

## О РАДИАЦИОННОМ РАСПУХАНИИ СТАЛЕЙ В НЕЙТРОННОМ ПОЛЕ БЫСТРОГО РЕАКТОРА

**Е.А. Козманов**

*Белоярская АЭС, г.Заречный*



В настоящее время накоплен большой экспериментальный материал, подтверждающий справедливость того, что возникновение пор в стали при реакторном облучении является следствием неравновесных деформаций под действием структурных напряжений, вызванных процессами образования вторичных фаз на фоне деградированных внутренних связей. Потеря фазовой стабильности является причиной существенного изменения физико-механических свойств облучаемых материалов. Размер и концентрация пор и выделений зависят от температуры. В настоящей работе феноменологическое описание процесса набухания сталей в нейтронном поле быстрого реактора приводится на основании соответствующих экспериментальных данных.

Выбор материалов для узлов быстрого реактора при флюенсе  $3 \cdot 10^{23} \text{ н/см}^2$  и температурах  $300 \div 700^\circ\text{C}$  представляет достаточную сложность, поскольку из практики известно, что набухание аустенитных хромоникелевых сталей достигает  $10 \div 30\%$ . Недопустимо большое набухание сопровождается деградацией механических свойств, ведет к заклиниванию элементов активной зоны, уменьшению проходных сечений теплоносителя, появлению дополнительных напряжений, влияющих на работоспособность конструкций. Радиационное набухание становится основной преградой на пути создания работоспособных и экономичных быстрых реакторов [1].

Причинный механизм этого явления не раскрыт до сих пор. Основной предпосылкой существующих теорий набухания [2] является предположение об асимметрии в способности дислокаций поглощать междоузельные атомы и образующиеся вакансии, следствием чего является преимущественный приток междоузельных атомов на дислокации и объединение вакансий в эмбрионы пор, которые растут в процессе облучения.

Заложенные в этот механизм аксиомы: выбивание нейтронами атомов из узлов решетки, выборочная диффузия, рост пор – не нашли экспериментального подтверждения. Напротив, возникают вопросы: почему радиационно-индуцированные фазообразования остаются стабильными сколь угодно долго при том же нейтронном воздействии; чем вызывается диффузия атомов против градиента концентраций (сегрегация отдельных элементов); за счет чего и какие напряжения создаются «пустотой» для разрыва кристаллических связей при слиянии пор и др. Об ограниченности теоретических моделей набухания свидетельствует и то, что ни одна из них не различает типа стали и не действует во всем температурном диапазоне.

Одной из причин существенного изменения физико-механических свойств облучаемых материалов является потеря фазовой стабильности. Независимо от повреждающей дозы, размер и концентрация пор и выделений зависят от температуры, причем с резким перегибом после 430°C [3].

Экспериментальные данные явно указывают на существование температурной зависимости распухания, доминирующей над влиянием набранной повреждающей дозы. Например, при изменении температурного режима ТВС БОР-60 [4] температура резко снизилась после половины интервала и стабилизировалась на другом уровне, разница температур оболочки на выходе из зоны составила 45°C. При максимальной повреждающей дозе 56 с.н.а. большинство твэлов обнаружили два четких максимума формоизменения, расположенных несимметрично относительно центра активной зоны на расстоянии 150 мм друг от друга. Результаты гидростатического взвешивания и трансмиссионной электронной микроскопии (ТЭМ) (рис. 1) подтвердили наличие двух максимумов распухания. В реальных кристаллах всегда имеются дефекты разного типа, и в первую очередь, структурные вакансии. Образование и наличие вакансий не обуславливаются только нейтронным облучением. Известны ситуации и с образованием несплошностей, в том числе и пор, без участия облучения в процессе рекристаллизации метастабильных твердых растворов. На рис. 2а процесс рекристаллизации в сплаве  $Ni_3Al$  (деформация при 1100°C) при высокой степени деформации сопровождается массовым зарождением на границах клиновидных трещин, которые через непродолжительное время приобретали овальную форму; на рис. 2б в сплаве  $Ni-HfO_2$  (отжиг 1100°C, 100 ч) при рекристаллизации на частицах наблюдаются поры (отмечены стрелками), образующиеся при появлении и достижении частицей определенных размеров [5].

