 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$ в диапазоне BT2 и от $1.3 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$ до $5.0 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$ в диапазоне BT3 (рис. 11а).

Средний размер мелких пор в исследованных образцах высокотемпературных диапазонов не зависит от скорости генерации атомных смещений, в температурном диапазоне BT1 он

составил ~1.3 нм, а в температурных диапазонах BT2 и BT3 ~1.8 нм (рис. 11а).

Средний диаметр пор среднего размера в образцах из температурных диапазонов BT1 и BT2 в пределах погрешности его определения не зависит от скорости генерации атомных смещений и составляет ~13–14 нм. Концентрация пор среднего размера в образцах из температурных диапазонов BT1 и BT2 не зависит от скорости генерации атомных смещений и имеет разбросы от $3.4 \cdot 10^{19} \text{ м}^{-3}$ до $11.6 \cdot 10^{19} \text{ м}^{-3}$ в диапазоне BT1 и от $8.6 \cdot 10^{19} \text{ м}^{-3}$ до $11.8 \cdot 10^{19} \text{ м}^{-3}$ в диапазоне BT2 (рис. 11б). В температурном диапазоне облучения BT3 пор среднего размера не наблюдалось.

Средний диаметр крупных пор в образцах из диапазонов BT1 и BT2 не зависит от скорости генерации атомных смещений в пределах погрешности его определения и составляет ~63 нм в диапазоне BT1 и ~75 нм в диапазоне BT2, а в образце из диапазона BT3 ~57 нм (рис. 11в).

Концентрации крупных пор в образцах из диапазонов BT1 и BT2 имеют тенденцию к росту с ростом скорости генерации атомных смещений: от $1.0 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-3}$ до $1.6 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-3}$ в диапазоне BT1 и от $0.1 \cdot 10^{19} \text{ м}^{-3}$ до $2.1 \cdot 10^{19} \text{ м}^{-3}$ в диапазоне BT2, концентрация крупных пор в образце из диапазона BT3 составила $0.9 \cdot 10^{19} \text{ м}^{-3}$ (рис. 11в).

Пористость исследованных образцов оболочек различных твэлов из диапазона BT1 находится в пределах от 1.5% до 3.9%, при этом отличие может быть в 2.6 раза. Пористость исследованных образцов оболочек твэлов из остальных высокотемпературных диапазонов не превышает 0.8% (рис. 11г).

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Анализ результатов показывает, что средний размер мелких, средних и крупных пор в каждом из исследованных температурных диапазонов не зависит от скорости генерации атомных смещений в пределах погрешности измерений. Можно лишь отметить тенденцию к росту диаметра средних и крупных пор у образцов после низкотемпературного (445–455)°C облучения. Концентрации мелких и средних пор при температурах облучения выше (445–455)°C имеют большие разбросы внутри каждого температурного диапазона и не прослеживается зависимостей от скорости генерации атомных смещений. Были построены зависимости среднего размера и концентрации пор различного типа от температуры облучения (рис. 12–14).

Средний размер мелких пор увеличивается с ростом температуры облучения от ~1 нм при температурах (420–450)°C до ~1.8 нм при температурах (560–630)°C, при этом концентрация их

