

УДК 621.039:531

## ПРОБЛЕМЫ РАДИАЦИОННОЙ СТОЙКОСТИ КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ

**В.Н. Воеводин, И.М. Неклюдов**

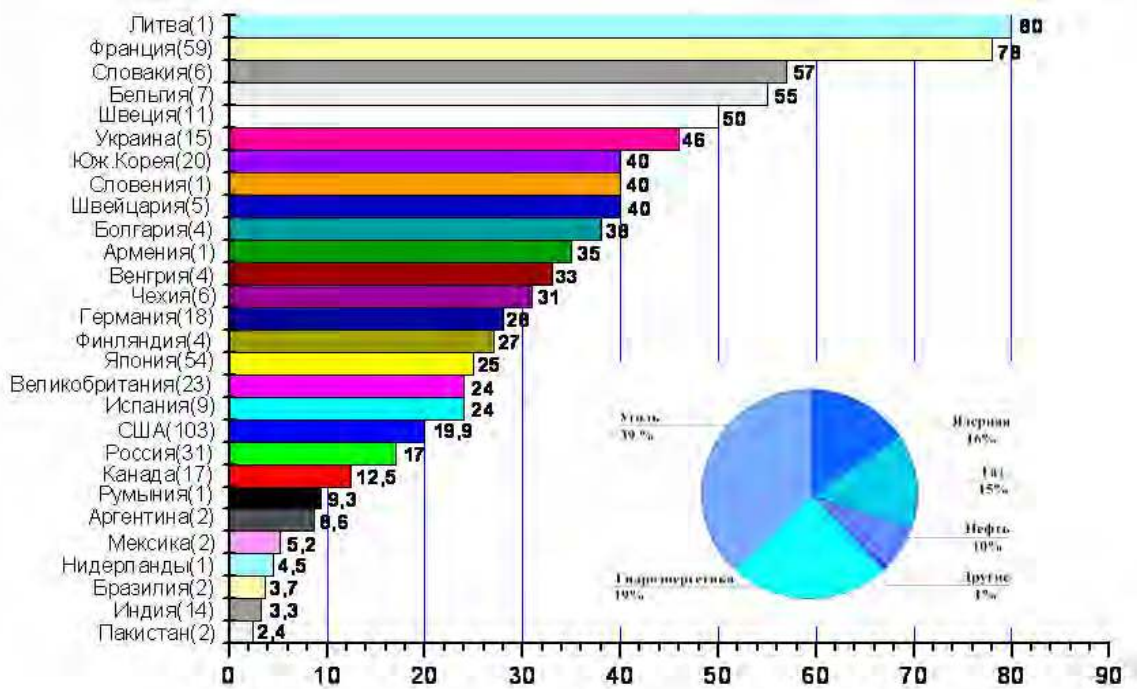
Национальный научный центр "Харьковский физико-технический институт",  
61108, г. Харьков, ул. Академическая, 1, e-mail: voyev@kipt.kharkov.ua  
Поступила в редакцию 1 ноября 2006 г.

Рассмотрены механизмы радиационного повреждения конструкционных материалов ядерной энергетики и проблемы разработки радиационно - стойких материалов для эксплуатируемых и перспективных ядерных реакторов новых поколений. Анализ состояния и перспектива решения проблемы показывают, что, несмотря на значительные усилия исследователей во всех странах мира, экономически необходимые уровни эксплуатации существующих ядерных реакторов до сих пор не достигнуты. Это в значительной степени определяется недостаточной радиационной стойкостью основных конструкционных материалов существующих ядерных установок – нержавеющей сталей различных классов и циркониевых сплавов. Ключевой проблемой в материаловедческом обеспечении современной ядерной энергетики и энергетики будущего является изучение микроструктурной эволюции и ее влияния на деградацию исходных физико-механических характеристик. **КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** ядерная энергетика, конструкционные материалы, радиационно-стойкие материалы, радиационные дефекты, тепловые реакторы, реакторы на быстрых нейтронах, эффекты трансмутации, электроядерные системы.

На фоне критического положения в традиционной энергетике из-за дефицита органического топлива, физического и морального старения оборудования тепловых электростанций, из-за вредного воздействия их на окружающую среду, ядерная энергетика работает достаточно стабильно и при соблюдении всех мер безопасности является самым экологически чистым источником энергии.

Сегодняшняя ядерная энергетика в мире - лучшее, что имеет человечество для целей производства и поставки дешевой электрической и тепловой энергии на необозримую перспективу с обеспечением ядерной, физической, экологической и технической безопасности в объемах, соответствующих нуждам общества. Сейчас в мире, по данным МАГАТЭ, эксплуатируется более 500 ядерных энергоблоков, исследовательских и других реакторов.

В ряде стран ядерная энергетика занимает доминирующее положение, вырабатывая более половины необходимой электроэнергии. К таким странам относится и Украина, в которой эксплуатируется 15 ядерных энергоблоков. Вклад ядерной энергетики в мировое производство электроэнергии в настоящее время составляет более 18%, причем более чем в 10 странах он составляет от 40 до 80% (рис. 1) [1].



(\* ) - количество ядерных реакторов, находящихся в эксплуатации.

Рис. 1. Производство электроэнергии на АЭС (%) в различных странах мира в 2005 году

Развитие ядерной энергетики происходило и происходит в жесткой конкурентной борьбе как с традиционными технологиями производства электроэнергии, так и с альтернативными (восстанавливаемыми) источниками. Ключевыми вопросами такой конкуренции в 21 веке являются безопасность и экономичность (цена за производимую электроэнергию). Именно поведение конструкционных материалов эксплуатируемых и проектируемых ядерных реакторов и определяет в значительной степени безопасную и экономичную работу атомных станций.

Материалы эксплуатируемых и проектируемых ядерных реакторов деления могут быть разделены на несколько групп:

- *топливные материалы* – ядерное горючее: уран, плутоний, торий и их сплавы.
- *конструкционные материалы* – феррито - перлитные и феррито - мартенситные стали (корпуса водородных реакторов), аустенитные стали (чехлы и оболочки тепловыделяющих элементов (ТВЭЛов) реакторов на быстрых нейтронах, внутри корпусные устройств водо-водяных реакторов, первая стенка ТЯР); феррито - мартенситные стали (чехлы ТВЭЛов быстрых реакторов, первая стенка ТЯР); ферритные дисперсноупрочненные стали – малоактивируемые стали для ТЯР и реакторов следующих поколений, циркониевые сплавы – материалы для оболочек и каналов реакторов на тепловых нейтронах (материалы систем управления и защиты реакторов (СУЗ) - материалы, поглощающие нейтроны В, Cd, Hf - тепловые нейтроны, В, Та, Eu – быстрые нейтроны).

Топливные материалы должны обеспечивать самоподдерживающуюся цепную реакцию деления.

Роль конструкционных материалов состоит не только в обеспечении стабильности геометрии активной зоны на весь период эксплуатации и, в первую очередь, ТВС и ТВЭЛов, но и в удержании внутри ТВЭЛа продуктов деления топлива, сохранении работоспособности органов СУЗ и обеспечении минимальных последствий возможных аварийных ситуаций, то есть, по существу, в решении ключевых вопросов безопасности реакторной установки.

К сожалению, конструкционные материалы обладают большими потенциальными ограничениями для достижения более высоких уровней повреждений и таким образом тормозят достижение глубоких выгораний топлива.

Разработка конструкционных материалов эксплуатируемых и перспективных ядерных установок представляет собой сложнейшую научно-техническую проблему. Под действием быстрых частиц и излучений в кристаллических телах происходят сложные структурно-фазовые превращения, приводящие к существенному изменению и, к сожалению, как правило, к деградации их исходных физико-механических свойств [2].

Радиационные повреждения инициируются на атомном уровне, но макроскопические эффекты деградации (распухание, ползучесть, охрупчивание и т.д.) в действительности возникают из-за микроструктурных изменений, таких как рост пор, дислокационных петель и выделений вторых фаз. Поэтому для установления общих закономерностей изменения структуры и физико-механических свойств, прогнозирования работоспособности материалов конструкций активных зон необходимо, прежде всего, изучение процессов зарождения и эволюции дефектной структуры металлов и сплавов при облучении.

### **ФУНДАМЕНТАЛЬНЫЕ АСПЕКТЫ РАДИАЦИОННОЙ ПОВРЕЖДАЕМОСТИ**

Поведение образующихся в процессе облучения точечных дефектов и их комплексов с высокой концентрацией и большой диффузионной подвижностью инициирует прохождение целого ряда процессов, не наблюдаемых или слабо проявляющихся в безрадиационных условиях:

- взаимодействие потоков точечных дефектов и атомов твердого раствора;
- сегрегация на стоках точечных дефектов;
- взаимодействие с продуктами ядерных реакций;
- преференциальное поведение краевых дислокаций;
- изменение химического состава из-за протекания явления радиационно-индуцированной сегрегации и ядерной трансмутации.

Установлено, что все эти эффекты связаны между собой общей физикой явлений, характерной для облучаемых материалов. Основными механизмами деградации и размерной нестабильности материалов в процессе облучения являются: смещения атомов в решётке, их последующая миграция, сегрегация и взаимодействие с трансмутантами.

### **Первичные процессы**

Смещение атомов происходит в процессах упругого и неупругого рассеяния частиц излучений на атомах облучаемого материала и в ядерных реакциях при образовании ядер отдачи в случае передачи налетающей частицей атому энергии, превышающей  $\sim 2,5E_d \sim 100$  эВ ( $E_d = 40$  эВ, энергия связи атома в структурной решетке).

Если бомбардирующая частица передает атому более высокую энергию, то этот первично - выбитый атом (ПВА) будет инициировать множественное смещение других атомов структуры, образуя сплошной каскад атомных смещений матрицы. Количество выживших в этом процессе дефектов структуры (вакансий и

интерстиций) рассчитывается с использованием модели последовательных смещений NRT (аббревиатура из начальных букв фамилий ученых, предложивших эту модель – Norgett, Robinson, Torrens) [3]. По этой модели полное количество смещенных атомов, образуемых ПВА с кинетической энергией  $E_{ПВА}$ , представляет собой выражение, называемое *каскадной функцией*:

$$\nu = \frac{T(E_{ПВА})}{2,5E_d} = 0,8 \frac{T(E_{ПВА})}{2E_d}, \quad (1)$$

где  $T(E_{ПВА})$  – энергия повреждения, представляет величину энергии ПВА, потраченную на образование смещений (остальная часть энергии теряется при его ионизационном торможении в облучаемом материале).