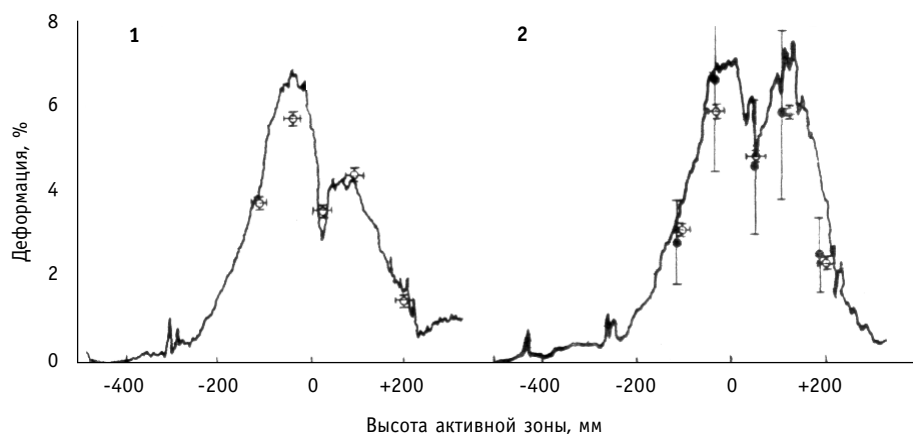


Рис. 1. Изменение по высоте активной зоны общей деформации твэла №10 (1) и №4 (2) (—) и деформации за счет распухания, определенной методом измерения плотности (○) и ТЭМ (●) [2].

Атомы могут образовывать любую кристаллическую решетку, но реально устойчивой является та, где меньше запас свободной энергии. При изменении температуры и давления устойчивой может оказаться решетка другого типа. В термодинамике это явление рассматривается как фазовый переход II рода [6], а в металловедении – как аллотропные превращения [7]. Превращение одной кристаллической формы в другую сопровождается поглощением тепла и происходит при постоянной температуре. Все самопроизвольно протекающие превращения вызываются тем, что новое состояние в новых условиях более устойчивое и обладает меньшим запасом энергии. Система переходит из одного состояния в другое только с понижением свобод-

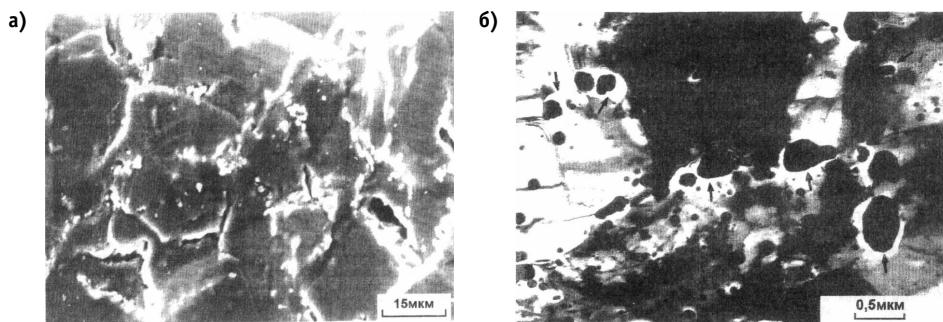


Рис. 2. Примеры образования несплошностей при рекристаллизации

ной энергии  $F = U - TS$  ( $U$ ,  $S$ ,  $T$  – внутренняя энергия системы, энтропия и температура соответственно). Но сам процесс перехода в другое состояние требует затраты энергии на образование поверхности раздела частицы новой фазы.

$$\Delta\Phi = S\sigma - V \cdot \Delta F, \quad (1)$$

где  $S$  – поверхность,  $\sigma$  – поверхностное натяжение,  $V$  – объем,  $\Delta F$  – разность свободных энергий начального и конечного состояний.

Превращение произойдет только тогда, когда выигрыш в энергии перехода в более устойчивое состояние будет больше потери энергии, идущей на образование поверхности раздела

$$\Delta\Phi = 4\pi r^2\sigma - 4/3\pi r^3\Delta F, \quad (2)$$

где  $r$  – радиус новой фазы.

Каждой температуре отвечает определенный размер устойчивого зародыша новой фазы. Чем ниже температура (больше переохлаждение), тем меньший размер имеет зародыш и больше центров рекристаллизации. Большей температуре соответствует больший критический размер зародыша и меньшее количество центров. Новые аллотропические формы в однородной фазе образуются благодаря флуктуациям появления термодинамически устойчивых кристаллов, аналогично кристаллизации из жидкого состояния [5].

Дополнительная энергия для перескока энергетического барьера приобретает за счет тепловых флуктуаций. Причем, чем ниже температура, тем значительнее флуктуация должна превышать энергию тепловых колебаний  $\Delta F \gg kT$  [8]. В реакторных условиях флуктуация тепловых колебаний отдельных атомов усиливается за счет энергии рассеивания потоков нейтронов и высокоэнергетичных гамма-квантов.