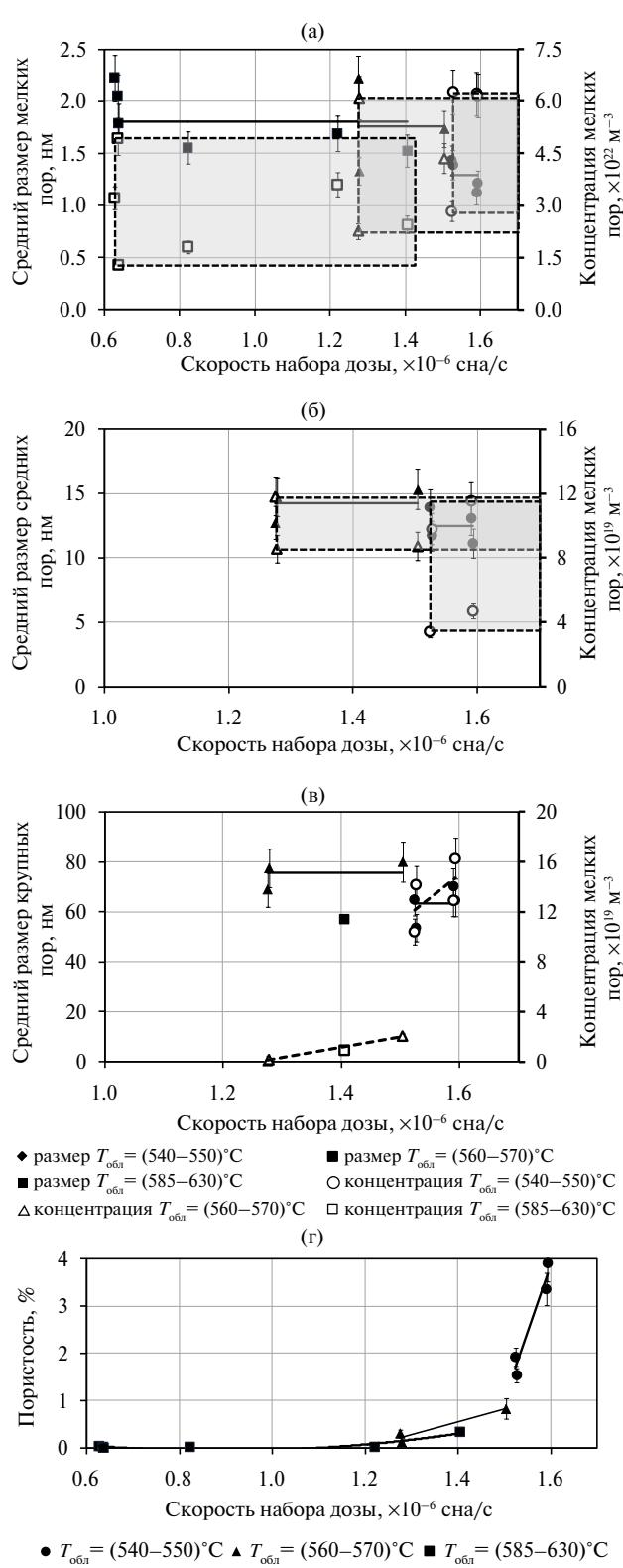


Рис. 11. Характеристики мелких (а), среднего размера (б) и крупных (в) пор в образцах стали типа Cr16–Ni19 из высокотемпературных диапазонов облучения и интегральная пористость образцов (г).

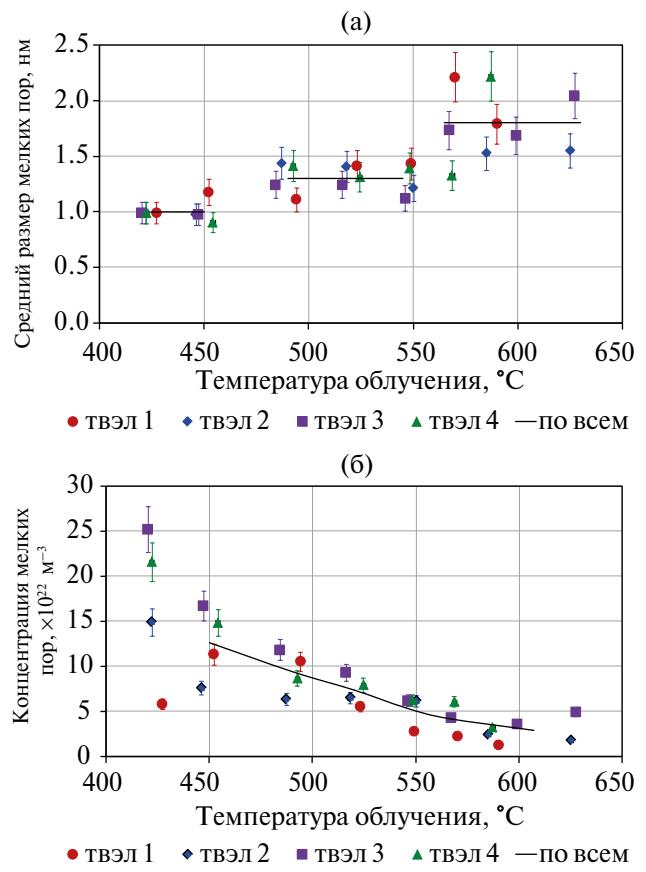


Рис. 12. Зависимости среднего размера (а) и концентрации (б) мелких пор от температуры облучения в образцах оболочек твэлов из стали типа Cr16–Ni19.