Для расчета дозы облучения мировое сообщество использует смещение на атом – степень повреждения, характеризующее полное число смещений на атом облучаемого материала (*сна*). Для расчета уровня радиационного повреждения материалов используется сечение образования точечных дефектов  $\sigma_1$ , которое представляет собой интеграл от произведения функции  $\frac{d\sigma}{dE_{ПВА}}$ , описывающей зависимость количества

ПВА от их энергии  $E_{ПВА}$  в расчете на одну бомбардирующую атом материала частицу, и каскадной функции  $\nu(E_{ПВА})$  в диапазоне энергий ПВА от порога образования точечных дефектов  $2,5E_d$  до максимально возможной энергии ПВА:

$$\sigma_1 = \int_{2,5E_d}^{E_{ПВА}^{max}} \left( \frac{d\sigma}{dE_{ПВА}} \right) \cdot \nu(E_{ПВА}) \cdot dE_{ПВА}. \quad (2)$$

Уровень радиационного повреждения  $N$  в единицах *сна* вычисляется по формуле:

$$N_{сна} = \sigma_D \cdot \Phi \cdot t, \quad (3)$$

где  $\Phi$  – плотность потока частиц излучения,  $t$  – время облучения.

Зарождение и рост кластеров дефектов являются ключевыми факторами, определяющими микроструктурную эволюцию. В отличие от многочисленных исследований роста дефектов при высоких дозах облучения, стадии зарождения кластеров дефектов изучены довольно слабо из-за экспериментальных трудностей.

Определяющим как на стадии зарождения, так и на стадиях роста является поведение точечных дефектов - вакансий и межузлий, их геометрические и энергетические характеристики [4].

Важнейшим следствием для эффектов радиационного повреждения является результат взаимодействия точечных дефектов с краевой дислокацией. В случае поглощения точечного дефекта дислокацией их силовое взаимодействие в первом приближении описывается энергией взаимодействия [5]

$$E = \frac{(1-\nu)\mu b \sin \theta}{3\pi(1+\nu) R} \Delta V_{i,\nu}, \quad (4)$$

где  $\nu$  - коэффициент Пуассона;  $\Delta V_{i,\nu}$  - дилатационный объем точечного дефекта;  $\mu$  - модуль сдвига;  $b$  – вектор Бюргерса;  $R$ - расстояние до точечного дефекта.

Поскольку дилатационный объем межузельного атома  $\Delta V_i = 1 - 2$  атомных объемов, а для вакансии он составляет  $\Delta V_v = - (0,25 - 0,5)$  атомных объемов [6], то из выражения (4) следует, что при прочих равных условиях межузельные атомы сильнее, чем вакансии, поглощаются дислокациями (рис. 2).

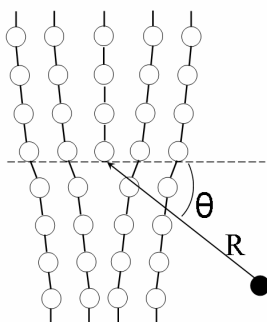


Рис. 2. Схема взаимодействия краевой дислокации и точечного дефекта

В процессе облучения имеют место реакции между различными типами дефектов, образованных в процессе облучения. Причина аннигиляции межузлия и вакансии определяется деформацией противоположных знаков, связанных с напряжениями, возникающими при их образовании. Эффекты, вносимые межузельным атомом, по абсолютной величине в несколько раз превышают вносимые вакансиями.

### Миграция дефектов, реакции между дефектами

К основным микроструктурным изменениям в облученных металлах относятся - развитие поровой структуры, дислокационной сетки, распад твердого раствора, формирование радиационно-индуцированных выделений. Эти эффекты проявляются при высоких температурах, когда подвижность точечных дефектов достаточно высока и зависят от длиннопробежной миграции точечных дефектов. Пути их миграции значительно превышают типичные размеры каскадов, и вся эволюция микроструктуры полностью определяется диффузией свободно мигрирующих дефектов и соответствующими их реакциями между собой и с имеющимися в решетке дефектами.

Классическим примером реакций между дефектами является реакция между подвижными и неподвижными дефектами - стоками (поры, дислокации, границы зерен, внешние поверхности). Они обычно характеризуются феноменологическим радиусом реакции  $r_s$ , на котором концентрация подвижных дефектов падает до нуля (рис. 3) [7].

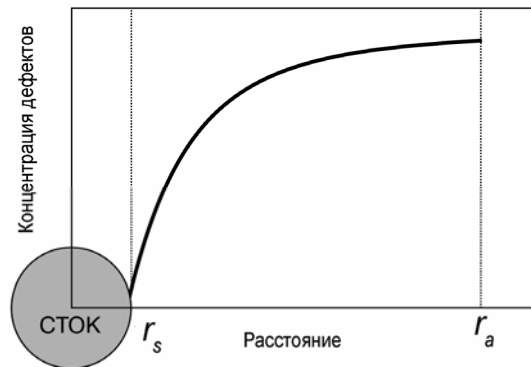


Рис. 3. Схема концентрационного профиля мобильного дефекта у сферического стока

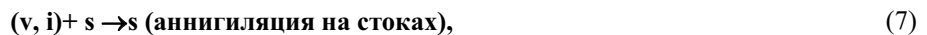
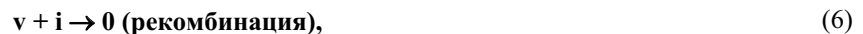
Для представляющего практический интерес случая многочисленных стоков и первоначальной гомогенной концентрации дефектов концентрационный профиль дефектов вокруг стока  $C(r, t)$  определяется в соответствии с уравнением:

$$C(r, t) \approx C_0 g(r) \exp(-R_s t), \quad (5)$$

где  $r$  - расстояние от стока;  $t$  - время;  $C_0$  - первоначальная гомогенная концентрация дефектов;  $g(r)$  - стационарная форма концентрационного профиля;  $R_s$  - постоянная скорости процесса.

Широкое распространение в кинетической теории радиационного повреждения [8] получил метод скоростей химических реакций. Основным его удобством является гомогенизация стоков точечных дефектов по объему кристалла, позволяющая отказаться от математических сложностей при решении диффузионных задач с граничными условиями. В настоящее время этот метод стал по природе более физическим, чем химическим.

Основными реакциями точечных дефектов в чистых металлах, определяющими среднюю концентрацию межузлий и вакансий, являются следующие:



где  $v$ ,  $i$ ,  $s$  - вакансия, межузельный атом и сток, соответственно.

Условия баланса, описывающие изменения концентрации свободных межузельных атомов и вакансий в процессе облучения, в скоростной теории представляются следующим образом:

$$\begin{aligned} K_i^2 + K_i - K_i^2 D_i C_i - \alpha C_i C_v &= \frac{\partial C_i}{\partial t}, \\ K_v^2 + K_v - K_v^2 D_v C_v - \alpha C_i C_v &= \frac{\partial C_v}{\partial t}. \end{aligned} \quad (8)$$

Здесь  $K_i = K$  - скорость создания нескоррелированных межузельных атомов;  $K_v$  - скорость создания нескоррелированных вакансий;  $C_v$ ,  $C_i$  - концентрации вакансий и межузлий, соответственно;  $D_v$  - коэффициент диффузии вакансий;  $\alpha$  - коэффициент рекомбинации:

$$\begin{aligned} \alpha &= 4\pi r_{i,v} (D_i + D_v) / \Omega, \\ D_{i,v} &= D_{i,v} \exp(-E_{i,v}^m) / kT, \end{aligned} \quad (9)$$

где  $D_{i,v}$  - коэффициенты диффузии межузельных атомов и вакансий;  $E_{i,v}^m$  - энергии миграции межузельных атомов и вакансий;  $k$  - постоянная Больцмана;  $T$  - абсолютная температура;  $K_v^2$ ,  $K_i^2$  - мощности фиксированных стоков для вакансий и межузлий,  $\Omega$  - объем точечного дефекта типа  $j$ ,  $m^3$ ;  $r_{i,v}$  - радиус рекомбинации, который в общем случае равен параметру решетки  $a$ .

### Влияние облучения на распад твердого раствора

При облучении происходит не только изменение исходной структуры, но и изменение композиции исходного твердого раствора, формирование и модификация выделений вторых фаз в результате взаимодействия потоков точечных дефектов и атомов твердого раствора.

Облучение модифицирует структурно-фазовое состояние сталей и сплавов, как за счет ускорения диффузионных процессов, так и в связи с реализацией таких структурно-фазовых превращений, которые принципиально невозможны в термически равновесных условиях [9].

В результате непрерывного образования в процессе облучения пар Френкеля и сильного взаимодействия между растворенными атомами твердого раствора и точечными дефектами в материале устанавливаются квазистационарные потоки подвижных точечных дефектов и их комплексов на различные типы стоков. К последним относятся как существовавшие перед облучением (выделения вторых фаз, границы зерен, исходная дислокационная структура), так и возникшие в процессе облучения (компоненты радиационно-индуцированной микроструктуры). Это является причиной радиационно-индуцированной сегрегации (РИС) и распада твердого раствора.

Сегрегация в облученных сталях имеет место, потому что вакансии и межузлия по разному взаимодействуют с атомами твердого раствора [10]. Поэтому в районах вблизи стоков точечных дефектов имеет место перераспределение (обогащение или обеднение) этих атомов.

Теоретическая модель подсчета концентрации элементов у стоков базируется на определении потоков каждого вида, вызываемых миграцией точечных дефектов, создаваемых в процессе облучения.

Двумя доминирующими механизмами РИС являются: движение быстро мигрирующих примесей замещения против вакансионного потока (этот эффект назван обратным эффектом Киркендалла) и формирование комплекса подразмерных растворенных атомов с мигрирующими межузельными дефектами.

Обратный эффект Киркендалла по вакансионному механизму предполагает, что предпочтительная миграция атомов возникает из-за различий в скорости обмена атомов и вакансий. Относительная частота перескоков каждой разновидности может быть определена из термических коэффициентов самодиффузии. Очевидно, что потоки атомов движутся в направлении, противоположном вакансионному потоку, таким образом, что наиболее медленно диффундирующий элемент обогащается на стоках точечных дефектов, в то время как имеет место обеднение по быстро диффундирующим элементам. Обратный эффект Киркендалла по межузельному механизму аналогичен вакансионному, однако в этом случае поток атомов движется в том же самом направлении, что и поток дефектов. Обратный эффект Киркендалла вблизи стока дефектов в двойном сплаве с компонентами А и В описывается следующими уравнениями:

$$\frac{I_A^i}{I_B^i} = \frac{D_A^i C_A}{D_B^i C_B}, \quad (10)$$

$$\frac{I_A^v}{I_B^v} = \frac{D_A^v C_A}{D_B^v C_B}, \quad (11)$$

где  $I_A^v, I_B^v$  – потоки атомов по вакансионному механизму;  $I_A^i, I_B^i$  – потоки атомов по межузельному механизму;  $D_A^v, D_A^i, D_B^v, D_B^i$  – парциальные коэффициенты диффузии компонентов А и В по вакансионному и межузельному механизмам;  $C_A, C_B$  – атомные концентрации компонентов А и В (рис. 4) [11].