В условиях установившегося во времени статистического макрораспределения температуры по реактору, температура в элементарном объеме будет испытывать

флуктуации вблизи определенной точки в пределах  $\langle(\Delta T)^2\rangle = \frac{T^2}{C_v}$ , где  $C_v$  – теплоем-

кость тела в целом. Достижение термодинамическими функциями условий фазового перехода II рода обуславливается вероятностным характером энергетического состояния в отдельном элементарном объеме [6].

Необходимо отметить, что изменение трансляционной симметрии кристалла при фазовом переходе II рода (аллотропическом превращении) может состояться лишь при увеличении элементарной ячейки при неизменном кристаллическом классе, либо с уменьшением компактности при неизменной ячейке. Например, превращение  $\text{Fe } \gamma \rightarrow \alpha$  должно сопровождаться увеличением объема на 9%. На самом деле одновременное компенсационное уменьшение атомного радиуса приводит к увеличению на уровне 1%. Но структурные напряжения, вызванные изменением элементарного объе-

ма, вызывают пластическую деформацию, дробление блоков внутри зерен; при значительных изменениях – изменение формы зерен; между зернами, а то и внутри них, образуются трещины [5]. Тем более образование любых вторичных фаз в теле самой компактной ГЦК структуры проходят с увеличением объема.

Давно отмечено, что склонность метастабильных сталей к накоплению повреждаемости ведет к зависимости от степени допустимой деформации и требует времени и условий для устранения полученных несплошностей [5]. Релаксация повышенных напряжений и внутренняя деформация происходят за счет ползучести в зависимости от уровня напряжений, температуры и структурного состояния материала в данный момент. Из аналогии со структурными изменениями под напряжениями, вызванными деформацией, либо при изменении форморазмеров частиц (рис. 2), следует, что при интенсивных фазовых перестроениях под облучением релаксация напряжений и устранение несплошностей могут не происходить, если их образование выходит за пределы стадии упругоравновесного состояния.

В последнее время чаще обращается внимание на аналогию между равновесными и неравновесными фазовыми переходами. Особенностью быстрого реактора является то, что помимо установившегося на оболочке в процессе теплопередачи уровня температур происходит накачка материала оболочки энергией за счет рассеяния нейтронов. Дополнительно внесенная в матрицу энергия создает ситуацию постоянного стоп-кадра «перегрева» – повышенной флуктуации свободной энергии, повышая вероятность актов образования вторичных фаз. Подобный уровень «перегрева» можно наблюдать только в быстром реакторе с высокими нейтронными потоками и жидкометаллическим теплоносителем. По законам классической термодинамики параметры новых фаз зависят от степени перегрева: при низких температурах устойчивыми являются мелкие фазообразования в больших концентрациях; при высоких температурах – фазы больших размеров, но в малых количествах [7].

Экспериментально установлена взаимосвязь температурных областей фазовой нестабильности в максимуме распухания – пропадают вторичные карбиды титана (MC) с образованием богатой титаном  $\beta$ -фазы, связанные с порами (наблюдаются также фаза Лавеса и  $M_{23}C_6$ ). Очевидна связь распухания со степенью некогерентности образующихся вторичных фаз с матрицей [8]. Новые структуры вызывают значительные внутренние напряжения. Релаксация этих напряжений сопровождается либо постепенным блочным изменением решетки через дислокационные перестроения, либо (в зависимости от состояния внутренних связей или при большой интенсивности процесса) приводит к образованию несплошностей, которые принимают вид пор, по форме и размерам зависящих от соседних кристаллических образований. Отсюда корреляция между распуханием и радиационной ползучестью [2].

Из результатов наблюдений микроструктуры модельных сплавов, облученных в FFTF, установлено, что распухание при нейтронном облучении сильно зависит от соотношения реализации точечных дефектов на дислокациях и на порах – рис. 3 [9].

$$Q = \frac{Z_d \rho}{4\pi r_c N_c}, \quad (3)$$

где  $Z_d$  – изменение дислокации,  $\rho$  – плотность дислокаций,  $r_c$  – радиус пор,  $N_c$  – плотность пор.