снижается практически линейно с ростом температуры от $\sim 450^\circ\text{C}$ до $\sim 600^\circ\text{C}$ (рис. 12).

Средний размер пор среднего размера увеличивается при изменении температур от $(420-430)^\circ\text{C}$ до $(445-455)^\circ\text{C}$ и не изменяется в пределах погрешности определения до температур $(560-570)^\circ\text{C}$, при более высоких температурах облучения поры среднего размера не наблюдаются (рис. 13а). Концентрация пор среднего размера увеличивается с ростом температуры облучения от $(420-430)^\circ\text{C}$ до $(445-455)^\circ\text{C}$, где достигает своего максимума, увеличение температуры облучения до $(485-495)^\circ\text{C}$ приводит к снижению концентрации пор среднего размера почти в пять раз. При увеличении температуры облучения выше $(485-495)^\circ\text{C}$ наблюдается слабое уменьшение концентрации пор среднего размера с ростом температуры (рис. 13б).

Средний размер крупных пор практически линейно увеличивается с ростом температуры облучения от $(420-430)^\circ\text{C}$ до $(560-570)^\circ\text{C}$ (рис. 14а). При этом концентрация крупных пор резко уменьшается при изменении температур от $(420-430)^\circ\text{C}$ до $(485-495)^\circ\text{C}$, дальнейшее

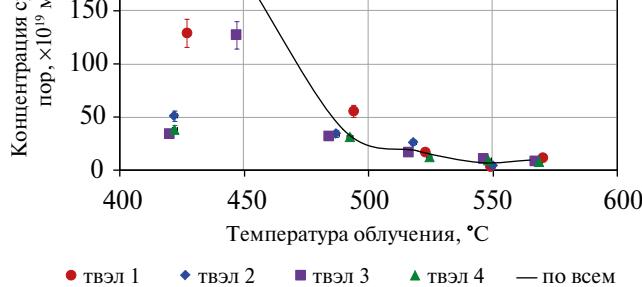
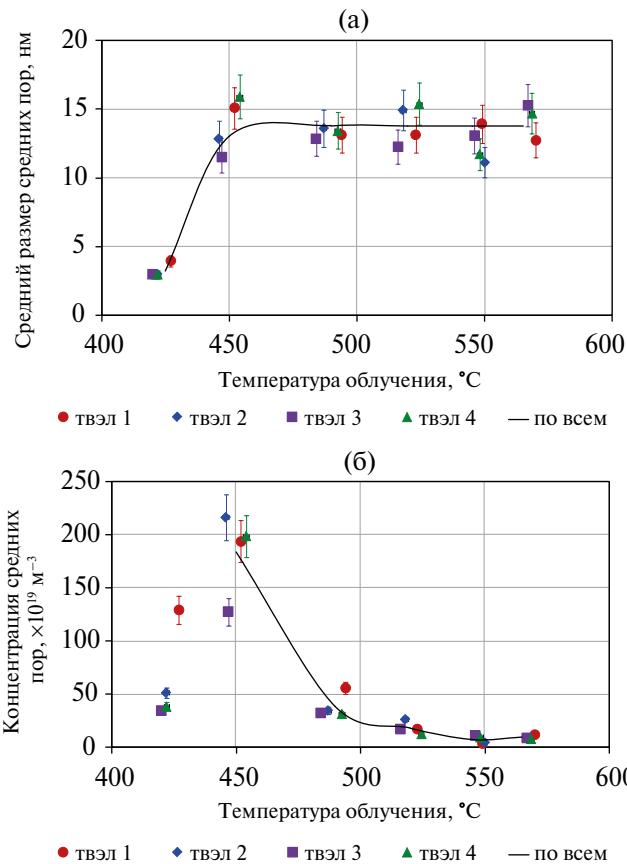


Рис. 13. Зависимости среднего размера (а) и концентрации (б) пор среднего размера от температуры облучения в образцах оболочек твэлов из стали типа Cr16–Ni19.

увеличение температуры облучения ведет к слабому монотонному снижению концентрации крупных пор (рис. 14б).

Анализ полученных данных был проведен исходя из следующих предпосылок. Необходимым условием образования и роста поры является превышение поступления в нее потока вакансий над потоком междуузельных атомов [6, 7].