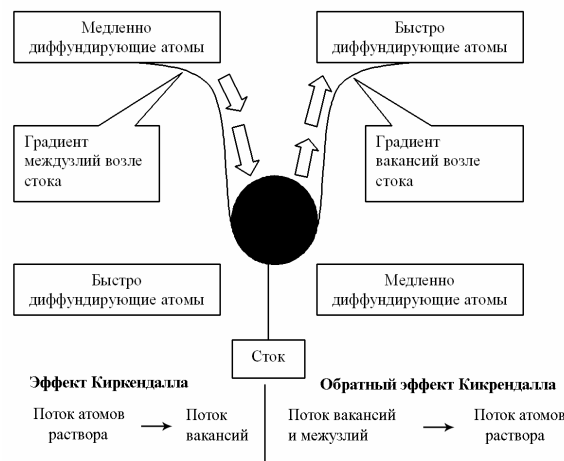


Рис. 4. Схема обратного эффекта Киркендалла вблизи стока точечных дефектов

Радиационно-индуцированная сегрегация ответственна за потерю однородности первоначального твердого раствора и формирование выделений, как результат обогащения Ni, Si, P на стоках точечных дефектов и обеднения этими элементами твердого раствора (рис. 5).

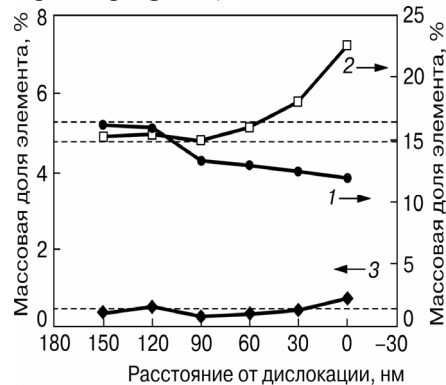


Рис. 5. Распределение элементов в плоскости дефекта упаковки петли Франка (пунктирные линии показывают среднее содержание элементов в матрице): 1 — Cr; 2 — Ni; 3 — Si (ЭИ-847(А),  $Cr^{3+}$ ,  $E = 3$  МэВ,  $T_{обл} = 600^{\circ}C$ ,  $D = 25$  сна)

### Эффекты трансмутации

Взаимодействие нейтронов с атомами материалов реакторов приводит к одновременному образованию атомных смещений и чужеродных атомов из ядерных реакций трансмутации. Особое значение таких ядерных реакций заключается в генерации газовых трансмутантов - гелия и водорода. Атомы гелия и водорода, образовавшиеся в результате трансмутационных реакций, модифицируют процесс эволюции первично образованной радиационной микроструктуры, что приводит к изменению макроскопических свойств облучаемого материала (потере пластичности, охрупчиванию, вакансионному набуханию и т.д.). Концентрация атомов – продуктов реакций трансмутации измеряется в единицах аррм (atom part per million), - в количестве атомов трансмутанта в расчете на один миллион атомов исходного материала [12].

Постоянно образуемые (в процессе эксплуатации) в ядерных реакциях трансмутации атомы элементов:

- изменяют заранее созданный баланс атомов различных элементов в сплаве;
- влияют на процесс конкуренции за наиболее важные элементы при образовании двух или нескольких фаз, одновременно;
- служат катализаторами или ингибиторами твердотельных химических реакций при образовании новых фаз из выбитых атомов сплава в процессе свободной миграции (“free migration”), понижая или повышая их энергетический барьер;
- дестабилизируют образованные до облучения в процессе термообработки фазы выделений процессом своего образования, чем влияют на величину свободной энергии системы;
- образуют твердый раствор внедрения из элементов трансмутантов, не участвующих в образовании выделений.

*Трансмутация* - это процесс, который очень чувствителен к нейтронному спектру. Большинство трансмутаций (He, H, V, Li, Mn) в нержавеющей стали вызывают тепловые нейтроны ( $< 0,5$  эВ).

Основным источником гелия и водорода в атомных реакторах являются ядерные реакции в никельсодержащих материалах под действием тепловых нейтронов:

Реакция трансмутации	сечение реакции
${}_{28}^{58}Ni \xrightarrow{(n,\gamma)} {}_{28}^{59}Ni \xrightarrow{(n,\gamma)} {}_{28}^{60}Ni$	-
${}_{28}^{59}Ni + {}_0^1n \xrightarrow{th} {}_{26}^{56}Fe + {}_2^4He (4,76 \text{ МэВ})$	18 барн
${}_{28}^{59}Ni + {}_0^1n \xrightarrow{th} {}_{27}^{59}Co + {}_1^1H$	4 барн
${}_{28}^{59}Ni + {}_0^1n \xrightarrow{th} {}_{28}^{60}Ni + \gamma$	-
${}_{5}^{10}B + {}_0^1n \xrightarrow{th} {}_{5}^{11}B^*$	3750 барн
${}_{5}^{11}B^* \rightarrow {}_3^7Li (1,01 \text{ МэВ}) + {}_2^4He (1,77 \text{ МэВ})$	-
${}_{5}^{11}B^* \rightarrow {}_3^7Li^* + {}_2^4He \rightarrow {}_3^7Li (0,84 \text{ МэВ}) + {}_2^4He (1,47 \text{ МэВ})$	-

Кроме реакций трансмутации, мощным каналом поступления водорода в сталь элементов внутрикорпусных устройств является реакция коррозии на границе сталь/вода  $3Fe + 4H_2O \rightarrow Fe_3O_4 + 4H_2$ , скорость поступления водорода из теплоносителя равна  $1 \cdot 10^{-4}$  аррм Н/с для условий активных зон реакторов деления с водой под давлением.

## РАДИАЦИОННАЯ СТОЙКОСТЬ МАТЕРИАЛОВ ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ

Облучение материалов ядерных реакторов приводит к следующим изменениям материалов: упрочнению; низко (НТРО) - и высокотемпературному (ВТРО) радиационному охрупчиванию; радиационной ползучести; радиационному росту и радиационному набуханию; появлению наведенной активности.

Именно эти характеристики, наряду с коррозионной стойкостью, являются приоритетными при оценке и сравнении различных конструкционных материалов. При разработке новых материалов главной задачей является достижение минимального или допустимого изменения этих характеристик с целью обеспечения требуемой надежности и долговечности элементов конструкции.

Последнее требование малой активизируемости или быстрого спада наведенной активности в настоящее время является обязательным при разработке проектов термоядерных реакторов (ТЯР) ввиду существенно большего, чем в активной зоне реакторов деления, объема облучаемых конструкций.

Целесообразность использования материалов в ядерных энергетических установках определенного типа зависит от конструктивных особенностей ЯЭУ, используемого теплоносителя, энергетического спектра нейтронов и т.д.

*Нержавеющие стали и сплавы на основе никеля и хрома* используются в качестве оболочек поглощающих элементов, пружинных элементов твэлов и ТВС и, в отдельных случаях, для дистанционирующих решеток ТВС. Для быстрых реакторов, работающих при более высоких температурах и энергонапряженности, используются жаропрочные холоднотемпературные аустенитные стали, хромистые феррито-мартенситные стали, никелевые сплавы. Для первой стенки термоядерного реактора с гелиевым охлаждением основным материалом являются *малоактивируемые хромистые стали*, при охлаждении литием – *сплавы ванадия, легированные титаном и хромом*. Указанные материалы используются как в отечественных, так и зарубежных реакторах. Отличия состоят в легирующих элементах и технологии получения, которые, в конечном счете, и определяют их служебные характеристики.

### Реакторы на тепловых нейтронах

В настоящее время основу мировой ядерной энергетики составляют реакторы на тепловых нейтронах, охлаждаемые водой под давлением или кипящей водой (ВВЭР-440, ВВЭР-1000, PWR, BWR). Основными компонентами тепловых реакторов, подвергающимися интенсивному радиационному воздействию, являются корпус реакторов, оболочки ТВЭЛов, внутрикорпусные устройства.

Материалы корпусов должны обеспечивать безопасную работу в течение всего ресурса работы реактора. Для изготовления корпусов в настоящее время используются феррито-перлитные (Россия) и феррито-мартенситные стали (США, Франция, Япония):

**ВВЭР-440** - 15X2МФА (*C-0,11-0,21; Si-0,17-0,37; Mn-0,3-0,6; S-0,012-0,018; P-0,009-0,0038; Cr-2,5-3,0; Cu-0,09-0,17; Ni-0,19-0,27; Mo-0,6-0,8; V-0,25-0,35*);

**ВВЭР-1000** - 15X2НМФА, 15X2НМФАА (*C-0,13-0,18; Si - 1; Mn - 1; S < 0,035; P < 0,01; Cr-1,8-2,3; Ni - 1,0-1,5; Mo - 0,5-0,7; V - 1,1-0,12*);

PWR, BWR - A533-B (*C < 0,25; Si - 0,15-0,30; Mn - 0,15-1,50; S - 0,040; P - 0,035; Ni - 0,40-0,70; Mo - 0,45-0,60*).

Приведенные в таблице 1 данные условий работы реакторов на тепловых нейтронах показывают, что особенностями эксплуатации материалов корпусов такого типа реакторов являются достаточно низкие флюенсы и сравнительно невысокие температуры эксплуатации.

Все корпусные стали в результате эксплуатации заметным образом упрочняются. Как правило, увеличение предела текучести после облучения при температурах 240-290 °С до флюенса  $10^{22}$  нейтронов/см<sup>2</sup> составляет 20-40% [13].

Таблица 1. Реакторы на тепловых нейтронах: ВВЭР, PWR, BWR (мощность 440 - 1200 Mw)

Средняя плотность потока тепловых нейтронов в АЗ	2,7 – 4,4 $10^{-13}$ н /см <sup>2</sup> с	
Средняя плотность быстрых нейтронов в АЗ	1,9 – 4,0 $10^{14}$	
Скорость набора дозы	$10^{-7}$ сна/с	
Температура теплоносителя (корпус)	на входе	285 – 290 °С
	на выходе	320 – 325 °С
Плотность потока быстрых нейтронов на корпусе	$1 \cdot 10^{17}$ н/см <sup>2</sup> с	
Флюенс быстрых нейтронов ( $E_n > 0,1$ МэВ) на корпус за 40 лет эксплуатации	$\Phi t = 5 \cdot 10^{19} - 1 \cdot 10^{20}$ н/см <sup>2</sup>	
Скорость набора дозы радиационного повреждения (сталь)	$10^{-10}$ сна/с	
Доза радиационного повреждения корпуса за 40 лет	0,1 сна	

В настоящее время, очевидно, что радиационно-индуцированная деградация механических свойств корпусных сталей в процессе эксплуатации является результатом микроструктурных изменений наноструктурного масштаба (нм). Эволюция микроструктуры под воздействием нейтронного облучения при температурах эксплуатации корпуса реактора (270-300 °С) зависит не только от миграции точечных дефектов,

сформированных облучением, взаимодействия их между собой и кластеризации, но и от сложного взаимодействия с примесями.

Сейчас рассматриваются три основных микромеханизма, ответственных за изменение микроструктуры корпусных сталей при облучении:

1) Повреждения в матрице из-за образования радиационно-индуцированных кластеров и дислокационных петель.

2) Радиационно – ускоренное формирование мелкодисперсных выделений - как выделений, обогащенных медью, так и карбонитридов.

3) РИС на границах зёрен и межфазных границах охрупчивающих элементов, таких как фосфор, сера, мышьяк.

Суммарное радиационное охрупчивание (изменение температуры хрупко-вязкого перехода) представлено на рис. 6.