В интерпретации предложенного подхода (рис. 4) результат демонстрирует то, что на первой стадии происходят локальные фазообразования с изменением структуры, когда нарушения порядка и внутренние напряжения переводятся в сетку дислокаций по механизмам индуцируемой ползучести – инкубационная доза. На второй стадии структурные изменения приводят к частичному нарушению внутренних связей

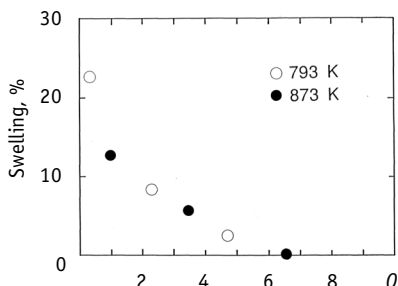


Рис. 3. Зависимость распухания от параметра  $Q$  [9]

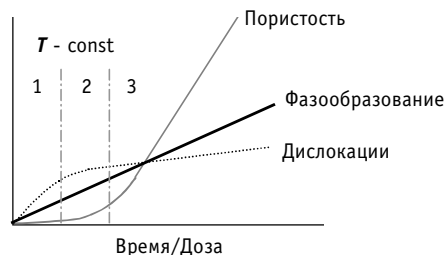


Рис. 4. Развитие процессов фазообразования, пористости и сетки дислокаций от времени (набора дозы)

дальнего порядка, возникающие напряжения включают механизм скольжения–переползания дислокаций, в отдельных случаях рекристаллизация сопровождается образованием пор, начинается изменение механических свойств. На третьей стадии, на фоне деградации механических свойств, локальные структурные деформации и отсутствие возможности релаксации внутренних напряжений ведет к разрушению структуры и интенсивному образованию пор. Интенсивность облучения, как и любое внешнее воздействие, усиливает флуктуации термодинамических функций и, тем самым, влияет на повышение вероятности фазообразований.

Ключевым в понимании радиационного распухания является не то, что под облучением аустенитных сталей наблюдаются поры (они наблюдаются в широком диапазоне температур от 370 до 530°C), а то, что максимум распухания приходится на область, где обязательно присутствуют крупные фазообразования до 80 нм. Набухание структуры происходит по двум направлениям: за счет увеличения занимаемого объема при фазовом переходе и за счет возникновения пор в структурных искажениях матрицы, вызванных этими фазообразованиями.

Преимущества предложенного подхода к объяснению явления распухания в условиях радиационного воздействия:

- распространяет действие на весь диапазон реакторных температур и все марки аустенитных сталей;
- позволяет объяснить уникальную стойкость к распуханию сталей с ОЦК-решеткой;
- термические процессы под облучением описывает законами термодинамики как частный случай в рамках общего материаловедения;
- объясняет такие нюансы, как стабильность вторичных фазообразований, температурное распределение крупных и мелких пор, присутствие пор совместно с фазами и врозь.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В твердом теле всегда идет релаксация, т.е. переход сплава как термодинамической системы, в более стабильное состояние. При температурах  $(0,3 - 0,4)T_{пл}$  этот переход осуществляется бездиффузионным путем за счет образования и скольжения дислокаций, формирования или разрыва межатомных связей в устье микротрещин и другими способами. При облучении релаксация не успевает за процессом рекристаллизации, вероятностное проявление случаев которого усиливается из-за повышения флуктуации свободной энергии.

В настоящее время накоплен большой экспериментальный материал, подтверждающий справедливость того, что возникновение пор в стали при реакторном облучении является следствием неравновесных деформаций под действием структурных напряжений, вызванных процессами образования вторичных фаз на фоне деградированных внутренних связей.

### **Литература**

1. *Паршин А.М.* Структура и радиационное распухание сталей и сплавов. 669.1 П18. – 1983.
2. Разработка, производство и эксплуатация тепловыделяющих элементов энергетических реакторов/*Под ред. Ф.Г. Решетникова.* – М.: Энергоатомиздат, 1995.
3. *Бакай А.С., Бородин О.В., Воеводин В.Н. и др.* Стабильность выделений вторых фаз при высокодозном облучении/ III Межотраслевая конференция по РМ. – Димитровград, 1992.
4. *Неустроев В.С., Островский В.С., Тенковцев А.А. и др.* Влияние изменения температурного режима облучения твэлов реактора БОР-60 на их распухание // ВАНТ. Сер.: Материаловедение и новые материалы. – Т. 2. – 1992. – С. 50-58.
5. *Колобов Ю.Р.* Диффузионно-контролируемые процессы на границах зерен и пластичность металлических поликристаллов. – Новосибирск: Наука, 1998. – С. 112-145.
6. *Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М.* Теоретическая физика. Ч.1. Статистическая физика. – М: Наука, 1976.
7. *Гуляев А.П.* Металловедение. – М.: Оборонгиз, 1963.
8. *Целищев А.В.* Структурно-фазовые изменения в оболочках твэлов из сталей аустенитного и ферритно-мартенситного классов при облучении до высоких доз/ Автореферат. – М.: Ротопринт ВНИИНМ, 1993.
9. *Sekimura Naoto and Ishino Shiori* Microstructural evolution and swelling in austenitic steels under irradiation/ Семинар СНГ–Япония «Изучение влияния внутриреакторного облучения на конструкционные материалы быстрых реакторов» (10-17 мая 1992 г.) – Обнинск, 1992.