Из-за более высокой энергии связи междуузлий, по сравнению с вакансиями, уже на кинетической стадии формирования каскада образуется большее количество междуузельных комплексов и, как следствие, в твердом растворе остается больше одиночных вакансий, чем междуузлий. Энергия взаимодействия вакансии с порой рассчитывается как разность энергий системы, когда вакансия находится в матрице – E_v , и когда она поступила в пору E_{vv} (энергия взаимодействия вакансии с порой), что привело к изменению (увеличению) поверхностной энергии поры на ΔE_{sv} : $E_{vv} = E_v - \Delta E_{sv}$. Аналогично рассчитывается энергия взаимодействия междуузлия с порой: $E_{iv} = E_i - \Delta E_{si}$ (где E_i – междуузлие находится в матрице, ΔE_{si} – изменение поверхностной энергии поры за счет междуузлия).

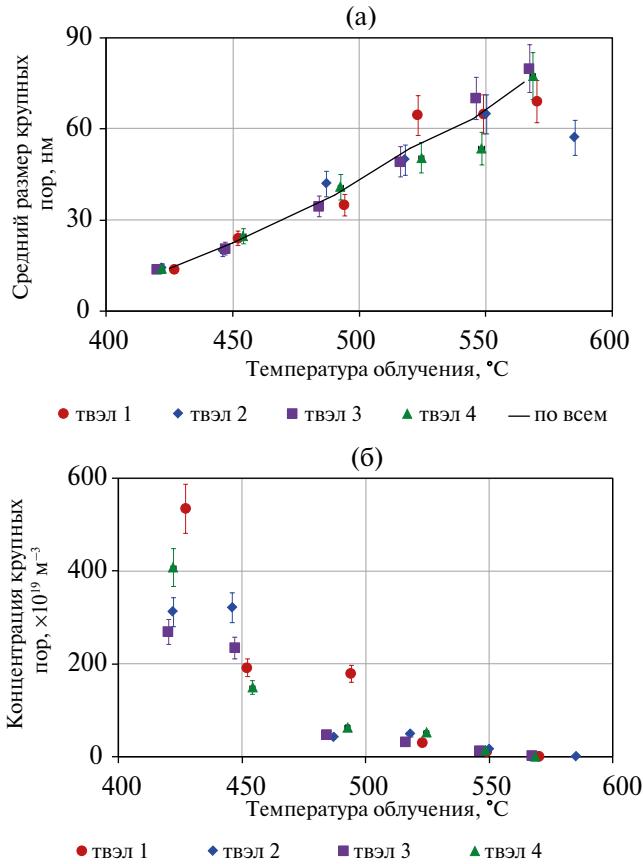


Рис. 14. Зависимости среднего размера (а) и концентрации (б) крупных пор от температуры облучения в образцах оболочек твэлов из стали типа Cr16–Ni19.

При поступлении междуузлия на поверхность поры объем ее и площадь ее поверхности уменьшаются. Поэтому энергия взаимодействия междуузлий с порами выше, чем у вакансий. Разница уменьшается с ростом поры, и по достижении критического диаметра пора начинает расти по механизму несбалансированного потока в нее вакансий [6, 7].

Чтобы этого достичь, должен сформироваться и расти газо-вакансационный пузырек [8]. Роль такого газа в сталях играет трансмутационный гелий, образующийся преимущественно в ядерных реакциях нейтронов с некоторыми газовыми примесями и никелем [9, 10]. Скорость генерации гелия в стали типа Cr16–Ni19 в реакторах БН на шесть порядков меньше, чем скорость генерации вакансий [11]. Поэтому концентрация гелия в матрице мала, и вероятность гомогенного образования гелиевых пузырьков очень низкая. Более вероятно атому гелия попасть на какой-либо сток: дислокацию, границы зерен, двойников или фаз. Далее, в течение определенного времени, зависящего от энергии связи со стоком и температуры, гелий мигрирует по стоку. За это время он может встретить другой

атом гелия, а также вакансию и образовать комплекс, по мере роста трансформирующийся в пузырек, рост которого регулируется эффективным поверхностным напряжением его границы (удельной поверхностной энергией и давлением Не изнутри на стенку пузырька) и контролируется поступлением гелия [12].