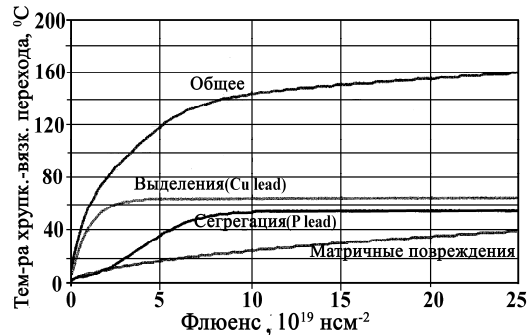


Рис. 6. Зависимость температуры хрупко-вязкого перехода от флюенса нейтронов [14]

Очевидно, что описанные выше радиационно-индуцированные изменения являются причиной сложных синергетических изменений в поведении сталей, которые не могут быть объяснены действием только одного механизма.

Предполагается, что эволюция радиационных повреждений в корпусных сталях идет следующим образом: образование первичных дефектов → наноструктурная эволюция → упрочнение → охрупчивание (сдвиг температуры хрупко-вязкого перехода) [15].

*Матричные дефекты в корпусных сталях.* Повреждения в матрице облученных корпусных сталей подразделяются на:

а) скопления межузельных кластеров и межузельных дислокационных петель так же как и вакансионные кластеры, микропоры и вакансионные петли,

б) смешанные кластеры растворенных атомов и точечных дефектов.

К настоящему времени существует некоторая неопределенность в определении природы матричных дефектов, но экспериментальные и теоретические результаты подтверждают, что могут существовать как межузельные, так и вакансионные дефекты, но широкий диапазон интерпретаций предполагает, что на распределение дефектов могут оказывать сильное влияние микроструктура и условия облучения [16].

При прочих равных условиях размер и концентрация радиационных дефектов возрастает с увеличением дозы быстрых нейтронов. Обнаружено, что матричные повреждения эволюционируют с дозой облучения, скоростью набора дозы и температурой облучения, давая результирующее упрочнение, пропорциональное корню квадратному из набранной дозы [16].

*Образование выделений,* обогащенных Cu и Mn – Ni, карбонитридов и карбидов разных типов ((V,Cr)<sub>7</sub>(C,N)<sub>3</sub>). Элементы твердого раствора корпусных сталей имеют тенденцию к радиационно-ускоренной кластеризации и формированию выделений с наноразмерами (2 - 3 нм).

Большинство результатов показывает, что формирование обогащенных медью выделений является одной из основных причин радиационного упрочнения и охрупчивания корпусных сталей [17]. Следует отметить, что химическая композиция этих выделений до сих пор остается неопределенной, в них присутствуют различные элементы (Fe, Mn, Ni, возможно Si и P). Даже незначительные вариации в композиции сталей и спектре нейтронов приводят к значительным различиям в морфологии и концентрации выделений [18]. В сталях ВВЭР-1000 выделения являются радиационно-стимулированными, а в ВВЭР-440-радиационно-индуцированными [18].

Роль фосфора в процессах радиационного охрупчивания корпусных сталей связана, главным образом, с его сегрегацией на границах зёрен в результате радиационно-стимулированной диффузии атомов фосфора посредством вакансионного механизма и уменьшением энергии когезии границ. С другой стороны, показано, что в облученных сталях фосфор участвует в формировании неких упрочняющих образований в теле зерна, что приводит к уменьшению его концентрации на межзёренных границах и ослаблению эффектов сегрегации. Установлено, что фосфор усиливает своё охрупчивающее влияние в присутствии значительных количеств меди,



никеля и марганца [19]. В настоящее время вопрос о соотношении вкладов в радиационное охрупчивание различных механизмов требует дальнейших исследований при более высоких дозах облучения.

Особый интерес представляет исследование роли Ni в процессах охрупчивания, так как по технологическим причинам в целом ряде корпусов ядерных реакторов, эксплуатируемых в Украине, содержание никеля превышает 1,5% вес. Вредное влияние никеля на отпускную хрупкость стали композиции Ст-Ni-Mo-V было известно давно, а фактические экспериментальные данные о вкладе никеля в радиационное охрупчивание реакторных сталей достаточно ограничены.

### Сплавы циркония

Основным конструкционным материалом активных зон реакторов на тепловых нейтронах с водным теплоносителем являются *циркониевые сплавы*, обладающие низким сечением захвата нейтронов, хорошей радиационной и коррозионной стойкостью.

Характерной особенностью циркониевых сплавов российского производства, которые используются в ядерных реакторах Украины, является наличие ниобия. Ниобий – основной легирующий элемент, как для бинарных, так и для многокомпонентных сплавов.

Базовые циркониевые сплавы западного производства (Циркалой -2 (*Ni-0,03 – 0,08%*; *Fe-0,07 – 0,2%*, *Sn-1,2 – 1,7*; *Cr-0,05 – 0,1%* )) и Циркалой - 4 (*Fe-0,18 – 0,24%*, *Sn-1,2 – 1,7%*; *Cr-0,07 – 0,13%* )) легированы оловом, железом, хромом и никелем.

Сплавы российского производства Э-110 (*Zr-1%Nb*), Э-125 (*Zr-2,5%Nb*), Э-635 (*Nb -1,0%*; *Fe- 0,3 – 0,5 %*; *Sn-1,0 – 1,5%*) в настоящее время является базовым материалом действующих российских реакторов.

Эти сплавы используются только в состоянии близком к рекристаллизованному, что обеспечивает их более высокую пластичность в исходном состоянии.

Сплав Э-635 обладает высоким сопротивлением ползучести, что объясняется более существенным упрочнением этого сплава под облучением. Он обладает также высоким сопротивлением радиационному росту. С точки зрения микроструктуры сопротивление радиационному росту может быть объяснено особенностями эволюции дислокационной структуры в процессе облучения (рис. 7-9). В сплаве Э-635, который обладает очень высоким сопротивлением радиационному росту, в отличие от других циркониевых сплавов высокая концентрация радиационно-индуцированные дислокационные петли <c> типа, ответственных за процессы радиационного роста, формируются при очень больших облучения (> 50 сна) практически недостижимых в коммерческих реакторах. Данные особенности эволюции сплава Э-635 объясняются особой ролью  $\alpha$ - твердого раствора, обогащенного железом [20]. Для сплавов Zr-1%Nb украинского производства, полученных по кальций термической технологии, представляет особый интерес исследование влияния кислорода на радиационное поведение сплавов.

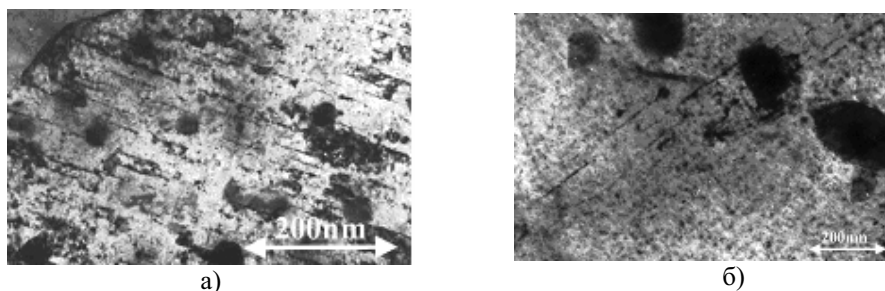


Рис. 7. С-компонентная дислокационная микроструктура циркониевых сплавов а – сплав Э-110, б - сплав Э-635

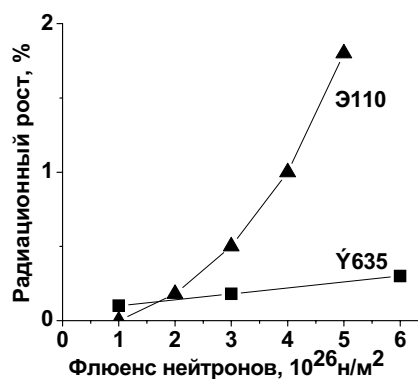


Рис. 8. Зависимость радиационного роста дислокационных петель с-типа циркониевых сплавов Э-110 и Э-635 от флюенса нейтронов ( $E < 0,1$  МэВ)

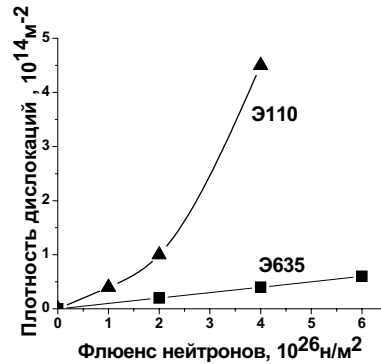


Рис.9. Зависимость плотности дислокационных петель с-типа циркониевых сплавов Э-110 и Э-635 от флюенса нейтронов ( $E < 0,1 \text{ МэВ}$ )

### Материалы внутрикорпусных устройств

Новым важным вызовом для радиационного материаловедения является обоснование радиационной стойкости материалов внутрикорпусных устройств (ВКУ) реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000, которые проектировались как несменяемый элемент конструкции со сроком эксплуатации, равным ресурсу корпуса реактора [21]. Особенностью элементов ВКУ, и в первую очередь – выгородки, изготовленной в реакторах российского производства из стали типа 08X18H10T, в реакторах типов PWR и BWR - из стали 321, является то, что в процессе эксплуатации они накапливают весьма значительный флюенс нейтронов и имеют уровень температур, обусловленный поглощением  $\gamma$ -квантов и нейтронов, при котором могут происходить значительные объемные изменения материала ВКУ из-за процесса вакансионного распухания под облучением (рис. 10). Ранее возможность проявления радиационного распухания в таком температурном интервале отрицалась. Сравнительно недавно стало известно, что это явление может иметь место в легководных тепловых реакторах. В американских, французских, японских и российских работах были обнаружены поры в ВКУ реакторов типа PWR (рис. 11) [22,23].

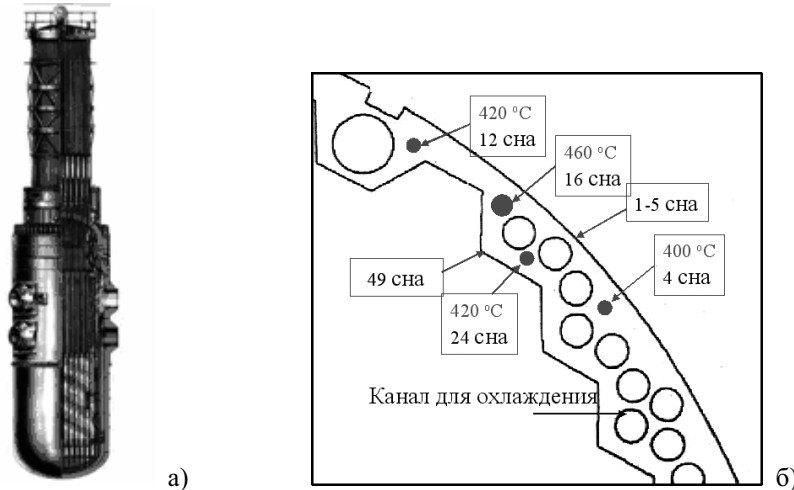


Рис. 10. Выгородка и температурное поле в сечении с максимумом нейтронного потока по высоте: а) выгородка; б) температурное поле в теле выгородки [23]

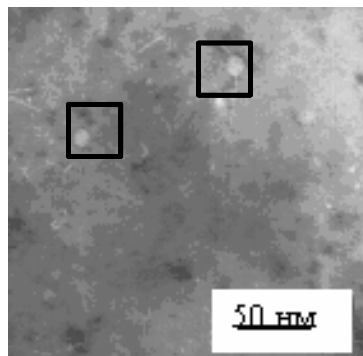


Рис. 11. Наблюдаемые поры во внутренних устройствах реактора ВВЭР-1000 (сталь 06X18H10T) РАЭС-3 [23]

Особенностью проявления распухания в условиях тепловых реакторов PWR, является резкое сокращение инкубационного периода распухания и значительное снижение температуры порообразования.

