

Радиационная ползучесть и фазовая нестабильность малоактивируемой аустенитной стали 12 Cr – 20 Mn – W при нейтронном облучении в быстром реакторе FFTF

Е. В. Демина, Л. И. Иванов, Ю. М. Платов, М. Д. Прусакова,
С. Р. Ейхолцер, М. Б. Толочко, Ф. А. Гарнер

В быстром реакторе FFTF с использованием установки MOTA-2B проведены испытания на радиационную ползучесть образцов тонкостенных трубок малоактивируемой аустенитной стали типа 12 Cr – 20 Mn – W (далее 10X12Г20В) при облучении нейтронами с энергиями $E > 0,11$ МэВ, флюенсом $(5,3 - 5,8) \cdot 10^{22}$ нейтр./см². Требуемые напряжения на стенках труб (0 – 140 МПа) достигали за счет давления ультрачистого гелия внутри герметизированных образцов. Показано, что величина деформации, полученная в результате ползучести под облучением, сильно зависит от температуры облучения в интервале 428 – 599°С, при этом зависимость деформации от приложенного напряжения не носит линейного характера, что связано с процессами вакансионного распухания и радиационно-стимулированными фазовыми превращениями.

Ключевые слова: малоактивируемые стали, аустенитные стали, облучение нейтронами, ползучесть, фазовые превращения.

Results are presented of an irradiation creep experiment conducted in the FFTF fast reactor using the MOTA-2B temperature control facility maintained at $\pm 5^\circ\text{C}$. Helium-pressurized creep tubes were constructed from a reduced activation austenitic Fe – 12 Cr – 20 Mn – W steel and irradiated in contact with the sodium coolant. Five hoop stress levels were employed ranging from 0 to 140 MPa. The neutron fluence reached varied from $5,3$ to $5,8 \cdot 10^{22}$ n/cm² ($E > 0,11$ MeV) at target temperatures of 428, 519 and 599°С. The total strains were found to be strongly dependent on irradiation temperature, but not to be completely linear with stress level. The measured stress-free strains are thought to arise from both phase instability and void swelling.

Keywords: low activation steels, austenitic steels, neutron irradiation, irradiation creep, phase transformation.

Введение

Изучение процессов, вызывающих изменение размеров деталей конструкций ядерных энергетических установок в результате нейтронного облучения, представляет собой важную научную и практическую задачу.

Ползучесть представляет собой один из механизмов размерной нестабильности облучаемых материалов, которая, в свою очередь, также может быть обусловлена процессами порообразования, а также радиационно-стимулированной эволюцией фазового состава. В определенной степени все эти процессы взаимосвязаны и оказывают влияние на анализ экспериментальных данных [1].

Аустенитные хромомарганцевые стали с ускоренным спадом наведенной радиоактивности типа 10X12Г20В представляют интерес в качестве альтернативы конструкционным аустенитным хромоникелевым сталям. Особая экологическая и экономическая перспективность их применения в ядерных реакторах деления обусловлена их использованием в качестве конструкционных материалов, не работающих в контакте с ядерным топливом. Исследованию механических, физико-химических и радиационных свойств этих сталей посвящен ряд отечественных и зарубежных исследований [2 – 5]. Поведение под облучением указанных сталей, в том числе в виде герметизированных трубок под давлением газа, имеет самостоятельный интерес и позволяет дополнить

представления о физике радиационных повреждений в материалах.

В настоящей работе проведены исследования радиационной ползучести малоактивируемой аустенитной хромомарганцевой стали типа 10X12Г20В как кандидатного материала атомных энергетических установок с использованием реактора на быстрых нейтронах FFTF и установки МОТА-2В [6].

Материал и методика исследований

Приготовление герметизированных образцов

Для проведения исследований в установке FFTF МОТА-2В были специально изготовлены тонкостенные трубки диаметром 4,57 мм и толщиной стенки 0,2 мм из малоактивируемой аустенитной стали типа 10X12Г20В, химический состав которой приведен в табл. 1. Из трубок были изготовлены образцы для испытаний в соответствии с чертежом, представленным на рис. 1.

Таблица 1

Химический состав аустенитной стали 10X12Г20В							
Содержание, масс. %							
Fe	Cr	Mn	W	Si	C	P	S
Осн.	13,0	19,0	1,0	0,32	0,09	0,024	0,012

Заглушки (концевые детали образцов), разработанные фирмой Вестингауз (WHS), были изготовлены из аустенитной хромоникелевой нержавеющей стали AISI 316SS. Концевые детали были приварены к трубчатой секции с помощью электроннолучевой сварки. Все детали образцов перед сваркой были тщательно очищены с помощью ультразвука в ацетоне в течение 5 мин, затем в спирте в течение такого же времени, а затем высушены на воздухе.