На дислокации вероятность такой встречи и скорость поступления гелия в пузырек (одномерное движение) выше, чем на границах (зерен и двойников). Поэтому на дислокациях образуются первые пузырьки, которые первыми перерастают в поры, образуя первый максимум. Кроме того, на дислокации поступает кремний и никель, что регистрируется методами ПЭМ и создает благоприятную почву для образования высоконикелевых интерметалличидных фаз (γ' , G) [4]. Все наблюдаемые крупные поры связаны с выделениями вторых фаз. С течением времени дислокационная структура эволюционирует – образуются новые дислокации (в частности за счет слияния подрастающих дислокационных петель внедрения), на которых может формироваться следующее поколение средних пор, образующих на гистограмме второй максимум.

По микроструктуре видно, что все мелкие поры при всех температурах облучения связаны или с дислокациями, или с границами (зерен, вторых фаз). Эти поры являются газовакансационными зародышами пор последнего поколения, которые образовались на сформированной в процессе облучения структуре.

Пузырьки медленно накапливаются и растут. По мере этого расстояние между ними уменьшается, и по достижении определенного расстояния они начинают сливаться, что приводит к увеличению размера и приостановке роста концентраций пузырьков. Пик распределения пузырьков по размерам расщепляется, и подросшие при коалесценции пузырьки после достижения критического размера переходят в класс пор. Рост температуры до значений оптимальных для реализации описанного процесса приводит к увеличению размера и уменьшению концентрации мелких пор, которые являются газо-вакансационными пузырьками, что показано на рис. 12а, б.

Повышение температуры облучения приводит к тому, что время жизни гелия (как и вакансий) на стоках, в частности на дислокациях, уменьшается, что вызывает уменьшение концентрации средних и особенно крупных пор (рис. 13б, 14б).

Сопоставление результатов показывает, что в диапазоне температур (450–570)°С крупные поры растут, а средние поры практически не изменяют размера (рис. 13а, 14а). Связано это с сочетанием потоков междуузлий и вакансий. При

температурах (450–570)°С подвижность междуузлий увеличивается в 1.4 раза, а вакансий – почти втрое, что способствует увеличению потока вакансий в поры.

В то же время увеличение подвижности точечных дефектов (ТД) вызывает уменьшение их концентрации в матрице, что уменьшает потоки. Поступление ТД в мелкие поры определяется их концентрацией на дислокациях. Несбалансированный поток вакансий в поры, расположенные на дислокациях, складывается из потока ТД, мигрирующих по дислокации, и потока ТД из матрицы через поверхность поры.

Поток вакансий в поры (пузырьки) с дислокацией j_b определяется выражением [13, 14]:

$$j_b = 2 \cdot a_1 \cdot \frac{c_{lb}}{\rho_d} \cdot v \cdot \exp(-E_m / kT) \cdot \omega_{b+}, \quad (1)$$

где a_1 – радиус первой координационной сферы; c_{lb} – линейная концентрация вакансий на дислокации; ρ_d – плотность дислокаций; v – частота Дебая; E_m – энергия миграции вакансий; k – постоянная Больцмана; T – температура, К; ω_{b+} – вероятность подошедшей к границе поры (пузырька) вакансии при следующем перескоке попасть в нее.

В то же время через поверхность поры поступает поток точечных дефектов [13, 14]:

$$j_s = 6\pi \cdot d^2 \cdot a_1 \cdot c_{lb} \cdot v \cdot \exp(-E_m / kT) \cdot \omega_{b+}, \quad (2)$$

где d – диаметр поры (пузырька); c_{lb} – концентрация вакансий в матрице.

Отметим, что поток ТД в поры из матрицы не изменяет их концентрации, а лишь увеличивает размер. Используя экспериментальные результаты, приведенные на рис. 12–14, сопоставим потоки ТД в поры по различным каналам при различных температурах облучения. При увеличении температуры выше ~450°С концентрация гелия и вакансий на дислокациях уменьшается, в результате становится меньше и концентрация мелких и средних пор. Дальнейшее повышение температуры снижает скорость поступления в поры потоков ТД с дислокаций (из-за уменьшения концентрации вакансий на дислокациях), но увеличивает потоки из матрицы. В сумме потоки ТД остаются постоянными, размер средних пор изменяется мало. У крупных пор поступление из матрицы существенно превышает потоки с дислокаций. Можно лишь отметить тенденцию к росту диаметра средних и крупных пор в образцах после низкотемпературного облучения. Это связано с увеличением потоков точечных дефектов, приводящим к более раннему переходу пузырьков в поры, так что к моменту окончания облучения они успевают больше подрасти.