Потенциально более опасной является эта проблема для реакторов ВВЭР-1000, выгородка которых имеет более сложную форму и большую толщину, чем в реакторах PWR. Это приводит к локальному повышению температуры вплоть до 460°C и таким образом, к порообразованию даже без учета эффекта температурного сдвига.

Было показано, что при температурах облучения вблизи 335°C и дозах свыше 75 сна распухание аустенитных сталей составляет более 10%, а их пластичность резко падает.

В настоящее время при принятии решения о возможности продления ресурса реакторов ВВЭР Украины следует учитывать радиационное распухание и охрупчивание элементов ВКУ.

Сейчас главной задачей в решении проблем низкотемпературного распухания являются всестороннее изучения влияния условий эксплуатации (скорости создания повреждений, температуры, дозы, окружающая среда, синергетического влияния газовых примесей, напряжения, состав материала, его исходное состояние и др.).

### Реакторы на быстрых нейтронах

Создание широкомасштабной ядерной энергетики немыслимо без использования ядерных энергетических реакторов на быстрых нейтронах, обеспечивающих расширенное воспроизводство вторичного ядерного горючего и использование в ядерном топливном цикле всего добываемого природного урана, а впоследствии – тория.

Быстрые реакторы с топливным циклом на принципах самообеспечения и нераспространения ядерных материалов (БН-600, БН-800, БРЕСТ и др.) во многом составят основу широкомасштабной ядерной энергетики во второй половине нынешнего столетия. Ввод БН реакторов с 2040г. позволит снизить потребности АЭ в уране к 2100г. с 240 до 50 тыс.т /год (рис.12), а также организовать уничтожение долгоживущих изотопов.

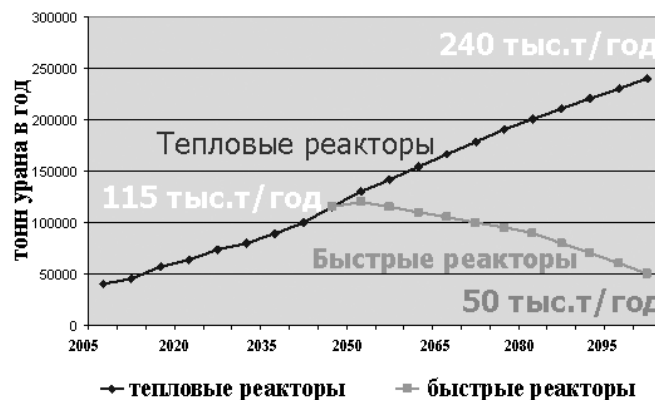


Рис. 12. Прогноз мировых потребностей в уране до 2100г. [24]

Высокие температуры и дозы облучения в реакторах БН (таблица 2) приводят к тому, что ключевой становится проблема создания конструкционного материала оболочек твэлов, который должен обладать комплексом механических и технологических свойств, совместимостью с теплоносителем и топливным материалом, а также стабильностью свойств при нейтронном облучении.

Таблица 2. Параметры реакторов на быстрых нейтронах

Плотность потока нейтронов	$3 \cdot 10^{15} - 10^{16}$ н/см <sup>2</sup> с
Скорость генерации Нс	20 – 30 аrpm/год
Скорость набора дозы	100 – 200 сна/год
Температура	400 – 650 <sup>0</sup> С

### Аустенитные нержавеющие стали

Из широкого спектра предлагаемых к использованию в активных зонах эксплуатируемых и разрабатываемых ядерных реакторов материалов наибольший интерес в качестве конструкционных материалов представляют аустенитные нержавеющие стали (АНС) (таблица 3).

К сожалению, радиационное распухание до настоящего времени является главным фактором, ограничивающим использование аустенитных нержавеющих сталей как конструкционных материалов для быстрых реакторов и реакторов будущих поколений [25].

Радиационное распухание в многокомпонентных АНС является результатом сложных структурно-фазовых превращений при облучении (рис.13), поэтому достижение необходимого уровня сопротивления распуханию

аустенитных сталей, пригодных для коммерческого использования с соответствующим легированием и термо-механической обработкой может быть получено только с пониманием всех явлений, вовлеченных в процессы радиационного распухания.

Таблица 3. Химический состав аустенитных сталей, используемых в активных зонах ядерных реакторов.

Сталь	Содержание элементов, % по массе*											
	Ni	Cr	Mo	C	Ti	Nb	Si	V	P	S	Mn	др.
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
AISI 316, США	10,0-14,0	16,0-18,0	2,0-3,0	≤0,08	-	-	≤1,0	-	-	-	≤2,0	B 0,0002
D9, США	14,0-16,0	14,0	1,4-2,3	-	0,2-0,35	-	0,8-1,0	-	-	-	1,8-2,3	-
PNC316, Япония	13,8	16,5	2,5	-	0,098	0,07	0,93	-	0,031	-	1,78	B 0,0044
15/15Ti, Франция	14,5-15,0	14,5-15,0	1,3-1,5	-	0,45-0,5	-	0,5	-	0,007	-	1,4-1,6	B 0,0065
15/15Si, Франция	14,5-15,0	14,5-15,0	1,3-1,5	-	0,5	-	0,085	-	0,007	-	1,3-1,5	B 0,004
1.4981, Германия	15,5-16,0	15,5-16,0	1,6-1,8	-	0,4-0,5	0,7-0,85	0,45	-	-	-	1,3-1,4	-
FV-548, Великобритания	16,0-17,0	11,5-12,0	1,1-1,2	1,4-1,5	0,9-1,0	-	0,3-0,4	-	-	-	-	-
09X16N15M3B (ЭИ-847), Россия	14,0-16,0	15,0-17,0	2,5-3,0	≤0,09	-	0,8-0,9	≤0,8	-	-	-	≤0,8	-
X16N15M3BP (ЭП-172), Россия	14,5-16,0	15,0-17,0	2,5-3,0	0,04-0,07	-	0,35-0,9 Nb/C= =9-13	0,3-0,6	-	≤0,02	-	0,5-0,9	B ≤0,008 Ce 0,15
08X18N10T, Россия	9,0-11,0	17,0-19,0	-	0,07-0,1	≥5×C, до 0,8	-	≤0,80	-	≤0,025	≤0,015	1,0-2,0	-
X16N15M2Г2ТФР (ЧС-68), Россия	14,0-15,5	15,5-17,0	1,9-2,5	0,06-0,08	0,2-0,5	-	0,3-0,6	0,1-0,3	0,014	0,004	1,1-2,0	B ≤0,005
ЭК-99, Украина	15,0-16,0	15,0-16,0	2,0-2,5	-	0,2-0,4	-	0,2-0,4	-	0,010	-	0,9-1,3	B ≤0,005

\* – основа – железо

По мнению авторов, достижение минимального уровня распухания напрямую связано с увеличением стабильности всех структурных компонентов (дислокационная структура, твердый раствор, система выделений вторичных фаз) при облучении.

В аустенитных нержавеющей сталей процесс эволюции с увеличением дозы облучения идет адекватно для материалов с ГЦК структурой: кластеры точечных дефектов → дефектные петли Франка  $a/3\langle 111 \rangle$  → совершенные призматические петли  $a/2\langle 110 \rangle$  → дислокационная сетка (рис. 14а,б,в,г,д), причём большинство петель Франка являются петлями межузельного типа.

Плотность дислокаций в сетке при дозах 20-40 сна достигает насыщения и составляет  $8-9 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ .

Радиационная стойкость АНС может быть улучшена за счет введения незначительного количества легирующих элементов и последующей термо-механической обработки [2].

Компонентный и примесный состав сталей, оказывая влияние на энергию дефекта упаковки и энергетические характеристики точечных дефектов, может видоизменять эволюцию дислокационной структуры в процессе облучения. Образование совершенных петель, которые подвижны и могут как скользить, так и переползать, облегчает формирование дислокационной сетки.

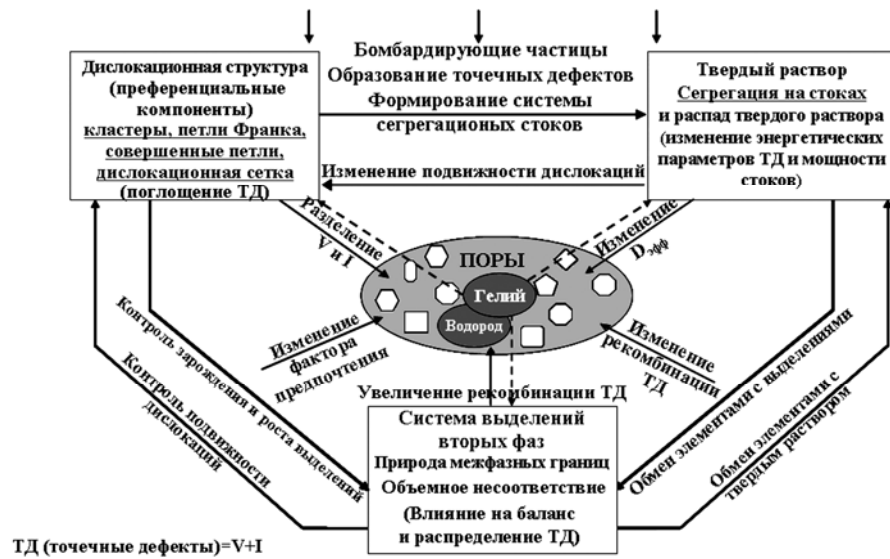
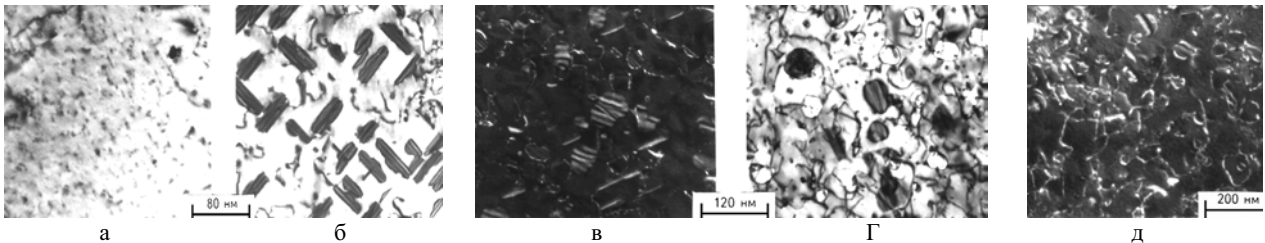