Параметры сварки были предварительно отработаны на контрольных образцах, а полученные швы проверены на герметичность и исследованы металлографическим методом на проницаемость. Все

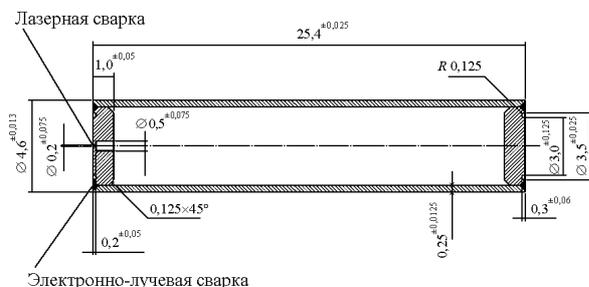


Рис. 1. Чертеж герметизированной трубки из стали 10X12Г20В.

сварные швы, полученные на окончательных изделиях, были визуально осмотрены, а затем исследована проницаемость двух образцов-свидетелей от каждой из двух партий изготовленных образцов. Полученные результаты показали удовлетворительное качество сварки.

Перед заполнением образцов гелием были рассчитаны необходимые радиальные напряжения и соответствующие им внутренние давления заполняющего газа. Выбор напряжений базировался на данных предела текучести материала при растяжении и экспериментальных данных по облучению аналогичного класса материалов. Данные по растяжению показали, что поведение материала исследуемой стали аналогично поведению аустенитной хромоникелевой стали 316SS в отожженном состоянии.

Для определения величины давления газа в трубках, создающего требуемые напряжения при данной температуре, использовали специальную компьютерную программу, которая учитывает ряд параметров: толщину стенки, тип материала, упругую область диаграммы состояния “напряжение – деформация” для трубок, свойства заполняющего газа, температуру испытаний, а также заданные величины радиальных напряжений.

Образцы заполняли ультрачистым гелием в специальной камере лазерной сварки и помещали в резервуар с газом, имеющим кварцевое окно. После заполнения трубок газом проводили заварку трубок лазерным импульсом через кварцевое окно. Режимы лазерной сварки были отработаны заранее. Квалификационная процедура состояла в изготовлении шести лазерных швов, которые были испытаны на течь, а затем исследованы металлографическим методом для окончательной оценки качества сварного соединения. Достигнутый минимальный уровень течи составлял $2 \cdot 10^{-8}$ атм./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$.

Режимы облучения и оценка величины ползучести

Полученные образцы были облучены нейтронами с энергиями $E > 0,11$ МэВ флюенсом $(5,3 - 5,8) \cdot 10^{22}$ нейтр./ см^2 в быстром реакторе FFTF с использованием установки МОТА-2В. нейтронов. Образцы находились в контакте с натриевым теплоносителем. Температуры облучения составляли 428, 519 и 599°C, а заданный уровень напряжений — 0, 30, 60, 100 и 140 МПа (табл. 2).

Ползучесть оценивали по изменению диаметра герметизированных трубок. Диаметры герметизированных трубок измеряли с использованием лазерной профилометрии, точность измерений

составляла $\pm 0,001$. После извлечения из реактора образцы исследовали на предмет появления возможных повреждений, после чего диаметр трубок снова измеряли указанным выше способом.

Величину деформации $\Delta D/D_n$ определяли из соотношения

$$\frac{\Delta D}{D_n} = \frac{D_0 - D_n}{D_n} \cdot 100\%, \quad (1)$$

где D_0 — диаметр трубки после облучения, а D_n — диаметр необлученной трубки (после герметизации).

Результаты и обсуждение

Исследования, проведенные после облучения, показали, что все герметизированные трубки после облучения сохранили свою целостность. Значения величин деформаций в зависимости от условий облучения приведены в табл. 2. Параметр ϵ соответствует величине деформации при заданном напряжении, в которой исключена деформация при $\sigma = 0$:

$$\epsilon_\sigma = \left(\frac{\Delta D}{D_n} \right)_\sigma - \left(\frac{\Delta D}{D_n} \right)_{\sigma=0}. \quad (2)$$

На рис. 2 показано изменение диаметра трубок $\Delta D/D_n$ из стали 10X12Г20В после облучения в реакторе при различных температурах в зависимости от величины приложенного напряжения.