Поступила в редакцию 14.02.2005

The behaviour of the sodium-heated once-through steam generator evaporator stage hydrodynamic instability range boundaries has been analyzed. The recommendations on the evaporator stage stability improvement under startup transients are given.

**УДК 621.039.526**

*About Connection of the Sodium Flow Rate Distribution in the BN-600 Reactor Primary Circuit with the Reactor Vessel Thermocouples Reading Pattern* \A.A. Bychkov, I.M. Krysan'tev; Editorial board of Journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2005. – 5 pages, 2 tables, 2 illustrations. – References, 2 titles.

The authors present analysis results of the reading of the thermocouples for sodium temperature measurements into the BN-600 reactor vessel (reactor vessel thermocouple) for several operating cycles the BN-600 reactor. The reactor vessel thermocouples reading dependence from hydraulic condition of the BN-600 reactor primary circuit is presented in this article.

**УДК 621.039.542**

*Features of Constructional Materials' Behavior within Fast High-Power Reactor's Spectrum of Neutrons* \V.V. Chuyev, V.F. Rosljakov, V.V. Maltsev; Editorial board of Journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2005. – 14 pages, 5 tables, 13 illustrations. – References, 5 titles.

Present work reviews basic research results of the of experimental and regular fuel subassemblies and fuel pins using an example of reactor's FN-600 for its transformation to the fuel burn out ~11 % h.a.. These results are necessary for substantiation of constructional materials' safe and reliable work within an active third modernization zone.

**УДК 621.039.526**

*Radiation Swelling of Steels in the Fast Reactor Neutron Field* \E.A. Kozmanov; Editorial board of Journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2005. – 6 pages, 4 illustrations. – References, 9 titles.

At present the vast experimental material validating the fact that the pores in steel are formed during in-reactor irradiation due to the unbalanced strains induced by the structural stresses caused by the processes of forming the secondary phases against a background of the degraded internal links. The loss of the phase stability causes an essential change in the physical and mechanical properties of the irradiated materials. The sizes and concentration of pores and precipitations are dependent on temperature. In this paper the phenomenologic presentation of the steel swelling process in the fast reactor neutron field is made on the basis of the applicable experimental data.

**УДК 621.039.526**

*Confirmation of the Design Lifetime of the Test Safety Rods Manufactured of Refabricated Boron Carbide after Operation in the BN600 Reactor* \A.V. Zakharov, A.I. Karpenko, E.A. Kozmanov, V.V. Maltsev, V.D. Risovany, A.A. Khudyakov; Editorial board of Journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2005. – 6 pages, 2 tables, 4 illustrations.

The main results of the in-reactor testing and integrated research conducted by the Russian nuclear reactor research centre and Beloyarsk NPP in support of the utilization of the safety rods manufactured of refabricated boron carbide in the fast reactor are presented. The test rods have smoothly operated under actual conditions without any damage or any change in dimensions or geometry. The total results of the in-reactor testing and primary and scientific post-irradiation examinations of the test safety rods allow the use of the design of these rods having got design lifetime of 580 efpd as a standard one for the BN600 reactor to be recommended.

**УДК 621.039.542**

*Optimization of the Structural Condition of Fuel Cladding Material* \M.V. Bakanov, V.V. Chuev, O.V. Kryukov, A.V. Lukin, S.A. Bychkov, Yu.P. Budanov, O.S. Korostin, A.V. Tselishchev, V.B. Tarasyuk; Editorial board of Journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2005. – 7 pages, 2 tables, 5 illustrations. – References, 7 titles.

The technology of the especially thin-walled cold-worked tubes sizing 6.9 by 0.4 mm of '4C68' steel is outlined. The ways of the fuel pin technology advancement aimed at obtaining better fuel pin radiation resistance in the BN600 reactor are reviewed. The long-term strength of the tubes manufactured following the advanced technology is better than that of the tubes supplied earlier.