Рис. 13. Основные взаимосвязи в структуре облученных нержавеющей сталей [2]

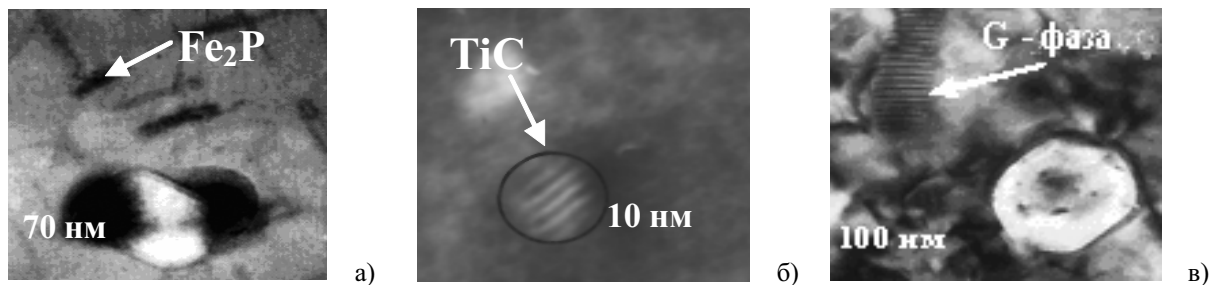
Рис.14. Стадии эволюции дислокационной структуры в облученной стали ЭИ-847 ( $Cr^{3+}$ ,  $E=3$  МэВ,  $T_{обл}=823K$ ,  $K=10^{-3}$  сна /с),  
а)  $D=0,5$  сна, б)  $D=2$  сна, в)  $D=10$  сна, г)  $D=15$  сна, д)  $D=25$  сна.

Легирование влияет на ключевые точки эволюции преобразования дислокаций от петель Франка  $a/3 \langle 111 \rangle$  к призматическим петлям  $a/2 \langle 110 \rangle$  и последующему формированию дислокационной сетки, которая является началом формирования распухания.

Следует отметить, что локальное изменение состава, обусловленное РИС, приводит к распаду твердого раствора и формирует выделения двух типов:

- выделения, подавляющие распухание за счет ускоренной рекомбинации точечных дефектов на поверхностях раздела частицы – матрица. Это карбиды типа  $M_6C$  (в основном  $TiC$ ,  $NbC$ ,  $VC$ ), фосфиды  $Fe_2P$ , или  $Ni_3Ti$  (рис.15 а, б);
- выделения, возникающие в результате распада твердого раствора, (особенно из-за сегрегации  $Ni$  и  $Si$ ) являются признаком потери радиационной стабильности на последних стадиях эволюции структуры-  $M_6C$  и  $G$ -фаза (рис.15 в).

Потоки точечных дефектов, созданные в процессе облучения, которые чрезвычайно подвижны при этих температурах, будут стимулировать эволюцию выделений второй фазы.

Рис. 15. Выделения вторых фаз в облученных АНС:  
а – фосфиды  $Fe_2P$ ; б – карбиды  $TiC$ ; в –  $G$ - фаза ( $(Ti, V, Nb, Mn)_6(Ni, Co)_6Si_7$ )

Эта эволюция может происходить по нескольким следующим направлениям: 1) рост выделений; 2) растворение выделений; 3) инфильтрация (переход в выделение элементов твердого раствора) в выделениях (из выделений) других элементов (из /или) в твердый раствор (рис.16).

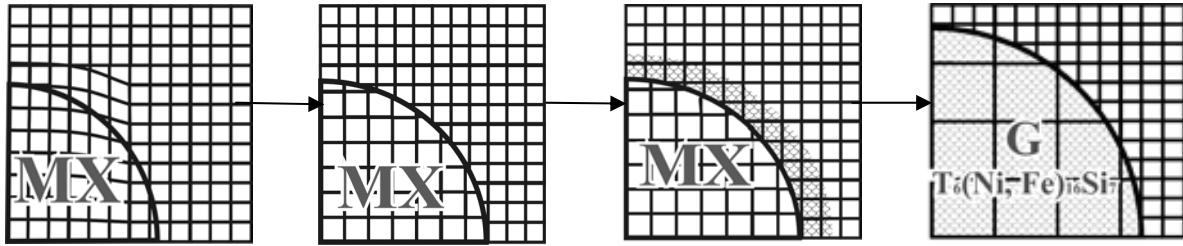


Рис. 16. Стадии трансформации выделений типа MX (М - металл, X: C, N) в процессе облучения [26]

Полученные результаты показывают [2]:

➤ достижение приемлемого уровня распухания напрямую связано с созданием более стабильной микроструктуры при облучении.

➤ Влияние легирования и обработки заключается в следующем:

▪ формировании более стабильной дислокационной структуры (сохранение мало подвижных петель Франка) и повышении уровня рекомбинации ТД. Это может быть достигнуто благодаря холодной деформации или процессами сегрегации легирующих элементов на дислокационных компонентах, что снижает их подвижность.

▪ Сохранении мелких карбидных выделений (TiC) и фосфидов (Fe<sub>2</sub>P) (продление срока их жизни служит основным фактором подавления распухания в этих сталях и сдвигает дозный интервал формирования G-фаз и η - карбидов в область более высоких доз.

Задержка формирования G-фазы и η-карбидов должна сохранить в твердом растворе достаточное количество таких элементов как Ni, Si и P, которые в основном влияют на зарождение и рост пор. Эволюция дефектной структуры является результатом «соревнования» между эволюцией фаз, препятствующих распуханию и фазами, образующимися в результате распада твердого раствора (G и M<sub>6</sub>C). Это «соревнование» может быть продлено подбором оптимального состава и термо-механической обработкой.

К сожалению, роль выделений как основного механизма, подавляющего распухание, в высшей мере зависит от окружения матрицы и может изменяться в процессе облучения. Также и легирующие элементы, вовлеченные в выделения, изменяют природу выделений, и модифицированные выделения взаимодействуют по-разному с точечными дефектами в процессе облучения. Взаимодействие матрицы и выделений через потоки точечных дефектов делает процессы эволюции микроструктуры комплексными и создает некоторые противоречия для понимания влияния легирующих элементов или роли выделений.

### Феррито-мартенситные сплавы

Феррито-мартенситные стали с содержанием хрома 9-12% в настоящее время являются приоритетными кандидатными материалами для оболочек и чехлов быстрых реакторов, первой стенки термоядерных реакторов, так как характеризуются малой наведенной активностью, низкими вакансионным распуханием (по сравнению с аустенитными сталями рис.17, 18) и ползучестью, высокой степенью устойчивости к высокотемпературному и гелиевому охрупчиванию (таблица 4).

Существуют различные международные программы, направленные на разработку перспективных реакторов нового 4 Поколения, а также создания термоядерных реакторов. Каждая из этих программ предусматривает использование феррито-мартенситных сталей, которые должны работать при дозах облучения не менее, чем ~100...200 сна и температурах 650-750<sup>0</sup>C, а также в большинстве случаев они будут находиться под влиянием очень высоких уровней гелия и водорода.

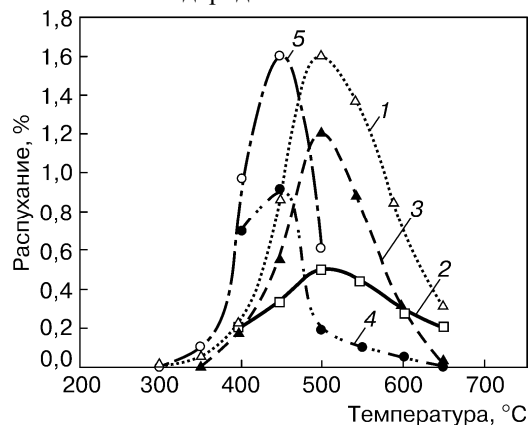


Рис. 17. Температурная зависимость распухания в материалах на основе Fe:

1- α-Fe (D=100 сна); 2- ЭП-450 (D=150 сна); 3- Fe-12%Cr (D=100 сна); 4- 01X13M4, Cr<sup>3+</sup> (D=100 сна); 5- 01X13M4, Ar<sup>3+</sup> (D=100 сна)

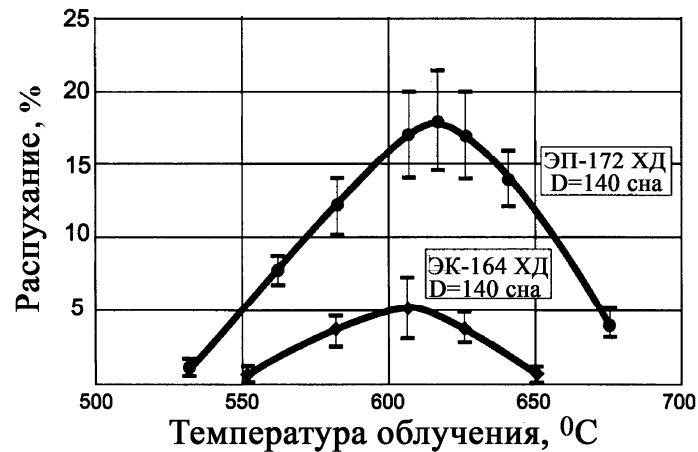
Рис. 18. Температурная зависимость распухания в аустенитных сталях (ЭП-172, ЭК-64) ( $Cr^{3+}$ ,  $D=140$  сна)

Таблица 4. Химический состав ряда 9-12% хромистых сталей [27]

Марка стали/ Страна	Химический состав, %										
	C	Si	Mn	Cr	Ni	Mo	V	W	Nb	B	другие эл-ты
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
EM12, Бельгия/ Франция	0,08- 0,12	0,30- 0,50	0,90- 1,20	9,0- 10,0		1,9- 2,1	0,25- 0,35	0,35- 0,45			
F82H, Япония	0,10	0,20	0,50	8,0			0,20	2,0		0,003	Ta-0,04; N менее 0,01
JLF-1, Япония	0,1	0,05		8,0			0,2	1,95			Ti-0,002, Ta-0,09, N-0,023
ORNL9Cr, США	0,1	0,21		8,8			0,18	1,97			Ti-0,01, Ta-0,07, N-0,023
EUROFE R, Европа	0,10- 0,12	0,05	0,4- 0,6	8,0- 9,0			0,20- 0,30	1,0- 1,2		0,004- 0,006	Ta-0,06-0,10; N-0,02-0,04
2X12M2, Чехия	0,20			11,6	0,5	2,20	0,30	0,5			
HT9, Швеция	0,20			12		1,0	0,25- 0,40				
FV48, Англия	0,10	0,46-	0,86	10,7	0,65	0,60	0,14		0,26		N-0,05
ЭП - 450, Россия	0,10- 0,15	0,60	0,60	11,0- 13,5	0,05- 0,30	1,2- 1,4	0,10- 0,30		0,30- 0,60	0,004	
ЭП - 823, Россия	0,10- 0,18	1,15- 1,3	0,5- 0,8	11,3	0,5- 0,85	0,6- 0,82	0,32	0,5- 0,8	0,26- 0,4	0,006	Ti-0,004,
ЭП-852, Россия	0,13	1,19	0,31	13,15	0,27	1,69	-		-	-	P-0,017
ЭП-900, Россия	0,14- 0,18	1,0- 1,3	0,6- 0,9	10,0- 12,0	0,5- 0,8	0,6- 0,9	0,2- 0,4	0,5- 0,8	0,2- 0,4	0,006	N-0,06-0,10
MA957, Франция	0,01	0,05	0,05- 0,11	14	0,13	0,3					Ti-1,05; Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -0,25; O-0,015- 0,22; P<0,005
1DK, Япония	0,045	0,019	0,013	12,87	0,16	-		2,81			P<0,005, S-0,001, Ti-0,52, N-0,015, O-0,186, Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -0,34