Из приведенных кривых видно, что общая деформация трубок сильно зависит как от температуры облучения, так и от уровня напряжений. При этом зависимость деформации от напряжения при данной температуре не имеет линейного характера. Такое поведение материала показывает, что в дополнение к радиационной ползучести изменяется плотность материала за счет процессов вакансионного распу-

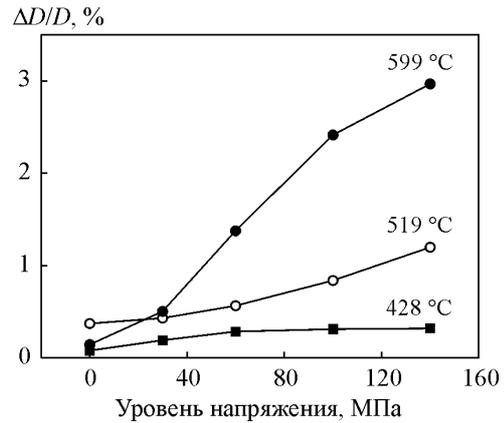


Рис. 2. Изменение диаметра герметизированных трубок из стали 10X12Г20В при нейтронном облучении в FFTF-МОТА-2В ($E > 0,11$ МэВ, $\Phi_{\text{макс}} \sim 5,8 \cdot 10^{22}$ нейтр./см²) при различных температурах в зависимости от напряжения.

хания и выделения вторых фаз при облучении. Можно предположить, что в процесс деформации дает также вклад распухание, вызванное напряжениями.

К сожалению, количественно оценить вклады этих эффектов в общую деформацию крайне сложно. Тем не менее, из приведенных данных видно (рис. 2), что изменение диаметра трубок за счет процессов распухания и выделения вторых фаз без приложения напряжений ($\sigma = 0$) не зависит линейно от повышения температуры облучения, наибольшая величина наблюдается при 519 °C, не превышающая однако 1%. Анализ зависимостей нормализованных значений деформаций ϵ/σ от приложенного напряжения σ показывает (табл. 2, рис. 3), что при разных температурах облучения характер кривых заметно отличается. Это указывает на неодинаковые структурное состояние и механизмы деформации материала при различных условиях облучения.

Таблица 2

Таблица данных реакторных испытаний в FFTF МОТА-2В

№ п/п	Напряжение, σ , МПа	T, °C	Флюенс, 10^{22} нейтр./см ² ($E > 0,11$ МэВ)	Деформация $\Delta D/D_n$, %	Деформация ϵ , %	Нормализованная деформация, ϵ/σ , %/МПа
1	0	428	5,3	0,08	—	—
2	30			0,19	0,11	$3,7 \cdot 10^{-3}$
3	60			0,29	0,21	$3,5 \cdot 10^{-3}$
4	100			0,31	0,23	$2,3 \cdot 10^{-3}$
5	140			0,32	0,24	$1,7 \cdot 10^{-3}$
6	0	519	5,8	0,37	—	—
7	30			0,43	0,06	$2,0 \cdot 10^{-3}$
8	60			0,57	0,20	$3,3 \cdot 10^{-3}$
9	100			0,84	0,47	$4,7 \cdot 10^{-3}$
10	140			1,20	0,83	$5,9 \cdot 10^{-3}$
11	0	599	5,4	0,15	—	—
12	30			0,51	0,36	$1,2 \cdot 10^{-2}$
13	60			1,38	1,23	$2,1 \cdot 10^{-2}$
14	100			2,42	2,27	$2,3 \cdot 10^{-2}$
15	140			2,97	2,82	$2,0 \cdot 10^{-2}$

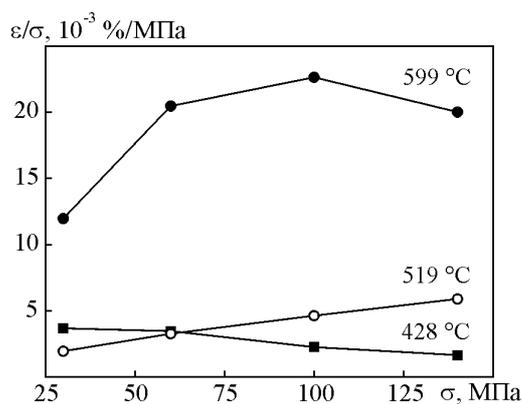


Рис. 3. Зависимость величины нормализованной деформации (ϵ/σ) от приложенного напряжения (σ) при разных температурах облучения стали 10X12Г20В.