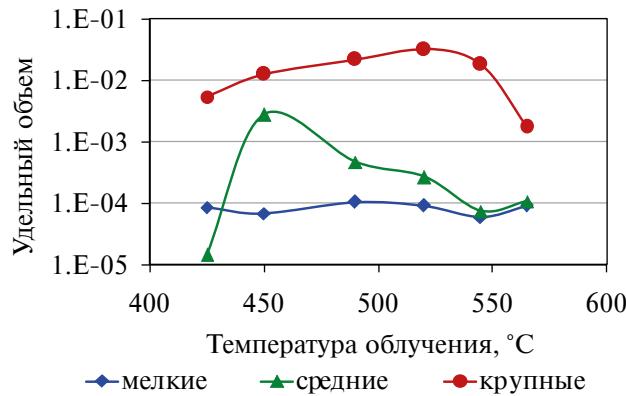


Рис. 15. Зависимость удельного объема, занимаемого порами различного типа от температуры облучения в стали типа Cr16–Ni19.

Согласно рис. 12–14, прослеживаются четкие зависимости средних размеров и концентраций мелких, среднего размера и крупных пор от температуры облучения во всем исследованном температурном диапазоне.

Используя формулы (1) и (2) и экспериментальные результаты изменения концентраций и размеров пор, можно сопоставить общее число ТД, находящихся в порах. Удельный объем, занимаемый порами, размер которых соответствует выбранному участку гистограммы, можно оценить как

$$\delta V = \frac{n_v \cdot \pi \cdot d_v^3}{6}, \quad (3)$$

где n_v — концентрация пор; d_v — средний размер пор на рассматриваемом участке гистограммы.

На рис. 15 приведен график зависимости удельного объема, занимаемого порами различного типа, от температуры облучения. Из графика видно, что при всех температурах облучения удельный объем вакансий в мелких порах составляет $\sim 1 \times 10^{-4}$. При температуре выше 520°C удельный объем вакансий в порах среднего размера — от 2.7×10^{-4} до 1.1×10^{-4} , что совпадает по порядку величины с объемом мелких пор. В то время как в крупных порах при температуре $\sim 520^\circ\text{C}$ оценка дает $\sim 3.2 \times 10^{-2}$ (что превышает результат для пор среднего размера более чем на порядок). С ростом температуры облучения при этом концентрация мелких пор снижается, при температуре выше $\sim 450^\circ\text{C}$ практически линейно (рис. 12). Причиной такого характера зависимостей является то, что с увеличением температуры время жизни гелия на стоках уменьшается, что снижает вероятность образования пузырьков и приводит к снижению их концентрации.

Одной из основных характеристик пористости, влияющих на скорость распухания, является удельная площадь поверхности пор [15, 16].

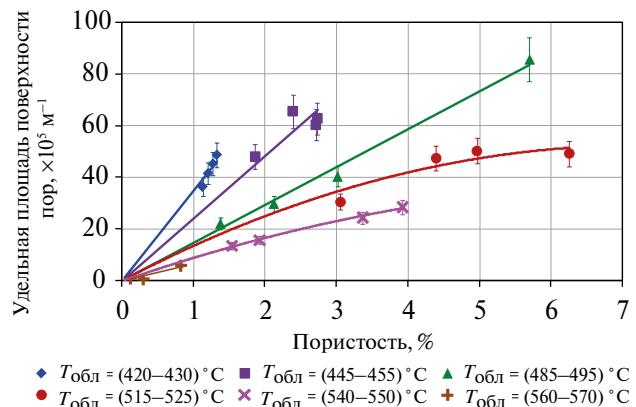


Рис. 16. Зависимость удельной площади поверхности пор от пористости в образцах оболочек твэлов из стали типа Cr16–Ni19 для различных температурных диапазонов облучения.

Построенные для нее зависимости от пористости для исследуемых температурных диапазонов облучения приведены на рис. 16. Символами обозначены значения, полученные для исследованных в данной работе образцов аустенитной стали типа Cr16–Ni19. Линиями показаны полученные трендовые зависимости.

Как было показано в наших предыдущих работах [15, 16, 17], величина удельной площади поверхности пор достигает насыщения с ростом пористости, а площадь поверхности пор, соответствующая стадии насыщения, уменьшается с ростом температуры облучения. В исследованных образцах удельная площадь поверхности пор не вышла на насыщение, за исключением температурных диапазонов $(515–525)^\circ\text{C}$ и $(540–550)^\circ\text{C}$, где ее значения составили $48.9 \cdot 10^5 \text{ м}^{-1}$ и $26.3 \cdot 10^5 \text{ м}^{-1}$ соответственно. Характеристика удельной площади поверхности пор является геометрическим фактором, влияющим на распухание, присущая для любого рода материалов.