### Дисперсноупрочненные стали

Дисперсноупрочненные ферритные стали в настоящее время являются одними из наиболее перспективных материалов как для оболочек ТВС быстрых реакторов и первой стенки ТЯР, так и в качестве конструкционных материалов следующих поколений благодаря их превосходному сопротивлению распуханию. Необходимое повышение жаропрочности достигается надлежащим дисперсным упрочнением мелких частиц титана ( $TiO_2$ ) и/или иттрия ( $Y_2O_3$ ). Уникальная комбинация мелких размеров зерен, высокой плотности дислокации, и нанокластеров, содержащих атомы раствора Y-O и Y-O-Ti предполагает создание материалов с уникальными свойствами [28,29].

Важнейшим фактором, влияющим на свойства дисперсноупрочненных сталей, является обеспечение деформационного растворения в стальной матрице достаточно «крупных» оксидов иттрия размером 40-100 нм и их последующего выделения в виде эффективно упрочняющих сталь нанооксидов.

Необходимость исследования свойств материалов при таких тяжелых эксплуатационных условиях обуславливается последними наблюдениями, которые поставили под сомнение пригодность феррито – мартенситных сталей для использования при высоких температурах и больших скоростях генерации газов [2]. По этой причине для лучшего понимания не только природы малого распухания, но и причин радиационного охрупчивания и необходим анализ эволюции микроструктуры и модификации состава.

### Материалы термоядерных реакторов

Получение энергии в термоядерном реакторе основывается на использовании дейтерий – тритиевого топливного цикла в результате реакции (рис. 19):

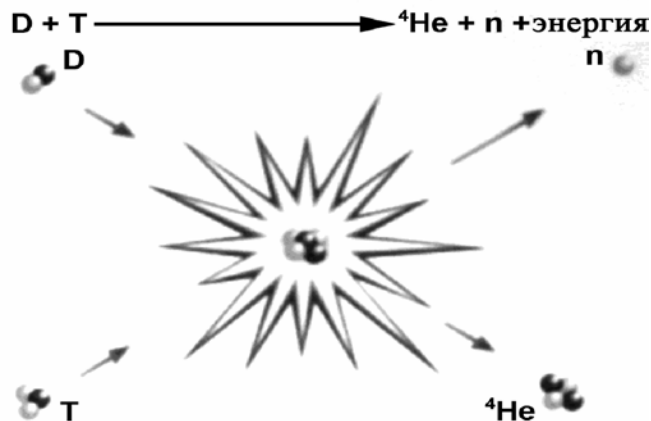


Рис. 19. Схематическое изображение термоядерной реакции



Энергия данной реакции составляет 17,6 МэВ, она распределяется между  $\alpha$ -частицей (3,5 МэВ) и нейтроном (14,1 МэВ) в виде кинетической энергии.

Таблица 5. Параметры термоядерных реакторов (ИТЕР, DEMO)

Плотность потока нейтронов	$7 \cdot 10^{14}$ н/см <sup>2</sup> с
Скорость генерации H	780 аrpm/год
Скорость генерации He	200 аrpm/год
Скорость набора дозы	20 сна/год

Из данных, представленных в таблице 5 можно обозначить основные проблемы материалов ТЯР в настоящее время. Такими проблемами являются объемные и поверхностные повреждения: распухание; радиационно-ускоренная ползучесть; структурно-фазовые изменения; повышенная концентрация атомов газа (He и H), усиливающих влияние радиационных эффектов (зарождение и стабилизация пор, изменение коэффициентов диффузии, охрупчивание и т.д.); радиационная эрозия, приводящая к утонению стенки и загрязнению плазмы.

Некоторые особенности блистеринга (рис. 20) и флекинга (рис. 21) поверхности материалов при облучении ионами гелия с энергией от 0,1 до 1,8 МэВ в интервале температур  $(0,1 \dots 0,8)T_{пл}$  представлены на рис. 16. Обнаруживается увеличение эрозии материалов за счет процесса термоциклирования. Экспериментально показано подавление блистеринга при убывающем от поверхности профиле распределения внедренных ионов гелия.

В ТЯР блистеринг будет полностью подавлен за счет размытия углового и энергетического распределений бомбардирующих частиц.



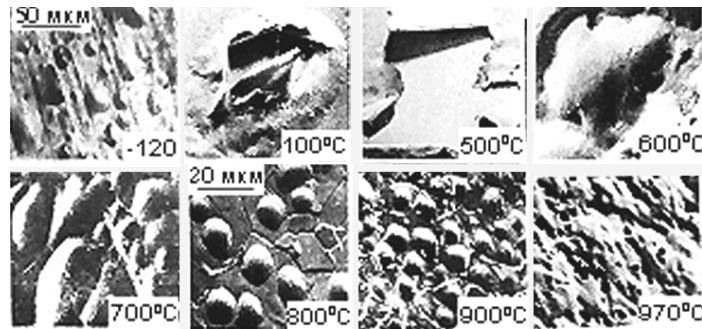


Рис. 20. Закономерности развития блистеринга и флекинга

Наблюдается эффект резкого (в 2–3 раза) снижения пластичности аустенитных нержавеющей сталей при воздействии мощных плазменных импульсов (1–10 МВт/см<sup>2</sup>·имп.). Выявленный эффект обусловлен образованием аморфных зон на границах зерен, а также образованием ячеистой структуры (рис. 21) [30].

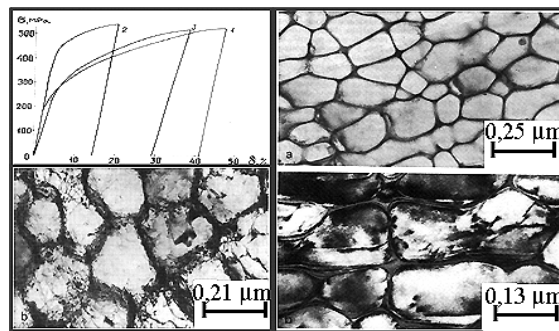


Рис. 21. Влияние мощных плазменных потоков

**Электроядерные системы**

В энергетических ядерных технологиях следующего поколения (4 Поколения) в электроядерных системах для генерации нейтронов предполагается использование ускорителей заряженных частиц (электронов или протонов) на энергию от 100 до 1000 МэВ (рис.22). Энергетический спектр эмитируемых нейтронов простирается до энергий 100 и более МэВ и сечения ядерных реакций трансмутации (n,2n), (n,p) и (n,α) возрастают, в связи с чем возрастает скорость трансмутационного изменения элементного состава сталей и уровень трансмутационного образования газообразных трансмутантов.

Повреждение конструкционных материалов электроядерных систем возникает как результат облучения высокоэнергетичными протонами и нейтронами и усугубляется действием жидких металлов и, возможно, других теплоносителей. Это повреждение качественно подобно повреждению в (t, d) термоядерных реакторах, но трансмутационные эффекты (образование H и He) выражены значительно сильнее.

Именно высокая скорость образования лёгких элементов будет ограничивать время жизни конструкционных материалов в области мишени. Обнаружено, что по сопротивлению радиационным эффектам аустенитные стали имеют преимущество при низких температурах, а мартенситные - при высоких температурах облучения (рис. 22) [32].

Нейтроны источника на основе реакции расщепления («spallation») прекрасно имитируют условие первой стенки термоядерного реактора, а источник на основе реакции Li (d, n) – полностью имитирует источник с энергией нейтронов 14 МэВ (RTNS).

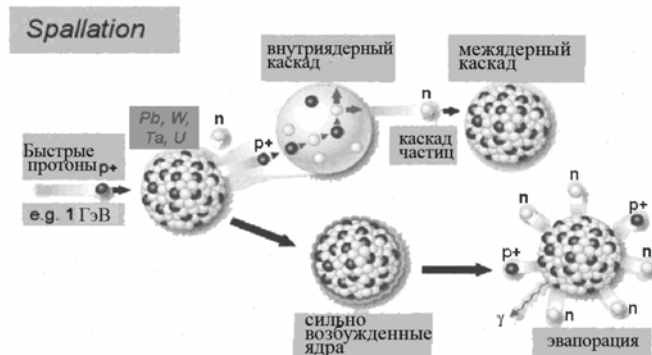


Рис. 22. Процессы “spallation”-ADS (2009-2012) [31]

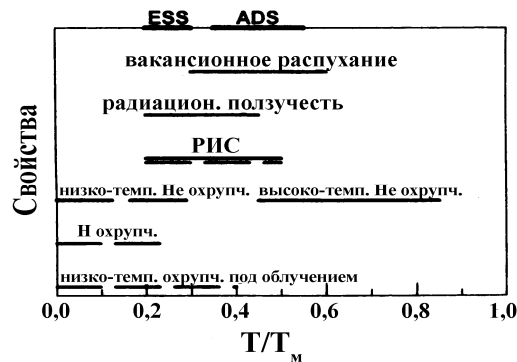


Рис. 23. Гомологические температуры проявления физико-механических свойств аустенитных (сплошная), мартенситных (пунктирная) нержавеющей сталей

Реакции с множественным выходом вторичных частиц: протонов (атомов Н),  $\alpha$ -частиц (атомов He), нейтронов (твердых трансмутантов).

1) Реакции трансмутации в ядерных реакторах деления приводят к образованию более тяжелых элементов



2) Реакции трансмутации в ТЯР и «spallation» образуют более легкие элементы



#### Материалы для подкритических сборок, управляемых ускорителем (ADS).

Таблица 6. Параметры электроядерных систем (ЭЯС)

Энергия протонов	350 МэВ-3ГэВ
Ток протонов	1 мА-5 мА
Скорость генерации Н	3500 – 4400 аrpm / год
Скорость генерации He	950 – 3500 аrpm / год
Скорость набора дозы	4,6-40 сна/ год

Представленные в таблице 6 данные показывают, что для данного типа установок поведение конструкционных материалов будет определяться влиянием больших доз облучения, наработкой больших количеств гелия и водорода в результате трансмутационных реакций.