Исследование влияния длительных тепловых выдержек при температурах 400°C, 5000 ч и 600°C, 5000 ч на микроструктуру изученной стали 10X12Г20В в отсутствие облучения [2] показали относительно высокую термическую устойчивость гамма-фазы: длительные выдержки приводят к образованию выделений карбидной фазы типа $Me_{23}C_6$, однако не было обнаружено присутствия α -фазы или σ -фазы. В то же время, исследования по влиянию облучения в реакторе СМ-2 на структуру этих сталей, проведенные в работе [7], показали, что в облученной стали активно протекают процессы порообразования и имеет место образование α -фазы. Это согласуется с экспериментальными данными многочисленных исследований [1], в которых установлено, что процессы порообразования и распухания в облученных аустенитных сталях протекают более интенсивно, чем в ферритных. Кроме того, радиационно-стимулированная сегрегация железа и марганца в системе Fe – Cr – Mn приводит к тому, что эти элементы соответственно обогащают и обедняют стоки различного типа, что приводит к дестабилизации аустенита и образованию ферритной фазы в их окрестностях, в том числе, и на порах при действии обратного эффекта Киркендалла [8].

В рамках анализа фазовой нестабильности аустенитных сталей, связанной с образованием радиационных точечных дефектов, специально необходимо отметить и роль трансмутационных ядерных превращений при нейтронном облучении. Как показано в работах [11, 12], при компьютерном моделировании влияния нейтронного облучения на изменение химического состава серии аустенитных сталей в них по ядерной реакции $^{50}Cr(n, \gamma)^{51}Cr \rightarrow ^{51}V$ происходит очень интенсивная наработка ванадия. В

работе [12] проведены расчеты хромо-никелевых эквивалентов этих сталей до и после облучения в различных нейтронных спектрах. Показано, что местоположение облученных сталей на модифицированной диаграмме Шеффлера [3] изменяется с тенденцией дестабилизации аустенита и стабилизации ферритных фаз. При этом, как можно трактовать, дестабилизация аустенита и стабилизация ферритных фаз обусловлена, в первую очередь, следующим. Как известно [13], ванадий в сталях является одним из наиболее сильных карбидообразующих элементов. Поэтому его интенсивная наработка должна приводить к удалению углерода из матричного твердого раствора и, соответственно, дестабилизации аустенита. Кроме того, как показано в работе [14], образование карбидов ванадия может стимулировать и процессы радиационного упрочнения и охрупчивание облученных сталей. Рассмотренный эффект влияния ванадия на фазовую стабильность и свойства сталей необходимо учитывать, особенно при высоких нейтронных флюенсах, где роль трансмутационных ядерных превращений в фазовой нестабильности материалов проявляется наиболее интенсивно.

Необходимо отметить [9, 10], что условия исследования размерной нестабильности материалов в реакторных экспериментах на трубках под давлением не вполне адекватны реальным условиям, имеющим место, например, в топливных трубках тепловыделяющих элементов. В моделирующих экспериментах на трубках под давлением высокий уровень напряжений стимулирует процесс ползучести, который предшествует распуханию.

В отличие от этого, начальный уровень напряжений в реальных топливных трубках очень низкий и постепенно увеличивается по мере выделения трансмутационных газов из топлива. В этих условиях наоборот, процесс распухания предшествует процессу ползучести с постоянным повышением его роли в развитии размерной нестабильности. При этом, поскольку давление, а, следовательно, и напряжения в материалах оболочек твэлов непрерывно увеличивается, то развитие размерной нестабильности в данном случае, в отличие от экспериментов на трубках под давлением носит заведомо нестационарный характер. Отсюда в совокупности указанных факторов, и кинетика процесса, и параметры ползучести и распухания для реальных и моделирующих условий не будут идентичны. В связи с этим, очевидно, что разработка методов получения достоверной информации о размерной нестабильности материалов конструктивных элементов реакторов в реальных условиях на основе моделирующих экспериментов остается весьма актуальной задачей.

Выводы

1. Зависимость величины деформации от напряжения при облучении герметизированных трубок стали 10X12Г20В не имеет линейной зависимости, что с наибольшей вероятностью связано с вкладом в этот процесс вакансионного распухания и радиационно-стимулированного фазового перехода $\gamma \rightarrow \alpha$.