Суммарная величина пористости определяет распухание, которое лимитирует ресурс эксплуатации твэла по критерию исчерпания минимального проходного сечения для натриевого теплоносителя. Кроме того, характеристики пористости влияют на изменение механических свойств, что может привести к разрушению оболочки. Приведенные в работе результаты могут быть использованы для определения остаточного и предельного ресурсов твэлов реакторов на быстрых нейтронах.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследования радиационной пористости, образовавшейся в образцах оболочек твэлов из холдинодеформированной стали типа Cr16–Ni19, после облучения в реакторе БН-600 при разных

температурах и скоростях генерации атомных смещений показали:

1. В стали типа Cr16–Ni19 во всех исследованных температурных диапазонах облучения распределения пор по размерам мультимодальные, выделяются системы пор: мелкие – гелий-вакансационные зародыши пор, среднего размера и крупные поры, растущие за счет поступления вакансий.

2. В образцах, облученных в близких условиях, наблюдаются большие разбросы характеристик пористости.

3. Однозначных зависимостей среднего размера и концентрации мелких, среднего размера и крупных пор от скорости генерации атомных смещений в образцах оболочек твэлов из стали типа Cr16–Ni19 выявить не удалось.

4. Средний размер мелких и крупных пор увеличивается с ростом температуры облучения. Средний размер пор среднего размера при температуре облучения ~450°C более чем в четыре раза превышает средний размер при температуре облучения ~425°C. Средний размер средних пор не изменяется в диапазоне температур облучения от ~450°C до ~570°C, при более высоких температурах облучения поры среднего размера не наблюдаются.

5. Концентрация мелких и крупных пор уменьшается с ростом температуры облучения. Максимальные концентрации пор среднего размера наблюдаются на образцах, облучавшихся при температуре ~450°C.

6. Площадь поверхности пор в стали типа Cr16–Ni19 во всех температурных диапазонах облучения увеличивается с ростом пористости, стремясь к насыщению.

Работа выполнена в рамках государственного задания МИНОБРНАУКИ России (тема “Структура”, № 122021000033-2) и программы РОСАТОМА по Повышению предельного выгорания топлива ТВС реакторов на быстрых нейтронах.

Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Поролло С.И., Конобеев Ю.В., Шулепин С.В. Анализ поведения оболочек твэлов БН-600 из стали ОX16H15M3БР при высоком выгорании топлива // Атомная энергия. 2009. Т. 106. № 4. С. 188–194.
2. Целищев А.В., Агеев В.С., Буданов Ю.П., Иолтуховский А.Г., Митрофанова Н.М., Леонтьева-Смирнова М.В., Шкабура И.А., Забудько Л.М., Козлов А.В., Мальцев В.В., Повстянко А.В. Разработка конструкционной стали для твэлов и ТВС быстрых натриевых реакторов // Атомная энергия. 2010. Т. 108. № 4. С. 217–221.
3. Митрофанова Н.М., Чурюмова Т.А. Сталь ЭК164 – конструкционный материал оболочек твэлов реакторов БН // ВАНТ. 2019. № 2(98). С. 100–109.
4. Панченко В.Л., Портных И.А., Устинов А.Е. Эволюция микроструктуры стали типа Cr16–Ni19 при облучении в зоне малого обогащения реактора на быстрых нейтронах. Влияние условий нейтронного облучения на структурно-фазовое состояние // ФММ. 2025. Т. 126. Вып. 1. С. 110–122.
5. Портных И.А., Козлов А.В., Скрябин Л.А. Размерные характеристики ансамбля радиационных пор в холоднодеформированной стали X16H15M2Г, облученной высокими флюенсами нейтронов // Перспективные материалы. 2002. № 2. С. 50–55.
6. Katz J., Wiedersich H., Chem J. Nucleation of voids in materials supersaturated with vacancies and interstitials // Phys. 1971. V. 55. P. 1414–1425.
7. Kozlov A.V., Portnykh I.A., Blokhin A.I., Blokhin D.A., Demin N.A. The dependence of critical diameter of void nuclei in ChS68 austenitic steel on temperature of neutron irradiation in the model of formation of helium-vacancy bubbles // Inorganic Mater. Appl. Research. 2013. V. 4. № 3. P. 183–188.
8. Trinkaus H. Energetics and formation kinetics of helium bubbles in metals // Radiat. Effects. 1983. V. 78. P. 189–211.
9. Stoller R.E., Odette G.R., Garner F.A., Packan N.H., Kumar A.S. (Eds.) A comparison of the relative importance of helium and vacancy accumulation in void nucleation, in Radiation-Induced Changes in Microstructure / 13th International Symposium, West Conshohocken, PA: ASTM International, 1987. P. 358–370.
10. Глушкова Н.В., Портных И.А., Козлов А.В. Механизм влияния трансмутационного гелия, нарабатываемого в оболочках твэлов из аустенитной стали ЧС-68 при нейтронном облучении, на образование пор // ФММ. 2009. Т. 108. № 3. С. 276–282.
11. Блохин А.И., Демин Н.А., Манохин В.Н., Синачев И.В., Блохин Д.А., Чернов В.М. Расчетный комплекс АСДАМ-2.0 для исследований ядерных физических свойств материалов в условиях нейтронного облучения // ВАНТ, сер. “МиНМ”. 2015. Вып. 3(82). С. 81–109.
12. Mansur L.K., Lee E.H., Maziasz P.J., and Rowcliffe A.P. Control of helium effects in irradiated materials based on the theory and experiments // J. Nuclear Mater. 1986. V. 141–143. P. 633–646.
13. Kozlov A.V., Portnykh I.A. Vacancy Void Growth Rate as a Function of the Neutron Irradiation Parameters at the Initial Stage of Transient Swelling // Russian Metallurgy (Metally). 2019. V. 2019. № 3. P. 261–267.
14. Kozlov A.V., Kozlov K.A., Portnykh I.A. The evolution of helium-vacancy bubbles in austenitic steels under neutron irradiation // J. Nuclear Mater. 2021. V. 549. P. 152915.
15. Козлов А.В., Портных И.А., Исинбаев А.Р. Модель заключительного этапа стадии нестационарного радиационного распухания металлов // ФММ. 2020. Т. 121. № 7. С. 675–681.

16. Портных И.А., Козлов А.В., Исинбаев А.Р. Прогнозирование развития радиационной пористости в austenитной стали 07C–16Cr–19Ni–2Mo–Ti–Si–V–P–B, облученной при температурах 715–815 К до повреждающих доз 72–92 сна / Труды XXIX Международной конференции “Радиационная физика твердого тела” (Севастополь 08–13 июля 2019 г.), под редакцией заслуженного деятеля науки РФ, д.ф.-м.н., проф. Бондаренко Г.Г. М.: ФГБНУ “НИИ ПМТ”, 2019. С. 233–244.
17. Козлов А.В., Портных И.А. Условия достижения стадии стационарного радиационного распухания // ФММ. 2007. Т. 103. № 1. С. 108–112.

THE EVOLUTION OF THE MICROSTRUCTURE OF Cr16–Ni19 STEEL UNDER IRRADIATION IN THE LOW ENRICHMENT ZONE OF A FAST NEUTRON REACTOR. FORMATION AND DEVELOPMENT OF RADIATION POROSITY

I. A. Portnykh^{1,*}, V. L. Panchenko¹, A. E. Ustinov¹, and A. V. Kozlov^{1,2}

¹*JSC “Institute of Nuclear Materials”, Zarechny, Sverdlovsk region, 624250 Russia*

²*Mikheev Institute of Metal Physics, Ural Branch, Russian Academy of Sciences, Ekaterinburg, 620108 Russia*

**e-mail: portnyh_ia@irmatom.ru*

Microstructural studies of samples made from various sections of fuel element shells were carried out after irradiation in the low enrichment zone of a fast neutron reactor with a sodium coolant to damaging doses of over 100 dpa. The porosity characteristics of samples irradiated with different rates of generation of atomic displacements selected from sites with different irradiation temperatures are studied. Histograms of the void size distribution are constructed for each sample, which are described by unimodal lognormal distributions. Three types of voids were identified: “small”, “medium-sized” and “large”, and changes in the average size and concentration of voids of each type were traced depending on the irradiation temperature and the rate of generation of atomic displacements.

Keywords: fuel elements, neutron irradiation, porosity, austenitic steel type Cr16–Ni19, microstructure