В настоящее время исследование физических явлений, ответственных за деградацию материалов при “spallation” облучении сфокусировано на следующих явлениях:

1. Триггерное распухание.
2. Эволюция выделений.
3. Потеря пластичности, охрупчивание, разрушение.
4. Влияние кластеров дефектов на прочность и упрочнение.
5. Влияние газов (Н, He, He + Н).

Наработка газовых и твердых продуктов трансмутации приводит к потере пластичности.

На рис.24 приведен пример формирования при облучении в *LASREF* доз, составляющих всего 0,35 сна, выделений вторых фаз в результате трансмутационных реакций

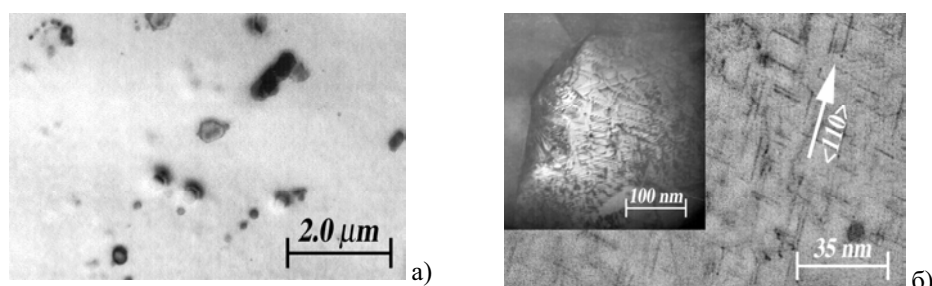


Рис. 24. Фазовые превращения при “spallation” облучении в сплаве Al 5052 (Al-3%Mg) а) необлученный; б) облученный LASREF (D=0,35сна, T<sub>обл</sub>=55<sup>0</sup>C)

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Несмотря на значительные усилия исследователей во всех странах, развивающих атомную энергетику, экономически необходимые уровни эксплуатации существующих ядерных реакторов до сих пор не достигнуты.

В значительной степени это определяется недостаточной радиационной стойкостью основных конструкционных материалов существующих ядерных установок - нержавеющей сталей различных классов и циркониевых сплавов.

Вызовы 21 века для радиационного материаловедения - обеспечение проблем безопасности и экономичности ЯЭУ.

Главными из них являются:

1. Обоснование продления ресурса эксплуатируемых реакторов на тепловых нейтронах, т.е. изучение влияния дозы, скорости набора дозы, процессов сегрегации, особенностей материала (состав, термообработка, структура) на микроструктурные изменения материалов конструкций за период работы реактора.

2. Разработка радиационно-стойких материалов для реакторов новых поколений. При этом особенно важным является изучение влияния на физико-механические свойства материалов скорости создания повреждений, напряжений, процессов сегрегации (быстрые реакторы); влияние дозы, концентрации газов (He, H), газовых и твердых трансмутантов (термоядерные реакторы, электроядерные системы ("spallation")).

3. Решение экологических проблем ядерной энергетики (создание мало активизируемых материалов, решение проблем отработавшего ядерного топлива (ОЯТ)).

Поставленные цели могут быть достигнуты только на базе современных научных представлений о роли микроструктурных процессов, отвечающих за эволюцию структурного состояния в процессе облучения и деградацию первоначальных физико-механических характеристик.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Національна безпека і оборона. – К.: Український центр економічних і політичних досліджень ім. О. Разумкова, 2005. – № 6. – С. 3.
2. Воеводин В.Н., Неклюдов И.М. Эволюция структурно-фазового состояния и радиационная стойкость конструкционных материалов – Киев: Наукова Думка, 2006 - 378 с.
3. Torrens I.M., Robinson M.I., Norgett M. A proposal method of calculation displacement dose rate // Nuclear Engineering and design. – 1978. – V.33. – P.50–54.
4. Орлов А.Н., Трушин Ю.В. Энергии точечных дефектов в металлах. – М.: Энергоатомиздат, 1983. – 80 с.
5. Heald D.T., Speight M.V. Point defect behavior in irradiated materials // Acta Metall. - 1975. - V.23. - P.1389- 1399.
6. Ehrhart P., Robrock K.N., Schober H.R. Basic defects in metals // Physics of Radiation Effects in Crystals. Eds. Johnson R.A., Orlov A.N. – Amsterdam: Elsevier Science Publishers, 1986. – P.3–106.
7. Naundorf V. Diffusion in metals and alloys under irradiation // International Journal of Modern Physics B. – 1992. – V.6, № 18. – P.2925–2986.
8. Waite T.R. General theory of bimolecular reaction rates in solids and liquids // J. Chem. Phys. - 1958. - V.28, № 1 - P.103-106.
9. Neklyudov I.M., Voyevodin V.N. Features of structure-phase transformations and segregation processes under irradiation of austenitic and ferritic-martensitic steels // JNM. – 1994. – V.212–215. – P.39– 44.
10. Perks J.M., Murphy S.M. Modeling the major element radiation- induced segregation in concentrated Fe-Cr-Ni alloys // Proc. of the Conference "Materials for nuclear reactor core applications", British Nuclear Energy Society (BNES), London. – 1988. – V.1. – P.165–170.
11. Рен Л.Е., Окамото П.Р. Неравновесная сегрегация в облученных сплавах // Фазовые превращения под облучением /Под. ред. Ф. Нолфи. – Челябинск: Металлургия, 1990. - 468 с.
12. Шилияев Б.А., Неклюдов И.М., Ожигов Л.С. и др. Моделирование процессов ядерной трансмутации конструкционных материалов при облучении протонами с энергией до 100 МэВ // ВАНТ. Сер.: ФПП и РМ. - 1990. - Вып.2 (53). - С.15- 21.
13. English C., Hyde J. and Ortner S. Microstructural development in RPV steels // Fracture, Plastic Flow and Structural Integrity. – 2000 – V.11 - P.103- 127.
14. Debarberis L., Acosta B., Sevini F. et. al. Role of nickel in semi-mechanistic analytical model for radiation embrittlement of model alloys // JNM. – 2005. - V.336 – P.210-216.

15. Fujii K., Fukuya K. Characterization of defect clusters in ion-irradiated A533B steel // Institute of Nuclear. Safety System Inc., 64 Sata, Mihama-cho, Mikata-gun, Fukui 919-1205, Japan Received 26 December 2003; accepted 4 October 2004.
16. Eyre B.L., Maher D.M., Perrin R.C. Phys J. // F: Metal Phys. – 1999. - V.7, №77. – P.1371- 1375.
17. Ulbricht A., Bohmert J., Viehrig H.-W. Microstructural and mechanical characterization of radiation effects in model reactor pressure vessel steels // Journal of ASTM International. - November/ December 2005. - V.2-10- P.151-164.
18. Kuleshova E.A., Gurovich B.A., Shtrombakh Ya.I. et al. Comparison of microstructural features of radiation embrittlement of VVER – 440 and VVER – 1000 reactor pressure vessel steels // JNM. – 2002. - V.300 – P.127 - 140.
19. Баландин Ю.Ф., Горынин И.В., Звездин Ю.И., Марков В.Г. Конструкционные материалы АЭС. - М.: Энергоиздат, 1984. – 236с.
20. Nikulina A.V., Markelov V.A., Voyevodin V.N. Irradiation induced microstructural changes in Zr-Sn-Nb-Fe alloy // JNM. – 1996. - V.238. – P.123-127.
21. Неустроев В.С., Голованов В.Н., Шамардин В.К. и др. Радиационные явления в стали X18H10T, облученной в различных реакторах при условиях близких к условиям эксплуатации ВКУ ВВЭР // Сборник докладов 6-й российской конференции по реакторному материаловедению. – Димитровград, 2001.–Т.3, Ч.1. – С.3–23.
22. Neustroev V.S., Shamardin V.K. Russian viewpoint on swelling in VVERs // 1st International Workshop on Voids in In-Core Structural Materials in LWR, December 2003, Kyoto, Japan. – issued in CD format, no page numbers.
23. Garner F. A. Void swelling of austenitic internal components of PWRs and VVERs, and its possible impact on plant life extension // 5th International Conference on Nuclear and Radiation Physics, September 2005, Almaty, Kazakhstan – issued in CD format, no page numbers.
24. Головинский С.А., Бойцов А.В. Сырьевое обеспечение потребностей действующей и инновационной атомной энергетики // Международная конференция «Развитие атомной энергетики на основе реакторов на быстрых нейтронах с замкнутым топливным циклом. Стратегия и перспективы международного сотрудничества», 24-25 ноября 2005, Москва, Россия – на CD.
25. Garner F.A. Irradiation Performance of Cladding and Structural Steels in the Liquid Metal Reactors, in Material Science and Technology. Eds: R.W.Cahn, P.Haasen and E. J.Kramer (VCH Weinheim) // Nuclear Materials. - 1994. – V.10A. – P.12-14.
26. Voyevodin V. Research work report // Japan Nuclear Cycle Development Institute - TN 9400, O-arai, 2001.- P. 12-16.
27. Ланская К.А. Высокохромистые жаропрочные стали. - М.: Металлургия, 1976. - 216 с.
28. Klimiankou M., Lindau R., Moslang A. TEM characterization of structure and composition of nanosized ODS particles in reduced activation ferritic-martensitic steels // JNM. – 2004. – V.329–333. – P.347–351.
29. Miller M.K., Hoelzer D.T., Kenik E.A., Russell K.F. Nanometer scale precipitation in ferritic MA/ODS alloy MA 957 // JNM. – 2004. – V.329–333. – P.338–341.
30. Ukai S., Akasaka N., Hattori K. The effects of phase stability on void swelling in P, Ti- modified 316 stainless steels during neutron irradiation // Proc. of 18-th Intern. Symp. “Effects of Radiation on Materials”, ASTM STP 1325, 1998. – P.808–821.
31. Vladimirov P., Moslang A. Irradiation conditions of ADS beam window // Seven International Workshop on Spallation Materials Technology, May 29- June 3, 2005, Thun, Switzerland – issued in CD format, no page numbers.
32. Yung P. Radiation effects in structural materials of spallation targets // JNM. – 2002. –V.301. – P.15-22.

## PROBLEMS OF RADIATION STABILITY STRUCTURAL MATERIALS IN NUCLEAR POWER

V.N. Voyevodin, I.M. Neklyudov

*National Science Centre “Kharkov Physico-Technical Institute”,  
Akademicheskaya st. 1, Kharkov 61108, Ukraine, e-mail: voyev@kipt.kharkov.ua*

Mechanisms of radiation damage of structural materials for nuclear power and problems of radiation-resistant materials development for operating and prospective reactors of new generations are examined. Analysis of state and of prospective of this problem solution shows that despite the considerable efforts of scientists round the world economically necessary levels of operation of existing nuclear reactors are not attained. This is defined to a considerable extent by insufficient radiation resistance of the main structural materials of operating nuclear plants – of different classes stainless steels and of zirconium alloys. The key problem for material science security of modern nuclear power and of future power engineering is the study of micro structure evolution and of its influence on degradation of initial physical-mechanical characteristics of materials.

**KEY WORDS:** nuclear energy, structural materials, radiation-strength materials, radiation defects, thermal reactors, fast nuclear reactors, effect of transmutation, spallation systems.