2. Фазовая стабильность аустенитных сталей наряду с механизмами, контролируруемыми образованием радиационных точечных дефектов при атомных смещениях, обусловлена также процессами трансмутационных ядерных превращений, особенно при высоких нейтронных флюенсах.

Литература

1. Иванов Л.И., Платов Ю.М. Радиационная физика металлов и ее приложения. М.: Интерконтакт Наука, 2002, 300 с.
2. Демина Е.В., Прусакова М.Д., Рощин В.В., Виноградова Н.А., Орлова Г.Д. Малоактивируемые аустенитные Fe – Cr – Mn стали атомной энергетики. Перспективные материалы, 2009, № 4, с. 43 – 53.
3. Klueh R.L., Maziasz P.J. Reduced Activation Materials for fusion reactors. Philadelphia, ASTM, 1990, 400 p.
4. Dyomina E.V., Ivanov L.I., Pahutova M., Orlova A., Cadec J. Creep in a 12,5 Cr – 4,5 Ni – 13,5 Mn – 0,5 Mo – 1,5 Al (EP 838) austenitic stainless steel. Acta technica CSAV, 1986, № 6, p. 639 – 662.
5. Ivanov L.I., Dyomina E.V., Milicka K., Cadec J. High temperature creep behavior of 12 Cr – 20 Mn – W austenitic steel. J. of Nucl.Mat., 1992, v. 191 – 194, p. 681 – 685.
6. Garner F.A., Eiholzer C.R., Demina E.V., Ivanov L.I. Fusion reactor materials. DOE/ER-0313/14, 1993, p. 221 – 226.
7. Shamardin V.K., Bulanova T.M., Neustroev V.S., Ivanov L.I., Dyomina E.V., Platov Yu.M. Study of Fe – 12 Cr – 20 Mn – W – C austenitic steels irradiated in the SM-2 reactor. J.of Nucl.Mater., 1991, v. 191 – 194, p. 706 – 712.
8. Саралидзе З.К. В кн. Структура и радиационная повреждаемость конструкционных материалов. М.: Металлургия, 1996, 114 с.
9. Garner F.A., Puigh R.J. Irradiation creep and swelling of the fusion heats of PSA, HT9 and 9 Cr – 1 Mo irradiated to high neutron fluence. J.of Nucl.Mat., 1992, v. 179 – 181, p. 577 – 580.
10. Garner F.A., Hamilton M.L., Eiholzer C.R., Toloczko M.B., Kumar A.S. Irradiation and thermal creep of titanium-modified austenitic stainless steel and its dependence on cold work level. J.of Nucl.Mat., 1992, v. 191 – 194, p. 813 – 817.
11. Bates J.F., Garner F.A., Mann F.M. The effect of solid transmutation products on swelling in 316 stainless steel. J.of Nucl.Mat., 1981, v. 103 – 104, p. 999 – 1005.
12. Аленина М.В., Иванов Л.И., Колотов В.П., Платов Ю.М. Влияние трансмутационных превращений при нейтронном облучении на фазовую стабильность аустенитных и ферритных сталей. Перспективные материалы. 2000, № 3, с. 54 – 58.
13. Лахтин Ю.М. Металловедение и термическая обработка металлов. М.: Металлургия, 1984, 360 с.
14. Gelles D.S. Microstructural development in reduced activation ferritic alloys irradiated to 200 dpa at 420°C. J.of Nucl.Mater., 1994, v. 212 – 215, p. 714 – 720.

Демина Елена Викторовна — Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова РАН, ведущий научный сотрудник, кандидат технических наук. Специалист в области радиационного и космического материаловедения. E-mail: elenadyom@mail.ru

Иванов Лев Иванович — Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова РАН, главный научный сотрудник, доктор физико-математических наук, профессор. Специалист в области радиационного и космического материаловедения.

Платов Юрий Михайлович — Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова РАН, главный научный сотрудник, доктор физико-математических наук, профессор. Специалист в области радиационного и космического материаловедения.

Прусакова Марина Дмитриевна — Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова РАН, научный сотрудник. Специалист в области радиационного и космического материаловедения. E-mail: prusakovat@mail.ru.

Гарнер Ф.А. — Радизейшен эффект Консалтинг (Ричланд, США), доктор наук. Специалист в области радиационного материаловедения.

Эйхольцер К.Р. — фирма Вестингауз (Ричланд, США), доктор наук. Специалист в области радиационного материаловедения.

Толочко М.Б. — Северо-Западная Лаборатория (PNL) (Ричланд, США), доктор наук. Специалист в области радиационного материаловедения.